
Winkelkorrelationsuntersuchungen an Seltenen Erden in Halbleitern mit großer Bandlücke

Dissertation
zur
Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)
der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

vorgelegt von
Riccardo Valentini
aus
Rom (Italien)

Bonn, Mai 2011

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

1. Gutachter: Privatdozent Dr. Reiner Vianden

2. Gutachter: Professor Dr. Karl Maier

Tag der Promotion: 24. Juni 2011

Erscheinungsjahr: 2011

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1. Theorie	3
1.1 Spin-Bahn-Kopplung und Feinstruktur	3
1.2 Hyperfeinstruktur	4
1.2.1 Magnetische Wechselwirkung	4
1.2.2 Elektrostatische Wechselwirkung	6
2. Die Messmethode	11
2.1 Kernabregung durch γ -Strahlung	11
2.1.1 Ausstrahlcharakteristik	12
2.2 Die $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation	14
2.2.1 Die gestörte Winkelkorrelation	19
2.2.2 Magnetische Hyperfeinwechselwirkung	20
2.2.3 Elektrische Hyperfeinwechselwirkung	22
2.3 Messapparatur	26
2.4 Datenanalyse	32
3. Die Probenpräparation	37
3.1 Das Probenmaterial	37
3.1.1 Galliumnitrid	42
3.1.2 Aluminiumnitrid	43
3.2 Eigenschaften von Seltenen Erden	44
3.3 Die Sonde $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$	45

3.4	Die Sonde $^{140}\text{La}(^{140}\text{Ce})$	49
3.5	Produktion und Implantation	50
3.5.1	Die Bonner Methode	51
3.5.2	Die Methode am CERN	60
3.6	Thermische Behandlung der Proben	62
3.7	Kryostate	63
4.	Messungen in GaN	65
4.1	^{172}Lu in GaN	65
4.1.1	Vorbereitung	65
4.1.2	Messungen bei Raumtemperatur	69
4.1.3	Messungen bei tiefen Temperaturen	73
4.2	^{140}La in GaN	84
4.2.1	Vorbereitung	84
4.2.2	Messungen bei tiefen Temperaturen	86
5.	Messungen in AlN	91
5.1	^{172}Lu in AlN	91
	Zusammenfassung	99
A.	Anpassungsdaten	101
A.1	^{172}Lu in GaN	101
A.2	^{140}La in GaN	104
A.3	^{172}Lu in AlN	104
B.	Energiespektren	105
B.1	Vergleich vor und nach der Implantation	105
	Literaturverzeichnis	109

Einleitung

Die Optoelektronik ist heute in vielen elektronischen Anwendungsgebieten nicht mehr wegzudenken. Ihr Einsatzgebiet erstreckt sich von der normalen Haushaltsbeleuchtung, über die Beleuchtung von Displays mit stromsparenden Leuchtdioden (engl. *Light Emitting Diode*, kurz LED) bis zu den Speichermedien mit Laserdioden. Der Druck nach Materialien zu suchen, die Halbleitereigenschaften aufweisen, die stabil sind und durch Dotierung eine hohe Leuchtstärke in möglichst verschiedenen Farbtönen haben, lässt nicht nach.

Geeignete Materialien sind beispielsweise die III-V-Nitrid-Halbleiter Galliumnitrid (GaN) und Aluminiumnitrid (AlN). Ihre große, direkte Bandlücke macht sie nicht nur für optoelektronische Bauteile interessant, sondern, durch ihre gegenüber Silizium höhere Arbeitstemperatur und Frequenz, auch für Anwendungen in der Hochtemperatur-, Hochleistungselektronik und Mikrowellentechnik. Weiterhin werden solche Halbleiter in der Umwelt für Ultraviolett-Detektionssysteme eingesetzt.

Leuchtdioden, die auf GaN-Basis hergestellt werden, strahlen wegen der Bandlücke von 3,4 eV im ultravioletten Bereich. Durch Dotierung mit Lanthanoiden (Seltene Erden) wird Elektrolumineszenz auch bei Raumtemperatur beobachtet. Die Wellenlänge der Lumineszenz ist dabei nur von der Seltenen Erde abhängig.

Bisher auf dem Markt verfügbare Produkte werden durch Schichtwachstumsverfahren als dünne Schichten auf Substraten aufgewachsen, die Dotierung erfolgt während des epitaktischen Wachstums. Hier kann man Schicht für Schicht eine vertikale Auflösung erreichen. Eine strukturiertere Dotierung kann durch die bewährte Methode der Ionenimplantation erzielt werden. Hier kann insbesondere dasselbe Bauteil mit verschiedenen Seltenen Erden dotiert werden, um verschiedene Farben zu verwirklichen. Bei einer solchen Implantation werden lokal erhebliche Gitterschäden verursacht, die durch eine thermische Behandlung weitgehend beseitigt werden müssen.

Die Seltenen Erden unterscheiden sich hauptsächlich durch die unterschiedlich besetzte $4f$ -Schale. Die intra-atomaren Übergänge in dieser Schale sind für die Lumineszenz der LED's verantwortlich. Da diese Schale kernnahe (näher als $5d$ und $6s$) liegt, sind sich Seltene Erden chemisch sehr ähnlich. Das ist von großem Vorteil, denn bei Dotierungen mit verschiedenen Seltenen Erden kann die nach-

folgende thermische Behandlung mit den selben Parametern erfolgen. Es besteht also die Möglichkeit ein einziges Bauteil mehrmals und unterschiedlich zu dotieren und sämtliche sonst separat durchzuführende Ausheilschritte zu einen zusammenzuführen.

Die Methode der gestörten Winkelkorrelation ist gut geeignet, um das Verhalten von Seltenen Erden nach der Implantation zu erforschen. Das Prinzip dieser Messmethode besteht darin, eine radioaktive Sonde in das zu untersuchende Wirtsmaterial zu implantieren. Die Sonde erfährt eine elektrische Quadrupolwechselwirkung, die von einem elektrischen Feldgradienten am Sonden-Kernort hervorgerufen wird. Hierbei kann die Größe des elektrischen Feldgradienten gemessen werden. Es ist also möglich Informationen über die nächste Umgebung der Sonde zu erringen. Unser Interesse besteht darin, die Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten zu untersuchen.

Seltene Erden, die sich für eine solche Untersuchung eignen, sind ^{172}Lu (^{172}Yb) und ^{140}La (^{140}Ce). Die Wahl dieser Sonden ist nicht zufällig. ^{172}Yb ist das vorletzte Element der Lanthanoiden-Reihe und hat somit ein Loch in der $4f$ -Schale und ^{140}Ce ist das zweite Element dieser Reihe und hat somit ein Elektron in der $4f$ -Schale. Es soll der gleiche Halbleiter mit beiden Sonden bei tiefen Temperaturen untersucht werden und festgestellt werden, ob und welche Unterschiede es dabei gibt.

Ein weiteres Ziel dieser Arbeit liegt in der Entwicklung eines Prozesses zur Herstellung und Implantation der Sonde ^{172}Lu (^{172}Yb) am Messort in Bonn. Diese Sonde wurde bisher an der ISOLDE-Einrichtung am CERN hergestellt und implantiert. Der lange Probentransport zum Messort nach Bonn und die Tatsache, dass dies nur ein- bis zweimal pro Jahr möglich ist, machen diese Vorgehensweise notwendig.

Kapitel 1

Theorie

Eine detaillierte Beschreibung der theoretischen Grundlagen zu der Hyperfeinwechselwirkung kann in der Literatur gefunden werden; siehe [1, 2, 3]. Hier sollen lediglich einige grundlegende Begriffe in Erinnerung gerufen werden, die einerseits im Kapitel 2 verwendet werden, andererseits für das Verständnis der Ergebnisse einiger Messungen gebraucht werden.

1.1 Spin-Bahn-Kopplung und Feinstruktur

Bewegt sich ein Elektron um einen Atomkern, so wird im eigenen Ruhesystem durch die Relativbewegung ein Magnetfeld \vec{B}_l erzeugt, das proportional und parallel zum Bahndrehimpuls \vec{l} des Elektrons ist. Das Elektron besitzt mit seinem Eigendrehimpuls (Spin) ein eigenes magnetisches Moment $\vec{\mu}_s$, welches mit diesem magnetischen Feld und damit mit dem Bahndrehimpuls wechselwirkt. Aus dieser Kopplung von Bahndrehimpuls \vec{l} und Spin \vec{s} folgt eine neue Erhaltungsgröße, der Gesamtdrehimpuls

$$\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}$$

mit $j = l \pm \frac{1}{2}$ und $m_j = -j, -j + 1, \dots, j - 1, j$

Bei Atomen mit mehreren Elektronen setzen sich die einzelnen Bahndrehimpulse \vec{l}_i vektoriell zusammen zu einem Gesamt-Bahndrehimpuls \vec{L} und die Spins \vec{s}_i zusammen zu einem Gesamt-Spin \vec{S} . Gesamt-Bahndrehimpuls und Gesamt-Spin koppeln zum Gesamtdrehimpuls

$$\vec{J} = \vec{L} + \vec{S} \tag{1.1}$$

Dies nennt man *LS*-Kopplung. Bei schweren Atomen tritt *jj*-Kopplung auf, hier werden die einzelnen Gesamtdrehimpulse \vec{j}_i zum Gesamtdrehimpuls \vec{J} vektoriell zusammengesetzt.

Sowohl mit dem Spin des Elektrons als auch mit seinem Bahndrehimpuls ist ein magnetisches Moment verbunden. Aus der Wechselwirkung beider Momente ergibt sich eine magnetische Energie, die unterschiedlich ist, je nachdem ob jene parallel oder antiparallel zueinander stehen.

$$E_{FS} = -\vec{\mu}_S \cdot \vec{B}_L$$

Diese Energie führt zusammen mit der relativistischen Korrektur für die Energie des Elektrons zur Feinstrukturaufspaltung. Spektrallinien vieler Atome treten so oft als Doppellinien (Doublets) auf.

1.2 Hyperfeinstruktur

Die Atomkerne können elektrischen und magnetischen Feldern unterschiedlichen Ursprungs ausgesetzt werden. Es kommen Felder in Frage, die aus der molekularen oder kristallinen Umgebung des Atoms erzeugt werden – wie im Festkörper von den Elektronen und den Atomrümpfen (Elektronenhülle) in der Umgebung des Kerns – oder externe, makroskopische Felder, die im Laboratorium erzeugt werden. Die Wechselwirkung des Kerns (Drehmoment und Spin) mit den elektrischen und magnetischen Feldern nennt man Hyperfeinwechselwirkung.

1.2.1 Magnetische Wechselwirkung

Den Atomkernen kann man, wie auch den Elektronen, einen Spin und ein magnetisches Moment zuordnen. So ist die magnetische Wechselwirkungsenergie zwischen dem magnetischen Moment des Kerns $\vec{\mu}$ und dem Magnetfeld (magnetische Flussdichte) \vec{B} , das z.B. die Elektronenhülle am Kernort erzeugt,

$$E_{mag} = -\vec{\mu} \cdot \vec{B} \tag{1.2}$$

Die magnetische Wechselwirkungsenergie ist klein gegenüber der Kopplungsenergie der Elektronen innerhalb der Hülle und der Nukleonen innerhalb des Kerns (Wechselwirkungsenergie der Feinstruktur). Jene Zusatzenergie bewirkt einerseits eine Aufhebung der energetischen *m*-Entartung der Kernniveaus und andererseits eine zeitliche Veränderung der Kernspins (Präzession).

Kernpräzession

Diese von der magnetischen Wechselwirkung verursachte zeitliche Veränderung des ursprünglichen Kernzustandes kann mit der zeitabhängigen Wellenfunktion

$$\Psi(t) = \Lambda(t) \cdot \Psi(0)$$

beschrieben werden, wobei $\Lambda(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}H \cdot t}$ der Zeitentwicklungsoperator ist. Hierbei ist $H = -g\mu_K I_z B_z$ der Hamiltonoperator und weiterhin ist g der Kern-g-Faktor, der im Weiteren nur noch g-Faktor genannt werden soll, und μ_K das Kernmagneton. Es ergibt sich

$$\Psi(t) = e^{-iI_z \cdot \left(-\frac{1}{\hbar}g\mu_K B_z\right) \cdot t} \cdot \Psi(0)$$

Für den Zeitentwicklungsoperator, der also ein Drehoperator um die z -Achse ist, kann man schreiben

$$\Lambda(t) = e^{-iI_z \cdot \omega_L \cdot t} \quad (1.3)$$

wobei $\omega_L = -\frac{1}{\hbar}g\mu_K \cdot B_z$ die Larmor-Frequenz ist.

Aufhebung der Entartung

Weiterhin bewirkt die magnetische Wechselwirkung eine gegenseitige Ausrichtung von Drehimpuls des Kerns \vec{I} und Drehimpuls der Elektronenhülle \vec{J} . Die Hyperfeinstrukturwechselwirkung führt zu einer Kopplung der beiden Drehimpulse \vec{I} und \vec{J} zum Gesamtdrehimpuls des Atoms

$$\vec{F} = \vec{I} + \vec{J} \quad (1.4)$$

mit

$$|I - J| \leq F \leq I + J$$

Die Hyperfeinstruktur-Aufspaltungsenergie ist dann gegeben durch

$$\Delta E_{HFS} = \frac{\mu_K \mu_I}{2IJ} B_z \cdot (F(F + 1) - I(I + 1) - J(J + 1)) \quad (1.5)$$

wobei μ_K das Kernmagneton ist und

$$\vec{\mu}_I = \frac{g\mu_K}{\hbar} \vec{I} = \frac{\mu_I \mu_K}{\hbar} \frac{\vec{I}}{I}$$

das magnetische Moment des Kerns in Richtung \vec{I} .

Quantenmechanisch gibt es nur bestimmte Einstellmöglichkeiten für das magnetische Moment, weil der Drehimpuls richtungsgequantelt ist. So gilt für die magnetische Wechselwirkungsenergie in einem Magnetfeld \vec{B} in z -Richtung

$$\begin{aligned} E_{mag} &= \langle I, m | -\mu_z B_z | I, m \rangle \\ E_{mag} &= -g\mu_K \cdot m \cdot B_z \end{aligned}$$

Für den Energieabstand zwischen zwei benachbarten m -Zuständen ergibt sich dann

$$\begin{aligned} \Delta E_{mag} &= E(m+1) - E(m) & m = -I, \dots, I \\ \Delta E_{mag} &= -g\mu_K B_z \end{aligned}$$

Hieraus folgt, dass die Aufspaltung in $|2I+1|$ Energieniveaus äquidistant ist und der Abstand zwischen den Niveaus $\hbar\omega_L$ beträgt.

1.2.2 Elektrostatische Wechselwirkung

Im Festkörper ist der Atomkern von elektrischen Ladungen umgeben. Diese erzeugen am Kernort ein Potential $\varphi(\vec{r})$. Die elektrostatische Wechselwirkungsenergie zwischen nicht kugelsymmetrischen Kernen und z.B. der Hülle lässt sich schreiben als

$$E_{el} = \int \rho(\vec{r}) \cdot \varphi(\vec{r}) d^3r \quad (1.6)$$

wobei $\rho(\vec{r})$ die Ladungsverteilung des Kerns ist und $\varphi(\vec{r})$ das elektrische Potential der Hülle am Kernort ($V = q\varphi(\vec{r})$).

Das elektrische Potential kann in einer Taylor-Reihe am Kernschwerpunkt ($r = 0$) entwickelt werden

$$\varphi(\vec{r}) = \underbrace{\varphi(0)}_{\varphi_0} + \underbrace{\frac{\partial\varphi(0)}{\partial x}x + \frac{\partial\varphi(0)}{\partial y}y + \frac{\partial\varphi(0)}{\partial z}z}_{\varphi_1} + \frac{1}{2} \underbrace{\left(\frac{\partial^2\varphi(0)}{\partial x^2}x^2 + \dots \right)}_{\varphi_2} + \dots$$

Für die elektrostatische Energie des Kerns im elektrischen Feld der Hülle gilt somit

$$E_{el} = E_0 + E_1 + E_2 + \dots$$

E_0 stellt den Monopolterm dar, E_1 den Dipolterm, E_2 den Quadrupolterm und so weiter. Die ersten drei Terme sollen im Einzelnen diskutiert werden, höhere Glieder liefern meist zu kleine Beiträge, um hier in Betracht gezogen zu werden.

Monopolterm

Für den ersten Term der Entwicklung gilt

$$E_0 = \int \rho(\vec{r}) \cdot \varphi(0) d^3r = \varphi(0) \cdot \int \rho(\vec{r}) d^3r \quad (1.7)$$

Der Monopolterm beschreibt die elektrostatische Energie und folglich Wechselwirkung zwischen dem ausgedehnten Kern und der Elektronenhülle, also die sogenannte Coulombenergie einer Punktladung. Er hängt nur vom Radius des Kerns ab und bewirkt keine Aufspaltung der m -Zustände sondern lediglich eine Verschiebung der Niveaus. So sind beispielsweise Spektrallinien zweier Isotope unterschiedlicher Radien leicht verschieden, was man Isotopieverschiebung nennt.

Dipolterm

Für den zweiten Term der Entwicklung gilt

$$E_1 = \int \rho(\vec{r}) \cdot \varphi_1 d^3r \quad (1.8)$$

$$E_1 = \int \rho(\vec{r}) \cdot \sum_{i=1}^3 \frac{\partial \varphi(0)}{\partial x_i} x_i d^3r$$

$$E_1 = \sum_{i=1}^3 \frac{\partial \varphi(0)}{\partial x_i} \int \rho(\vec{r}) \cdot x_i d^3r$$

Die Ladungsdichte $\rho(\vec{r})$ hat gerade Parität, d.h. $\rho(\vec{r}) = \rho(-\vec{r})$. Die Komponenten x_i (also x , y , z) sind ungerade Funktionen. Ein Integral über d^3r einer geraden und einer ungeraden Funktion verschwindet. Es gilt also

$$E_1 = 0$$

Der elektrische Dipolterm verschwindet.

Quadrupolterm

Für den dritten Term der Entwicklung gilt

$$E_2 = \int \rho(\vec{r}) \cdot \varphi_2 d^3r \quad (1.9)$$

$$E_2 = \int \rho(\vec{r}) \cdot \frac{1}{2} \sum_{\substack{i=1 \\ j=1}}^3 \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial x_i \partial x_j} x_i x_j d^3r$$

$$E_2 = \sum_{\substack{i=1 \\ j=1}}^3 \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial x_i \partial x_j} \cdot \frac{1}{2} \int \rho(\vec{r}) \cdot x_i x_j d^3r$$

Führt man nun den elektrischen Feldgradienten am Kernort als

$$V_{ij} = \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial x_i \partial x_j}$$

und das Quadrupolmoment als Tensor zweiter Stufe als

$$Q_{ij} = \sum_{\substack{i=1 \\ j=1}}^3 \frac{1}{2} \int \rho(\vec{r}) \cdot x_i x_j d^3r$$

ein, so kann der Quadrupolterm geschrieben werden als

$$E_2 = \sum_{i,j}^3 V_{ij} \cdot Q_{ij}$$

Die Größen V_{ij} bilden eine symmetrische 3×3 Matrix, die sich durch eine Hauptachsentransformation diagonalisieren lässt.

$$\begin{pmatrix} V_{xx} & V_{xy} & V_{xz} \\ V_{yx} & V_{yy} & V_{yz} \\ V_{zx} & V_{zy} & V_{zz} \end{pmatrix} \implies \begin{pmatrix} V_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & V_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & V_{zz} \end{pmatrix}$$

Hierbei ist $V_{ii} = \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial x_i^2}$ der elektrische Feldgradient in x_i -Richtung. So ergibt sich für den Quadrupolterm

$$E_2 = \int \rho(\vec{r}) \cdot \frac{1}{2} \sum_{i=1}^3 \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial x_i^2} x_i^2 d^3r$$

Die Ladungsdichte der Elektronen am Kernort ist gleich Null. Elektronen der s -Schalen sind hier ausgeschlossen, da sie wegen ihrer Kugelsymmetrie ohnehin keinen Beitrag liefern. Für die Quadrupolwechselwirkung kommen also nur Ladungen in Frage, die außerhalb des Kerns liegen. Mathematisch wird dies dadurch beschrieben, dass der elektrische Feldgradient $\sum_{i=1}^3 \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial x_i^2} = \vec{\nabla} \cdot \vec{E}$ divergenzfrei ist $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0$ oder gleichbedeutend, dass V_{ij} durch Hauptachsentransformation keine Spur hat $\sum_i V_{ii} = 0$. Hier geht die Poissongleichung $\nabla^2 \varphi = -\frac{\rho}{\epsilon_0}$ in die Laplacegleichung $\nabla^2 \varphi = 0$ über.

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial z^2} &= 0 \\ V_{xx} + V_{yy} + V_{zz} &= 0 \end{aligned}$$

Durch geeignete Wahl des Hauptachsensystems erreicht man, dass gilt

$$|V_{zz}| \geq |V_{yy}| \geq |V_{xx}| \quad (1.10)$$

Es ist eine übliche Konvention das Koordinatensystem mit V_{zz} als größter Komponente zu wählen. Als Parameter gibt man üblicherweise V_{zz} und den Asymmetrieparameter

$$\eta = \frac{V_{yy} - V_{xx}}{V_{zz}} \quad (1.11)$$

an. Für kugelsymmetrische Ladungsverteilungen (Elektronen der s -Schalen) ist $V_{xx} = V_{yy} = V_{zz}$, da aber $\sum_i V_{ii} = 0$ ist, müssen alle drei Komponenten gleich Null sein und tragen daher nicht zu der Quadrupolenergie bei. Für axialsymmetrische Ladungsverteilungen sind $V_{xx} = V_{yy}$ und folglich wieder $\eta = 0$. Der Asymmetrieparameter beschreibt also die Abweichung des elektrischen Feldgradienten von der idealen Axialsymmetrie.

Sei nun Axialsymmetrie (Zylindersymmetrie) in z -Richtung angenommen. So ist $\frac{\partial \vec{E}_z}{\partial z} = \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial z^2} = V_{zz}$ der elektrische Feldgradient in z -Richtung. Für die Quadrupolenergie E_2 gilt mit $r^2 = x^2 + y^2 + z^2$

$$\begin{aligned} E_2 &= \int \frac{1}{4} \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial z^2} (3z^2 - r^2) \cdot \rho(\vec{r}) d^3r \\ E_2 &= \frac{1}{4} V_{zz} \cdot e \cdot Q_z \end{aligned} \quad (1.12)$$

mit

$$Q_z = \frac{1}{e} \int (3z^2 - r^2) \rho(\vec{r}) d^3r$$

Das Quadrupolmoment verschwindet für kugelsymmetrische Ladungsverteilungen. Der Beitrag E_2 wird also von einem deformierten Kern in ein inhomogenes Feld verursacht. Es ist allgemein üblich durch die Elementarladung e zu dividieren und das Quadrupolmoment des Kerns Q_K in Einheiten einer Fläche anzugeben¹.

¹ $[Q_K] = 1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$

Kapitel 2

Die Messmethode

Die theoretischen Grundlagen dieses Kapitels können in der Literatur [4] detailliert nachgelesen werden. Eine ausführliche mathematische Beschreibung findet sich beispielsweise im Frauenfelder-Steffen [5].

2.1 Kernabregung durch γ -Strahlung

Atomkerne, die sich im Grundzustand befinden, können ähnlich wie die Atomhülle durch Energiezufuhr in energetisch höher liegende Anregungszustände versetzt werden. Es können ein oder mehrere Nukleonen dazu beitragen. Diese Anregung kann durch elektromagnetische Energiezufuhr von außen oder als Restprodukt einer Kernabregung oder eines radioaktiven Zerfalls stattfinden. Der Übergang in den Grundzustand kann dann durch Emission eines Teilchens stattfinden oder durch elektromagnetische Wechselwirkung. Aus der emittierten Strahlung können die Energie und die Übergangswahrscheinlichkeit beobachtet werden. Die Winkelverteilung der Strahlung kann bestimmt werden sofern der Kernspin, der am Kernort mit den vorliegenden elektromagnetischen Feldern koppelt, eine Vorzugsrichtung auszeichnet. Da Atomkerne quantenmechanische Systeme sind, haben die diskreten Kernniveaus Energie E , Drehimpuls \vec{I} und Parität π , die wohldefiniert sind. Diese sind für die Übergänge Erhaltungsgrößen.

Für die aus den Übergängen emittierten γ -Quanten ist die elektrische Dipolstrahlung die einfachste Strahlungsart. Höhere Multipolordnungen werden bei Übergängen in der Atomhülle meist nicht beobachtet, da deren Übergangswahrscheinlichkeit sehr gering ist. Sollte dennoch die Dipolstrahlung nach den Auswahlregeln nicht möglich sein, kann die Atomhülle durch andere Prozesse, z.B. Phononenabregung in einem Gitter, ihre Energie abgeben. Bei Atomkernen ist das nicht der Fall, da sie viel weniger mit der Umgebung wechselwirken. Hier kann die Energie nur durch einen elektromagnetischen Prozess abgegeben werden. Entweder durch innere Konversion, also Übertragung der Energie auf ein Hüllenelektron, oder durch Aussendung eines γ -Quants. Falls also hier die Dipol-

strahlung verboten sein sollte, muss die Energieabgabe durch Strahlung höherer Multipolordnung stattfinden. Man muss hier also nach der allgemeinen Lösung der Maxwellgleichungen im quellenfreien Raum suchen.

Bei Übergängen zwischen Kernniveaus ist die Drehimpulserhaltung ausschlaggebend. Es gilt

$$\vec{I}_i + \vec{I}_f = \vec{l} = \text{const} \quad (2.1)$$

$$\text{mit} \quad |I_i - I_f| \leq l \leq |I_i + I_f| \quad \text{und} \quad m = m_i + m_f$$

wobei i den Anfangs- und f den Endzustand beschreiben sollen. Der Betrag von \vec{l} ist also die entscheidende Größe. Die elektrische Multipolstrahlung El und die magnetische Multipolstrahlung Ml sind Lösungen der Maxwellgleichungen und gleichzeitig Eigenfunktionen des quantenmechanischen Drehimpulsoperators \vec{L} . Sie entsprechen dem Strahlungsfeld eines klassischen elektrischen oder magnetischen schwingenden 2^l -Pols. Die Parität der beiden Strahlungsarten ist durch $(-1)^l$ für elektrische und $(-1)^{l+1}$ für magnetische Übergänge gegeben (siehe auch [3]).

2.1.1 Ausstrahlcharakteristik

Ausgehend vom Poynting-Vektor $\vec{S} = \frac{1}{\mu_0} (\vec{E} \times \vec{B})$ lässt sich die Ausstrahlcharakteristik (Winkelverteilung) einer Multipolstrahlung berechnen. So ergeben sich die normierten Winkelverteilungen

$$F_{lm}(\vartheta) = \frac{|\vec{L}Y_l^m|^2}{\sum_m |\vec{L}Y_l^m|^2}, \quad \vec{L} = -i \cdot (\vec{r} \times \vec{\nabla}) \quad (2.2)$$

mit Hilfe der Kugelflächenfunktionen

$$|Y_l^m(\vartheta, \varphi)|^2 = \sum_{k=0}^{2l} \frac{2l+1}{4\pi} (2k+1) \begin{pmatrix} l & l & k \\ m & -m & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l & l & k \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} P_k(\cos \vartheta)$$

die vom Winkel ϑ zur z -Achse, vom Drehimpuls l (dieser ist gleichzeitig auch die Multipolordnung) und von seiner z -Komponente m abhängen. Der Winkel

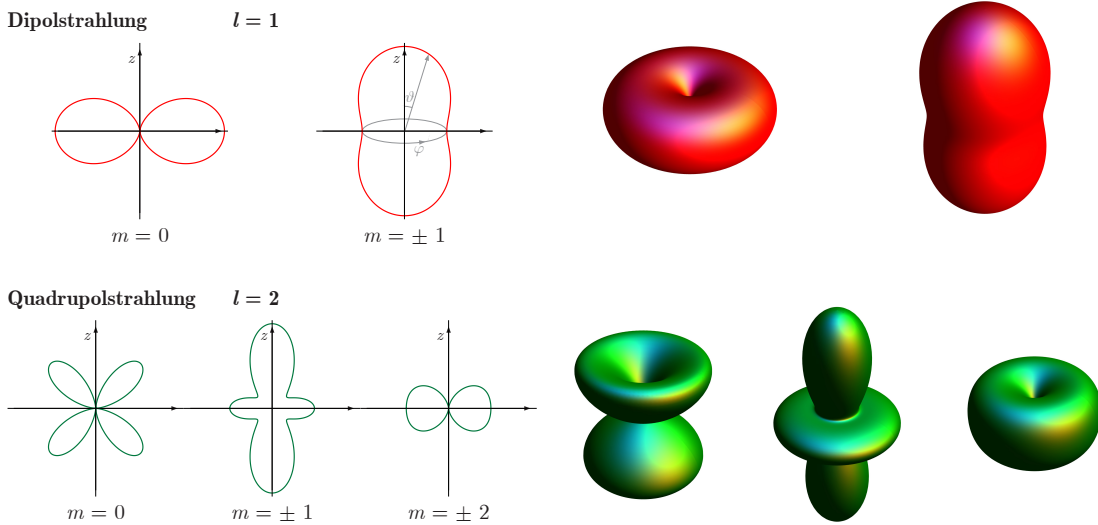


Abbildung 2.1: Die Winkelverteilung der Ausstrahlcharakteristik von γ -Strahlung für orientierte Kerne am Beispiel der Dipol- und Quadrupolstrahlung. Die Ausstrahlcharakteristik für magnetische und elektrische Multipolstrahlung ist bei gleicher Ordnung gleich, so dass sie anhand der emittierten γ -Strahlung nicht unterschieden werden kann.

φ beschreibt die x - y -Ebene. Die $P_k(\cos \vartheta)$ sind die Legendre-Polynome und der Index $k \leq 2l$ muss gerade sein, da das $3j$ -Symbol

$$\begin{pmatrix} l & l & k \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = 0$$

verschwindet für k ungerade. Für die elektrische und magnetische Multipolstrahlung gleicher Ordnung ist die Ausstrahlcharakteristik gleich. Eine Unterscheidung kann lediglich durch Messung der Polarisation σ der emittierten γ -Strahlung erfolgen. Es soll hier erwähnt werden, dass mit der im Folgenden beschriebenen Methode der gestörten Winkelkorrelation die Polarisation nur sehr ineffizient gemessen werden kann.

Die Winkelverteilungen F_{lm} besitzen folgende besondere Eigenschaften (siehe Abbildung 2.1). Sie sind spiegelsymmetrisch in der x - y -Ebene ($F_{lm}(\vartheta) = F_{lm}(\vartheta - \pi)$) und symmetrisch in m ($F_{lm} = F_{l-m}$). Es werden keine Quanten in z -Richtung ($\vartheta = 0$) ausgesandt, wenn $m \neq \pm 1$. Die Ausstrahlcharakteristik ist isotrop, wenn man über alle m summiert $\sum_{m=-l}^l F_{lm}(\vartheta) = 1$, d.h. wenn in einem Ensemble zerfallender Kerne alle m -Zustände gleich besetzt sind, ist keine Vorzugsrichtung der Ausstrahlcharakteristik zu erkennen.

Eine Anisotropie wird beobachtet, wenn die m -Zustände ungleichmäßig besetzt sind. Dies kann man beispielsweise durch Kernorientierung erreichen. Eine andere

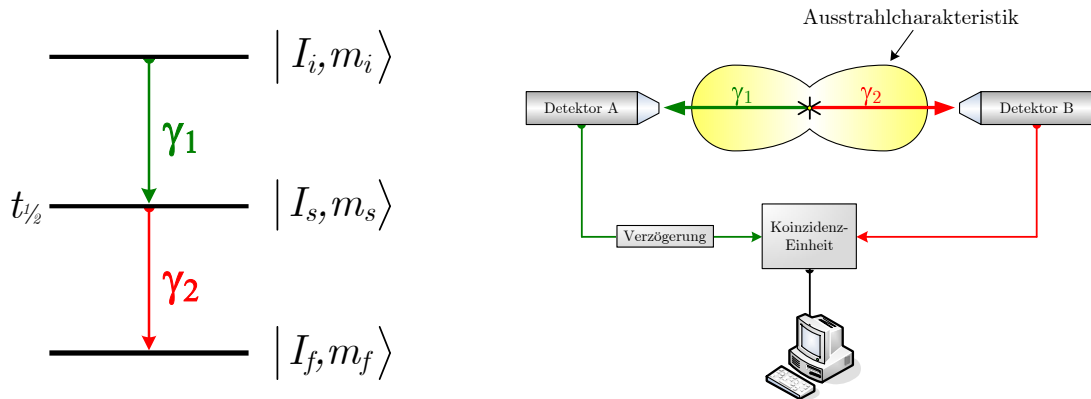


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung einer $\gamma\gamma$ -Kaskade mit einem Anfangszustand $|I_i, m_i\rangle$, einem Zwischenzustand $|I_s, m_s\rangle$, dessen Halbwertszeit $t_{1/2}$ ist, und einem Endzustand $|I_f, m_f\rangle$ (links). Prinzip einer Winkelkorrelationsmessung mit zwei Detektoren (rechts).

Methode besteht darin, nur die Kerne auszuwählen deren Spins in eine Vorzugsrichtung zeigen. Dies kann dadurch erreicht werden, dass der Kern über eine sukzessive Emission von zwei Quanten zerfällt. Der Nachweis des ersten Quants in eine feste Richtung \vec{k}_1 wählt ein Ensemble von Kernen aus, welches eine anisotrope Verteilung der Spinorientierungen hat. Die darauf folgende Strahlung zeigt eine definierte Winkelkorrelation gegenüber \vec{k}_1 . Der Begriff Winkelkorrelation fasst normalerweise die Richtungskorrelation und die Polarisationskorrelation zusammen. In dieser Arbeit werden Polarisationsmessungen nicht durchgeführt, so dass Winkelkorrelation lediglich für Richtungskorrelation steht.

2.2 Die $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation

Es gibt unterschiedliche Arten von Winkelkorrelationen. Diese basieren auf unterschiedliche Arten von Kernzerfällen. Geschieht die Abregung eines Kernes über einen β -Zerfall, so können $\beta\gamma$ -Experimente durchgeführt werden. Das Gleiche gilt für die Abregung über einen α -Zerfall und für Konversionselektronen. In dieser Arbeit wird ausschließlich die Methode der $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation in Betracht gezogen. Aus diesem Grund wird im Folgenden mit Winkelkorrelation die $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation gemeint.

Das Prinzip einer Winkelkorrelationsmessung besteht darin, einen radioaktiven Kern auszusuchen, dessen Tochterkern über eine $\gamma\gamma$ -Kaskade in den Endzustand übergeht. Der Anfangszustand des angeregten Tochterkerns mit Kernspin $|I_i, m_i\rangle$ geht unter Aussendung eines γ -Quants (γ_1) in den Zwischenzustand $|I_s, m_s\rangle$ und dieser unter Emission eines zweiten γ -Quants (γ_2) in den End- oder Grundzustand $|I_f, m_f\rangle$ (siehe Abbildung 2.2). Die Ausstrahlung des ersten Quants γ_1 erfolgt iso-

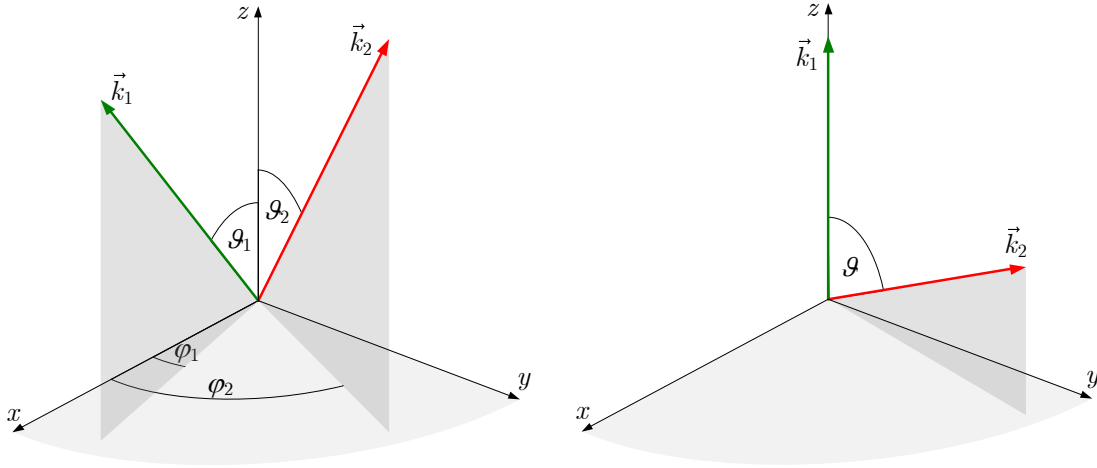


Abbildung 2.3: Darstellung der Richtungen \vec{k}_1 und \vec{k}_2 der beiden γ -Quanten und der verwendeten Winkel (*links*). Der Einfachheit halber wird als z -Achse die Richtung \vec{k}_1 festgelegt und ϑ ist dann der Winkel zwischen den beiden Vektoren (*rechts*).

trop. Durch dessen Nachweis in einer bestimmten Richtung \vec{k}_1 wird ein Ensemble von Kernen ausgewählt, deren Spins gleich orientiert sind. Dies erzeugt eine ungleiche Bevölkung der m -Unterzustände des Zwischenniveaus. Somit erfolgt die Emission von γ_2 bei koinzidenter Messung anisotrop.

Gesucht ist die relative Wahrscheinlichkeit $W(\vartheta) d\Omega$, mit der im Raumwinkel $d\Omega$ γ_2 mit dem Winkel ϑ zu γ_1 emittiert wird. Aus den Übergangsamplituden mit den Matrixelementen der beiden Übergänge

$$\langle I_s, m_s, k_1, \sigma_1 | H_1 | I_i, m_i \rangle \quad \text{und} \quad \langle I_f, m_f, k_2, \sigma_2 | H_2 | I_s, m_s \rangle$$

kann die Wahrscheinlichkeit berechnet werden γ_2 in Richtung \vec{k}_2 mit der Polarisation σ_2 nachzuweisen, wenn γ_1 in Richtung \vec{k}_1 mit der Polarisation σ_1 detektiert wurde. Diese Wahrscheinlichkeit wird dann durch die Winkelkorrelationsfunktion

$$W(\vartheta) = W(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = \sum_{m_i, m_f} \cdot \left| \sum_{m_s} \langle m_f | H_2 | m_s \rangle \langle m_s | H_1 | m_i \rangle \right|^2 \quad (2.3)$$

beschrieben. Hierbei kann der Winkel ϑ zwischen \vec{k}_1 und \vec{k}_2 , wie auch die Richtungen \vec{k}_1 und \vec{k}_2 selbst angegeben werden (siehe Abbildung 2.3). Summiert wird über alle Anfangs- und Endzustände. Die Polarisation kann hier nicht gemessen werden und wird deswegen nicht weiter in Betracht gezogen. Berechnet man die

Matrizelemente und führt die jeweilige Summation aus, so ergibt sich die folgende Winkelkorrelationsfunktion [5]

$$W(\vartheta) = \sum_k^{k_{max}} A_k(1)A_k(2) \cdot P_k(\cos \vartheta) \quad (2.4)$$

Für $\gamma\gamma$ -Kaskaden ist aufgrund der Paritätserhaltung der Index k gerade. Weiterhin gilt $0 \leq k \leq \min(2I_s, l_1 + l'_1, l_2 + l'_2)$ und normalerweise ist $k \leq 4$. I_s ist der Kernspin des Zwischenzustandes und l_1, l_2 bzw. l'_1, l'_2 die Multipolaritäten der beiden Übergänge. Für reine Multipolübergänge gilt $l_1 = l_2$ und $l'_1 = l'_2$. Die Entwicklungskoeffizienten $A_{kk}(1, 2)$ nennt man Anisotropiekoeffizienten. Sie bestehen aus zwei Faktoren, $A_k(1)$ und $A_k(2)$, die von den Drehimpulsen der Zustände und der Multipolaritäten der einzelnen Übergänge abhängen. Aus diesem Grund werden Winkelkorrelationsmessungen, die auf unterschiedlichen Arten von Kernzerfällen basieren, in der Kernphysik benutzt um solche Kerneigenschaften zu bestimmen.

Es gibt zwei unterschiedliche Wege die Winkelkorrelation experimentell zu messen: Die integrale und die zeitdifferentielle Methode. Bei der integralen gestörten Winkelkorrelation (*Integral Perturbed Angular Correlation*, IPAC) wird über die Lebensdauer τ des isomeren Zwischenzustandes integriert. Sie wird angewandt, falls τ kleiner oder vergleichbar ist mit der experimentellen zeitlichen Auflösung. Weiterhin kann die IPAC zur Messung innerer Magnetfelder in Ferromagneten in Betracht gezogen werden. Die differentielle Methode misst die Winkelkorrelation als Funktion der Zeit, die der Kern in den Zwischenzustand verbringt und nicht als Funktion des Winkels wie bisher.

Bei der zeit-differentiellen gestörten Winkelkorrelation (*Time-Differential Perturbed Angular Correlation*, TDPAC) misst man also die Anzahl koinzidenter Ereignisse zwischen γ_1 und γ_2 . In einem einfachen experimentellen Messaufbau, wie ihn die Abbildung 2.4 zeigt, wird die Probe zwischen zwei Szintillationsdetektoren eingebracht. Diese sind über schnelle Sekundärelektronenvervielfacher an einem *Fast-Slow*-Koinzidenzkreis angeschlossen. Es werden also zwei Signale von den Sekundärelektronenvervielfachern abgegriffen, ein schnelles Zeitsignal von der neunten Dynode und ein langsamer Puls von der Anode, dessen Amplitude proportional zu der Energie der detektierten Strahlung ist.

Das schnelle Zeitsignal (*Fast*) wird über einen schnellen Diskriminator (*Constant Fraction Discriminator*, CFD), der ein von der Amplitude unabhängiges, normiertes, logisches Signal erzeugt, in den Zeit-zu-Amplituden-Wandler (*Time to Amplitude Converter*, TAC) geschickt. Der TAC ist eine elektronische Uhr, die es ermöglicht die Zeit zu messen, die der Kern in dem isomeren Zwischenzustand der Kaskade verbringt. Das Signal des ersten Detektors startet den TAC. Gestoppt wird er von dem Signal des zweiten Detektors. Das Ausgangssignal,

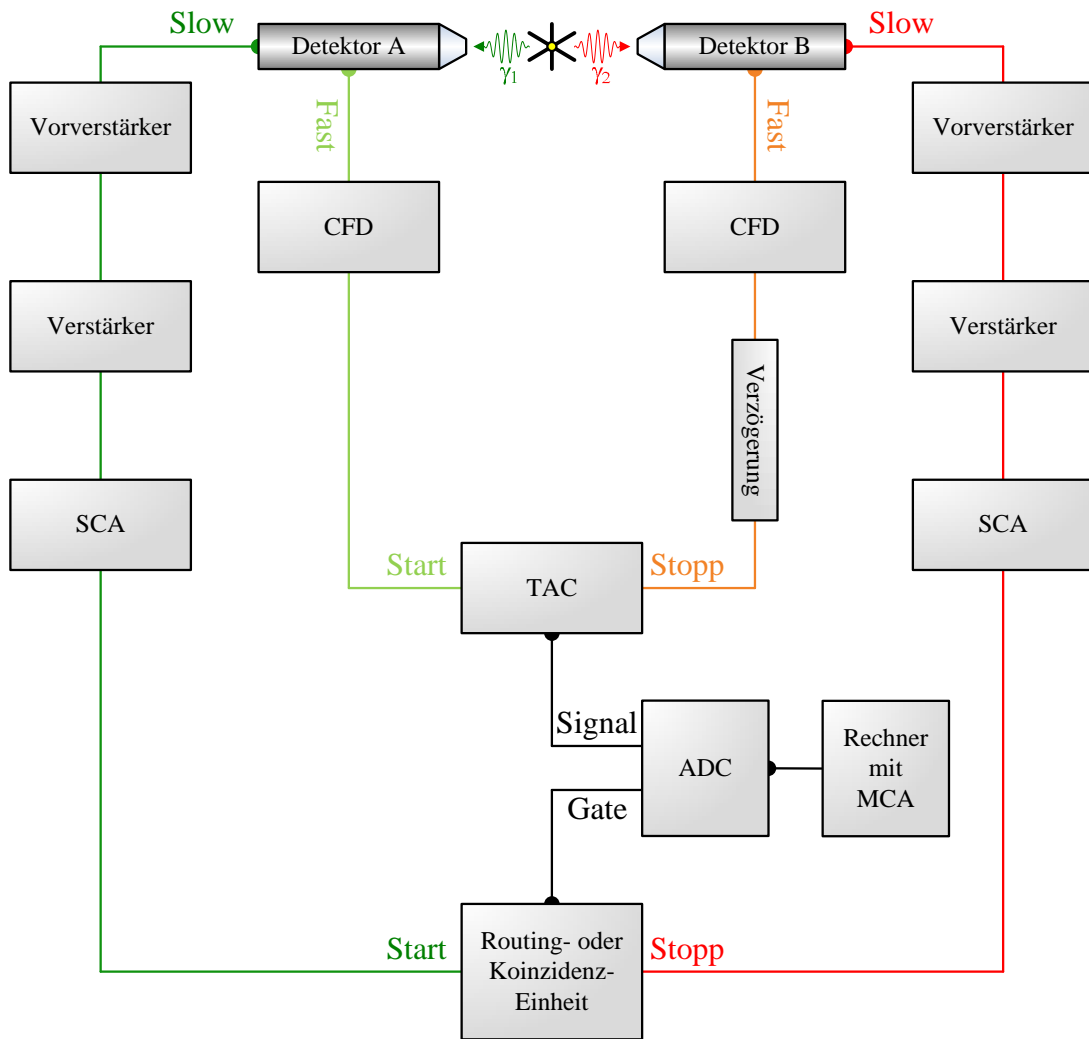


Abbildung 2.4: Blockschaltbild eines gewöhnlichen *Fast-Slow*-Koinzidenzkreises. Das schnelle Zeitsignal wird über einen CFD, der einen von der Amplitude unabhängiges, normiertes logisches Signal erzeugt, in den TAC geleitet. Dieser ermöglicht die Zeit zu messen, die der Kern in den isomeren Zwischenzustand der Kaskade verbringt. Das Signal von Detektor A startet den TAC und das von Detektor B stoppt ihn. Das Ausgangssignal, das proportional zu der Zeit zwischen den beiden Signalen ist, wird über einem ADC in die MCA-Karte geführt. Der verstärkte langsame Puls sichert, durch die Einstellung der Fenster zweier SCA's, dass der TAC nur von γ_1 gestartet und nur von γ_2 gestoppt werden kann. Das Signal wird dann in eine Koinzidenzeinheit geleitet, die auch *Routing*-Einheit genannt wird; sie steuert den ADC und den MCA. Der MCA sortiert die ankommende Signale nach ihrer Amplitude in Kanälen ein, die dann in einem Spektrum an einem Rechner dargestellt werden können.

dass proportional zu der Zeit zwischen den beiden Signalen ist, wird über einem Analog-Digital-Wandler (*Analog to Digital Converter*, ADC) digitalisiert und mit einem Vielkanalanalysator aufgenommen.

Die, an den Anoden der Detektoren abgegriffenen Signale, werden erst verstärkt bevor sie die Einkanalanalytoren (*Single Channel Analyser*, SCA) erreichen. Die Fenster der SCA's werden so eingestellt, dass nur Signale ausgegeben werden, deren Energien in einem engen Bereich um die Energie von γ_1 bzw. γ_2 liegen. Der langsame Puls (*Slow*) jedes Detektors sichert also, dass der TAC nur von γ_1 gestartet und nur von γ_2 gestoppt werden kann.

Die Ausgänge der SCA's steuern dann eine zusätzliche Koinzidenzeinheit (*Routing Unit*). Diese berücksichtigt, dass die Signale von verschiedenen Detektorkombinationen stammen; sie fügt also den ADC-Datenbits zusätzliche Steuerbits hinzu, bevor alle Daten den Vielkanalanalysator (*Multichannel Analyser*, MCA) erreichen. Dieses elektronische Bauteil sortiert die ankommende Signale nach ihrer Amplitude in Kanäle und gibt sie einem Rechner zur Darstellung und Aufnahme weiter.

Zusammenfassend kann man also sagen, dass durch den *Slow*-Kreis – über die Energie der γ -Quanten – festgelegt wird, ob das zweite registrierte γ -Quant zu dem selben Kern-Ensemble gehört wie das erste γ -Quant und durch den *Fast*-Kreis die Zeit, die zwischen den beiden Quanten vergeht, gemessen wird.

Üblicherweise werden Messapparaturen mit mehr als nur zwei Detektoren verwendet, um eine höhere Koinzidenzzählrate zu erreichen. Damit wird eine genügend große Statistik für eine Auswertung mit kürzerer Messzeit erreicht. Um die Effizienz der Datenaufnahme zu erhöhen, werden Messapparaturen mit bis zu acht Detektoren eingesetzt. Im Rahmen dieser Arbeit wird eine Apparatur mit vier Detektoren verwendet.

Ausgehend von Gleichung 2.4 kann die Anzahl der Koinzidenzen, die von einer solchen Apparatur gemessen werden, geschrieben werden als

$$\begin{aligned} N(\vartheta, t) &= N_0 e^{-\lambda t} \cdot W(\vartheta) \\ N(\vartheta, t) &= N_0 e^{-\lambda t} (1 + A_{22} P_2(\cos \vartheta) + A_{44} P_4(\cos \vartheta)) \end{aligned}$$

wobei N_0 die Gesamtzählrate ist, λ die Zerfallskonstante von dem Zwischenzustand und der verbleibende Term beschreibt die anisotrope Emissionswahrscheinlichkeit. Der Einfachheit halber wurden hier zufällige Koinzidenzen vernachlässigt.

Ist der Koeffizient A_{44} sehr viel kleiner als A_{22} ($A_{44} \ll A_{22}$), kann die Winkelkorrelation durch Messung unter zwei festen Winkeln bestimmt werden. Meist wählt man 90° und 180° . Unter diesen Winkeln nehmen die Legendre-Polynome

$P_2(\cos \vartheta)$ besonders einfache Werte an ($P_2(\cos 90^\circ) = -\frac{1}{2}$, $P_2(\cos 180^\circ) = 1$). Der exponentielle Zerfall, der keine Informationen über die Modulation der Emissionswahrscheinlichkeit trägt, wird durch die Bildung des Verhältnisses

$$R(t) = 2 \cdot \frac{N(180^\circ, t) - N(90^\circ, t)}{N(180^\circ, t) + 2N(90^\circ, t)} \quad (2.5)$$

eliminiert. Dieses Verhältnis wird auch R-Wert genannt. Falls der Zerfall durch äußere elektrische und magnetische Felder nicht gestört wird, dann ist das Verhältnis $R(t)$ konstant in der Zeit und gleich dem Anisotropiekoeffizienten A_{22} .

2.2.1 Die gestörte Winkelkorrelation

Radioaktive Kerne, die über eine $\gamma\gamma$ -Kaskade zerfallen, werden in das zu untersuchende Wirtsmaterial eingebracht. Hier ist der Sondenkern auch während der endlichen Lebensdauer des Zwischenzustandes elektrischen und magnetischen Feldern ausgesetzt. Quantenmechanisch folgt daraus eine zeitabhängige Änderung der Phase der magnetischen Unterzustände. Die Winkelkorrelation ändert sich dadurch. Diese Störung kann mittels eines Zeitentwicklungsoperators $\Lambda(t)$ beschrieben werden. Der Zwischenzustand $|m_s\rangle$ geht somit in $\Lambda(t)|m_s\rangle$ über, wobei gilt

$$\Lambda(t)|m_s\rangle = \sum_{m_t} |m_t\rangle \langle m_t | \Lambda(t) | m_s \rangle \quad (2.6)$$

Durch Einsetzen in die Gleichung 2.3 erhält man die Wahrscheinlichkeitsfunktion¹

$$W(\vartheta, t) = \sum_{m_i, m_f} \cdot \left| \sum_{m_s, m_t} \langle m_f | H_2 | m_t \rangle \langle m_t | \Lambda(t) | m_s \rangle \langle m_s | H_1 | m_i \rangle \right|^2 \quad (2.7)$$

die nun zeitabhängig wird. Nach Berechnung der Matrixelemente und Durchführung der jeweiligen Summationen ergibt sich folgende Winkelkorrelationsfunktion

$$W(\vartheta, t) = \sum A_{k_1}(1) A_{k_2}(2) \cdot G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) \cdot Y_{k_1}^{N_1*}(\vartheta_1, \varphi_1) Y_{k_2}^{N_2}(\vartheta_2, \varphi_2) \quad (2.8)$$

¹ $(a + ib)^* = a - ib$ komplex konjugiert
 $A^\dagger = (A^T)^* = (A^*)^T$ adjungiert (transponiert und komplex konjugiert)

wobei wieder der Index k_i aufgrund der Paritätserhaltung gerade ist, $0 \leq k_i \leq \min(2I, l_i + l'_i)$ mit $i = 1; 2$ und $N_i \leq k_i$, $N_i = m'_i - m_i$. Hier wird der so genannte Störfaktor (oder Störfunktion) definiert als

$$G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) = \sum_{m_s, m_t} (-1)^{2I+m_s+m_t} \frac{1}{\sqrt{(2k_1+1)(2k_2+1)}} \cdot \left(\begin{array}{ccc} I & I & k_1 \\ m'_s & -m_s & N_1 \end{array} \right) \left(\begin{array}{ccc} I & I & k_2 \\ m'_t & -m_t & N_2 \end{array} \right) \cdot \langle m_t | \Lambda(t) | m_s \rangle \langle m'_t | \Lambda(t) | m'_s \rangle^* \quad (2.9)$$

Die gesamte Information über die externe Störung des Systems ist in dieser Funktion enthalten. Die Gleichung 2.8, die verkürzt geschrieben werden kann als

$$W(\vartheta, t) = \sum_k^{k_{max}} A_{kk}(1, 2) \cdot G_{kk}(\vartheta, t)$$

beschreibt die zeitdifferentielle gestörte Winkelkorrelation.

2.2.2 Magnetische Hyperfeinwechselwirkung

Nun soll, der Vollständigkeit halber, die Hyperfeinwechselwirkung zwischen dem magnetischen Moment des Kerns $\vec{\mu}$ und einem externen Magnetfeld \vec{B} am Kernort betrachtet werden. Wie schon im Kapitel 1.2.1 gezeigt, kann diese Wechselwirkung die Ausrichtung des angeregten Kernzustandes beeinflussen, oder „stören“. Diese Veränderung der Ausrichtung bewirkt eine Veränderung der anisotropen Dichte-Verteilung (Winkelkorrelation) der emittierten γ -Strahlung. Durch deren Beobachtung kann die Hyperfeinwechselwirkung der angeregten Kernzustände untersucht werden. Semiklassisch führt die Wechselwirkung zwischen einem magnetischen Moment und einem Magnetfeld zu einem Drehmoment und dieses zu einer Präzession der Kernspins um die Achse des Magnetfeldes. So verändert sich die Orientierung des Kernspins periodisch mit der Zeit und zwar mit der Larmor-Frequenz

$$\omega_L = -\frac{1}{\hbar} g \mu_K \cdot B \quad (2.10)$$

wobei g der g -Faktor oder Landé-Faktor ist und μ_K das Kernmagneton. Aus dieser Präzession folgt eine Rotation der Ausstrahlcharakteristik der $\gamma\gamma$ -Kaskade, was eine Modulation der Koinzidenzzählrate zur Folge hat.

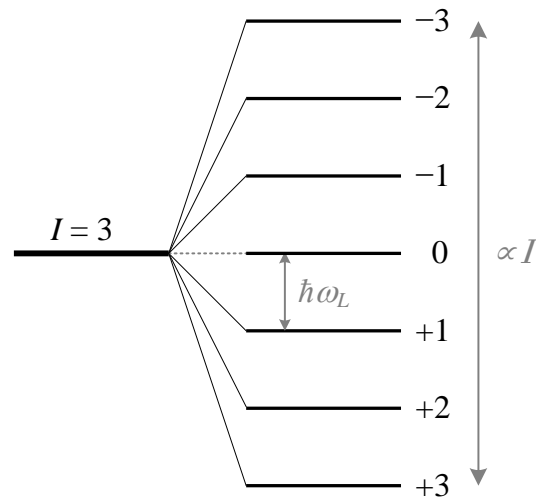


Abbildung 2.5: Die magnetische Hyperfeinwechselwirkung spaltet die Energieniveaus der Kernspins in $m = |2I + 1|$ Unterzustände, deren Abstand stets $\hbar \omega_L$ beträgt. Hier dargestellt ist die Aufspaltung der m -Unterzustände für Kernspin 3.

Quantenmechanisch bewirkt die magnetische Hyperfeinwechselwirkung eine äquidistante Aufspaltung des Zwischenzustandes in $|2I + 1|$ Unterniveaus (siehe Abbildung 2.5). Die Energiedifferenz beträgt

$$\Delta E_{mag} = \hbar\omega_L = -g\mu_K B_z$$

und die Energiewerte

$$E_{mag} = \hbar\omega_L \cdot m$$

Die Larmor-Frequenz entspricht also den Übergängen zwischen den Unterniveaus was die beobachtete Oszillation zur Folge hat. Durch Messung der Larmor-Frequenz kann so entweder der g-Faktor des Kerns oder das Magnetfeld am Kernort bestimmt werden, wenn die andere Größe bekannt ist.

Historisch wurde die Methode der gestörten Winkelkorrelation verwendet, um magnetische Momente angeregter Kerne zu bestimmen und viel weniger dafür benutzt, elektrische Quadrupolmomente solcher Kern zu untersuchen. Elektrische Feldgradienten, die für solche Untersuchungen nötig sind, können nicht im Laboratorium produziert werden. Man findet sie aber beispielsweise in nicht-kubischen Festkörpern und nicht vollständigen Elektronenschalen.

2.2.3 Elektrische Hyperfeinwechselwirkung

Die Energie der elektrostatischen Hyperfeinwechselwirkung zwischen der Ladungsverteilung des Kerns und dem extranuklearen elektrostatischen Feld kann in Multipole entwickelt werden, wie in Kapitel 1.2.2 gezeigt wurde. Der erste relevante Entwicklungsterm ist der Quadrupolterm

$$E_Q = \sum_{ij} Q_{ij} \cdot V_{ij} \quad (2.11)$$

der als Produkt aus Quadrupolmoment Q_{ij} und elektrischem Feldgradient V_{ij} geschrieben werden kann. Beides sind Tensoren zweiter Stufe. Höhere Terme der Entwicklung sind zu klein, um mit der Methode der PAC detektiert werden zu können.

Der elektrische Feldgradient ist die zweite Ableitung des elektrischen Potentials am Kernort

$$V_{ij} = \frac{\partial^2 \varphi(0)}{\partial x_i \partial x_j}$$

Durch geeignete Hauptachsentransformation lässt sich V_{ij} so diagonalisieren, dass $|V_{zz}| \geq |V_{yy}| \geq |V_{xx}|$ ist. Wegen der Laplacegleichung $\sum_{ij} V_{ij} = 0$ sind nur zwei der drei Komponenten von V_{ii} linear unabhängig. Zur Charakterisierung des elektrischen Feldgradienten wählt man die größte Komponente V_{zz} und den schon eingeführten Asymmetrieparameter

$$\eta = \frac{V_{yy} - V_{xx}}{V_{zz}}$$

mit $0 \leq \eta \leq 1$. Es werden nur elektrische Feldgradienten einer nicht kugelsymmetrischen Ladungsverteilung berücksichtigt, also Ladungsverteilungen die am Kernort Null sind. Für kubische Kristalle, in denen alle Richtungen x , y und z äquivalent sind, also $V_{xx} = V_{yy} = V_{zz}$ und für axialsymmetrische Kristalle in denen die Richtungen x und y äquivalent sind, also $V_{xx} = V_{yy}$, verschwindet der Asymmetrieparameter, es gilt also $\eta = 0$. Für Fälle geringerer Symmetrie nimmt η Werte zwischen Null und Eins an. Die Hauptkomponente V_{zz} liegt in Festkörpern typischerweise in der Größenordnung von $10^{20} - 10^{22} \frac{\text{V}}{\text{m}^2}$.

Es soll die Wechselwirkungsenergie zwischen dem elektrischen Kernquadrupolmoment Q_K und dem elektrischen Feldgradienten in Falle eines axialsymmetrischen Potentials am Kernort berechnet werden. Für den Zeitentwicklungsoperator $\Lambda(t)$ aus Gleichung 2.6 gilt

$$\langle m_t | \Lambda(t) | m_s \rangle = \langle m_t | e^{-\frac{Ht}{\hbar}} | m_s \rangle$$

Aus dem Hamiltonoperator

$$H = \frac{e Q_K V_{zz}}{4I(2I-1)} \cdot \left(3I_z^2 - I(I+1) + \frac{\eta}{2}(I_x^2 + I_y^2) \right) \quad (2.12)$$

mit den Drehimpulsoperatoren I_i lässt sich die Wechselwirkungsenergie bestimmen. Für den axialsymmetrischen elektrischen Feldgradienten wird die z -Achse als Quantisierungsachse gewählt, so dass das betrachtete System in der x - y Ebene axialsymmetrisch ist. Der Hamiltonoperator wird so diagonal und $\eta = 0$. Für die Energiewerte folgt

$$E_Q = \frac{e Q_K V_{zz}}{4I(2I-1)} \cdot (3m^2 - I(I+1)) \quad (2.13)$$

Nach Einführung der Quadrupolfrequenz

$$\omega_Q := \frac{e Q_K V_{zz}}{4I(2I-1)\hbar} \quad (2.14)$$

können die Energiewerte der Quadrupolwechselwirkung wie folgt geschrieben werden

$$E_Q = \hbar\omega_Q \cdot (3m^2 - I(I+1)) \quad (2.15)$$

Die Energiedifferenz zwischen zwei Unterzuständen m und m' lässt sich angeben als

$$\begin{aligned} \Delta E_Q &= E_m - E_{m'} \\ \Delta E_Q &= \hbar\omega_Q \cdot 3|m^2 - m'^2| \end{aligned}$$

Die Energieaufspaltung der Kernniveaus durch die Quadrupolwechselwirkung ist demnach vom Kernspin \vec{I} der Zustände abhängig und nicht äquidistant, dabei wird die Entartung hinsichtlich $\pm m$ nicht aufgehoben (siehe Abbildung 2.6). Die unterschiedlichen Übergangsfrequenzen ω_n können als ganzzahlige Vielfache der kleinsten Übergangsfrequenz ω_0 geschrieben werden².

$$\omega_n = n \cdot \omega_0$$

und

$$\omega_0 := \min \left(\frac{1}{\hbar} \cdot \Delta E_Q \right)$$

wobei

² NB: Bei nicht axialsymmetrischem elektrischen Feldgradienten ($\eta \neq 0$) gilt $\omega_n \neq n \cdot \omega_0$.

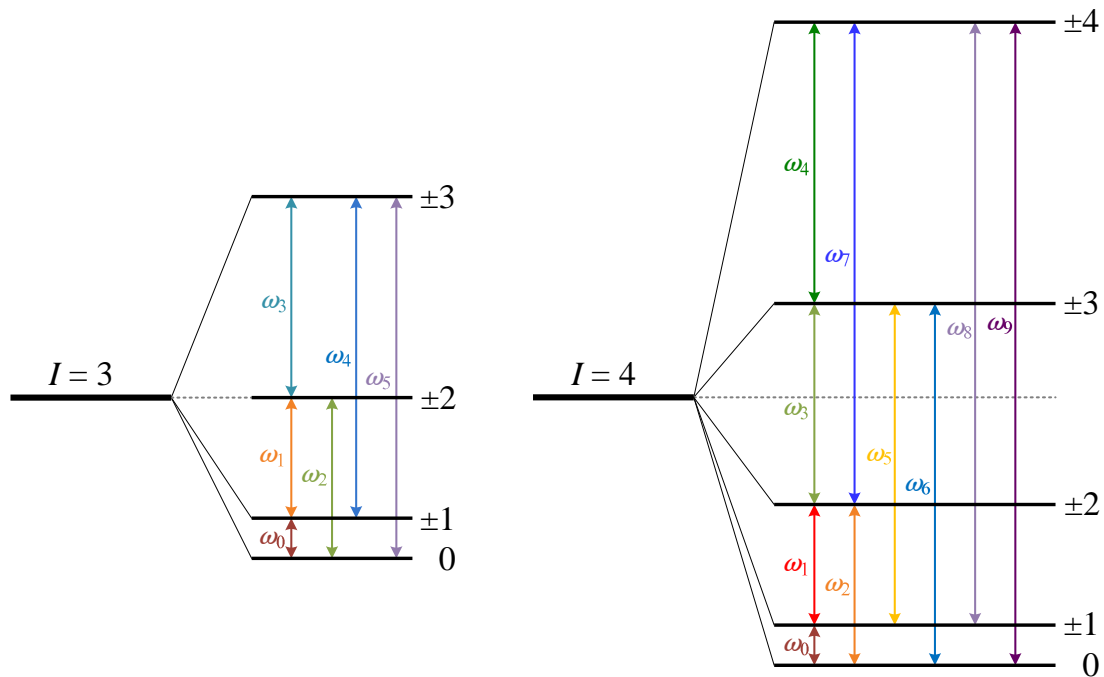


Abbildung 2.6: Die elektrische Hyperfeinwechselwirkung zwischen der Ladungsverteilung des Kerns mit Spin I und einem axialsymmetrischen extranuklearen elektrostatischen Feld verursacht eine unvollständige Aufhebung der Entartung der m -Unterzustände. Die Energieaufspaltung ist vom Kernspin abhängig und somit nicht äquidistant. Hier dargestellt sind die Fälle mit $\eta = 0$ für Kernspin 3 und Kernspin 4. Die Übergangsfrequenzen sind, wie es allgemein gebräuchlich ist, nach ihrem Betrag sortiert. Sie sind ganzzahlige Vielfache der kleinsten Übergangsfrequenz ω_0 .

I	Verhältnisse
3	1 : 3 : 4 : 5 : 8 : 9
4	1 : 3 : 4 : 5 : 7 : 8 : 9 : 12 : 15 : 16

Tabelle 2.1: Die unterschiedlichen Übergangsfrequenzen ω_n können als ganzzahlige Vielfache der kleinsten Übergangsfrequenz ω_0 geschrieben werden. Es kann somit das jeweilige Verhältnis zu ω_0 angegeben werden, was hier für Kernspin 3 und 4 mit einem axialsymmetrischen EFG dargestellt ist.

$$\begin{aligned} \omega_0 &= 3 \cdot \omega_Q && \text{für ganzzahligen Kernspin } I \\ \omega_0 &= 6 \cdot \omega_Q && \text{für halbzahligen Kernspin } I \end{aligned}$$

Meist wird das Verhältnis der größeren Frequenzen zur kleinsten angegeben, in Tabelle 2.1 soll das exemplarisch für Kernspin 3 und 4 dargestellt werden.

Ähnlich wie die magnetische Dipolwechselwirkung bewirkt also auch die elektrische Quadrupolwechselwirkung eine Präzession der Winkelkorrelation mit der Zeit. Diese hat eine Modulation der Wechselwirkungsfrequenz zur Folge, welche lediglich aus der Überlagerung der einzelnen Übergangsfrequenzen ω_n hervorgerufen wird. Die relativen Amplituden der einzelnen Übergangsfrequenzen hängen von der Ausrichtung des elektrischen Feldgradienten zu den Detektoren und von dem Asymmetrieparameter η ab. Falls dieser gleich Null ist, ergibt sich der in Tabelle 2.1 dargestellte Fall. Ist der Asymmetrieparameter von Null verschieden ($0 < \eta \leq 1$), folgt eine Aufhebung der Entartung der Unterzustände, was eine höhere Anzahl an Übergangsfrequenzen bedeutet. Für den Fall $I = 3$ gibt es 6 Übergangsfrequenzen wenn $\eta = 0$ ist, ist $0 < \eta < 1$ so sind es schon 20 Übergangsfrequenzen und 12 Übergangsfrequenzen, wenn $\eta = 1$ ist.

Da ω_0 vom Kernspin abhängt, möchte man bei Untersuchungen mit unterschiedlichen Kernen eine Größe haben, die einen direkten Vergleich ermöglicht. Hierfür wird die Quadrupolkopplungskonstante ν_Q eingeführt, die vom Kernspin I unabhängig ist. Sie wird wie folgt definiert

$$\nu_Q := \frac{e Q_K V_{zz}}{h} \quad (2.16)$$

Die Konversion von ω_0 in ν_Q ergibt sich aus

$$\nu_Q = \frac{2I(2I-1)}{N \cdot \pi} \omega_0$$

wobei $N = 3$ für ganzzahligen bzw. $N = 6$ für halbzahligen Kernspin ist. Für verschiedene Kernspins sind die unterschiedlichen Umrechnungsfaktoren in Tabelle 2.2 wiedergegeben.

I	ν_Q
3	$\frac{10}{\pi} \omega_0$
4	$\frac{56}{3\pi} \omega_0$

Tabelle 2.2: Umrechnungsfaktoren für verschiedene Kernspins für die Konversion von ω_0 in die Quadrupolkopplungskonstante ν_Q . Diese ist vom Kernspin \vec{I} unabhängig und ermöglicht einen direkten Vergleich bei Untersuchungen mit unterschiedlichen Atomkernen.

2.3 Messapparatur

Die Messungen wurden an einer Anlage, bestehend aus vier in einer Ebene senkrecht zueinander stehenden Szintillationsdetektoren, durchgeführt. Jeder Detektor kann die Messung starten bzw. stoppen, so können 12 Spektren³ pro Messung aufgenommen werden. Solch eine PAC-Anlage hat einen endlichen Öffnungswinkel für die detektierte Strahlung, was einen Korrekturfaktor erfordert. Dieser hängt von der Geometrie der Anlage ab und von dem Abstand der Strahlungsquelle zu den Detektoren und muss so für die jeweilige Situation bestimmt werden. Für zylindrische Detektoren können diese Faktoren mathematisch exakt bestimmt werden [6]. Haben die Kristalle eine kompliziertere Form, so müssen diese Faktoren durch Simulationen abgeschätzt werden oder direkt gemessen werden.

Die Anisotropiekoeffizienten A_{kk} der $\gamma\gamma$ -Kaskade müssen also mit den sogenannten Abschwächungsfaktoren Q_{kk} korrigiert werden, erst hieraus ergeben sich die effektiven Anisotropiekoeffizienten für den jeweiligen Versuchsaufbau

$$A_{kk}^{\text{eff}} = A_{kk} \cdot Q_{kk} \quad (2.17)$$

Die verwendeten Szintillationskristalle haben anstatt der gebräuchlichen zylindrischen Form die Form eines Kegelstumpfes mit einem Radius $r = 1,9$ cm und einer Höhe von $r = 2$ cm (siehe Abbildung 2.7). Der kleinere Öffnungswinkel der Kristalle führt zu einer kleineren Verminderung der Anisotropiekoeffizienten A_{kk} durch die Abschwächungsfaktoren Q_{kk} . Der Verlust an Nachweiswahrscheinlichkeit wird durch die Möglichkeit, die Detektoren näher an die Probe positionieren zu können, kompensiert [7]. Die konische Form der Kristalle ist so gewählt, dass die unter verschiedenen Winkeln emittierte γ -Strahlung eine ähnliche Nachweiswahrscheinlichkeit im Szintillator hat. Hier ist der im Kristall durchlaufene Weg für verschieden Winkeln ähnlich lang, wenn sich die Probe näherungsweise auf der Spitze des Kegels befindet.

³ $n(n-1)$ Spektren, mit n Anzahl der Detektoren

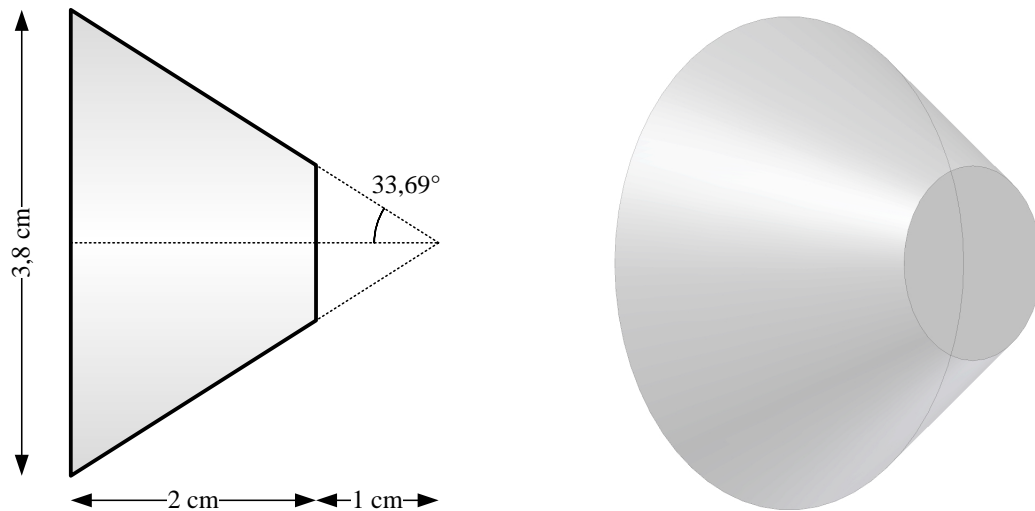


Abbildung 2.7: Zweidimensionale Skizze und dreidimensionales Modell der kegelstumpfförmigen Szintillationskristalle. Durch diese Form erreicht man für diese PAC-Anlage eine geringere Verminderung der Anisotropieeffizienten A_{kk} durch die Abschwächungsfaktoren Q_{kk} und eine ähnliche Nachweiswahrscheinlichkeit im Szintillator für die unter verschiedenen Winkeln emittierte γ -Strahlung. Weiterhin können die Detektoren näher an der Probe positioniert werden, so dass die Nachweiswahrscheinlichkeit steigt.

Als Szintillationsmaterial dient der Kristall Lutetium-Oxyorthosilikat (LSO) [8], der mit 0,2% Cer dotiert ist ($\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^{3+}$). Das Cer dient als Wellenlängenschieber, damit die entstandene Lumineszenz nicht vom Kristall selbst wieder absorbiert wird. Das LSO hat einige Vorteile gegenüber den üblicherweise eingesetzten Szintillationskristallen Natriumiodid ($\text{NaI}(\text{Tl})$) und Bariumfluorid (BaF_2) [9].

Die Ansprechwahrscheinlichkeit für γ -Strahlung ist bei LSO doppelt so groß wie bei BaF_2 , was auf seiner höheren Dichte und größeren effektiven Kernladungszahl beruht. Einerseits ist das von großem wirtschaftlichem Interesse, da kleinere Kristalle verwendet werden können. Andererseits können gleiche Zählraten mit schwächeren Proben erzielt werden, da die Photopeakeffizienz steigt und die zufälligen Koinzidenzen durch Comptonuntergrund sinken. Hier ist die Wahrscheinlichkeit des Entweichens eines Quants aus dem Kristall nach einem Comptoneffekt kleiner. Weiterhin ist der Rückstreupeak kleiner, da hierfür die Comptonstreuung hinter dem Kristall stattfinden müsste. Die Energien der Kaskade, der in dieser Arbeit verwendete PAC-Sonde ^{172}Lu (^{172}Yb) (siehe Kapitel 3.3), liegen mit 91 keV und 1094 keV weit auseinander. Für die hohe Energie der γ -Linie 1094 keV ist die größere Nachweiswahrscheinlichkeit von LSO gegenüber BaF_2 ein großer Vorteil, denn sie bestimmt die Zählrate des Stopp-Signals.

Das zeitliche Auflösungsvermögen eines Szintillationskristalls wird hauptsächlich durch die Anstieg- und Abfallzeit des Lumineszenzprozesses bestimmt. Je schneller das Maximum der Intensität der Szintillation erreicht wird und je schneller sie wieder abgeklungen ist, desto besser ist die zeitliche Auflösung des Szintillators. BaF₂ hat zwei Szintillationskomponenten: Eine sehr schnelle mit einer sehr kurzen Zerfallszeit (0,8 ns) und eine langsame Komponente mit einer längeren Zerfallszeit. Der Großteil der Lumineszenz – ungefähr 80% – ist in der langsamen Komponente enthalten. Somit wird der Vorteil von BaF₂ eine sehr schnelle Komponente zu haben dadurch vermindert, dass es durch eine geringe Intensität der Lumineszenz eine mäßige Energieauflösung hat. Für die üblicherweise eingesetzten PAC-Sonden, wie ¹¹¹In und ¹⁸¹Hf, ist dies kein großes Problem, da sie relativ einfache Energiespektren besitzen. Es wird aber zunehmend wichtig geeignete PAC-Sonden für spezifische Zwecke zu verwenden, wie z.B. ⁷⁷Br, ¹⁸⁷W, ¹⁴⁰La oder ¹⁷²Lu. Diese Sonden weisen kompliziertere Energiespektren auf. Die Möglichkeit, solche Sonden einsetzen zu können, ist durch die deutlich höhere Lichtausbeute von LSO gegeben, die eine deutlich bessere Energieauflösung zur Folge hat.

Das zeitliche Auflösungsvermögen der hier verwendeten Anlage wird durch Aufnahme von prompten Ereignissen einer Lebensdauerkurve, was auch einfacher als Promptkurve bezeichnet wird, gemessen. Als Radioisotop wird ⁶⁰Co verwendet, weil es wegen seiner hohen Energien (1173,2 keV und 1332,5 keV) einen breiten Comptonuntergrund aufweist, indem die Wahrscheinlichkeit prompter Ereignisse hoch ist. Die Energien von Start- und Stopp-Fenster vieler radioaktiver Sonden liegen in diesem Comptonuntergrund. Da die Zeitauflösung von den Energien von Start- und Stopp-Signal abhängig ist, wird sie für die später in dieser Arbeit eingesetzten Sonden ¹⁷²Lu und ¹⁴⁰La separat gemessen.

Bestimmt wird das zeitliche Auflösungsvermögen durch die Halbwertsbreite (engl. *Full Width Half Maximum*, oder FWHM) der Promptkurve (siehe Abbildung 2.8). Für die Sonde ¹⁴⁰La wird als Start-Energie 328,7 keV und Stopp-Energie 487,0 keV eingestellt. Die Zeitauflösung beträgt hier (0,57 ± 0,03) ns. Für die Sonde ¹⁷²Lu wird als Start-Energie 90,6 keV und Stopp-Energie 1093,7 keV eingestellt. Die Zeitauflösung beträgt hier (1,03 ± 0,03) ns. Der Wert fällt etwas schlechter als erwartet aus. Dies hängt einerseits damit zusammen, dass die Stopp-Energie sehr hoch ist, andererseits liegt diese gerade noch in der Comptonkante der 1332,5 keV-Linie von ⁶⁰Co.

Die spektrale Verteilung des Emissionslichtes von LSO hat zwei überlappende Maxima bei 393 und 423 nm Wellenlänge und eine Abfallzeit von 40 ns [11]. Das ist zwar langsamer als die schnelle Komponente von BaF₂, dafür ist die komplette Intensität in einer Komponente konzentriert. Weiterhin ist die Wellenlänge der maximalen Emission von LSO mit 420 nm im Maximum der Quanteneffizienz der Photokathode der hier verwendeten Sekundärelektronenvervielfacher vom Typ

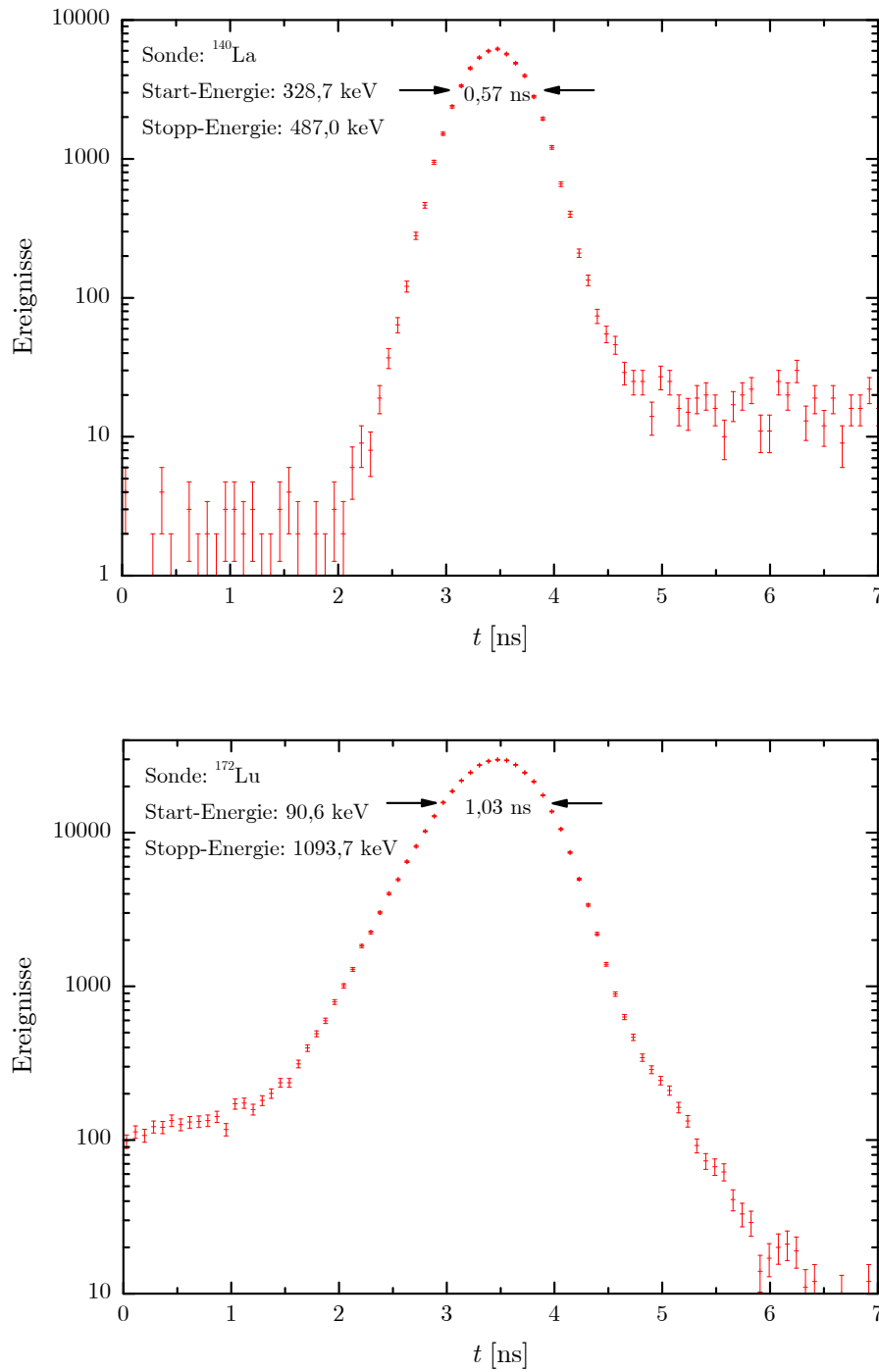


Abbildung 2.8: Die Promptkurven sind mit LSO-Szintillationskristallen aufgenommen. Als radioaktive Quelle wird ^{60}Co verwendet, wobei Start- und Stopp-Energien für die jeweiligen Sonden unterschiedlich eingestellt sind. Die Zeitaufösung der Anlage liegt für ^{140}La bei $(0,57 \pm 0,03) \text{ ns}$ und für ^{172}Lu bei $(1,03 \pm 0,03) \text{ ns}$.

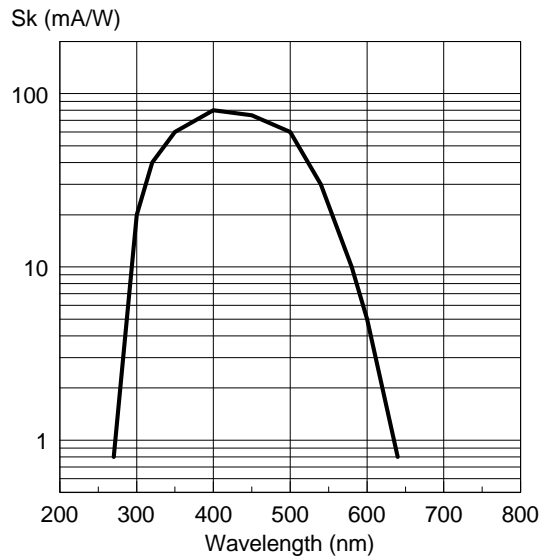


Abbildung 2.9: Spektrale Empfindlichkeit der Photokathode eines XP2020 Sekundärelektronenvervielfachers [10]. Das Maximum der Quanteneffizienz der Photokathode liegt bei 420 nm, so wie auch die Wellenlänge der maximalen Emission von LSO.

XP2020 (siehe Abbildung 2.9) und ein teures Quarzfenster wie für BaF₂, dessen Wellenlänge der schnellen Komponente bei 220 nm liegt, ist nicht erforderlich.

Ein großer Vorteil, keine zweite langsame Komponente in der produzierten Lumineszenz zu besitzen, ist die Möglichkeit schnelle Diskriminatoren mit eingebautem SCA (*Constant Fraction Differential Discriminator*, CFDD) einsetzen zu können. Dadurch ist kein zusätzlicher Slow-Koinzidenzkreis erforderlich (siehe Abbildung 2.10). Das Signal wird an der neunten Dynode des Sekundärelektronenvervielfachers entnommen und über einem TFA (*Timing Filter Amplifier*) auf Start- und Stopp-CFDD geteilt. Das Energiesignal (SCA-out) des CFDD's wird in die Routing-Einheit geleitet und das Zeitsignal (timing-out) geht über ein logisches ODER in den TAC.

In dem Lutetium-Anteil von LSO sind 2,59% des instabilen Isotops ¹⁷⁶₇₁Lu vorhanden, welches durch seinen β^- -Zerfall zu ¹⁷⁶₇₂Hf eine Prompte in den Lebensdauerpektren provoziert. Hier wird die Spitze der Prompten als Zeitnullpunkt gewählt, statt wie üblich der halbe Anstieg der Lebensdauerkurve. Probleme stellt die Promptkurve bei der Auswertung der R-Wert-Spektren dar. Egal welches Vorzeichen die Anisotropie der Kaskade der verwendeten PAC-Sonde hat, das Spektrum beginnt stets im dem negativen Bereich. Die ersten 1,8 ns des Spektrums sind also nicht auswertbar und werden somit bei der Anpassung der Daten nicht berücksichtigt.

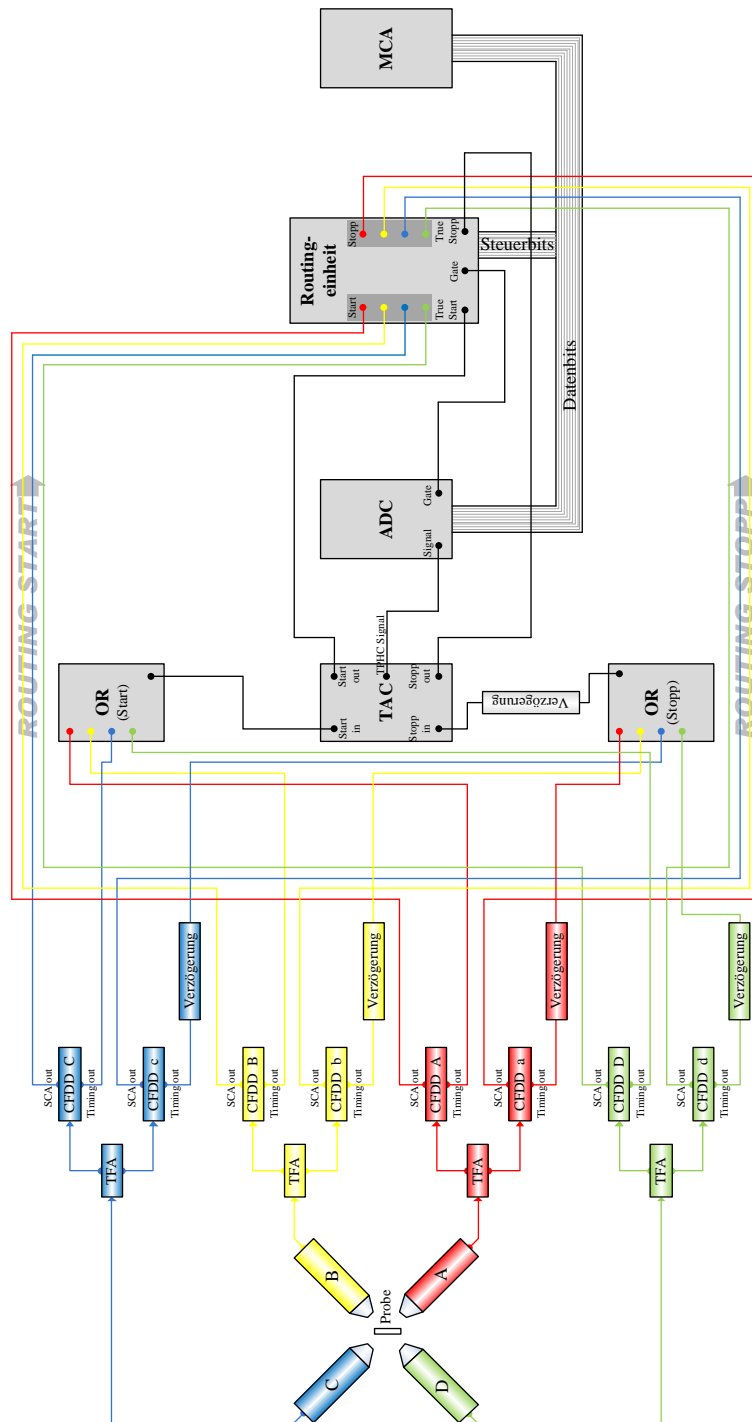


Abbildung 2.10: Schematischer Aufbau der Vier-Detektor-Anlage für Winkelkorrelationsmessungen. Durch Verwendung von LSO als Szintillationskristall ist kein zusätzlicher Slow-Kreis erforderlich. Das Detektorsignal wird geteilt und auf Start- und Stopp-CFDD gegeben. Von hier geht das Energiesignal (SCA-out) in die Routing-Einheit und das Zeitsignal über ein logisches ODER in dem TAC.

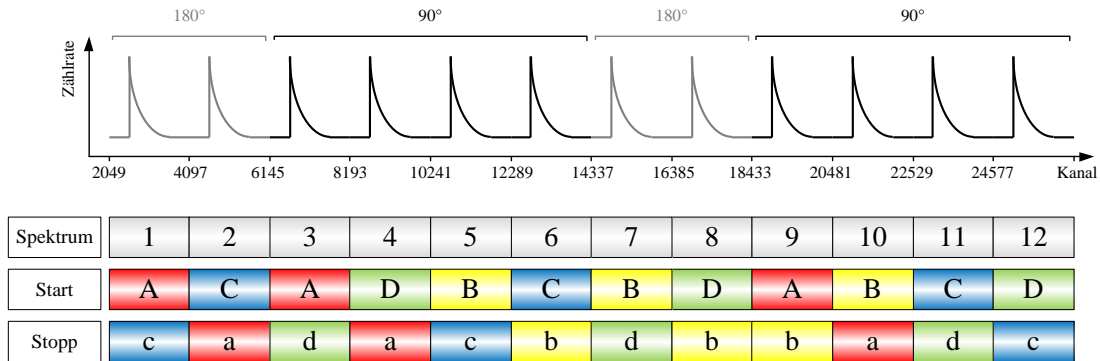


Abbildung 2.11: Die MCA-Karte sortiert die Spektren nach dem vorliegenden Prinzip. Die einzelnen Lebensdauerspektren werden in jeweils 2048 Kanälen aufgenommen und als eine binäre Datei gespeichert.

2.4 Datenanalyse

Die Daten einer Messung werden von einer MCA-Karte vom Typ *Fast MCA-3A* [12] aufgenommen, nach Abbildung 2.11 sortiert und als binäre Datei auf dem Rechner gespeichert. Hierfür wird ein sekundäres Computer-Programm verwendet, da das *MCD-Win*, welches zur Darstellung der Spektren auf dem Rechner verwendet wird, nicht in der Lage ist, Dateien im Binär-Format zu speichern.

Für die Weiterverarbeitung der Daten muss für jedes der zwölf Lebensdauerspektren die Kanalnummer bestimmt werden, ab der die Lebensdauerkurve anfängt. Dies wird der Zeitnullpunkt genannt. Eine bewährte Methode einen Zeitnullpunkt zu bestimmen ist eine Promptkurve aufzunehmen, unter Verwendung der Quelle ^{60}Co . Der Zeitnullpunkt ist dann der Schwerpunkt der Kurve. Hilfreich ist hierbei das Programm *Time Zero* [13], welches die Kanäle der Zeitnullpunkte in eine sogenannten Parameter-Datei schreibt. Die Eigenschaften der Kaskade müssen dieser Datei manuell hinzugefügt werden. Weiterhin können einzelne Spektren in der Parameter-Datei aus- und wieder eingeschaltet werden, was von praktischem Nutzen ist, wenn beispielsweise durch elektronische Störungen das eine oder andere Spektrum fehlerhaft aufgenommen wurde.

Die Spektren müssen vom Untergrund bereinigt, dann aufsummiert und gemittelt werden. Dabei wird aus den gestörten Lebensdauerspektren der exponentielle Zerfall absepariert, da er keine Information über die Störung enthält. Es gibt verschiedene Methoden den sogenannten R-Wert zu bilden [14]. Das Programm *Showfit* verwendet die schon in Gleichung 2.5 beschriebene Methode. Der R-Wert enthält somit nur die Information über die Störung

$$R(t) = A_{22} \cdot G_{22}(t) \quad (2.18)$$

In dem Programm *Showfit* wird erst die Parameter-Datei eingelesen bevor die

binäre Datei mit den Lebensdauerspektren geladen werden kann. Hier können die Lebensdauerspektren logarithmisch dargestellt werden, um eventuelle Korrekturen im abgezogenem Untergrund durchzuführen. Danach kann der R-Wert berechnet und dargestellt werden. Gespeichert wird in einer dreispaltigen rtr-Datei die Zeit, der R-Wert und sein statistischer Fehler.

Nach der Einbringung der Sonden im Gitter können diese auf nicht äquivalenten Plätzen eingebaut werden. In diesen unterschiedlichen Gitterumgebungen erfahren die implantierten Sonden unterschiedliche elektrische Feldgradienten. Ein Teil der Sondenkerne kann beispielsweise auf substitutionellen Gitterplätzen eingebaut werden, andere Sonden können auf Zwischengitterplätzen sitzen oder in der Nähe eines Fremdatoms. Weiterhin sind bei komplizierten Gitterstrukturen nicht alle substitutionellen Gitterplätze äquivalent. Der Anteil f_i der Sondenkerne, die auf äquivalenten Gitterplätzen sitzen, trägt mit seiner charakteristischen Störfunktion $G_i(t)$ zur Gesamt-Störfunktion $G(t)$ bei.

$$G(t) = \sum_i f_i \cdot G_i(t) \quad \text{wobei} \quad \sum_i f_i = 1 \quad (2.19)$$

Die einzelnen charakteristischen Störfunktionen werden mit ihrem Anteil gewichtet und zur Gesamt-Störfunktion aufsummiert. Die Anteile f_i werden dabei auf Eins normiert. Die Störfunktion muss anschließend mit den Anisotropieeffizienten skaliert werden. Mit dem Programm *Nightmare* [15] wird die theoretische Störfunktion mit der Methode der kleinsten Quadrate an die experimentellen R-Wert-Daten angepasst. Hier können verschiedene Parameter angepasst werden, die wichtigsten sind:

- der Anteil f_i
- die Frequenz ω_0
- die Dämpfung δ
- der Asymmetrieparameter η
- die Winkel ϑ, φ, ρ der elektrischen Wechselwirkung zu dem Detektorsystem [15]

Befinden sich die Sonden in einer sehr uneinheitlichen Umgebung, wie sie beispielsweise durch die Gitterschäden nach einer Implantation in einem einkristallinen und axialsymmetrischem Gitter vorhanden sind, so unterliegen jene sehr vielen verschiedenen elektrischen Feldgradienten. Werden die Proben in Raghavan-Geometrie gemessen, hier liegt die Symmetrieachse in der Detektorebene und in 45° zu allen Detektor-Achsen, so wirkt sich dies in den Spektren in einem sehr

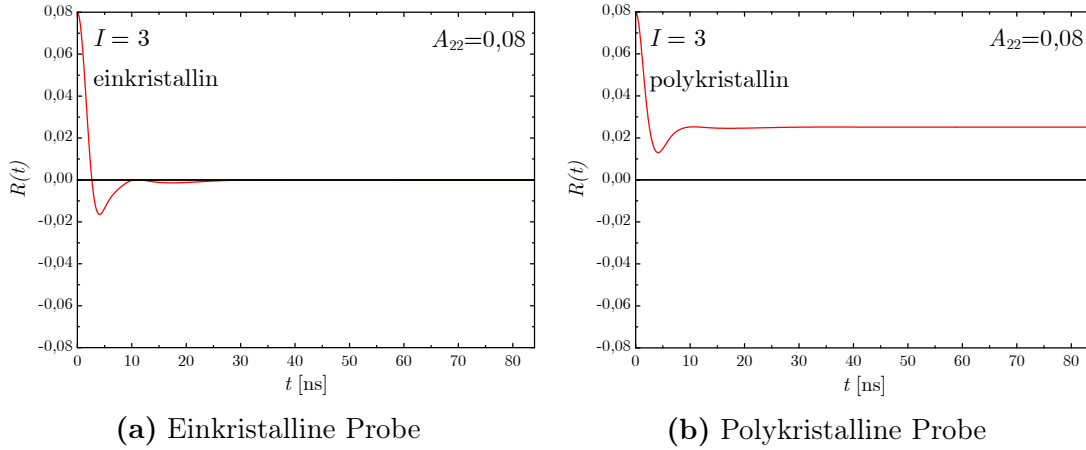
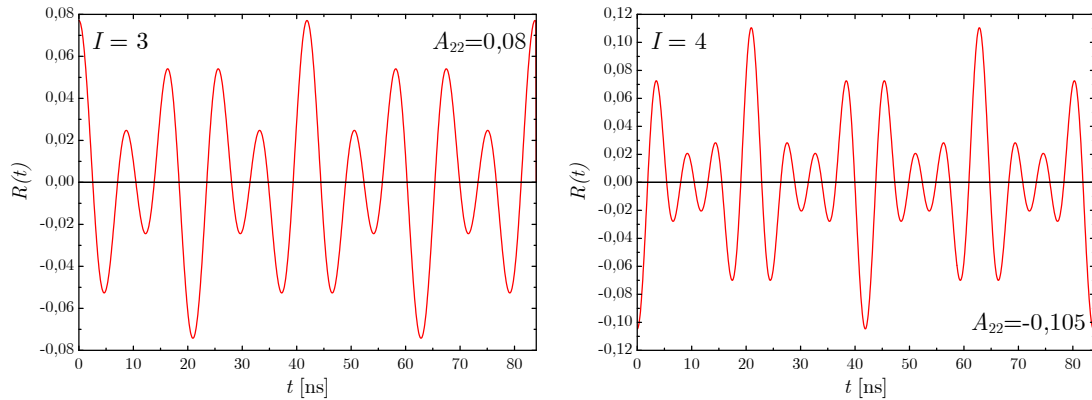


Abbildung 2.12: Der R-Wert einer stark gedämpften Störfunktion geht vom Anisotropiekoeffizienten sehr schnell auf einem Wert, der abhängig von der Art des Festkörpers ist. Handelt es sich um ein einkristallines Festkörper (a), so fällt der R-Wert auf Null. Ist der Festkörper polykristallin (b), fällt der R-Wert auf einen Wert, der vom Kernspin des Zwischenzustandes der $\gamma\gamma$ -Kaskade abhängig ist. Bei Kernspin 3 ist dieser Wert, der auch *hardcore* genannt wird, 31,4% des Anisotropiekoeffizienten.

starken Dämpfungsparameter aus. Die Größe des R-Werts geht vom Anisotropiekoeffizienten sehr schnell auf Null, wie das in Abbildung 2.12 (a) zu sehen ist. Ist das Gitter polykristallin, so sind ein Teil der Gitterachsen auf einen der Detektoren gerichtet. Die Größe dieses Anteils ist vom Kernspin I des Zwischenzustandes der $\gamma\gamma$ -Kaskade abhängig. Bei Kernspin 3 ist dieser Anteil 31,4% und bei Kernspin 4 ist er 28,7% [16]. In Abbildung 2.12 (b) ist ein solcher Fall für Kernspin 3 dargestellt. Der R-Wert fällt hier auf 31,4% des Anisotropiekoeffizienten ab, diesen Wert nennt man *hardcore*.

Können die Schäden in einem einkristallinen Gitter durch eine thermische Behandlung ausgeheilt werden und befinden sich die Sonden auf äquivalenten Plätzen, so wirkt auf sie ein einheitlicher elektrischer Feldgradient. Die Spektren zeigen hier eine ausgeprägte ungedämpfte Quadrupolkopplungskonstante, deren Größe und Form für die jeweilige Kombination zwischen Sondenart und Gitter typisch sind. Die Form des Spektrums hängt hauptsächlich vom Kernspin des Zwischenzustandes ab (siehe Abbildung 2.13).

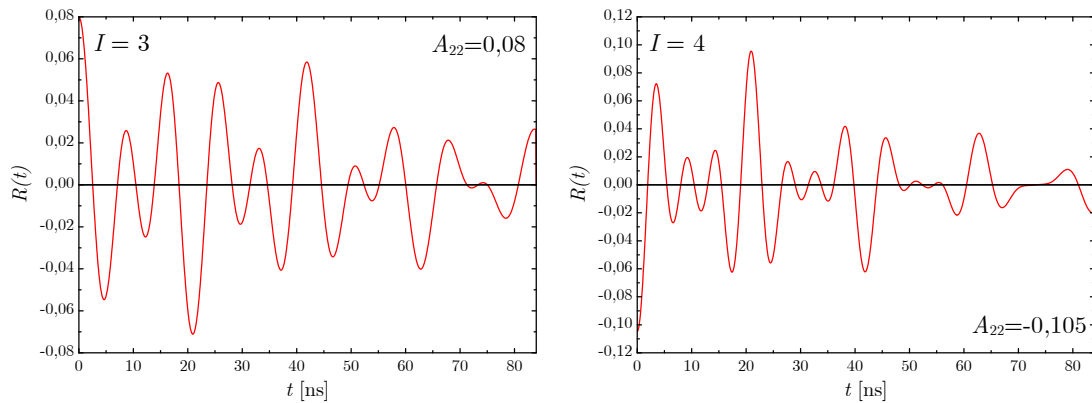
Sind in einem einkristallinen Gitter unterschiedliche Defekte vorhanden und befinden sich diese in unterschiedlichen Entfernungen von der Sonde, so wirkt auf sie ein uneinheitlicher elektrischer Feldgradient. Die Spektren zeigen hier eine Dämpfung δ in der Quadrupolkopplungskonstante (siehe Abbildung 2.14), deren Größe dazu proportional ist, wie uneinheitlich die Umgebung der Sonden ist.



(a) Kernspin $I = 3$ und Anisotropiekoeffizient $A_{22} = 0,08$

(b) Kernspin $I = 4$ und Anisotropiekoeffizient $A_{22} = -0,105$

Abbildung 2.13: Die Störfunktion einer Sonde in einer einheitlichen Umgebung ist von dem Kernspin des Zwischenzustandes abhängig. Bei gleicher Größe der Quadrupolkopplungskonstante ist das hier beispielhaft für eine Sonde mit Kernspin 3 und eine mit Kernspin 4 dargestellt.



(a) Kernspin $I = 3$, Anisotropiekoeffizient $A_{22} = 0,08$ und Dämpfung $\delta = 3\%$

(b) Kernspin $I = 4$, Anisotropiekoeffizient $A_{22} = -0,105$ und Dämpfung $\delta = 3\%$

Abbildung 2.14: Der zeitliche Verlauf des R-Wertes einer Sonde in einer uneinheitlichen Umgebung, die sich mit einer Dämpfung von 3% auf die Störfunktion auswirkt. Bei gleicher Größe der Quadrupolkopplungskonstante ist das hier beispielhaft für eine Sonde mit Kernspin 3 und eine mit Kernspin 4 dargestellt.

Kapitel 3

Die Probenpräparation

3.1 Das Probenmaterial

Festkörper mit der Eigenschaft beim absoluten Nullpunkt Isolatoren zu sein und bei höheren Temperaturen langsam elektrisch leitend zu werden, nennt man Halbleiter. Bei $T = 0$ K sind alle Energiezustände bis zu der Fermi-Energie, der maximal angenommenen Energie, besetzt. Es gibt also so viele Zustände, wie Elektronen im Festkörper vorhanden sind. Da aber ein Festkörper sehr viele Elektronen besitzt, werden die einzelnen Zustände wörtlich in einem Energieband zusammengefasst. Die Valenzelektronen eines Halbleiters befinden sich in einem solchen Energieband, der auch Valenzband genannt wird. Das nächste unbesetzte Band heißt Leitungsband. Dieses ist bei Halbleitern durch eine Bandlücke (engl. *band gap*), ein Energiebereich in dem keine Zustände möglich sind, vom Valenzband getrennt.

Erst durch eine genügend große Energieaufnahme, durch Temperaturerhöhung oder Lichteinstrahlung, können Elektronen in das Leitungsband gelangen und zur elektrischen Leitung beitragen, dabei hinterlassen sie Löcher im Valenzband. Diese Art elektrischer Leitfähigkeit nennt man Eigenleitung oder intrinsische Leitfähigkeit. Der elektrische Widerstand nimmt also bei Halbleitern mit zunehmender Temperatur ab, sie sind sogenannte Heißeleiter. Werden nun geeignete elektrisch aktive Störstellen im Halbleiterkristall eingebracht, was als Dotieren bezeichnet wird, so ist es möglich, die elektrische Leitfähigkeit um mehrere Größenordnungen zu erhöhen. Je nachdem ob der Halbleiter mit Donatoren oder Akzeptoren dotiert wird, kann dabei bestimmt werden, ob der Ladungstransport im Wesentlichen durch Elektronen (n-Leitung) oder durch Löcher (p-Leitung) erfolgen soll [17].

Der wohl bekannteste Halbleiter ist Silizium, der eine Bandlücke von 1,1 eV hat. Er wird vielfältig in der Industrie verwendet, vor allem für die Herstellung von integrierten Schaltkreisen. Hier ist der Einsatzbereich auf Temperaturen unter 423 K beschränkt, darüber hinaus fängt die Eigenleitung an zu dominieren.

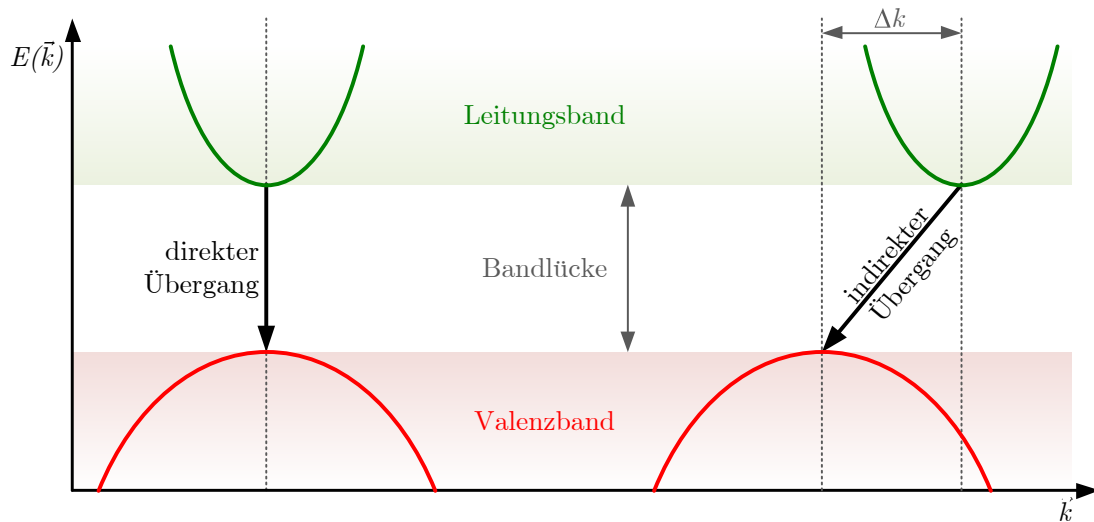


Abbildung 3.1: Im Quasiimpulsraum wird die Energie $E(\vec{k})$ gegen den Wellenvektor \vec{k} aufgetragen. Haben Minimum des Leitungsbandes und Maximum des Valenzbandes kaum Unterschied im Wellenvektor, dann spricht man von einem direkten Bandübergang. Bei einem Unterschied $\Delta k > 0$ wird ein zusätzlicher Quasiimpuls an der Erzeugung oder Vernichtung eines Phonons beteiligt und der Bandübergang geschieht indirekt.

Eine interessante Gruppe von Halbleitern ist die der III-V Halbleiter. Diese bestehen aus einem Element der dritten und einem der fünften Hauptgruppe des Periodensystems der Elemente. Ein Vorteil dieser Halbleiter ist, dass sie meist eine direkte Bandlücke besitzen. Bei der strahlenden Rekombination eines Elektrons aus dem Leitungsband und einem Loch aus dem Valenzband wird die überschüssige Energie über ein Photon abgegeben. Aufgrund des sehr kleinen Quasiimpulses des Photons \vec{k}_{photon} ist diese Art Rekombination nur möglich, wenn im Quasiimpulsraum das Minimum des Leitungsbandes fast direkt über dem Maximum des Valenzbandes liegt (siehe Abbildung 3.1). Der Unterschied im Wellenvektor \vec{k} ist somit vernachlässigbar und man spricht von einem direktem Übergang. Sind Minimum des Leitungsbandes und Maximum des Valenzbandes auf der \vec{k} -Achse im Quasiimpulsraum verschoben, so ist ein zusätzlicher Quasiimpuls beteiligt, der meist von der Erzeugung oder Vernichtung eines Phonons getragen wird. Hier wird also die Energie durch einen indirekten Übergang abgegeben. Die Beteiligung von Phononen verringert die Wahrscheinlichkeit der Emission von Photonen, so rekombinieren indirekte Halbleiter, wie Silizium, meist strahlungslos.

Unter den Halbleitern gibt es die sogenannten Halbleiter mit großer Bandlücke (engl. *wide band gap semiconductors*). Eine genaue Definition, ab wann ein Halbleiter so bezeichnet wird, gibt es nicht. Allgemein akzeptiert wird eine Bandlücke, die größer als 2 eV ist. Halbleiter mit großer Bandlücke können bei höheren Temperaturen betrieben werden, bei denen Silizium schon intrinsisch leitend ist, da

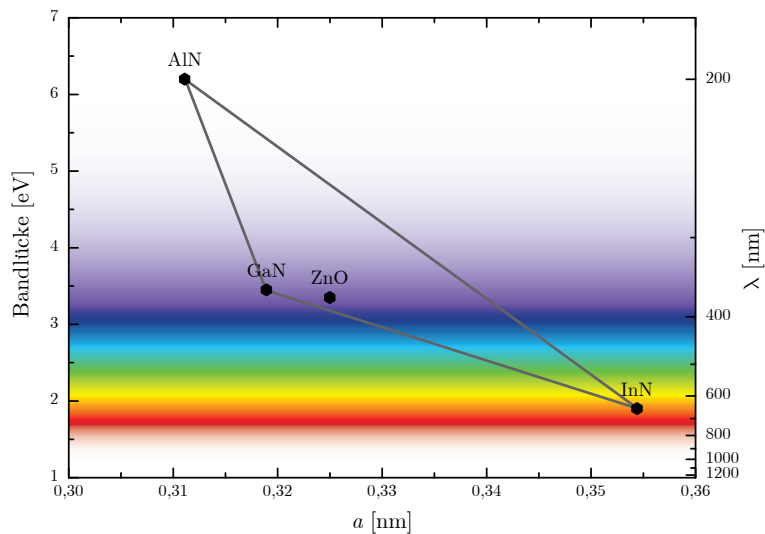


Abbildung 3.2: Die Bandlücke und dazugehörige Wellenlänge einiger Halbleiter gegen den Gitterparameter a aufgetragen. Eine große Bandlücke führt bei Leuchtdioden zu einer Elektrolumineszenz mit einer kleinen Wellenlänge. GaN, mit einer Bandlücke von 3,4 eV, strahlt so im ultravioletten Bereich. Die kleinere Bandlücke von InN verursacht eine Elektrolumineszenz im infraroten Bereich. Durch ternäre Verbindungen wie $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{N}$ können auch die dazwischenliegenden Wellenlängen erreicht werden.

die thermische Anregung von Ladungsträgern in das Leitungsband höhere Energien braucht.

Halbleiter mit großer direkter Bandlücke, die zunehmend an Interesse gewinnen, sind beispielsweise die Gruppe-III-Nitride Galliumnitrid (GaN) und Aluminiumnitrid (AlN) und ternäre Verbindungen wie $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{N}$ oder $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{N}$ (siehe Abbildung 3.2). GaN wird für Anwendungen in der Hochleistungselektronik (Hochleistungs-, Hochtemperatur- und Hochfrequenzfeldeffekttransistoren) und für optoelektronische Bauteile, wie z.B. Laserdioden (LD's) und Leuchtdioden (LED's) eingesetzt.

Die Gruppe-III-Nitride können in drei verschiedenen Kristallstrukturen auftreten. Diese sind Wurtzit, Zinkblende und Steinsalz. Unter normalen Bedingungen ist nur die Wurtzitstruktur (siehe Abbildung 3.3) thermodynamisch stabil. Der Wurtzitstruktur liegt die hexagonale Einheitszelle zugrunde, welche durch die Gitterparameter a und c beschrieben wird. Die Struktur selbst wird von zwei hexagonal dicht gepackten Untergittern gebildet; das eine besteht aus Atomen der dritten Hauptgruppe, das andere aus Stickstoffatomen. Die beiden Untergitter sind in $\langle 0001 \rangle$ Richtung, entlang der sogenannten \hat{c} -Achse, um den Parameter u verschoben. Weiterhin wird bei Wurtzitgittern das $\frac{c}{a}$ Verhältnis angegeben. Bei

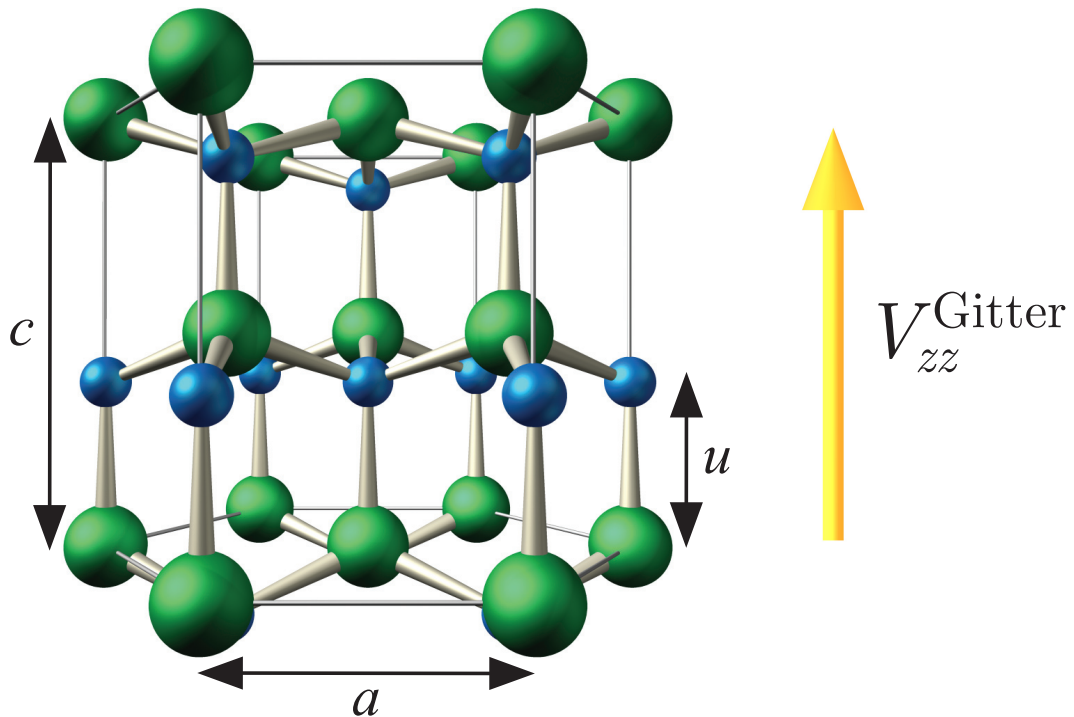


Abbildung 3.3: Als Wurtzit bezeichnet man eigentlich β -Zinksulfid, dieses kristallisiert im hexagonalen Kristallsystem. Die Wurtzitstruktur besteht aus zwei hexagonalen Untergittern, die um den Parameter u entlang der \hat{c} -Achse verschoben sind. Beschrieben wird die Struktur durch die Gitterparameter a und c . Durch die besondere Symmetrie dieser Struktur wird auf Gitterplätzen ein axialsymmetrischer, elektrischer Feldgradient V_{zz}^{Gitter} entlang der \hat{c} -Achse hervorgerufen.

Halbleiter	Aluminiumnitrid	Galliumnitrid	Indiumnitrid
	AlN	GaN	InN
Bandlücke [eV]	6,2	3,39	1,9
Wellenlänge [nm]	200	365	653
Ionizität	0,499	0,500	0,578
Gitterparameter bei 300 K			
a [nm]	0,3111	0,3189	0,3544
c [nm]	0,4981	0,5186	0,5718
u	0,385	0,377	0,379
$\frac{c}{a}$	1,601	1,626	1,613
Dichte [g/cm ³]	3,23	6,15	6,81
Schmelzpunkt [K]	≈ 3500	≈ 2800	≈ 2200

Tabelle 3.1: Die Eigenschaften einiger Gruppe-III-Nitride [18, 19]. Zu erwähnen ist die große direkte Bandlücke dieser Halbleiter. Durch die relativ große Ionizität besitzen sie stabile Bindungen. Die Schmelzpunkte sind nur ungefähre Angaben, da diese Materialien wegen der niedrigen Verdampfungswärme von Stickstoff, schon bei sehr viel niedrigeren Temperaturen anfangen zu dissoziieren.

einem idealen Wurtzitgitter beträgt dieses Verhältnis $\sqrt{\frac{8}{3}} \simeq 1,633$, was bei GaN in guter Näherung erreicht wird (siehe Tabelle 3.1).

Die Ionizität bei den Gruppe-III-Nitriden ist relativ groß, da die Elektronegativitäten der Elemente der dritten Hauptgruppe in etwa halb so groß sind wie die von Stickstoff. Die polaren Bindungen sind sehr stark, was zu einer großen Stabilität dieser Halbleiter führt. Die große Elektronegativitätsdifferenz zusammen mit der Symmetrie der Wurtzitstruktur führen zu einer Polarität in Richtung der \hat{c} -Achse. Freie Ladungsträger sammeln sich so an Oberflächen und Grenzflächen. Durch den Gradienten der Polarisierung treten elektrische Felder in dem Kristall parallel zu der \hat{c} -Achse auf. Bei einer Winkelkorrelationsmessung macht sich dieser elektrische Feldgradient durch eine Grundfrequenz bemerkbar, die auch bei völlig defektfreier Probe sichtbar ist. Weiterhin führen die Eigenschaften der Wurtzitstruktur zu pyroelektrischen und piezoelektrischen Eigenschaften dieser Materialien.

3.1.1 Galliumnitrid

Das Galliumnitrid konnte in größeren Mengen erst mit Einführung der Schichtwachstumsverfahren, wie MOCVD (*Metal Organic Chemical Vapour Deposition*), MBE (*Molecular Beam Epitaxy*), oder HVPE (*Hydride Vapour Phase Epitaxy*) hergestellt werden. Die Herstellung von GaN mit diesen Verfahren ist aber sehr aufwändig, daher wächst man dünne Schichten epitaktisch auf einem Substrat, wie Siliziumkarbid (SiC) oder Saphir (Al_2O_3), auf. Probleme stellen hier die Gitterfehlpassung und die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von GaN und den Substratmaterialien dar. Die Gitterfehlpassung zu Saphir beträgt 13,8%, bei SiC sind es nur 3,1%. Dafür ist dieses Substrat deutlich teurer in der Anschaffung.

Die Vorteile von Saphir liegen nicht nur in seiner ausgedehnten Verfügbarkeit, sondern auch in der hexagonalen Symmetrie seines Gitters. Saphir ist weiterhin einfach in der Handhabung und hat seinen Schmelzpunkt bei 2423 K. Die in dieser Arbeit verwendeten GaN-Proben sind alle auf Saphir aufgewachsen. Die Ausdehnungskoeffizienten von Saphir sind etwas größer als bei GaN, so dass bei höheren Temperaturen die Gitterfehlpassung zunimmt. Ist die GaN-Schicht dick genug, so relaxiert das Gitter und die Fehlanpassung stellt kein Problem mehr dar.

Im reinen Zustand ist Galliumnitrid durch seine hohe Konzentration an elektronischen Ladungsträgern n-leitend. Erst durch Dotierung mit Mg konnte p-leitendes GaN hergestellt werden. Galliumnitrid wird heute bevorzugt zur Herstellung von Leuchtdioden, Hochleistungsleuchtdioden und Lasern verwendet. Die hohe Effizienz der auf GaN basierenden Leuchtdioden, trotz der hohen Defektdichte des Materials, ist bis heute noch nicht geklärt. Beim Einsatz von reinem GaN strahlen die LED's im ultraviolettem Bereich. Weißes Licht wird daher durch verschiedene Fluoreszenzmechanismen erreicht.

In dem Bereich der Speichermedien hat der Einsatz von GaN für die Herstellung von Laserdioden die Entwicklung von *Blu-ray Discs* ermöglicht. Die Wellenlänge der Laser konnte von 780 nm für die CD (*Compact Disc*) und 640 nm für die DVD (*Digital Versatile Disc*) auf 405 nm verkürzt werden und damit der Spurbstand der Daten deutlich verringert werden. Die Speicherkapazität erhöht sich dadurch von 700 MB bei der CD auf 25 GB bei der *Blu-ray Disc*.

Galliumnitrid wird nicht nur in der Optoelektronik eingesetzt, sondern auch für den Bau von integrierten Schaltkreisen als Ersatz für Silizium oder Galliumarsenid (GaAs). Es werden beispielsweise Mikrowellenverstärker auf GaN-Basis hergestellt, da diese mit einer höheren Spannung und Temperatur betrieben werden können und somit eine höhere Leistung erzielen. Solche Mikrowellenverstärker werden schon bei der ESA (*European Space Agency*) eingesetzt, da sie eine höhere Toleranz gegenüber kosmischer Strahlung haben, als die bisher verwendeten

Verstärker auf GaAs-Basis. Dies ist im Weltall von Bedeutung, da es die Lebensdauer der elektronischen Bauteile verlängert.

Durch Dotierung von GaN mit Seltenen Erden wird Elektrolumineszenz bei Raumtemperatur beobachtet, dabei ist die Wellenlänge der Lumineszenz praktisch nur von der Seltenen Erde abhängig (siehe auch Kapitel 3.2). Bei bisher kommerziell verfügbaren Produkten erfolgt die Dotierung während des epitaktischen Wachstums. Hier kann Schicht für Schicht eine vertikale Auflösung erreicht werden. Eine strukturiertere Dotierung kann durch Implantation erreicht werden. Hier käme zu einer vertikalen Auflösung, die man durch Variation der Implantationsenergie erreicht, auch eine gezielte laterale Auflösung. Es wäre also beispielsweise möglich, ein Bauteil mit verschiedenen Seltenen Erden zu dotieren, so dass es in unterschiedlichen Farben leuchten könnte. Dieses Verfahren erfordert eine Ausheilung der Implantationsschäden. Zur Untersuchung der Gitterdefekte und der Ausheilprozesse eignet sich die Methode der gestörten Winkelkorrelation, mit der man gut die Wechselwirkung der Schäden mit den Seltenen Erden untersuchen kann.

3.1.2 Aluminiumnitrid

Das Aluminiumnitrid besitzt ebenfalls ein Wurtzitgitter und eine sehr große Bandlücke von 6,2 eV, weswegen es eher als Isolator und weniger als Halbleiter bezeichnet werden kann. Anfang der achtziger Jahren findet Aluminiumnitrid in der Tat Anwendung in der Technik als Substrat für elektronische Bauteile. Grund hierfür ist, neben seinen guten elektrisch isolierenden Eigenschaften, seine hohe thermische Konduktivität. Aus den gleichen Gründen wird beispielsweise ungiftige Aluminiumnitrid-Keramik als Ersatz für toxisches Berylliumoxid (BeO) eingesetzt.

Erst in den letzten Jahren hat man angefangen AlN in der Optoelektronik zu verwenden. Hier wird es, so wie Galliumnitrid, meist epitaktisch auf Substrate wie Saphir aufgewachsen. Die sehr große Bandlücke verschafft Leuchtdioden auf AlN-Basis eine Lumineszenz mit einer Wellenlänge von 210 nm, also weit im ultravioletten Bereich [20]. Die Effizienz dieser LED's ist aber noch zu klein um vermarktet zu werden. Meist werden ternäre Verbindungen, wie AlGaIn auf Saphir, für optoelektronische Bauteile verwendet. Innerhalb einer solchen Verbindung kann, abhängig vom Verhältnis zwischen Al und Ga, die Bandlücke von AlN bis GaN variiert werden, was zu einer Variation der Wellenlänge der ultravioletten Lumineszenz führt. Ebenso wie GaN wird auch AlN für die Herstellung von Mikrowellenverstärker eingesetzt. Ein Beispiel hierfür ist der HEMT (*High Electron Mobility Transistor*), ein Transistor mit hoher Elektronenbeweglichkeit, der mit sehr hohen Frequenzen getaktet werden kann.

3.2 Eigenschaften von Seltenen Erden

Als Lanthanoide (früher Lanthanide) werden im Periodensystem die dem Lanthan folgenden Elemente Cer bis Lutetium bezeichnet. Bekannt sind sie auch als Seltene Erden; was darauf zurückzuführen ist, dass sie in seltenen Mineralien entdeckt wurden und hieraus als Erden (frühere Bezeichnung für Oxide) isoliert wurden. Ihr Vorkommen auf der Erde ist aber alles andere als selten, zum Beispiel steht das Element Cer auf der kontinentalen Erdkruste an der 25. Stelle der häufigsten Elemente.

Die Seltenen Erden sind sich in ihren chemischen Eigenschaften sehr ähnlich. Eine Erklärung hierfür ist in ihrer Elektronenkonfiguration zu finden. Mit steigender Ordnungszahl wird von Cer bis Lutetium die $4f$ -Schale aufgefüllt. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der $4f$ -Elektronen ist aber kernnah, vor allem im Vergleich zu den Elektronen der $5s$, $5p$, $5d$ und $6s$ -Schalen. So wird die unterschiedliche Anzahl an $4f$ -Elektronen nach außen und von außen abgeschirmt. Die Seltenen Erden unterscheiden sich eher in ihrem zunehmenden Atomgewicht und ihrer abnehmenden Größe. Durch die mit der Ordnungszahl stärker werdende Kernladung, wird die Elektronenhülle stärker angezogen und so kommt es zu der sogenannten Lanthanoiden-Kontraktion.

Charakteristisch für die Seltenen Erden ist die Oxidationszahl $3+$, in der alle Elemente bevorzugt auftreten. Die Oxidation erfolgt durch Abgabe von Elektronen in der folgenden Reihenfolge: Zuerst werden die $6s$ -Elektronen abgegeben, danach – falls vorhanden – die $5d$ -Elektronen und erst dann gehen die Elektronen der $4f$ -Schale in Bindung. Lanthanoide mit leerer ($4f^0$), halbvoller ($4f^7$) oder voller ($4f^{14}$) $4f$ -Schale haben eine zusätzliche Stabilität und können daher auch die Wertigkeit $2+$ oder $4+$ haben.

Die Eigenschaft der $4f$ -Schale von weiter außen liegenden Schalen weitgehend abgeschirmt zu sein, lässt intra-atomare Übergänge zu. Hier kann elektromagnetische Strahlung vom infraroten bis hin zum ultravioletten Spektralbereich durch Übergänge zwischen den verschiedenen $4f$ -Niveaus absorbiert oder emittiert werden [21]. Dies eröffnet einige interessante Applikationen im optischen Bereich. So werden beispielsweise Praseodym und Neodym zum Färben von Gläsern verwendet. Für die Herstellung von Leuchtfarbstoffen, für Fernschröhren und Monitore wird Europium für die Rot-Komponente und Gadolinium für die Grün-Komponente verwendet. Leuchtdioden, die auf GaN basieren, strahlen im roten Bereich, wenn sie mit Europium dotiert sind, im blauen Bereich, wenn sie mit Thulium dotiert sind und im grünen Bereich, wenn eine Dotierung mit Erbium erfolgt ist (siehe Abbildung 3.4).

Der intra-atomare Leuchtmechanismus der $4f$ -Schale hat mehrere Vorteile. Einerseits können, durch eine Dotierung des selben Bauteils mit unterschiedlichen Seltenen Erden, Mischfarben erzeugt werden. Andererseits führt die Tatsache,

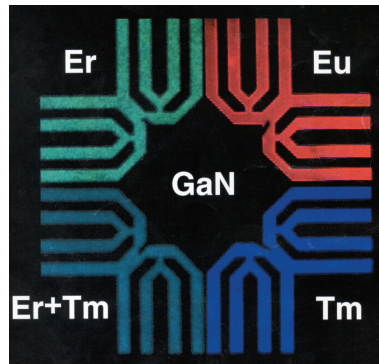


Abbildung 3.4: Dotiert man eine LED auf GaN Basis mit unterschiedlichen Seltenen Erden, strahlt diese in unterschiedlichen Farbtönen. Da der Leuchtmechanismus auf intra-atomare Übergänge in der $4f$ -Schale zurückzuführen ist, können durch eine gemischte Dotierung Mischfarben erzeugt werden. Das Bild ist ein Auszug aus dem Titelblatt von dem MRS Bulletin, Ausgabe September 1999 [21].

dass Seltene Erden chemisch kaum unterscheidbar sind, zu einer einheitlichen Wechselwirkung mit ihrer Gitterumgebung. So haben, die mit unterschiedlichen Seltenen Erden dotierten Bauteile, alle praktisch dieselbe Ausheiltemperatur und Ausheilzeit. Diese einheitliche Handhabung erweitert die Anwendungsmöglichkeiten enorm.

3.3 Die Sonde $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$

Das Isotop $^{172}_{71}\text{Lu}$ zerfällt über Elektroneneinfang in angeregte Zustände des Tochterisotops $^{172}_{70}\text{Yb}$. Das komplizierte Zerfallsschema umfasst sehr viele Übergänge, wie an dem Energiespektrum in Abbildung 3.5 schon teilweise zu erkennen ist. Geeignet für gestörte Winkelkorrelationsuntersuchungen ist die Doppelkaskade $91\text{ keV} \rightarrow 1094\text{ keV} \rightarrow 79\text{ keV}$, die in Abbildung 3.6 dargestellt ist. Die wichtigsten für PAC relevanten Daten der beiden Kaskaden sind in Tabelle 3.2 zusammengefasst.

Der erste Übergang von dem Niveau mit 1263 keV und Spin 4^+ auf dem Niveau mit 1172 keV und Spin 3^+ entsendet bei der Abregung ein γ -Quant der Energie 91 keV , welches als Startsignal für Koinzidenz-Messungen in der PAC verwendet wird. Das Zwischenniveau hat einen Anisotropiekoeffizienten von $A_{22} = 0,367$, ein Quadrupolmoment von $Q_K = 2,87\text{ b}$ und bevölkert mit einer Halbwertszeit von $8,14\text{ ns}$ zu 63% das Niveau mit 79 keV und Spin 2^+ unter Entsendung eines γ -Quants der Energie 1094 keV . Dieser Übergang wird als Stoppsignal für die erste Kaskade verwendet und gleichzeitig kann er als Startsignal für die zweite Kaskade verwendet werden. Somit ist das Niveau mit 79 keV gleichzeitig das

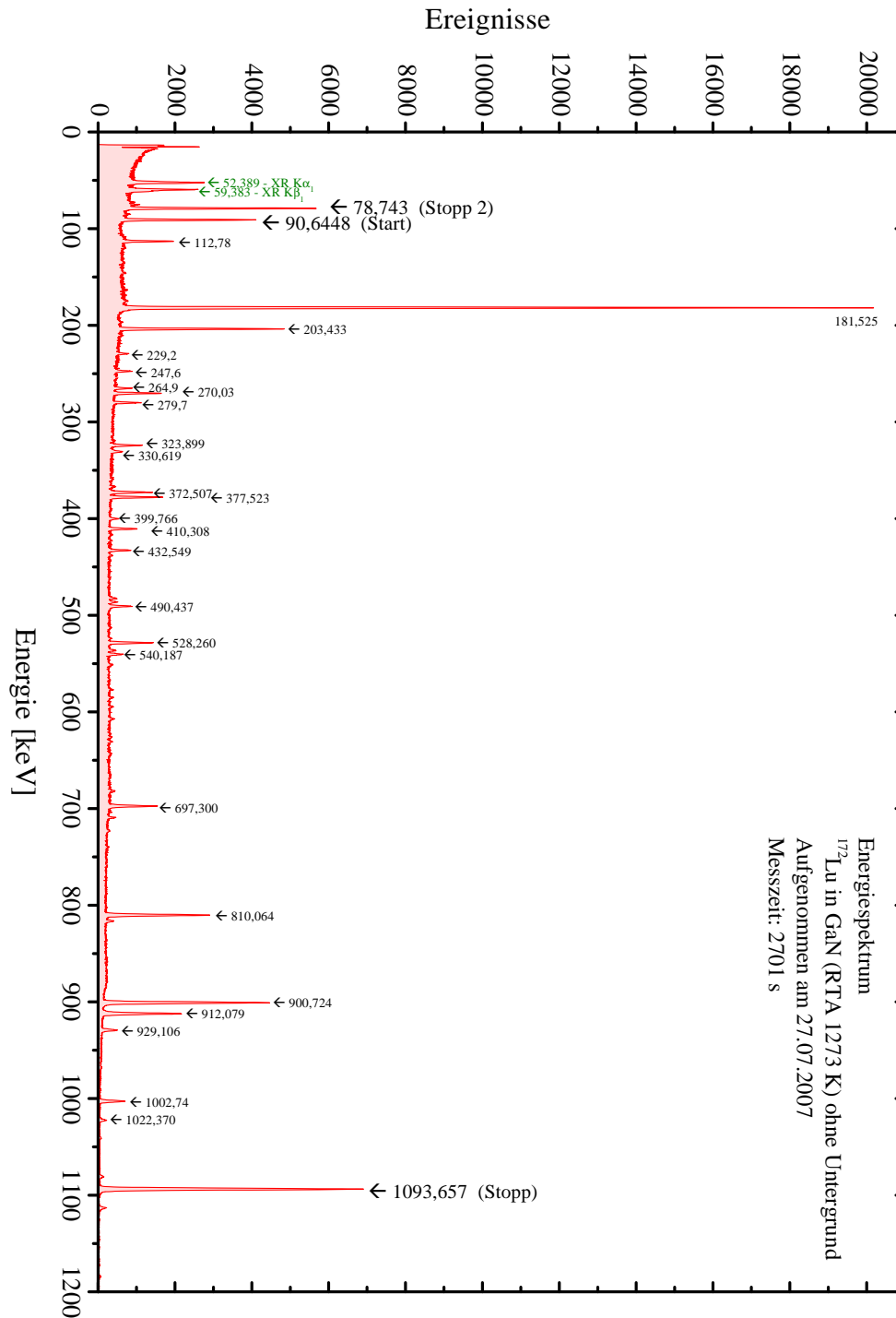


Abbildung 3.5: Das Energiespektrum von ^{172}Lu aufgenommen mit einem Germaniumdetektor. Die Energien der einzelnen Spitzen sind in keV gekennzeichnet, so wie die Start- und Stopp-Energien. In grün gekennzeichnet sind die Röntgenstrahlen.

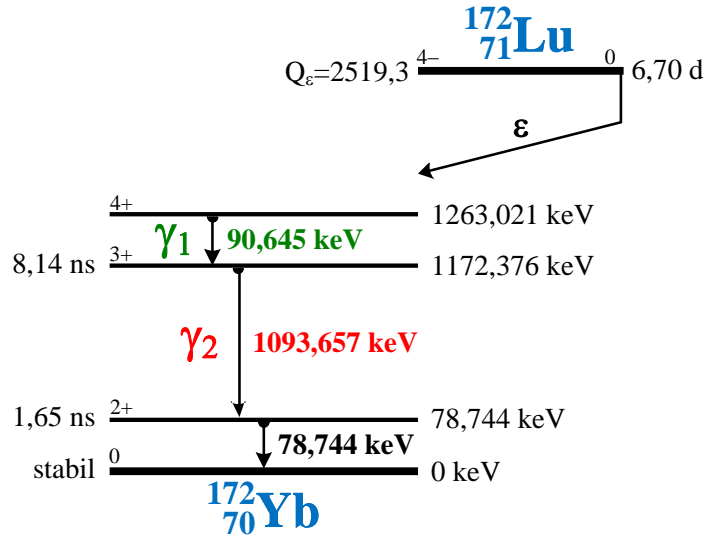


Abbildung 3.6: $^{172}_{71}\text{Lu}$ zerfällt mit einer Halbwertszeit von 6,70 d über Elektroneneinfang in angeregte Zustände des Tochterisotops $^{172}_{70}\text{Yb}$ [22]. Hier wird der Übersicht halber nur die für die PAC relevante $\gamma\gamma$ -Kaskade dargestellt.

Kaskade		91 keV \rightarrow 1094 keV	1094 keV \rightarrow 79 keV
Halbwertszeit	$t_{\frac{1}{2}}$	8,14 ns	1,65 ns
Spin	I	3^+	2^+
Quadrupolmoment	Q_K	$(2,87 \pm 0,41) \text{ b}$	$(2,16 \pm 0,37) \text{ b}$
Anisotropiekoeffizient	A_{22}	$0,367 \pm 0,015$	$-0,392 \pm 0,008$
Anisotropiekoeffizient	A_{44}	$0,021 \pm 0,024$	$-0,059 \pm 0,011$
magnetisches Moment	μ	$(0,64 \pm 0,04) \cdot \mu_K$	$(0,669 \pm 0,016) \cdot \mu_K$

Tabelle 3.2: Eigenschaften der Zwischenzustände der beiden für die PAC relevanten Kaskaden von $^{172}_{70}\text{Yb}$ [23, 24, 25]

Zwischenniveau der zweiten Kaskade.

Gegenüber der ersten Kaskade hat dieses Niveau eine kleinere Halbwertszeit von 1,65 ns. Der zweite Übergang in den Grundzustand ist stark konvertiert, daher ist die Intensität (10,6%) nicht merklich höher als bei dem 91 keV-Übergang. Die Anisotropie dieser Kaskade $A_{22} = -0,392$ ist vergleichbar mit der ersten, hat aber das entgegengesetzte Vorzeichen. Die Zeitauflösung einer PAC-Apparatur macht es schwierig bei dieser kurzen Halbwertszeit quantitative Aussagen zu treffen, jedoch kann die Kaskade zur Validierung der Resultate der ersten Kaskade herbeigezogen werden.

Beide Kaskaden dieser Sonde sind eine Herausforderung für das Detektionssystem, einerseits wegen der kurzen Halbwertszeiten und andererseits liegen die Energien der Übergänge weit auseinander. Insbesondere sinkt die Nachweiswahrscheinlichkeit bei höheren Energien drastisch. Hier sind die neu eingesetzten LSO-Szintillationskristalle mit ihrer gegenüber BaF_2 höheren Nachweiswahrscheinlichkeit von großem Vorteil.

Das Radioisotop $^{172}_{71}\text{Lu}$ wurde schon in früherer Zeit [26, 27] auf Tauglichkeit für Winkelkorrelationsuntersuchungen getestet. Die sich in der Literatur befindlichen Werte für die Anisotropie liegen deutlich höher als die experimentell nachgewiesenen. Das Zwischenniveau (1172 keV) der Kaskade wird von vielen Übergängen mit hohen Energien – höher als 91 keV – bevölkert und zum Teil koinzident mit dem 1094 keV-Übergang entvölkert. Diese Übergänge haben eine höhere Wahrscheinlichkeit für einen Comptoneffekt im Szintillationskristall, so dass die Wahrscheinlichkeit für die Detektion von γ -Quanten in dem Energiefenster der 91 keV-Linie steigt. Dazu haben die meisten Übergänge eine negative Anisotropie und sind so der eigentlich verwendeten Kaskade entgegengesetzt. Die erwartete Absenkung der Anisotropie kann berechnet werden, indem die Anisotropien der einzelnen Kaskaden gewichtet aufsummiert werden [28]. Der Anisotropiekoeffizient der Kaskade 91 keV \rightarrow 1094 keV ist somit $A_{22} = 0,131 \pm 0,054$. Durch die Öffnungswinkelkorrekturen (siehe Kapitel 2.3) für die verwendete Anlage ergibt sich für die effektive Anisotropie ein erwarteter Wert von $A_{kk}^{\text{eff}} = 0,08$.

In eine Probe wird zwar das Isotop $^{172}_{71}\text{Lu}$ eingebracht, die eigentliche Winkelkorrelation wird aber an der Sonde $^{172}_{70}\text{Yb}$ gemessen. Ytterbium befindet sich in kristallinen Gittern in einem 2+ oder 3+ Zustand. Der 2+ Zustand hat eine vollbesetzte 4*f*-Schale und da vollbesetzte Schalen sphärische Symmetrie haben, erzeugen sie keinen elektrischen Feldgradienten. Im Gegensatz dazu hat das Yb^{3+} ein Loch in der 4*f*-Schale. Hier führt die *LS*-Kopplung ($L = 3$ und $S = \frac{1}{2}$) zu einer Aufspaltung in ein energetisch höheres $\frac{5}{2}$ und ein niedrigeres $\frac{7}{2}$ Niveau.

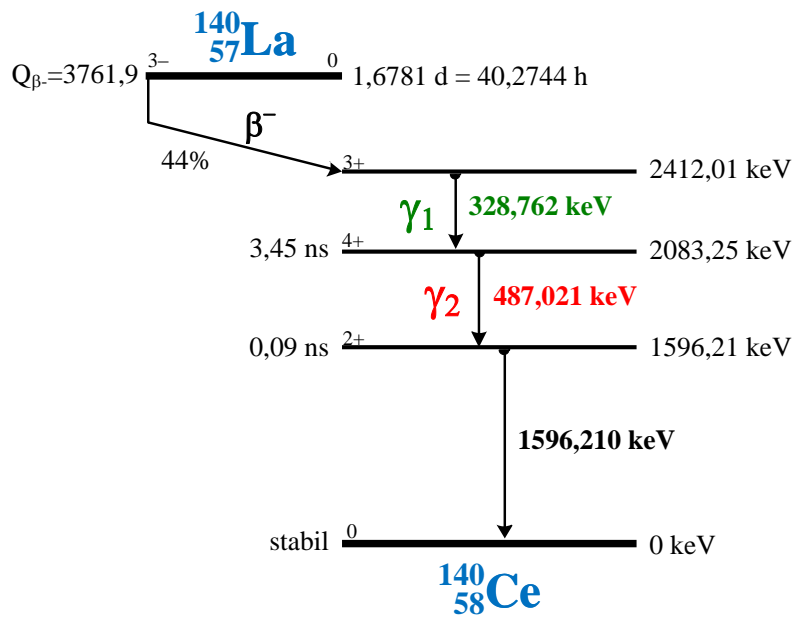


Abbildung 3.7: $^{140}_{57}\text{La}$ zerfällt mit einer Halbwertszeit von 1,68 d über β^- -Zerfall in angeregte Zustände des Tochterisotops $^{140}_{58}\text{Ce}$ [22]. Hier wird der Übersicht halber nur die für die PAC relevante $\gamma\gamma$ -Kaskade dargestellt.

3.4 Die Sonde $^{140}\text{La}(^{140}\text{Ce})$

Das Isotop $^{140}_{57}\text{La}$ zerfällt über β^- -Zerfall in angeregte Zustände des Tochterisotops $^{140}_{58}\text{Ce}$ (Abbildung 3.7). Das komplizierte Zerfallsschema umfasst auch hier sehr viele Übergänge. Geeignet für gestörte Winkelkorrelationsuntersuchungen ist die Kaskade $329\text{ keV} \rightarrow 487\text{ keV}$. Die wichtigsten für PAC relevanten Daten der Kaskade sind in Tabelle 3.3 zusammengefasst.

Beim Übergang vom 2412 keV Niveau mit Spin 3^+ auf das 2083 keV Niveau mit Spin 4^+ wird ein γ -Quant der Energie 329 keV entsendet. Das Zwischenniveau hat eine Anisotropie von $A_{22} = -0,105$, ein Quadrupolmoment von $Q_K = 0,35\text{ b}$ und bevölkert mit einer Halbwertszeit von 3,45 ns das 1596 keV Niveau mit Spin 2^+ . Letzteres geht für die PAC praktisch instantan auf das Grundniveau über.

Das Isotop $^{140}_{57}\text{La}$ wird in die Probe eingebracht, die eigentliche Winkelkorrelation wird aber an der Sonde $^{140}_{58}\text{Ce}$ gemessen. Cer befindet sich in kristallinen Gittern in einem 3^+ oder 4^+ Zustand. Der 4^+ Zustand hat eine leere $4f$ -Schale und eine vollbesetzte $5p$ -Schale und da vollbesetzte Schalen sphärische Symmetrie haben erzeugen sie keinen elektrischen Feldgradienten. Im Gegensatz dazu hat das Ce^{3+} ein Elektron in der $4f$ -Schale. Hier führt die LS -Kopplung ($L = 3$ und $S = \frac{1}{2}$) zu einer Aufspaltung in ein energetisch höheres $\frac{7}{2}$ und ein niedrigeres $\frac{5}{2}$ Niveau.

Kaskade		328,8 keV \rightarrow 487,0 keV
Halbwertszeit	$t_{\frac{1}{2}}$	3,45 ns
Spin	I	4 ⁺
Quadrupolmoment	Q_K	(0,35 \pm 0,07) b
Anisotropiekoeffizient	A_{22}	-0,105
magnetisches Moment	μ	(4,35 \pm 0.10) $\cdot \mu_K$

Tabelle 3.3: Eigenschaften des Zwischenzustandes der für die PAC relevante Kaskade von $^{140}_{58}\text{Ce}$ [29, 30]

3.5 Produktion und Implantation

Es gibt unterschiedliche Methoden eine Sonde in ein Wirtsgitter einzubringen. In dieser Arbeit wurde die Methode der Ionenimplantation bevorzugt, weil sie gegenüber einem Schmelzverfahren oder einem Wachstumsverfahren einige Vorteile bietet. Die Ionenimplantation ist nicht durch die Löslichkeit beschränkt und sie bietet zudem eine gute Kontrolle über die Implantationstiefe und Konzentration der eingebrachten Fremdatome. Des Weiteren ist eine laterale Strukturierung durch dünne fokussierte Ionenstrahlen oder Maskierungen möglich. Deswegen ist sie eine bewährte Methode zur Dotierung und Strukturierung für industriell hergestellte elektronische Bauteile. Durch das Implantieren energiereicher Ionen entstehen im Wirtsgitter Schäden, die durch eine geeignete Methode ausgeheilt werden müssen. Bei zu hohen implantierten Ionendosen kann das Gitter amorphisieren, dann sind die Strahlungsschäden abhängig vom Wirtsmaterial nicht immer ausheilbar.

Die Sonde ^{172}Lu wird für einige Proben am CERN¹ in Genf (Schweiz) und für andere Proben in Bonn hergestellt und implantiert. In dem nächsten Kapitel sollen beiden Verfahren, sowie Vor- und Nachteile, näher diskutiert werden. Die Sonde ^{140}La wird durch Neutronenbestrahlung am Forschungsreaktor des *GKSS Forschungszentrum* in Geesthacht hergestellt und anschließend am Bonner Isotopenseparator implantiert.

Am CERN können an der *ISOLDE-Facility (Isotope Separator OnLine Danish Engineering²)* Isotope hergestellt und direkt implantiert werden. Diese gut funktionierende Methode hat den Vorteil, dass die Isotope kontinuierlich produziert

¹ Der Name leitet sich aus dem französischen Akronym *Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire* ab. Das CERN wurde 1952 gegründet. Seit 1954 steht die Abkürzung für *Organisation Européenne pour la Recherche Nucléaire*.

² Das *Danish Engineering* wird heute nicht mehr erwähnt.

und direkt in die Probe eingebracht werden, so dass man eine gute Kontrolle über die implantierte Menge hat. Probleme bereiten hier die Seltenen Erden; sie sind sehr reaktiv und neigen dazu schnell zu oxidieren. Der ^{172}Lu -Strahl kann also mit Molekülen gleicher Masse kontaminiert sein, vor allem mit oxidierten, leichteren Seltenen Erden, wie beispielsweise $^{156}\text{Gd}^{16}\text{O}$. Weiterhin nachteilig ist der weite Transport der fertigen Proben zur Messanlage nach Bonn. Dies erfordert einen zeitlichen Aufwand von über einer Woche. Die Transportdauer entspricht etwas mehr als einer Halbwertszeit von ^{172}Lu . Dies bedeutet, dass sich die für die Messung zur Verfügung stehende Aktivität in dieser Zeit halbiert. Zu diesen Problemen kommt hinzu, dass das Isotop ^{172}Lu , an ISOLDE selten verfügbar ist; meist nur zweimal im Jahr.

Diese Gründe waren die Motivation Produktion und Implantation in Bonn durchzuführen. Hier kann das Lutetium am Bonner Isochron-Zyklotron durch α -Bestrahlung einer Thulium-Folie hergestellt werden und am Bonner Isotopenseparator in die gewünschte Probe implantiert werden. Die Vorteile dieser Methode zeichnen sich durch die häufige Wiederholbarkeit und die komplette Durchführung vor Ort aus. Nachteilig hierbei ist, dass die implantierte Menge begrenzt ist, denn nur ein tausendstel der produzierten ^{172}Lu -Atome gelangen in die Probe. Weiterhin ist auch hier der Implantations-Strahl durch andere Isotope kontaminiert, wie beispielsweise das stabile ^{172}Yb .

3.5.1 Die Bonner Methode

Herstellung von ^{172}Lu am Zyklotron

Eine Methode für die Herstellung von ^{172}Lu ist die Bestrahlung des Elements Thulium ^{169}Tm mit $^4\text{He}^{2+}$ (α -Teilchen), in der ein Neutron wieder freigegeben wird. Der Verlauf des Wirkungsquerschnitts σ für die Kernreaktion $^{169}\text{Tm}(\alpha, n)^{172}\text{Lu}$ ist in Abbildung 3.8 dargestellt. Der maximale Wirkungsquerschnitt wird bei einer Energie der $^4\text{He}^{2+}$ Atome von 21 MeV erreicht. Wie an der Tabelle 3.4 erkennbar ist, ist für einen α -Strahl am Bonner Isochron-Zyklotron die geringste verfügbare Energie 28 MeV. Um einen Strahl geringerer Energie zu erreichen, muss dieser abgebremst werden bevor das Tm-Target getroffen wird. Betriebsbedingt wird eine Energie von 33 MeV gewählt, da hier das Zyklotron stabil und mit maximalem Strom arbeitet. Um die benötigte Energie von 21 MeV im Target zu erhalten, wird als Absorber eine Schicht aus reinstem Aluminium mit einer Dicke von $185\ \mu\text{m}$ eingesetzt.

Eine Simulation mit dem Programm *SRIM* [36] ergibt hinter dem Absorber eine Restenergie von 24 MeV (siehe Abbildung 3.9). Diese Energie ist bewusst etwas größer als die des maximalen Wirkungsquerschnitts gewählt, damit die Wahrscheinlichkeit der Kernreaktion (α, n) um das Maximum herum ausgenutzt

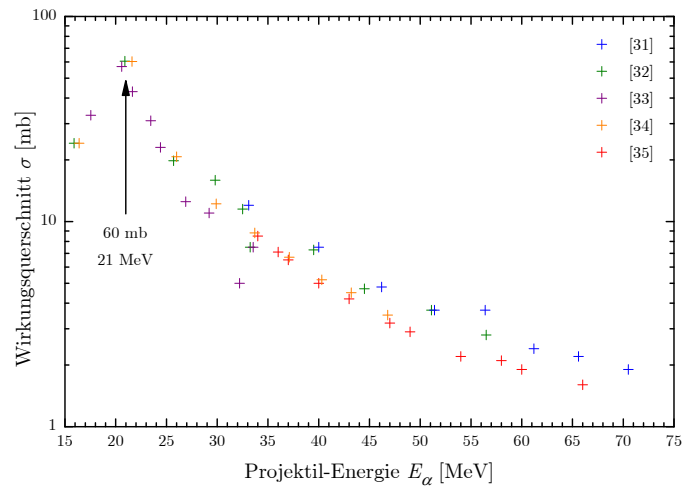


Abbildung 3.8: Wirkungsquerschnitt für die Herstellung des Isotops ^{172}Lu mittels einer (α, n) -Kernreaktion in einem Target aus natürlichem Thulium. Der Wirkungsquerschnitt erreicht bei einer Energie von 21 MeV ein Maximum von 60 mb. Die Daten stammen aus [31, 32, 33, 34, 35]

Ion		Ladung/Masse	Energie	Externer Strom
		(e/m)	[MeV]	[μA]
Proton p	$^1\text{H}^{1+}$	1/1	7-14	10
H_2^+	$(^1\text{H}_2)^{1+}$	1/2	14-28	5
Deuterium d	$^2\text{H}^{1+}$	1/2	14-28	5
^3He	$^3\text{He}^{2+}$	2/3	21-42	3
α	$^4\text{He}^{2+}$	1/2	28-56	3
Kohlenstoff	$^{12}\text{C}^{4+}$	1/2	81-84	0,2
Stickstoff	$^{14}\text{N}^{5+}$	5/14	94-110	0,2
Sauerstoff	$^{16}\text{O}^{6+}$	3/8	107-140	0,2

Tabelle 3.4: Am Bonner Isochron-Zyklotron können Strahlen unterschiedlicher Masse nur in einem bestimmten Energiefenster beschleunigt werden. Bei $^4\text{He}^{2+}$ ist eine Energie zwischen 28 und 56 MeV mit einem Strahlstrom von $3 \mu\text{A}$ möglich.

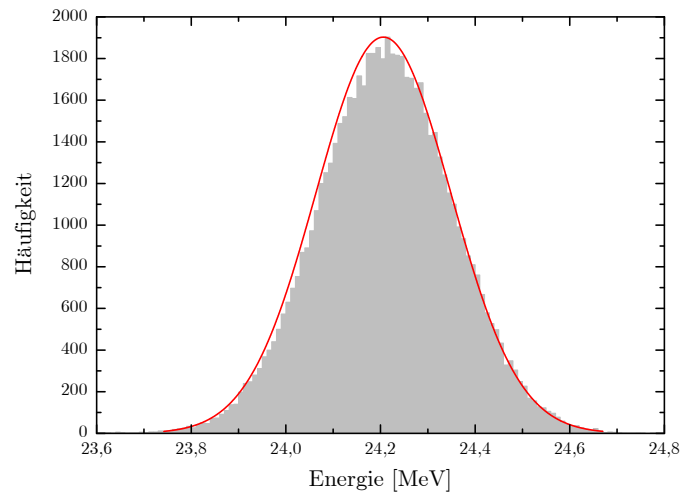


Abbildung 3.9: Ein Aluminium-Absorber der Dicke $185\ \mu\text{m}$ wird mit α -Teilchen der Energie $33\ \text{MeV}$ beschossen. Eine Simulation mit *SRIM* zeigt, dass die Energie hinter dem Absorber um $24,2\ \text{MeV}$ verteilt ist.

wird. Größer darf die Energie nicht sein, da sonst die unerwünschte Kernreaktion $(\alpha, 2n)$ bevorzugt stattfinden würde und so das Isotop ^{171}Lu favorisiert produziert würde. In Thulium kommen α -Teilchen mit einer Anfangsenergie von $24\ \text{MeV}$ ca. $130\ \mu\text{m}$ weit. Somit ist die verwendete Thulium-Folie³ mit einer Dicke von $175\ \mu\text{m}$ ausreichend, damit keine Heliumkerne die Folie durchfliegen können. Die Folie wird so in Aluminium-Folie eingepackt, dass die gewünschte Absorber-Dicke erreicht wird. Dann wird sie in einem Probenhalter eingeklemmt und am Hochstromplatz angeflanscht. Es handelt sich um den ersten Strahlplatz nachdem die α -Teilchen aus dem Zyklotron ejektiert werden und bietet daher einen hohen Teilchenstrom. Im wassergekühlten Probenhalter herrscht ein Vakuum von ungefähr $10^{-3}\ \text{Pa}$.

Das Maximum des Wirkungsquerschnitts für die Kernreaktion $^{169}\text{Tm}(\alpha, n)^{172}\text{Lu}$ wird etwa $30\ \mu\text{m}$ tief in der Thulium-Folie erreicht, wie aus der in Abbildung 3.10 dargestellten Simulation abgeschätzt werden kann. Die volle Halbwertsbreite erstreckt sich demnach von knapp unter der Oberfläche der Folie bis in etwa $60\ \mu\text{m}$ Tiefe. Die Hauptwechselwirkungszone hat somit eine Dicke von ca. $55\ \mu\text{m}$ und einen mittleren Wirkungsquerschnitt von ca. $45\ \text{mb}$.

Die Anzahl der in einem Thulium-Target der Dicke $d = 10\ \mu\text{m}$ produzierten ^{172}Lu -Kerne soll nun abgeschätzt werden. Diese kann aus dem Gesetz zur Absorption von Strahlung durch Materie bestimmt werden

$$N_0(t) = n \cdot d \cdot \sigma \cdot Q(t)$$

³ Die Thulium-Folie ist von der Firma *Alfa Aesar GmbH & Co KG*, A Johnson Matthey Company, Postfach 11 07 65, 76057 Karlsruhe oder <http://www.alfa.com>

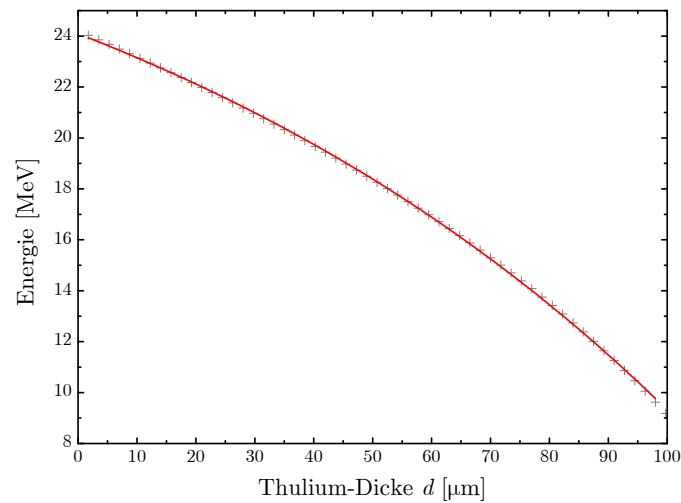


Abbildung 3.10: Der Energieverlauf von 24 MeV α -Teilchen in Thulium-Folie. Das Maximum des Wirkungsquerschnitts wird in etwa 30 μm Tiefe erreicht.

wobei σ der mittlere Wirkungsquerschnitt ist. Die Teilchendichte n ist aus

$$n = \frac{N_A}{m} \cdot \rho$$

zu bestimmen, wobei $\rho = 9318 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$ die Dichte von Thulium ist und $m = 168,9 \text{ u}$ bzw. $0,1689 \frac{\text{kg}}{\text{mol}}$ das mittlere Isotopengewicht. Das Stromintegral $Q(t)$ ist dann

$$Q(t) = \int I dt = \frac{I}{q} \cdot t$$

So ergibt sich für die Anzahl der produzierten Kerne zur Zeit t

$$N_0(t) = \frac{N_A}{m} \rho \cdot d \cdot \sigma \cdot \frac{I}{q} \cdot t \quad (3.1)$$

und für die Produktionsrate

$$P = \frac{I \cdot \sigma \cdot \rho \cdot d \cdot N_A}{m \cdot q} \quad (3.2)$$

Die produzierten ^{172}Lu -Kerne zerfallen mit einer Halbwertszeit von 6,70 d zu ^{172}Yb . So muss die Anzahl der produzierten Kerne korrigiert werden zu

$$M = P \cdot \frac{1}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (3.3)$$

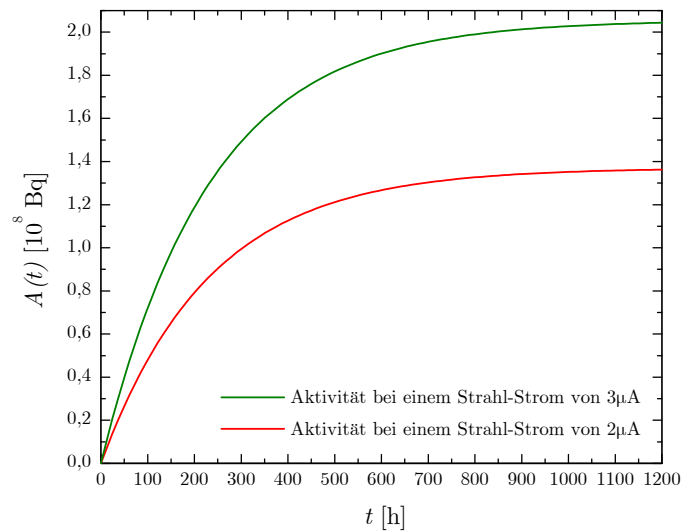


Abbildung 3.11: Die Funktion 3.4 beschreibt die hergestellte Aktivität von ^{172}Lu als Funktion der Zeit. Für die untere Kurve wurde ein Strom von $2\ \mu\text{A}$ eingesetzt, für die obere eines von $3\ \mu\text{A}$. Man erkennt, dass das Plateau bei beiden Kurven gleichzeitig erreicht wird. Durch einen höheren Strom erreicht man lediglich eine größere End-Aktivität.

wobei für die Zerfallskonstante λ gilt $\lambda = \frac{\ln 2}{t_{1/2}}$. Hieraus kann dann die zur Zeit t hergestellte Aktivität berechnet werden

$$A(t) = \frac{I \cdot \sigma \cdot \rho \cdot d \cdot N_{\text{A}}}{m \cdot q} \cdot \left(1 - e^{-\frac{\ln 2}{t_{1/2}} t}\right) \quad (3.4)$$

Wie man an dem Verlauf dieser Funktion, der in Abbildung 3.11 dargestellt ist, erkennen kann, stellt sich nach einiger Zeit ein Gleichgewicht ein. Ab dieser Zeit werden genauso viele Kerne produziert wie auch wieder zerfallen. Über diese Zeit hinaus lohnt es sich nicht die Produktion durch Bestrahlung weiter zu betreiben. Außerdem entsteht durch den stetigen Zerfall des ^{172}Lu immer mehr ^{172}Yb , welches später mit implantiert wird. Die maximale Aktivität kann also nur durch einen höheren Strahl-Strom gesteigert werden.

Die Bestrahlung erfolgt bei einem durchschnittlichen Strom von ca. $3\ \mu\text{A}$ für ca. 75 h, so dass nach der Bestrahlung die Probe eine Aktivität von ca. 60 MBq hat. Die bestrahlte Folie wird erst nach einigen Tage ausgebaut, damit die Aktivität der kurzlebigen Isotope abklingen kann, bevor sie zum Isotopenseparator transportiert wird.

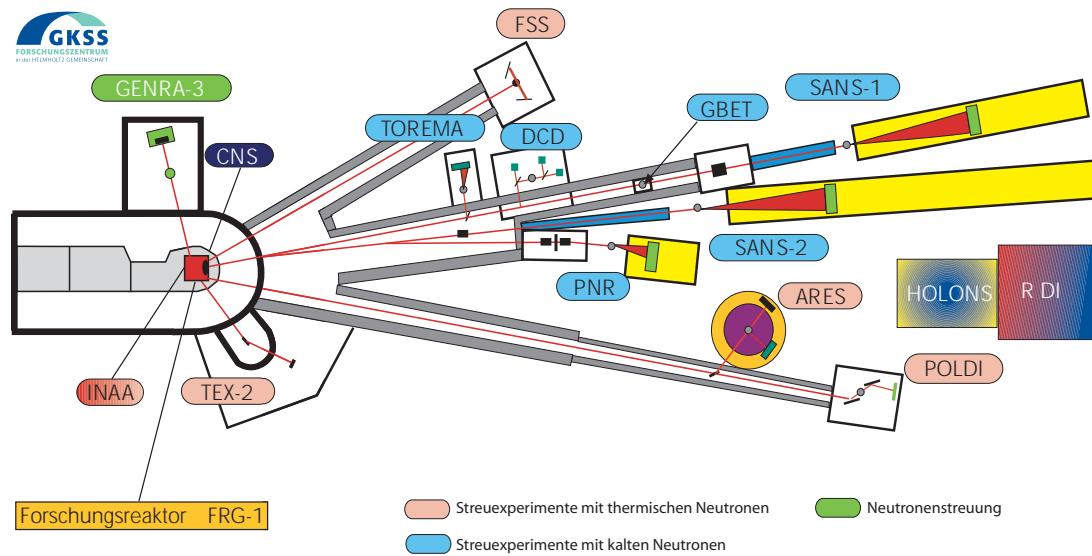


Abbildung 3.12: Schematische Darstellung des Forschungsreaktors des GKSS Forschungszentrums in Geesthacht. Für die Produktion von ^{140}La wird hier Lanthanoxid mit thermischen Neutronen bestrahlt. Quelle: Experimentiereinrichtungen an der Geesthachter Neutronen-Forschungseinrichtung GeNF 2003

Herstellung von ^{140}La durch Neutronenbestrahlung

Das Radioisotop $^{140}_{57}\text{La}$ kann durch Neutronenbestrahlung von stabilem Lanthan $^{139}_{57}\text{La}$ hergestellt werden, denn die Wahrscheinlichkeit für den Einfang thermischer Neutronen ist bei $^{139}_{57}\text{La}$, mit einem Wirkungsquerschnitt von $\sigma = 9,2\text{ b}$, relativ groß. Das Lanthan kommt in der Natur als reines Metall praktisch nicht vor. Als Seltene Erde ist es stark reaktiv und liegt meist als Lanthanoxid (La_2O_3) vor; ein geruchloses, weißes Pulver. Die stabilen Sauerstoffisotope besitzen alle einen sehr kleinen Wirkungsquerschnitt und deren neutronenreiche Isotope haben eine Halbwertszeit im Sekunden-Bereich. So stört der Sauerstoff bei der Neutronenaktivierung des leicht erhältlichen Lanthanoxids kaum. Für den Forschungsreaktor des GKSS Forschungszentrums in Geesthacht (siehe Abbildung 3.12) werden 5 mg Lanthanoxid-Pulver in eine Quarzampulle (SiO_2) eingefüllt und durch Abschmelzen versiegelt. Die ungefähren Maße der Ampulle sind: Durchmesser 5 mm, Länge 60 mm und Gewicht 2 g. Die Aktivität eines Isotops i zur Bestrahlungszeit t ist

$$A(t) = 0,6022 \cdot \frac{\varphi \sigma m g h}{M} \cdot \left(1 - e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \cdot t} \right) \quad (3.5)$$

wobei φ der Neutronenfluss $[\frac{n}{\text{cm}^2\text{s}}]$, σ der Wirkungsquerschnitt [b], m die bestrahlte Masse [mg], g das relative Elementgewicht [%], h die relative Isotopenhäufigkeit

[%], M die durchschnittliche Massenzahl des Elements [u], t die Bestrahlungsdauer [h] und $t_{\frac{1}{2}}$ die Halbwertszeit [h] ist. Das relative Elementgewicht für das Isotop i ist dabei $\frac{1}{2}$ gegeben durch

$$g_i = \frac{p_i \cdot h_i \cdot m_i}{p_i M_i + p_j M_j + p_k M_k}$$

wobei p_i die relative Häufigkeit des Elements i in der Probe ijk und m_i die Massenzahl des Isotops i ist. Die Gesamtaktivität ist dann die Summe der Aktivitäten der einzelnen Isotope. Die notwendige Bestrahlungsdauer für eine gewünschte Aktivität ergibt sich aus

$$t = \frac{t_{\frac{1}{2}}}{\ln 2} \cdot \ln \left(1 - \frac{A \cdot M}{0,6022 \cdot \varphi \sigma m g h} \right)$$

Das La_2O_3 wird mit der Quarzampulle für 7 h bei einem Neutronenfluss von $6 \cdot 10^{13} \frac{\text{n}}{\text{cm}^2 \text{s}}$ bestrahlt, womit eine Aktivität von gut 1,1 GBq erreicht wird. Von der Bestrahlung zur Implantation am Bonner Isotopenseparator vergehen wegen Abklingzeit und Transport ungefähr vier Tage, dies sind für das $^{140}_{57}\text{La}$ mehr als zwei Halbwertszeiten. Die verbleibende Aktivität ist somit weniger als ein viertel der ursprünglich produzierten Aktivität, sie reicht jedoch zur Herstellung von PAC-Proben aus. Das einzige bei der Berechnung der Gesamtaktivität nennenswerte Nebenprodukt, das bei dieser Neutronenaktivierung entsteht, ist $^{31}_{14}\text{Si}$, dessen Aktivität laut Rechnung 110 MBq beträgt, bei einer Halbwertszeit von 2,62 h.

Implantation am Isotopenseparator

Der Bonner Isotopenseparator *BONIS* ermöglicht es stabile oder radioaktive Isotope zu ionisieren, zu beschleunigen, zu separieren und anschließend zu implantieren. Durch unterschiedliche Ionisationsquellen, wie die Nielsen-Quelle [37] oder die Oberflächenionisationsquelle, können eine sehr große Anzahl Elemente ionisiert werden. Bei radioaktiven Isotopen wird die Auswahl durch deren Lebensdauer eingeschränkt, denn aus transporttechnischen Gründen muss diese ausreichend lange sein.

Die produzierten Ionen werden durch ein Beschleunigungs- und Fokalsystem auf ihrer Strecke zum Separationsmagneten bis auf 80 keV beschleunigt und fokussiert (siehe Abbildung 3.13). In dem Magnetfeld werden die Teilchen je nach Ladung q und Masse m (q/m -Verhältnis) unterschiedlich stark abgelenkt. Sie durchfliegen den Separationsmagneten also mit unterschiedlichen Bahnradien und werden somit separiert. Die Stärke des Feldes muss also so eingestellt werden, dass möglichst nur die ausgewählten Isotope durch die Blende fliegen; die unerwünschten

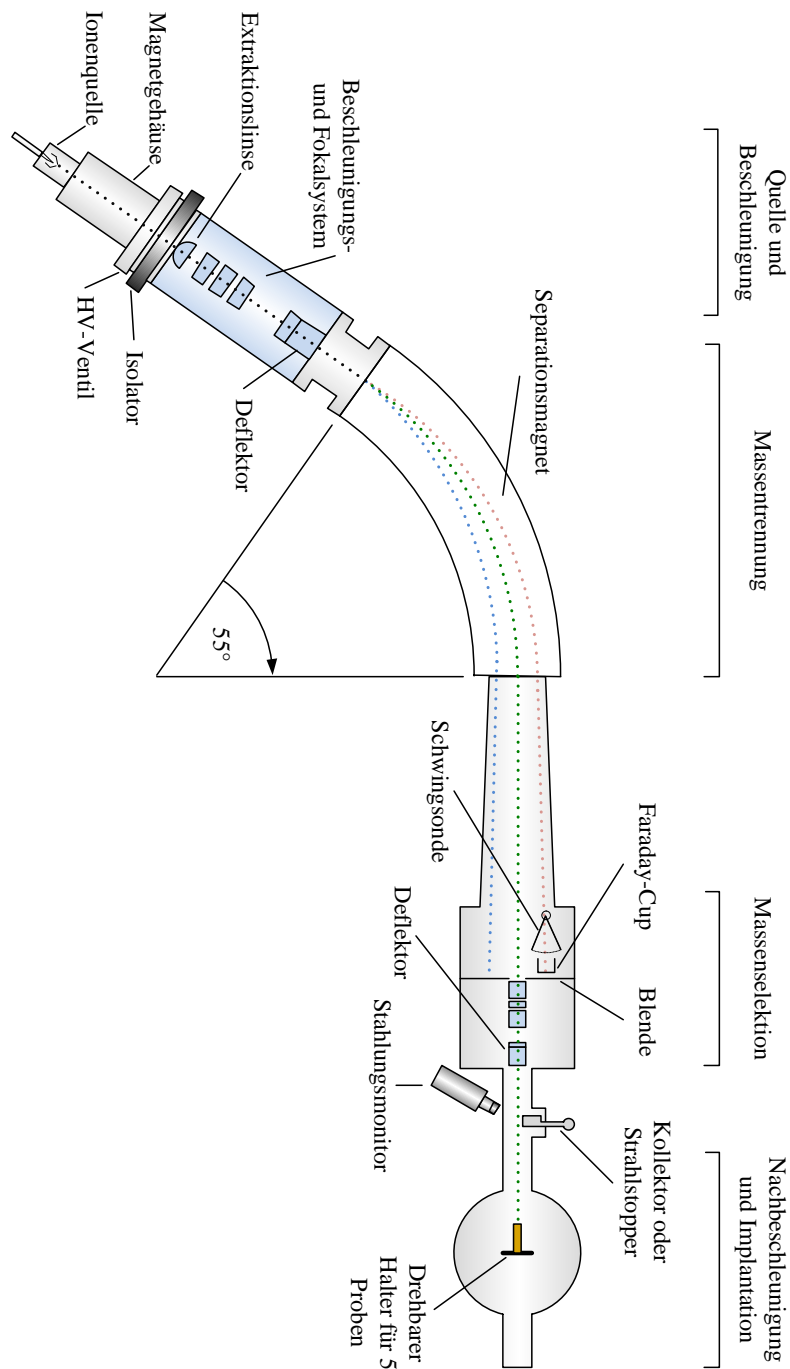


Abbildung 3.13: Schematischer Aufbau des Bonner Isotopenseparators *BONIS*. Es können verschiedene Ionenquellen verwendet werden, wodurch eine sehr große Anzahl an Elementen ionisiert werden kann. Die Ionen werden auf ihrer Strecke zum Separationsmagneten auf 80 keV beschleunigt. Nach der Separation werden unerwünschte Massen durch ein Blendensystem abgefangen. Der Ionenstrahl kann dann auf bis zu 160 keV weiterbeschleunigt werden bevor er auf die zu implantierende Probe geleitet wird.

Massen werden dort abgefangen. Hinter der Blende befindet sich der Kollektor mit der Probe und ein Strahlstopper. Um eine größere Implantationstiefe zu erreichen, gibt es weiterhin die Möglichkeit, die Teilchen bis auf eine Energie von 160 keV nachzubeschleunigen und erst dann auf einem drehbaren Probenhalter mit bis zu sechs Strahlplätzen zu leiten. Der Strahl kann in x - und in y -Richtung periodisch geschwenkt werden; so kann ein möglichst gleichmäßiges Implantationsprofil erreicht werden.

Für das Isotop ^{172}Lu wird eine positive Oberflächenionisationsquelle verwendet. Diese besteht aus einem dünnen Wolfram-Ofen in dem das Material geheizt und durch Elektronenbeschuss einer Glühwendel-Kathode ionisiert wird. Bei einem Strom von 600 mA werden im Ofen Temperaturen bis zu 1200 °C erreicht. Der Ofen wird auf ein positives Potential von ca. 1000 – 1500 V gelegt, damit die produzierten Ionen durch ein Loch hinaus beschleunigt werden. Im Ofen wird, zu der bestrahlten Thulium-Folie, auch etwas Lutetium-Metall hinzugegeben. Die Anlage kann so leichter auf das stabile ^{175}Lu eingestellt werden; danach reicht es die Einstellung der Anlage auf drei Massen leichter zu verschieben.

Diese sind für den Bonner Isotopenseparator schon extreme Werte, bei denen die Anlage nicht stabil läuft. So kam es bei Implantationen öfter zu unerklärlichen Überschlägen, die eine Unterbrechung des Strahls zur Folge hatten. Die Implantationsausbeute an ^{172}Lu ist in erster Linie von dessen Menge abhängig, die in den Ofen eingebracht wird. Die durch das Zyklotron bestrahlte Thulium-Folie wird so ausgeschnitten, dass möglichst nur die bestrahlte Fläche verwendet wird. Bei einer größeren Menge stabilen Thuliums wird nämlich das Hinausdiffundieren des ^{172}Lu erschwert.

Die an der 1094 keV-Linie von ^{172}Lu gemessene Aktivität einer am Zyklotron bestrahlten Thulium-Folie betrug 1 MBq. Nach der Implantation mit einer Dosis von ca. $10^{14} \frac{\text{at}}{\text{cm}^2}$, betrug die mit einem Germanium-Detektor gemessene Aktivität 1 kBq. Das bedeutet, dass gerade mal ein tausendstel der ursprünglichen Aktivität in die Probe gelangt waren, trotz hoher Implantationsdosis. Der hohe Anteil an stabilen Isotopen erweist sich also beim Implantieren als problematisch.

Für das Isotop ^{140}La wird eine sogenannte Nielsen-Quelle verwendet. Hier wird das aktivierte Lanthanoxid-Pulver (La_2O_3) ähnlich wie bei der Oberflächenionisationsquelle geheizt. Heißes, gasförmiges Tetrachlormethan (CCl_4) wird in den Ofen geleitet um das Metalloxid zu chlorieren. Dies verhindert, dass das Metall sich an den Wänden absetzt bevor es ionisiert wird.

Implantiert werden das ^{172}Lu und das ^{140}La in $5 \times 5 \text{ mm}^2$ Proben, bestehend aus einer 11 μm dicken, einkristallinen GaN-Schicht, die in Richtung $\langle 0001 \rangle$ (\hat{c} -Achse) auf Saphir (Al_2O_3) aufgewachsen wurde. Die Implantationsenergie beträgt 160 keV, dabei wird eine maximale Implantationstiefe von ca. 80 nm erreicht. Der implantierte Bereich liegt somit nah an der Oberfläche der GaN-Schicht und weit weg vom Substrat.

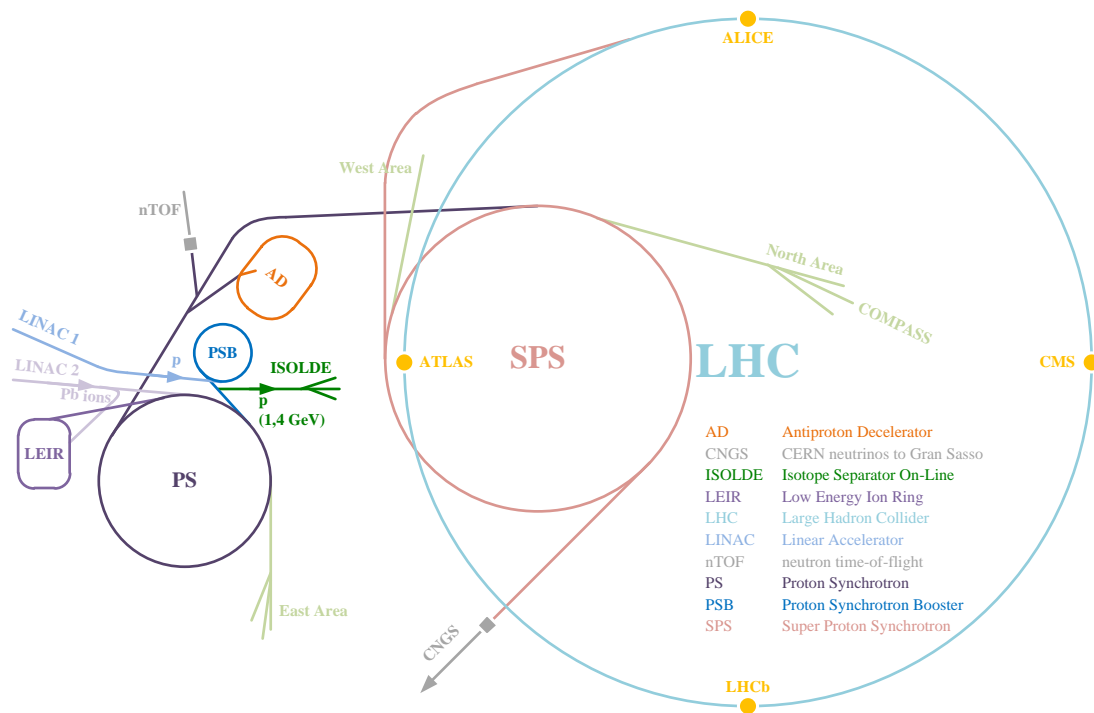


Abbildung 3.14: Eine nicht maßstabsgetreue Skizze der Beschleuniger-Anlage am CERN. Die Protonen werden in dem LINAC1 vorbeschleunigt und in den *Proton Synchrotron Booster* (PSB) bis auf 1,4 GeV weiter beschleunigt und dann zu ISOLDE geleitet. Der PSB liefert paketweise die Protonen an unterschiedlichen Experimenten, unter anderem an das *Protonen-Synchrotron* (PS) der sie dann für das *Super-Protonen-Synchrotron* (SPS) und den *Large Hadron Collider* (LHC) weiter beschleunigt.

3.5.2 Die Methode am CERN

An der ISOLDE-Einrichtung am CERN werden Isotope durch Bestrahlung eines Targets mit hochenergetischen Protonen hergestellt. Durch die Verwendung unterschiedlicher Targets, wie massive Metalle, flüssige Metalle, Oxide oder Carbide, können viele unterschiedliche Isotope hergestellt werden. Ein großer Vorteil bei ISOLDE ist, dass die produzierten Isotope direkt implantiert werden können. Dies ermöglicht auch die Verwendung kurzlebiger Isotope, wie beispielsweise ^8Li mit einer Halbwertszeit von 0,84s. Die 1 – 1,4 GeV Protonen kommen paketweise aus dem *Proton Synchrotron Booster* (PSB) mit einer durchschnittlichen Stromstärke von bis zu $2\ \mu\text{A}$ (siehe Abbildung 3.14) und erzeugen durch Spallation, Fragmentation oder Spaltung von schweren Kernen radioaktive Elemente im Target, die durch thermische Diffusion austreten. Aus dem Target werden die Elemente in eine Plasma- oder Oberflächenionisationsquelle geleitet, welche auf die Ausbeute einfach geladener Ionen bestimmter chemischer Elemente optimiert

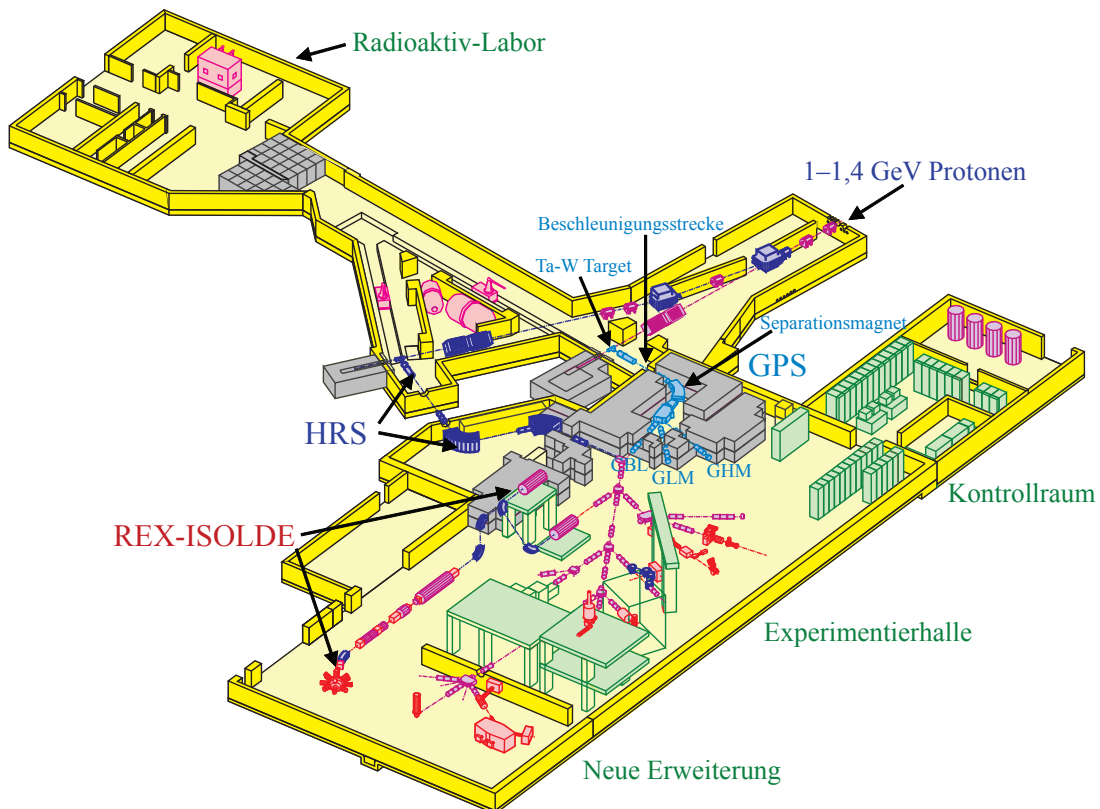


Abbildung 3.15: Schematische Abbildung der ISOLDE-Halle am CERN. Erkennbar ist der Eingang der Protonen aus dem PSB, die Ionisationsquelle, die Beschleunigungsstrecke, der Separationsmagnet und die verschiedenen Experimente, die zum GPS gehören. Von dem Kontrollraum aus ist es möglich, das komplette Experiment zu steuern. Bildquelle: [38]

ist. Die ionisierten Isotope werden mit Hilfe einer Extraktionselektrode auf eine Energie von bis zu 60 keV beschleunigt und zu dem Separationsmagneten geleitet. Für das Radioisotop ^{172}Lu wird ein massives Tantal-Target in Verbindung mit einer Wolfram-Oberflächenionisationsquelle verwendet.

ISOLDE hat zwei Isotopenseparatoren, die mit unabhängigen Ionenquellen arbeiten. Einerseits den *High Resolution Separator* (HRS), der zwei Separationsmagneten hat und ein zusätzliches optisches System für eine bessere Trennung der Massen. Andererseits den *General Purpose Separator* (GPS), siehe Abbildung 3.15, der mit einem Separationsmagneten arbeitet. Für die, in dieser Arbeit durchgeführten Implantationen, wurde der GPS verwendet. Hier erlaubt ein elektrostatisches Deflektorsystem die gleichzeitige Extraktion von drei Massen, die auf drei Rohrsysteme aufgeteilt werden. Dies ist von praktischer Bedeutung, weil man so in einer Strahlzeit mehrere Experimente gleichzeitig durchführen kann. Die *Central Beam-Line* (CBL) führt zu unterschiedlichen, fest installierten Expe-

rimenten. Die Rohrsysteme GHS (*GPS High Mass*) und GLM (*GPS Low Mass*) führen zu Targetkammern in denen die Isotope gesammelt oder implantiert werden können. Die hier verwendeten Proben werden in der GLM-Targetkammer eingebaut.

Der Ionenstrom von ^{172}Lu mit einigen pA ist nicht besonders hoch, da die Ausbeute dieser Seltenen Erde besonders klein ist. Es gibt mehrere Gründe dafür. Die Seltenen Erden sind sich chemisch sehr ähnlich und haben somit ähnliche Verdampfungswärmen, d.h. wenn das Target eine bestimmte Temperatur erreicht hat, werden unterschiedliche Seltene Erden gleichzeitig ionisiert. Weiterhin sind Seltene Erden chemisch sehr reaktiv und oxidieren gerne, d.h. der ^{172}Lu -Strahl ist kontaminiert mit leichteren oxidierten Molekülen mit gleicher Masse wie das ^{172}Lu . Die entstehende Isotope sind protonenreiche Fragmente vom Tantal, d.h. auf der Nuklidkarte eher links von dem stabilen $^{181}_{73}\text{Ta}$. Das Radioisotop ^{172}Lu wird vornehmlich aus dem β^+ -Zerfall oder Elektroneneinfang der Isobarenreihe 172 produziert. Diese Art Kaskade hin zum Lutetium wird von dem ^{172}Hf gebremst, das eine Halbwertszeit von 1,82 a hat. So werden vorzugsweise die Isotope ^{171}Lu und ^{173}Lu produziert, deren protonenreiche Nachbar-Isobare eine deutlich kürzere Halbwertszeit haben. So werden für eine Implantationsdosis von $10^{11} - 10^{12} \frac{\text{at}}{\text{cm}^2}$ bei einem Ionenstrom von 5 pA ca. 10 h gebraucht.

Es soll hier noch die geplante aber noch nicht durchgeführte Maßnahme erwähnt werden, um einen saubereren und intensiveren ^{172}Lu -Strahl an ISOLDE zu bekommen. Die Nachbar-Isotope vom ^{172}Hf haben, wie schon erwähnt, eine deutlich kleinere Halbwertszeit und sind nach Ausbau des Targets relativ schnell zerfallen. Das sich noch in dem Target befindliche ^{172}Hf würde aber nach weiterhin zu ^{172}Lu zerfallen. Es gäbe also die Möglichkeit, nach einer gewissen Zeit das alte Target wieder einzubauen und ohne Protonenbestrahlung zu heizen. Die Ausbeute von dem ^{172}Lu müsste nun höher und der Strahl sauberer sein.

3.6 Thermische Behandlung der Proben

Das Ausheilen der durch die Implantation verursachten Gitterschäden wird durch thermische Behandlung der Proben in einer Kurzzeittemperanlage (engl. *Rapid Thermal Annealing*, kurz RTA) durchgeführt [39, 40]. Hierbei wird die Probe sehr schnell auf eine gewünschte Temperatur geheizt, auf dieser Temperatur für eine bestimmte Zeit gehalten und dann schnell wieder auf Raumtemperatur abgekühlt. Das Anlassen kann im Vakuum oder unter unterschiedlichen Atmosphären durchgeführt werden. Eine RTA-Anlage hat gegenüber dem Anlassen in einem Rohrofen den großen Vorteil, dass man die implantierten Proben auf eine höhere Temperatur erhitzen kann und dabei langreichweitige Diffusionsprozesse stark unterdrückt. Es ist beispielsweise möglich, GaN bei Temperaturen über 1300 K

zu behandeln, obwohl es sich in einem Rohrofen schon ab 1000 K zu zersetzen beginnt.

In der verwendeten RTA-Anlage werden die Proben zwischen zwei Graphitstreifen gelegt und dann zwischen zwei wassergekühlten Kupferelektroden geklemmt. Die Oberfläche der Probe wird zusätzlich mit einem sogenannten *proximity cap* geschützt. Es handelt sich dabei um ein Stück desselben Materials der Probe, das auf die Probenoberfläche gelegt wird. Dies soll das Hinausdiffundieren von Elementen mit kleiner Verdampfungswärme, wie z.B. Stickstoff, zusätzlich unterdrücken. Die GaN- und die AlN-Proben werden unter Stickstoff-Atmosphäre mit einem Fluss von 75 l/h für 2 min bei 1300 K angelassen. Bei dieser Temperatur können die meisten Schäden ausgeheilt werden [41]. Aus diesem Grund wird fortan für das Anlassen unter jenen Bedingungen der Begriff Ausheilen verwendet.

3.7 Kryostate

Die Messungen unterhalb von Raumtemperatur werden mit Hilfe zwei unterschiedlicher Kryostaten durchgeführt. Einerseits werden die Proben in einem Helium-Kryo-Refrigerator eingebaut, mit dessen Hilfe Temperaturen von Raumtemperatur bis 13 K erreicht werden können. Andererseits wird für die Temperatur 4,2 K ein Helium-Bad-Kryostat verwendet.

Der Kryo-Refrigerator, Modell *CSA-202* der Firma *Air Products and Chemicals* arbeitet mit einem geschlossenem Helium-Kreislauf nach dem Gifford-McMahon-Prinzip [42]. Das Helium wird mit Hilfe von einem Kompressor mit hohem Druck an dem Kaltkopf geleitet, der durch Expansion des Gases und der Arbeit, die durch Bewegung des Verdrängers geleistet wird, gekühlt wird. Der Kaltkopf besteht aus zwei Verdrängern mit Regenerator hintereinander. Der Regenerator ist ein gasdurchlässiger Wärmetauscher mit großer Wärmekapazität, der das durchfließende Gas auf die Temperatur vorkühlt, auf die das expandierte und wieder austretende Gas den Regenerator abgekühlt hatte. Der Verdränger wird durch isobare Expansion und isobare Kompression in einem Kolben hin und her bewegt, dabei kühlt eine Seite ab.

Durch diesen Prozess kann an dem Kaltkopf eine Temperatur von (13 ± 1) K erreicht werden. Die Temperatur wird von einem Steuergerät gelesen. Für eine bessere Messgenauigkeit wird eine Diode direkt mit dem Kaltkopf verbunden. Aus der gemessenen Spannung kann anhand einer Tabelle die Temperatur bestimmt werden. Da der Kryo-Refrigerator fortlaufend kühlt, muss, für Temperaturen zwischen 13 K und Raumtemperatur, ein Heizelement eingebaut werden. Dieses wird dann über einem Temperaturregler im Steuergerät gesteuert. Der Kaltkopf ist aus Kupfer und die Probe selbst wird in eine dünne Kupfer-Folie eingewickelt um einen besseren Kontakt zu dem Probenhalter zu gewährleisten.

Die Probenkammer, die einen Radius von 1 cm hat, wird durch einem Pumpstand mit einer Turbomolekularpumpe auf ca. 10^{-4} Pa evakuiert.

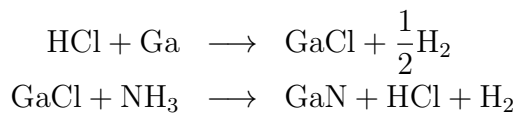
Die Messung bei 4,2 K wird in einem Helium-Bad-Kryostaten durchgeführt. Hierbei wird die Probe in einem Glas-Kryostaten eingetaucht, der mit flüssigem Helium gefüllt ist. Die Siedetemperatur des Heliums von 4,2 K bestimmt somit auch die Temperatur der Probe. Das flüssige Helium kocht und verdampft fortwährend aus dem Kryostaten, so dass häufiger Helium nachgefüllt werden muss. Um den Verdampfungsprozess zu verlangsamen hat der Glas-Kryostat ein äußeres Schild, das mit flüssigem Stickstoff⁴ gefüllt wird. Zusätzlich wird der Raum zwischen äußerem Schild und Innenraum auf ca. 10^{-3} Pa evakuiert. Bei einer Labor-Temperatur von ca. 293 K hält eine volle Füllung mit Helium ca. 10 h, danach liegt die Probe nicht mehr in der siedenden Flüssigkeit. Es muss also bereits nach 4 – 6 h der Helium-Tank nachgefüllt werden.

⁴ Die Siedetemperatur von Stickstoff liegt bei 77,4 K

Kapitel 4

Messungen in GaN

Die zwei in dieser Arbeit verwendeten GaN-Wafer stammen von dem Hersteller TDI¹ und wurden per Hydrid-Gasphasenepitaxie (engl. *Hydride Vapour Phase Epitaxy*, kurz HVPE) auf Saphir (Al₂O₃) aufgewachsen. Bei dem HVPE-Prozess werden GaN oder andere Gruppe-III-Nitride durch Reaktion von heißen, gasförmigen Metallchloriden (z.B. GaCl) mit gasförmigem Ammoniak (NH₃) gebildet. Für die Bildung der Metallchloride wird gasförmige Salzsäure (HCl) über die heißen, flüssigen Metalle geleitet. Alle Reaktionen erfolgen in einem temperaturgeregeltem Quarzofen [43].



Der erste verwendete Wafer besitzt eine 11 μm dicke GaN-Schicht, der zweite Wafer eine 3,8 μm dicke GaN-Schicht. Aus den Wafern wurden $5 \times 5 \text{ mm}^2$ große Proben geschnitten.

4.1 ¹⁷²Lu in GaN

4.1.1 Vorbereitung

Wie schon im Kapitel 3.5 erwähnt soll die Probenpräparation in Bonn durchgeführt werden, statt wie bisher an ISOLDE am CERN. Größter Beweggrund hierfür ist die seltene Verfügbarkeit des Isotops ¹⁷²Lu an ISOLDE.

Die verwendete Vier-Detektor-Anlage mit LSO-Szintillationskristallen ist neu und es gibt noch wenig Erfahrung in der Aufnahme von PAC-Spektren. Aus diesem

¹ Technologies Devices International, An Oxford Instruments Company, 12214 Plum Orchard Drive, Silver Spring, MD 20904, USA

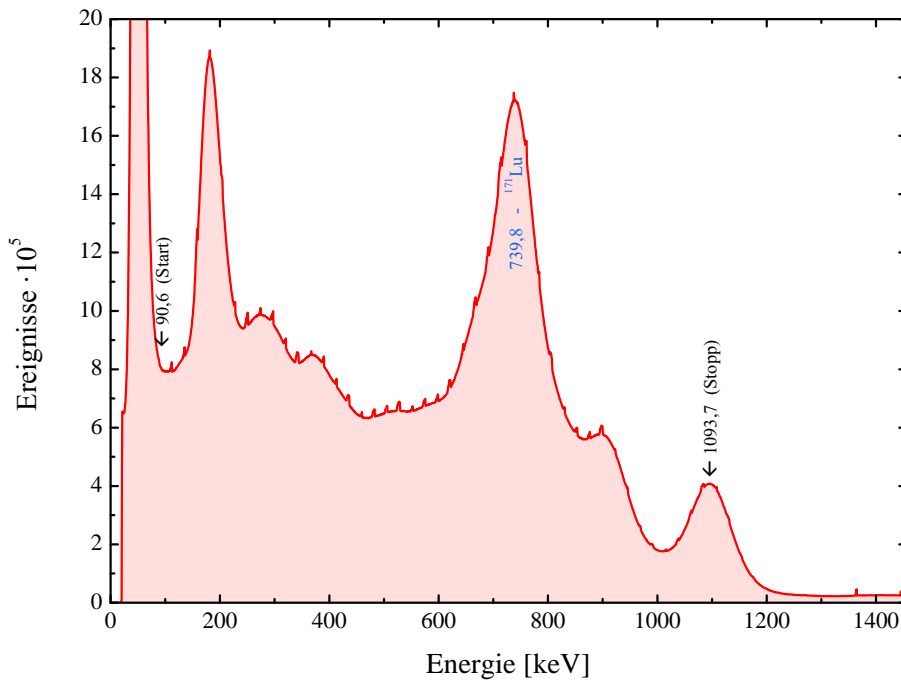


Abbildung 4.1: Energiespektrum einer mit α 's bestrahlten Tm-Folie aufgenommen mit Detektor D der LSO-Anlage. Das Spektrum weist nicht nur Energien der PAC-Sonde ^{172}Lu auf, sondern auch von dem Radioisotop ^{171}Lu , wie man aus der hohen Anzahl an Ereignissen um 740 keV erkennen kann. Die Energie des Stopp-Signals von ^{172}Lu ist gut erkennbar, während die des Start-Signals nicht sichtbar ist. Das Start-Fenster kann also erst nach einer Kalibrierung der Energie eingestellt werden.

Grund wird ^{172}Lu , welches durch Bestrahlung einer Thulium-Folie am Zyklotron hergestellt wurde, wie bestrahlt gemessen, d.h. die Sonde ^{172}Lu wird nicht weiter implantiert, sondern in Thulium-Metall gemessen. Die Probe wird jedoch nach der Bestrahlung am Zyklotron einige Tage gelagert, damit die Aktivität kurzlebiger, nicht erwünschter Isotope abklingen kann.

Die Einstellung der Energiefenster des SCA-Ausgangs von dem CFDD geschieht bei einlaufendem Energiespektrum. Ein typisches Energiespektrum einer solchen Probe ist in Abbildung 4.1 zu sehen. Durch die hohe Spitze um 740 keV erkennt man, dass bei der Bestrahlung nicht nur ^{172}Lu durch die Kernreaktion $^{169}\text{Tm}(\alpha, n)^{172}\text{Lu}$ entsteht, sondern auch das Radioisotop ^{171}Lu durch die konkurrierende Kernreaktion $^{169}\text{Tm}(\alpha, 2n)^{171}\text{Lu}$. Dieses besitzt viele Linien zwischen 627 keV und 853 keV bei einer Halbwertszeit von 8,24 d. Beim Implantieren fällt allerdings die Masse 171 weg und nur Linien von ^{172}Lu sind zu erkennen (siehe Anhang B.1).

Das Stopp-Signal von ^{172}Lu , mit der Energie 1093,7 keV, ist leicht erkennbar, was die Einstellung des Fensters erleichtert. Das Start-Fenster ist dagegen schwieriger einzustellen, da die 90,6 keV Linie nicht sichtbar ist. Es wird also eine Energiekalibrierung mit der radioaktiven Quelle ^{133}Ba durchgeführt und das Fenster wird dann „blind“ eingestellt, d.h. nur in Bezug auf die erfolgte Energiekalibrierung. Die Wahl der Kalibrierungsquelle fiel auf ^{133}Ba , weil die markanten Linien (81 keV und 356 keV) in dem Bereich der Start-Energie liegen. Dies ist bei Verwendung von LSO als Szintillationsmaterial wichtig, weil die Abhängigkeit der Energie von der Lichtausbeute nicht linear ist [44, 45]. Die regelmäßigen Zacken im Spektrum entstehen durch Signal-Reflexionen in dem Y-Kabel, der den ADC mit dem MCA und die Routing-Einheit mit dem MCA verbindet (siehe Abbildung 2.10, Seite 31). Mit einem neuen, besser abgeschirmten Kabel kann dieses Problem behoben werden.

Alle im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen werden in der sogenannten Raghavan-Geometrie [46] gemessen, dabei wird die Oberfläche der Probe in 45° zu allen Detektor-Achsen eingebaut. Die Proben sind so auf dem Substrat gewachsen, dass die \hat{c} -Achse senkrecht zu der Oberfläche ist.

Zu der Messung mit der LSO-Vier-Detektor-Anlage wird eine Vergleichsmessung, ebenfalls in Raghavan-Geometrie, mit der schon bestehenden BaF_2 -Drei-Detektor-Anlage aufgenommen. Das gleiche Anpassungsmodell wird für beide Messungen verwendet. Bei der Messung mit der BaF_2 -Anlage wurde beim Anpassen der theoretischen Störfunktion nur die multiplikative Konstante freigelassen [9].

Mit der LSO-Anlage konnten gute Ergebnisse erzielt werden. Die Daten werden mit einer Quadrupolkopplungskonstante von $\nu_Q = (336 \pm 3)$ MHz angepasst, woraus ein elektrischer Feldgradient von $V_{zz} = (5,0 \pm 0,7) \cdot 10^{21} \text{ Vm}^{-2}$ abgeleitet werden kann (siehe Gleichung 2.16, Seite 25). Diese Ergebnisse stehen in Übereinstimmung mit den Literaturwerten aus [47], wo die Quadrupolkopplungskonstante mit $\nu_Q = (328 \pm 6)$ MHz angegeben ist und daraus ein elektrischer Feldgradient von $V_{zz} = (4,7 \pm 0,7) \cdot 10^{21} \text{ Vm}^{-2}$ abgeleitet werden kann.

Ein Vergleich der Ergebnisse der beiden Szintillatoren LSO und BaF_2 (siehe Abbildung 4.2 und 4.3) zeigt einen Anstieg der effektiven Anisotropie von ca. 12,5% in den LSO-Spektren. Wie in Kapitel 2.3 beschrieben, besteht die beobachtete effektive Anisotropie A_{22}^{eff} aus den Anisotropiekoeffizienten der Kaskade A_{22} und den Abschwächungsfaktoren der Anlage Q_{22} . Also bedeutet eine größere effektive Anisotropie, dass die Abschwächungsfaktoren der LSO-Anlage kleiner sind. Dies führt im Allgemeinen zu aussagekräftigeren Messergebnissen.

Der nächste Schritt ist ein Implantationsversuch. Am Bonner Isotopenseparator ist ^{172}Lu noch nie zuvor implantiert worden. Da es auch hier an Erfahrung mangelt, wird zuerst in ein kostengünstiges Plättchen Aluminium implantiert. Nach der Bestrahlung einer Tm-Folie am Zyklotron wird, aus der am Faraday-Cup aufgenommenen Ladung, eine theoretische Aktivität von 2,5 MBq berechnet. Nach

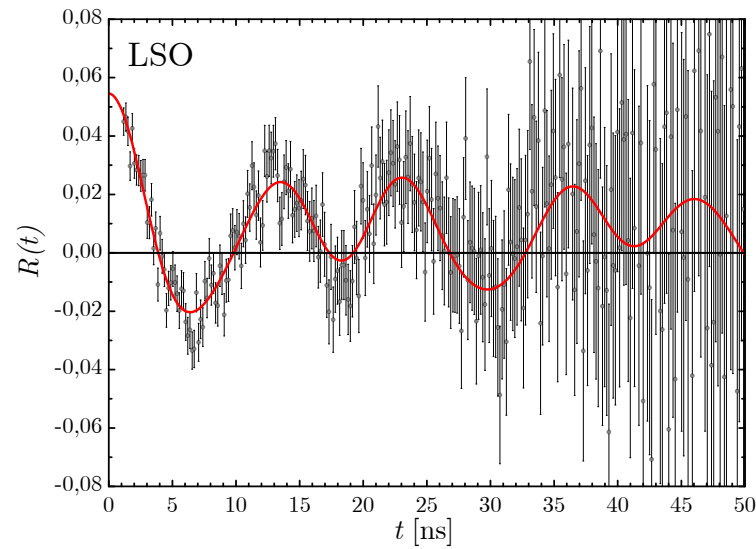


Abbildung 4.2: ^{172}Lu in Thulium wie bestrahlt, gemessen mit der LSO 4-Detektor-Anlage für 189,4 h. Die Quadrupolkopplungskonstante beträgt $\nu_Q = (336 \pm 3)$ MHz, der elektrische Feldgradient $V_{zz} = (5,0 \pm 0,7) \cdot 10^{21} \text{ Vm}^{-2}$ und der effektive Anisotropiekoeffizient $A_{22}^{\text{eff}} = 0,055$.

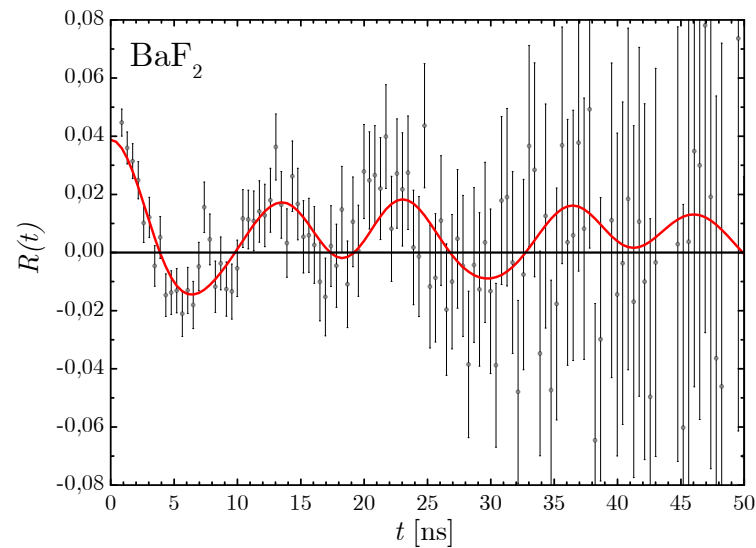


Abbildung 4.3: ^{172}Lu in Thulium wie bestrahlt, gemessen mit der BaF_2 3-Detektor-Anlage für 153,3 h. Die Daten wurden mit dem selben Modell, wie für die LSO-Anlage, angepasst, abgesehen von der multiplikativen Konstante. Der effektive Anisotropiekoeffizient ist $A_{22}^{\text{eff}} = 0,039$.

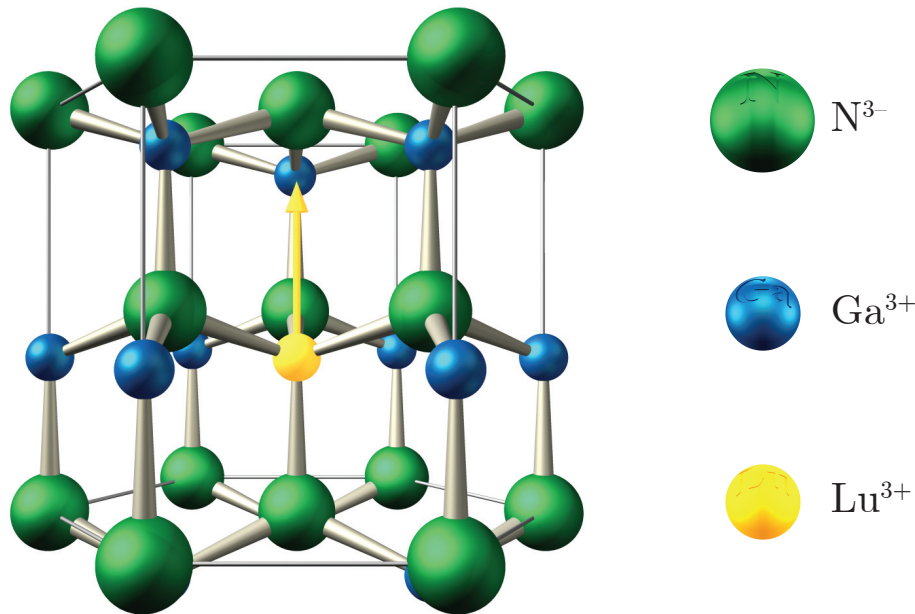


Abbildung 4.4: Die Wurtzitstruktur ist axialsymmetrisch, daher wird ein elektrischer Feldgradient parallel zur \hat{c} -Achse erzeugt. Dieser Feldgradient wechselwirkt mit der implantierten Sonde auch wenn im Gitter keine Defekte vorhanden sind.

der Implantation, die mit 160 keV erfolgt, wird die Probe vor einem Germaniumdetektor gehalten und ein Energiespektrum aufgenommen. Aus der Intensität der γ -Linie 1094 keV ergibt sich eine Aktivität von 20 Bq. Die Ausbeute des ersten Implantation-Versuches beträgt also etwa ein Millionstel. Durch mehr Erfahrung erhofft man sich eine größere Ausbeute zu erzielen.

4.1.2 Messungen bei Raumtemperatur

Um die Implantationsschäden besser qualifizieren zu können, werden die Proben zunächst ohne eine thermische Behandlung vermessen. Diese Messungen sind wichtig für die Entscheidung über die Brauchbarkeit einer Probe. Durch die Implantation ist die Gitterumgebung der Sonde sehr stark geschädigt, so wird vor der thermischen Behandlung ein stark gedämpftes R-Wert-Spektrum erwartet. Erst danach werden die Proben in der RTA-Anlage für 2 min bei 1300 K unter Stickstoff-Atmosphäre mit *proximity cap* angelassen. Nach dem Anlassen sollte bei GaN mindestens eine ausgeprägte Frequenz erkennbar sein. Dies wird wegen seiner Wurtzitstruktur, die in Abbildung 4.4 mit einer implantierten Sonde dargestellt ist, erwartet. Durch die Axialsymmetrie wird nämlich ein elektrischer Feldgradient parallel zur \hat{c} -Achse erzeugt. Dieser Gitterfeldgradient wirkt auf den Sondenkern, also ist bei einer defektfreien Probe im Spektrum eine sogenannte

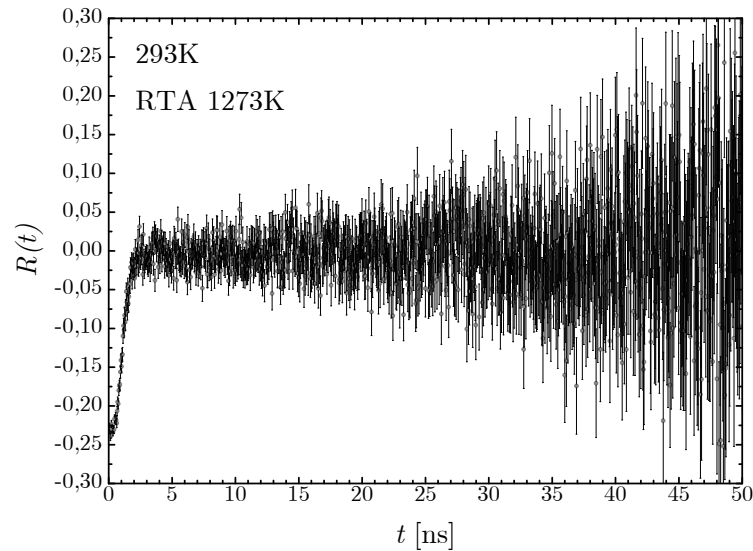


Abbildung 4.5: Raumtemperatur-Messung von ^{172}Lu in GaN implantiert und bei 1273 K in der RTA getempert. Das stark gedämpfte R-Wert-Spektrum ist Folge einer Implantationsdosis, die höher als erwartet war. Verantwortlich ist der sehr große Anteil stabiler Isotope.

Gitterfrequenz sichtbar.

Trotz intensiver Vorbereitung konnte erst nach mehreren Implantationsversuchen eine messbare Probe hergestellt werden. Gründe für die Fehlversuche waren meist unerklärliche Unterbrechungen des Implantations-Strahls, die zu einem Wiederhochfahren der Anlage führten. Doch auch bei einer brauchbaren Implantation bereiten die implantierten stabilen Isotope große Probleme, wie man an dem sehr stark gedämpften R-Wert-Spektrum in Abbildung 4.5 sehen kann. Die Amorphisierungsschwelle für GaN liegt bei $10^{15} \frac{\text{at}}{\text{cm}^2}$ und sollte nicht überschritten werden [48]. Die gesamte Implantationsdosis dieser Probe lag jedoch bei ca. $10^{13} \frac{\text{at}}{\text{cm}^2}$. Durch die thermische Behandlung bei 1273 K wurden also die Kristallschäden im implantierten Bereich nicht ausgeheilt. Das kann unterschiedliche Gründe haben.

Beispielsweise kann das damit zusammenhängen, dass die implantierte Fläche kleiner als erwartet war und so die Implantationsdosis höher ausfiel. Der Graphit-Ofen, in dem die bestrahlte Thulium-Folie geheizt wird, muss bei sehr hohen Temperaturen betrieben werden, damit das ^{172}Lu mit seiner hohen Verdampfungswärme überhaupt ionisiert werden kann. Bei diesen Temperaturen sind bereits zahlreiche andere Isotope ionisiert. Es kommen leichtere Elemente, die durch schnelles Oxidieren die Masse 172 haben vor. Insbesondere wird aber das stabile Zerfallsprodukt ^{172}Yb mit implantiert. Dieses wird durch den Zerfall von ^{172}Lu in der Probe selbst produziert und dessen Menge nimmt mit der Zeit stetig zu. Die

hohe Dosis stabiler Isotope zerstört das Gitter so, dass die Sonden nur noch eine sehr uneinheitliche Umgebung sehen. Die unterschiedlichen Umgebungen stören die Messung, durch die verschiedenen Wechselwirkungen mit den Sondenkernen, so dass später im Spektrum keine Wechselwirkungsfrequenz mehr erkennbar ist.

Problematisch war nicht nur die zu hohe gesamte Implantationsdosis, sondern auch die zu geringe Menge an implantierten ^{172}Lu -Atomen. Die Aktivität der Probe wurde nach der Implantation an der γ -Linie 1093 keV, des mit einem Germaniumdetektors aufgenommenen Energiespektrums, bestimmt. Die resultierende Aktivität, die hier 80 Bq betrug, ist für eine ausreichende Statistik zu klein.

Einige der bei Raumtemperatur aufgenommenen Spektren sind in Abbildung 4.6 zu sehen. Die Spektren sind mit unterschiedlichen Proben in unterschiedlichen Messanordnungen aufgenommen. Außerdem haben die Proben der ersten beiden Spektren eine $11\ \mu\text{m}$ dicke GaN-Schicht, die anderen beiden Proben haben eine $3,8\ \mu\text{m}$ dicke GaN-Schicht. Während die $11\ \mu\text{m}$ dicken Proben am Bonner Isotopenseparator mit einer Energie von 160 keV implantiert werden, beträgt die Energie, der an ISOLDE implantierten Proben, etwa 50 keV.

Bei der Probe des ersten Spektrums werden nur Raumtemperaturmessungen durchgeführt. So wird die Probe mit einem einfachen Probenhalter zwischen den Detektoren eingebaut und gemessen. Die Proben, die bei tiefen Temperaturen gemessen werden, werden direkt in dem Kryo-Refrigerator oder in dem Helium-Bad-Kryostat eingebaut und dort auch bei Raumtemperatur gemessen. Bei den Messungen mit dem einfachen Probenhalter und bei denen im Kryo-Refrigerator sind kaum Unterschiede in der Anisotropie zu sehen. Bei der Messung im Helium-Bad-Kryostat ist die Anisotropie größer, weil hier die Detektoren weiter weg von der Probe platziert wurden.

Die Anpassungsdaten der Messungen sind im Anhang in Tabelle A.1 auf Seite 101 zusammengefasst. Bei Anpassung der ersten beiden Spektren der Abbildung 4.6 muss eine zweite Frequenz in das Anpassungsmodell hinzugenommen werden. Diese Defektfrequenz hat bei der obersten Probe einen Anteil von 58%, eine Quadrupolkopplungskonstante von $\nu_Q = (510 \pm 25)$ MHz und eine Dämpfung von 20% und bei der zweiten Probe einen Anteil von 59%, eine Quadrupolkopplungskonstante von $\nu_Q = (556 \pm 25)$ MHz und eine Dämpfung von 39%. Wahrscheinlich ist diese Defektfrequenz darauf zurückzuführen, dass die Implantationsdosis zu hoch gewesen ist, vor allem die Dosis stabiler Isotope. Durch das anschließende Anlassen konnten so nicht alle Gitterschäden ausgeheilt werden. Es konnte hier aber gezeigt werden, dass die unterschiedliche Dicke der GaN-Schicht und die unterschiedlichen Messkonfigurationen keine merkliche Änderung des beobachteten Gitterfeldgradienten verursachen.

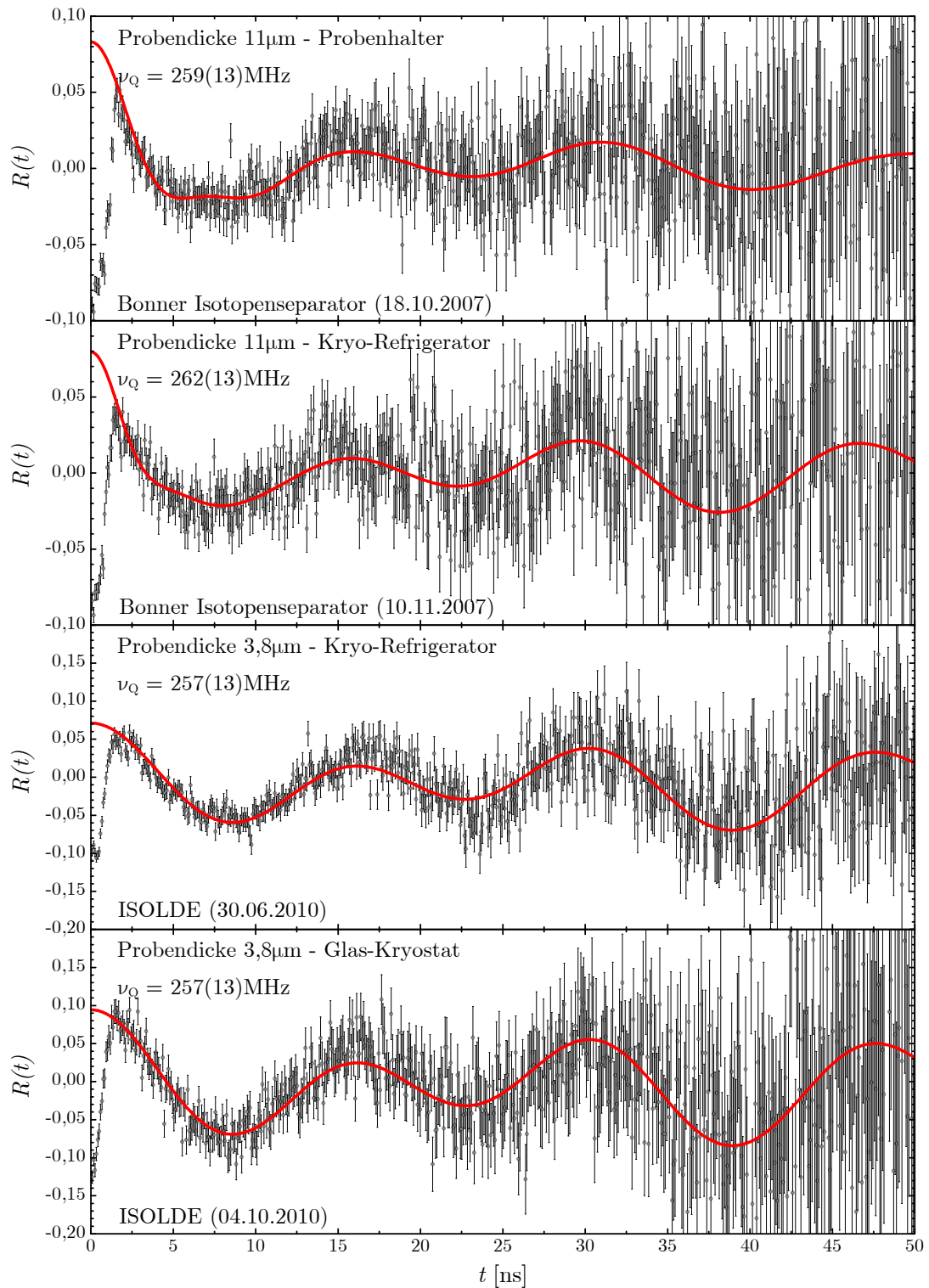


Abbildung 4.6: ^{172}Lu in GaN implantiert, bei 1300 K in der RTA-Anlage getempert und bei Raumtemperatur gemessen. Es handelt sich um unterschiedliche Proben mit unterschiedlich dicker GaN-Schicht und in drei verschiedenen Messanordnungen gemessen. Die angepassten Frequenzen sind im Rahmen des Fehlers bei allen Spektren gleich.

4.1.3 Messungen bei tiefen Temperaturen

Es werden Messungen in einem Temperaturbereich zwischen 4,2 K und Raumtemperatur, (293 ± 1) K, durchgeführt. Die Messung bei 4,2 K wird in flüssigem Helium in einem Glas-Kryostaten aufgenommen, während die Messungen zwischen 13 K und Raumtemperatur in einem Kryo-Refrigerator aufgenommen werden. Dabei ist 13 K die kälteste Temperatur, die von diesem Kryo-Refrigerator erreicht werden kann. Eine Beschreibung der beiden Kryostate befindet sich im Kapitel 3.7 auf Seite 63.

Die Spektren in Abbildung 4.7 zeigen den Verlauf des auf dem Sondenkern einwirkenden elektrischen Feldgradienten bei tiefen Temperaturen ab 4,2 K bis 293 K. Bei Raumtemperatur ist ein einziger Anteil mit einer Quadrupolkopplungskonstante $\nu_Q = (257 \pm 3)$ MHz, die von einem EFG von $V_{zz} = (3,7 \pm 0,7) \cdot 10^{21} \text{ Vm}^{-2}$ hervorgerufen wird, zu erkennen. Mit sinkender Temperatur steigt die Dämpfung sehr stark an. Erst bei sehr tiefen Temperaturen – unter 20 K – tritt wieder eine ausgeprägte Quadrupolkopplungskonstante auf.

Die angepassten Frequenzen und die dazugehörigen Dämpfungen sind in Abbildung 4.8 gegen die Temperatur aufgetragen. Die dazugehörigen Anpassungsdaten sind im Anhang in Tabelle A.1 auf Seite 101 zusammengefasst. Die Quadrupolkopplungskonstante ist zwischen 4 und 16 K relativ konstant und hat einen Wert von etwa $\nu_Q = 620$ MHz. Sie nimmt dann mit steigender Temperatur erst sehr stark ab und steigt dann über 50 K langsam wieder an. Diese Änderung der Steigung kann als Vorzeichenwechsel des elektrischen Feldgradienten interpretiert werden. Üblicherweise wird ν_Q statt V_{zz} gegen T aufgetragen, da aber $\nu_Q \propto V_{zz}$ ist, ist es möglich die Quadrupolkopplungskonstante mit dem Vorzeichen von V_{zz} aufzutragen. Das Vorzeichen vom elektrischen Feldgradienten kann nun mit steigender Temperatur von positiv auf negativ wechseln oder umgekehrt. Eine Möglichkeit ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Hiernach nimmt der positive EFG von Raumtemperatur bis grob geschätzt 50 K langsam ab, wechselt dann sein Vorzeichen und nimmt bis 16 K wieder sehr stark zu. Unterhalb von 16 K tritt eine Sättigung ein.

Dieses stark temperaturabhängige Verhalten ist bei GaN unerwartet. Die Gitterparameter von GaN ändern sich kaum unterhalb von Raumtemperatur [49, 50], so erwartet man einen Beitrag mit einer nahezu konstanten Quadrupolkopplungskonstante über den gesamten Temperaturbereich. Messungen mit der Sonde ^{181}Hf (^{181}Ta) können dies bestätigen. Diese hat ähnliche Eigenschaften wie die Sonde ^{172}Lu (^{172}Yb). In Abbildung 4.10 ist der elektrische Feldgradient von ^{181}Hf in GaN, normiert auf dem Wert bei Raumtemperatur, aufgetragen [41]. Die Größe des elektrischen Feldgradienten ändert kaum sich mit der Temperatur. Die starke Temperaturabhängigkeit der Sonde ^{172}Lu kann also kein Beitrag des Wurtzitgitters sein.

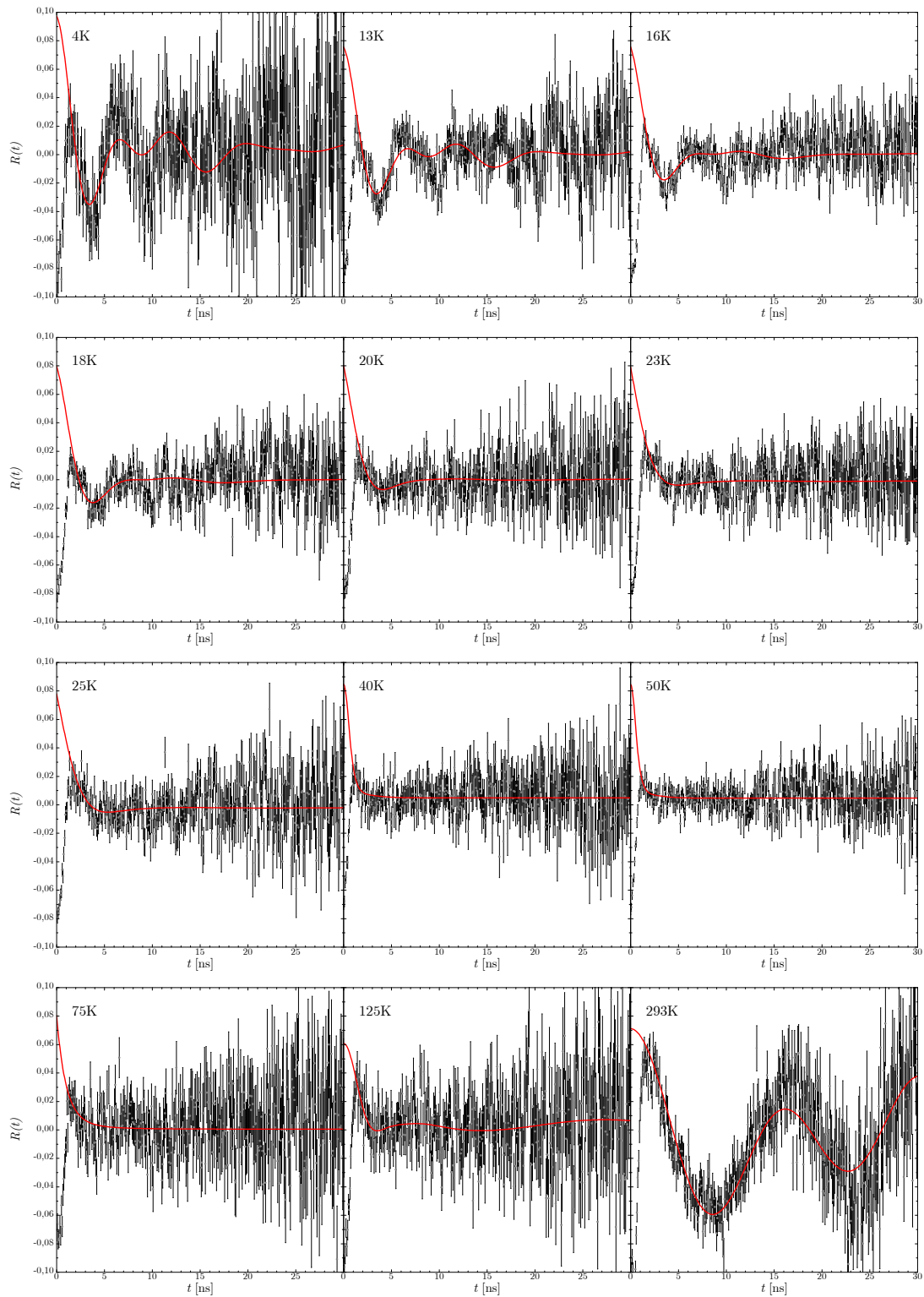


Abbildung 4.7: Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten gemessen mit der Sonde $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$ in GaN.

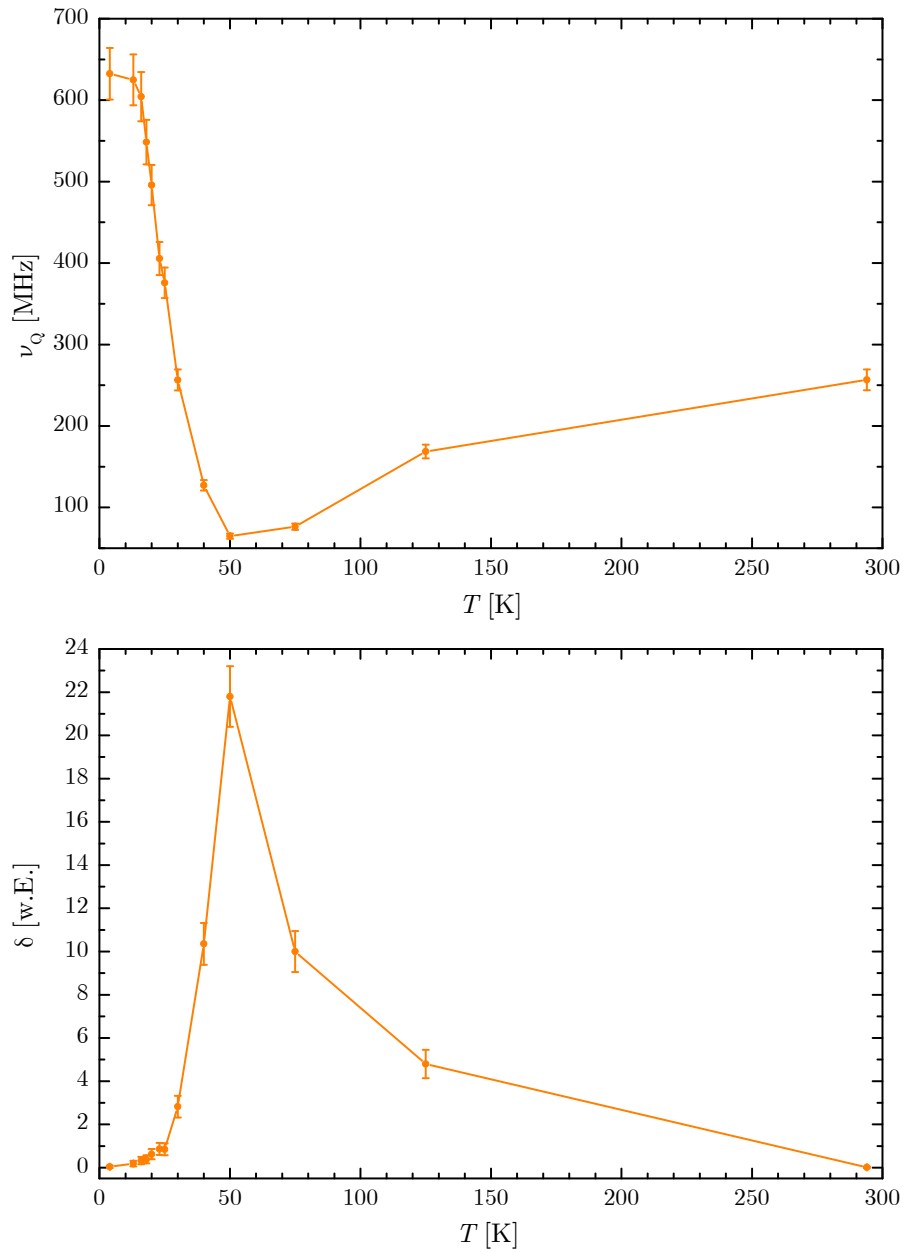


Abbildung 4.8: Temperaturabhängigkeit der Quadrupolkopplungskonstante ν_Q und der dazugehörigen Dämpfung δ von $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$ in GaN.

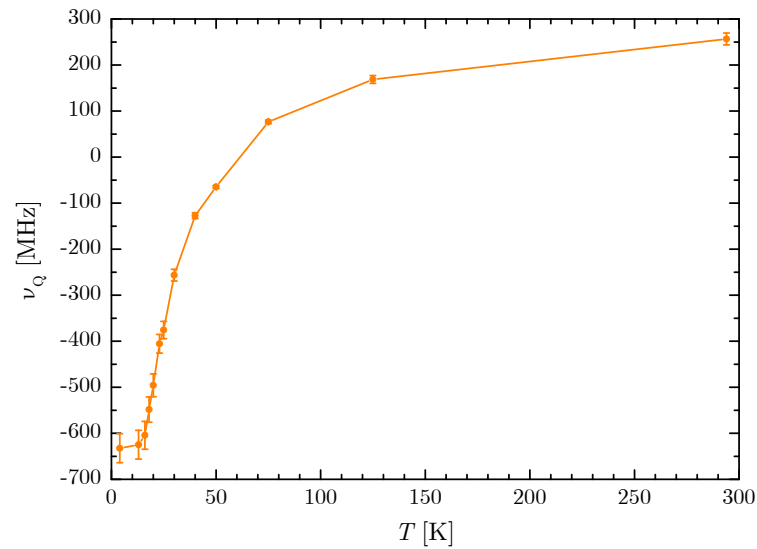


Abbildung 4.9: Die Quadrupolkopplungskonstante wird mit dem Vorzeichen von V_{zz} multipliziert und gegen die Temperatur aufgetragen. Hier für den Fall, dass der elektrische Feldgradient bei tiefen Temperaturen negativ ist und bei höheren positiv.

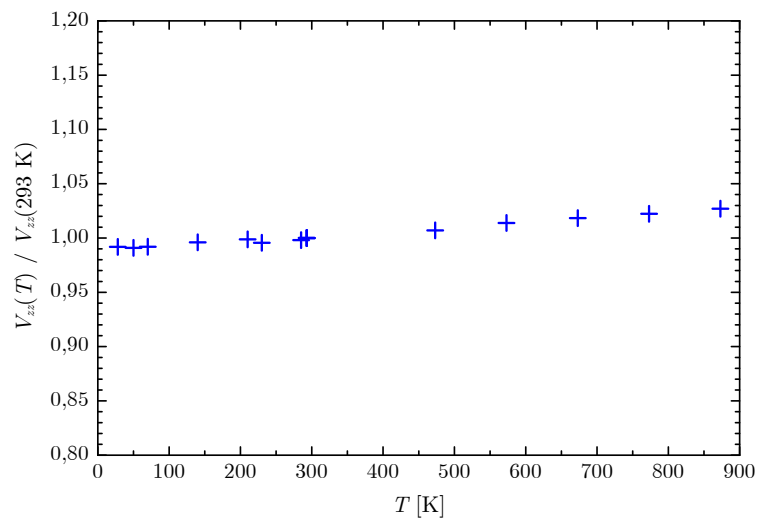


Abbildung 4.10: Zum Vergleich ist hier die Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten, gemessen mit der Sonde ^{181}Hf (^{181}Ta), in GaN dargestellt [41]. Der elektrische Feldgradient wurde auf Raumtemperatur normiert.

Eine Erklärung für das anomale Verhalten mit der Sonde $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$ könnte ein zweiter Beitrag zum gesamten elektrischen Feldgradienten sein, der von der Sonde selbst produziert wird [51]. Ein zweiter EFG, der von der $4f$ -Schale der Seltenen Erde Ytterbium, also aus der nächsten Umgebung des Sondenkerns selbst, hervorgerufen wird und umgekehrtes Vorzeichen zu dem Gitterfeldgradienten hat. In kristallinen Gittern wird Ytterbium bevorzugt mit der Wertigkeit $3+$ vorgefunden. Hierbei geht, neben den zwei $6s$ -Elektronen, ein $4f$ -Elektron in Bindung und hinterlässt somit ein Loch in der $4f$ -Schale. Die nicht mehr vollbesetzte $4f$ -Schale erzeugt einen elektrischen Feldgradienten, der auf dem Sondenkern selbst wirkt.

Die Spin-Bahn-Kopplung führt zu einer Aufspaltung der $4f$ -Schale mit $L = 3$ und $S = \frac{1}{2}$ in einem energetisch niedriger liegenden Zustand, $J = \frac{7}{2}$, und einem höheren Zustand, $J = \frac{5}{2}$ (siehe Abbildung 4.11). Die im Gitter verfügbare thermische Energie reicht nicht aus, um den $\frac{5}{2}$ Zustand zu bevölkern, denn der Energieunterschied der beiden Zustände ist 14750 K oder $\approx 1,3\text{ eV}$ [52]. Der EFG, der von dem Wurtzitgitter des Galliumnitrids hervorgerufen wird, spaltet den $\frac{7}{2}$ Zustand weiter in vier entartete Kramers-Dubletts [53] mit $m_J = \pm\frac{7}{2}, \pm\frac{5}{2}, \pm\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}$. Hier sind die Energieunterschiede zwischen den Niveaus im meV-Bereich.

Die temperaturabhängige Bevölkering dieser Unterzustände wird von der Boltzmann-Verteilung bestimmt. Bei hohen Temperaturen sind die Unterzustände gleich wahrscheinlich besetzt oder andersherum gesagt, ist die Wahrscheinlichkeit, das Loch in einem der Unterzustände zu finden, für alle Unterzustände gleich groß. So verschwindet der mittlere EFG der $4f$ -Schale und nur der statische Gitterfeldgradient ist sichtbar. Sinkt die Temperatur, so wechselt das Loch seinen energetischen Zustand nicht mehr so schnell und der EFG der $4f$ -Schale fluktuiert. Hier ist es prinzipiell möglich, für eine gewisse Zeit, einen definierten EFG von der $4f$ -Schale zu sehen. Während der Dauer einer Messung bleibt aber das Loch nicht stabil auf einem Zustand. Durch diesen andauernden Wechsel wird die Quadrupolkopplungskonstante stark gedämpft, so dass im R-Wert-Spektrum keine Frequenz mehr erkennbar ist. Bei sehr niedrigen Temperaturen wird das Loch in der $4f$ -Schale seinen niedrigsten Energiezustand einnehmen. Die Ladungsverteilung weicht von der idealen Kugelsymmetrie ab, was einen zusätzlichen, ungewöhnlich großen EFG zur Folge hat [54]. Am Sonden-Kernort wird zwar die Überlagerung mit dem Gitterfeldgradient gemessen, doch dominiert wird diese von dem starken und umgekehrten $4f$ -Schalen-Beitrag.

Ein theoretisches Modell kann in der Beschreibung dieses Verhaltens behilflich sein. Hierbei wird angenommen, dass die Hyperfeinwechselwirkung zwischen dem Sondenkern und dessen Umgebung von zwei Beiträgen hervorgerufen wird: Ein nahezu konstanter Beitrag von dem Gitterfeldgradient ΔE_G und ein stark temperaturabhängiger Beitrag von der $4f$ -Schale ΔE_{4f} [51]. Im Weiteren soll der Beitrag vom Gitter als konstant angenommen werden, da dessen Änderung im

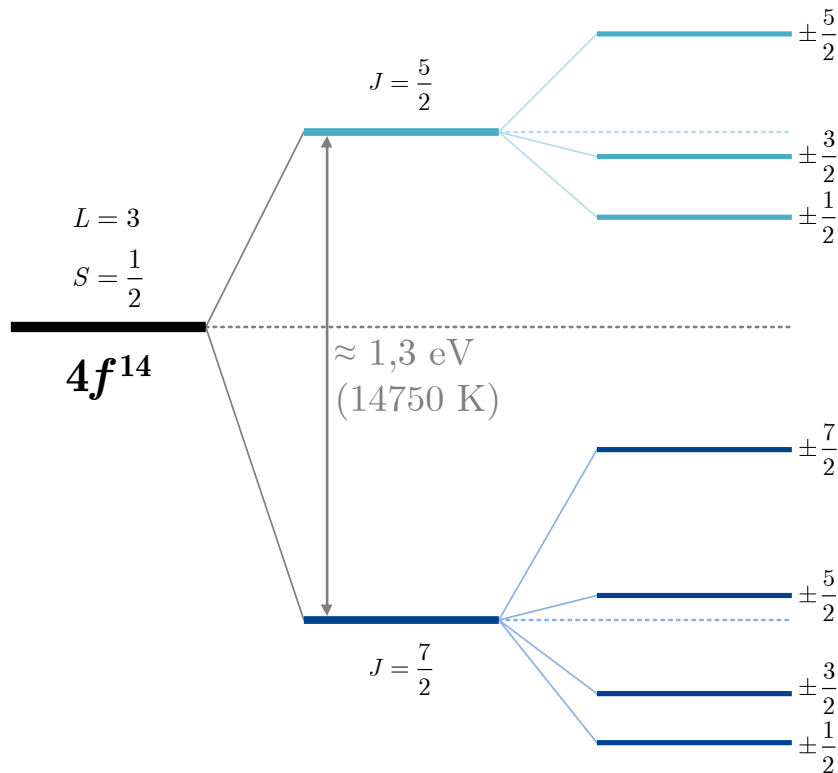


Abbildung 4.11: Das Energieniveau der $4f$ -Schale des Sondenkerns Yb^{3+} wird durch die Spin-Bahn-Kopplung $J = L + S$ in einem höher liegenden $J = \frac{5}{2}$ Zustand und einem niedrigeren $J = \frac{7}{2}$ Zustand aufgespalten. Die beiden Zustände haben einen Energieunterschied von $\approx 1,3 \text{ eV}$. Durch den Gitterfeldgradient von GaN werden diese beiden Zustände in weitere Kramers-Doublets ($m_J = -J, -J + 1, \dots, J - 1, J$) aufgespalten. Es ist darauf zu achten, dass der Graph nicht maßstabsgetreu ist, die Energieunterschiede zwischen den Niveaus der Kramers-Doublets sind im meV-Bereich.

Gegensatz zu dem Beitrag der $4f$ -Schale vernachlässigbar ist.

Der Beitrag der $4f$ -Schale kann aus folgender Formel berechnet werden [55]:

$$\Delta E_{4f}^{\text{Möb}}(T) = -\frac{1}{4} e^2 Q_K (1 - R_Q) \alpha_J \langle r^{-3} \rangle_{4f} \cdot Q_{4f}^{\text{eff}}(T) \frac{c}{E_\gamma} \quad (4.1)$$

Diese Gleichung stammt aus einer Mößbauer-Studie und hat aus diesem Grunde die Einheit einer Geschwindigkeit. Die Größe, die aus den PAC-Spektren entnommen wird, ist die Quadrupolkopplungskonstante. Diese hat aber die Einheit einer Frequenz. Eine Umrechnung geschieht durch folgende Gleichung

$$\nu_{4f}(T) = \frac{4}{\pi \varepsilon_0 h} \cdot \frac{E_\gamma}{c} \cdot \Delta E_{4f}^{\text{Möb}}(T)$$

wobei $E_\gamma = 76,5 \text{ keV}$ die für die Mößbauer-Resonanz verwendete Energie der γ -Quanten ist. Hier handelt es sich um den Übergang in den Grundzustand von ^{174}Lu (^{174}Yb). Für den energetischen Beitrag der $4f$ -Schale, $E = h \cdot \nu$, ergibt sich also

$$\Delta E_{4f}(T) = -\frac{1}{\pi \varepsilon_0} e^2 Q_K (1 - R_Q) \alpha_J \langle r^{-3} \rangle_{4f} \cdot Q_{4f}^{\text{eff}}(T) \quad (4.2)$$

wobei Q_K das Kernquadrupolmoment ist, $R_Q = 0,21$ der Sternheimer Abschirmungsfaktor, $\alpha_J = \frac{2}{63}$ der Stevens-Faktor und $\langle r^{-3} \rangle_{4f} = 12,5 \cdot a_0^{-3} = 8,44 \cdot 10^{31} \text{ m}^{-3}$ das radiale Moment der $4f$ -Schale². $Q_{4f}^{\text{eff}}(T)$ ist das effektive, vom Gitterfeldgradienten induzierte Quadrupolmoment der $4f$ -Schale

$$\begin{aligned} Q_{4f}^{\text{eff}}(T) &= \langle 3\hat{m}_J^2 - \hat{J}^2 \rangle \\ Q_{4f}^{\text{eff}}(T) &= \sum_{m_J} n_{m_J}(T) \cdot \langle m_J | 3\hat{m}_J^2 - \hat{J}^2 | m_J \rangle \end{aligned} \quad (4.3)$$

wobei $n_{m_J}(T)$ die temperaturabhängigen Besetzungswahrscheinlichkeiten der m_J -Unterzustände sind, die von der Boltzmann-Verteilung

$$n_{m_J}(T) = \frac{e^{-\frac{E_{m_J}}{kT}}}{\sum_{m_J} e^{-\frac{E_{m_J}}{kT}}}$$

beschrieben werden. Die Energien der einzelnen m_J -Unterzustände können aus

$$E_{m_J} = \frac{3m_J^2 - J(J+1)}{4J(2J-1)} e \cdot Q_{4f} \cdot V_{zz}^{\text{Gitter}} \quad (4.4)$$

² $a_0 = 5,29 \cdot 10^{-11} \text{ m}$ ist der Bohr'sche Atomradius

berechnet werden. Q_{4f} ist hierbei das Quadrupolmoment der $4f$ -Schale ohne Feld und V_{zz}^{Gitter} ist der Gitterfeldgradient. Die Quadrupolmomente der Kramers-Dubletts des $\frac{7}{2}$ Zustands können wie folgt berechnet werden

$$\langle m_J | 3\hat{m}_J^2 - \hat{J}^2 | m_J \rangle = 3m_J^2 - J(J+1)$$

Für die einzelnen m_J -Unterzustände ergeben sich die folgenden Erwartungswerte

$$\langle m_J | 3\hat{m}_J^2 - \hat{J}^2 | m_J \rangle = \begin{cases} 21 & \text{für } m_J = \pm\frac{7}{2} \\ 3 & \text{für } m_J = \pm\frac{5}{2} \\ -9 & \text{für } m_J = \pm\frac{3}{2} \\ -15 & \text{für } m_J = \pm\frac{1}{2} \end{cases} \quad (4.5)$$

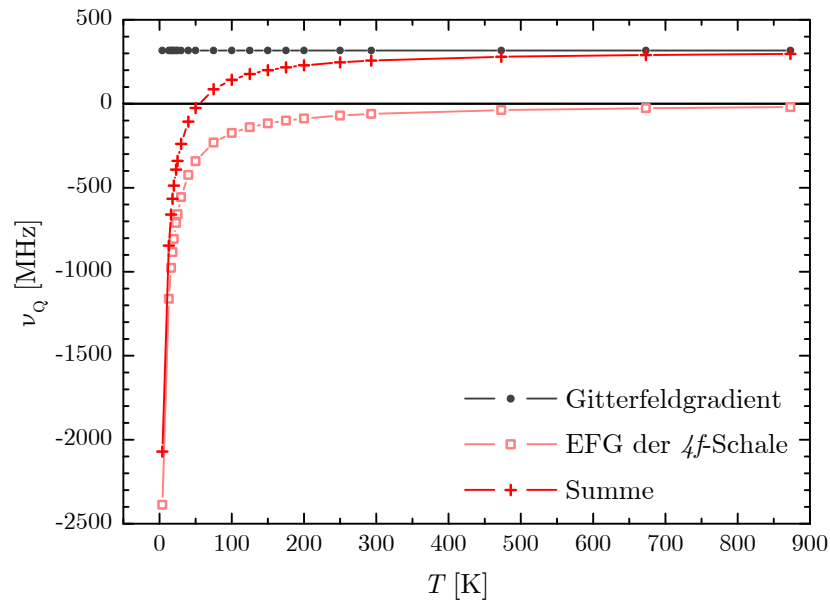
Diese Werte können dabei behilflich sein die relativen Abstände der teilweise entarteten Kramers-Dubletts darzustellen.

Der Gitterfeldgradient V_{zz}^{Gitter} hat in der Wurtzitstruktur von GaN entlang der \hat{c} -Achse zwei möglichen Ausrichtungen. Dem Modell liegen also zwei mögliche Kurven zugrunde, wie in Abbildung 4.12 zu sehen ist. Die eine Kurve (a) beschreibt die Situation mit einem positiven Gitterfeldgradienten und einem negativen Beitrag der $4f$ -Schale, die andere (b) beschreibt die umgekehrte Situation. In den Abbildungen sind die beiden elektrischen Feldgradienten von Gitter und Schale und deren Summe aufgetragen, um die Situation zu verdeutlichen.

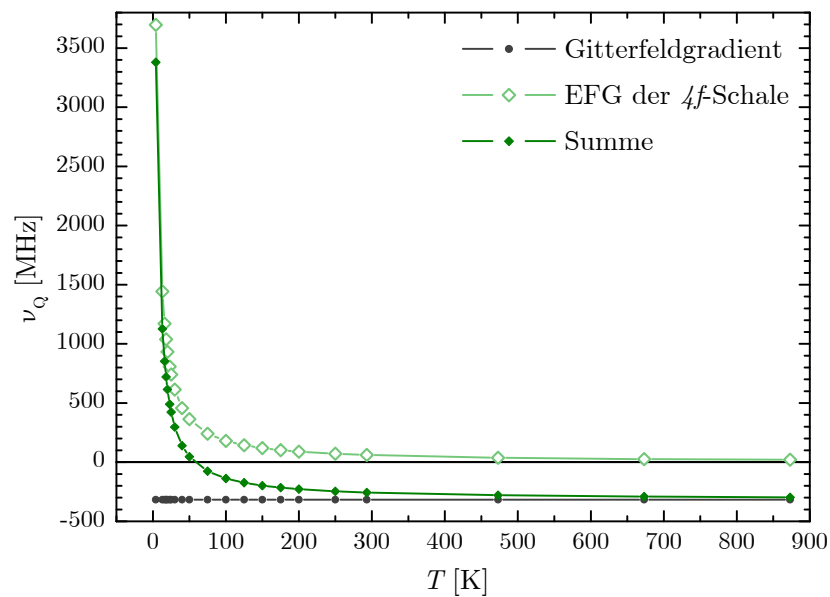
Die beiden Kurven verlaufen, abgesehen von dem Vorzeichen, sehr ähnlich. Invertiert man nun das Vorzeichen der Kurve mit negativem Gitterfeldgradienten und überlagert sie mit der Kurve mit positivem Gitterfeldgradienten, so erkennt man einen Unterschied primär bei tiefen Temperaturen (siehe Abbildung 4.13 *links*).

Sollte der Gitterfeldgradient positiv sein, so richtet sich der EFG der $4f$ -Schale dazu entgegengesetzt aus und die Kramers-Dubletts werden mit dem $\pm\frac{1}{2}$ Dublett als energetisch günstigsten Zustand aufgespalten. Bei einem negativen Gitterfeldgradienten zeigt der EFG der $4f$ -Schale in positiver Richtung und der $\pm\frac{7}{2}$ Dublett ist der energetisch günstigste Zustand. Die beiden Fälle sind in Abbildung 4.13 *rechts* dargestellt. Die Abstände zwischen den Zuständen sind proportional zu den Werten aus Gleichung 4.5.

Bei Temperaturen nahe dem absoluten Nullpunkt wird nur der energetisch günstigste Zustand eingenommen. Der Abstand zu dem nächst-höheren Zustand ist im positiven Fall ($\pm\frac{1}{2} \rightarrow \pm\frac{3}{2}$) kleiner als im negativen Fall ($\pm\frac{7}{2} \rightarrow \pm\frac{5}{2}$). Bei steigender Temperatur ist also im positiven Fall weniger Energie erforderlich um den nächst-höher liegenden Zustand zu besetzen. Diese Eigenschaft spiegelt sich



(a) Modell mit einem positiven Gitterfeldgradient.



(b) Modell mit einem negativen Gitterfeldgradient.

Abbildung 4.12: Dieses theoretische Modell beschreibt die Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten durch einen konstanten Beitrag vom Gitter und einen stark temperaturabhängigen Beitrag der $4f$ -Schale. Der Letztere ist invers dem Vorzeichen vom Gitterfeldgradienten, wodurch zwischen zwei Fällen unterschieden wird: Einem mit positivem und einem mit negativem Gitterfeldgradienten.

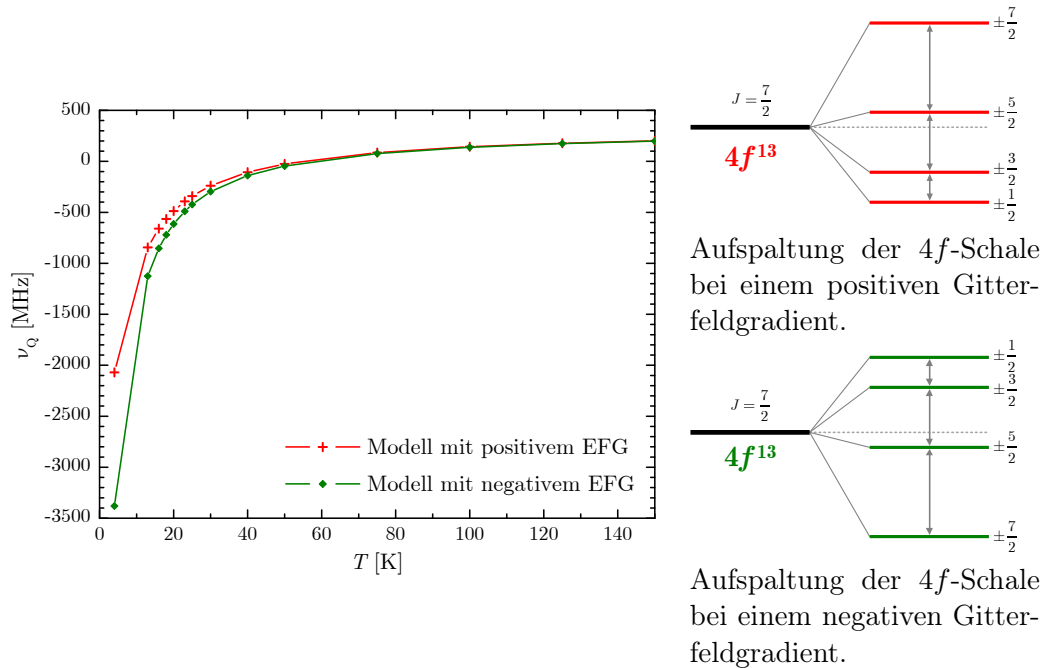


Abbildung 4.13: Die von dem theoretischen Modell beschriebene Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten, unter der Annahme eines positiven und eines negativen Gitterfeldgradienten. Der Unterschied in dem Vorzeichen invertiert die Reihenfolge der Aufspaltung der m_J -Unterszustände des $\frac{7}{2}$ Zustandes.

in dem theoretischen Modell wider. Im Falle eines positiven Gitterfeldgradienten steigt die Kurve schon bei niedrigeren Temperaturen an, während die Kurve mit einem negativen Gitterfeldgradienten bis etwa 100 K darunter verläuft.

Ein Vergleich der experimentellen Daten mit den zwei theoretischen Modellen zeigt eine Abweichung bei tiefen Temperaturen (siehe Abbildung 4.14). In der Praxis tritt unter einer bestimmten Temperatur eine Sättigung ein, die von dem hier vorgestellten theoretischen Modell nicht wiedergegeben wird. Unter 20 K steigt die Größe des elektrischen Feldgradienten nicht mehr sonderlich an und bei 13 K und 4 K ist die Größe im Rahmen des Messfehlers gleich. Die Vermutung liegt nahe, dass unter 16 K das Loch in der $4f$ -Schale nur noch seinen niedrigsten Energiezustand einnimmt. Versucht man trotzdem Experiment und Theorie zu vergleichen, so würde man einen positivem Gitterfeldgradienten annehmen. Die Messungen zwischen 25 K und 200 K sind sehr stark gedämpft und dadurch ist es sehr schwierig eine theoretische Störfunktion an die Daten anzupassen. Diese Messungen wurden demnach nicht dafür verwendet, die Annahme zu bestätigen oder zu widerlegen.

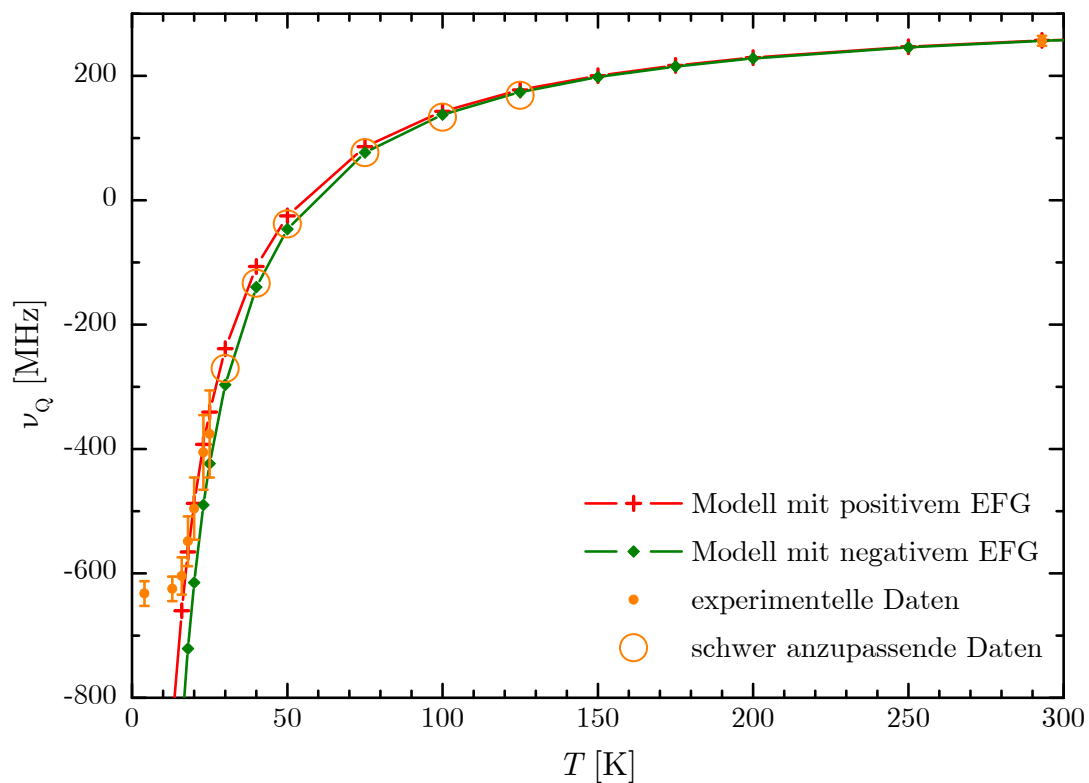


Abbildung 4.14: Der Graph vergleicht die beiden Modelle mit den experimentellen Daten. Die Daten der Messungen zwischen 25 K und 200 K sind wegen der hohen Dämpfung der Spektren schwierig anzupassen. Markiert wurden sie durch die offene Kreise.

4.2 ^{140}La in GaN

Im vorherigen Kapitel wurden einige Eigenschaften von GaN mit der Sonde ^{172}Lu (^{172}Yb) untersucht. $^{172}_{70}\text{Yb}$ ist das vorletzte Element der Lanthanoiden-Reihe und hat die Elektronenkonfiguration $[\text{Xe}]4f^{14}6s^2$. In kristallinen Gittern nimmt es bevorzugt die Wertigkeit 3+ an, dabei geht auch ein Elektron der 4*f*-Schale in Bindung und hinterlässt somit ein Loch in der 4*f*-Schale. Nun sollen ähnliche Untersuchungen mit der Sonde ^{140}La (^{140}Ce) durchgeführt werden. $^{140}_{58}\text{Ce}$ steht an zweiter Stelle in der Lanthanoiden-Reihe und hat die Elektronenkonfiguration $[\text{Xe}]4f^26s^2$. In kristallinen Gitter ist auch hier die häufigste Oxidationszahl 3+. Neben den zwei 6*s*-Elektronen geht dabei auch ein Elektron der 4*f*-Schale in Bindung. Somit bleibt in der 4*f*-Schale ein Elektron übrig.

Diese Tatsache führt zu einer Aufspaltung der Energieniveaus durch die Spin-Bahn-Kopplung in einem oberen $\frac{7}{2}$ Zustand und einem unteren $\frac{5}{2}$ Zustand. Diese sind durch einen Energieunterschied von 3260 K oder $\approx 0,3\text{ eV}$ voneinander getrennt [52]. Die Aufspaltung der Kramers-Dubletts ist ähnlich wie für ^{172}Lu (^{172}Yb), aber in umgekehrter Reihenfolge (siehe Abbildung 4.15).

Das Elektron in der 4*f*-Schale wird den $\frac{5}{2}$ Zustand einnehmen, da die im Gitter verfügbare thermische Energie nicht ausreicht den $\frac{7}{2}$ Zustand zu bevölkern. Der $\frac{5}{2}$ Zustand wird vom Gitterfeldgradienten weiter in drei entartete Kramers-Dubletts mit $m_J = \pm\frac{5}{2}, \pm\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}$ aufgespalten. Die Energieunterschiede zwischen den Niveaus sind hier im meV-Bereich. Das Elektron der 4*f*-Schale besetzt bei genügend großer thermischer Energie die Kramers-Dubletts mit gleicher Wahrscheinlichkeit. Der elektrische Feldgradient, der von der 4*f*-Schale hervorgerufen wird, mittelt sich somit heraus. Bei sehr tiefen Temperaturen, nahe dem absoluten Nullpunkt, nimmt das Elektron nur noch seinen tiefsten energetischen Zustand ein. Es werden also, bis auf das Vorzeichen, ähnliche Eigenschaften erwartet, wie sie mit der Sonde ^{172}Lu (^{172}Yb) untersucht wurden.

4.2.1 Vorbereitung

Die Produktion vom Radioisotop ^{140}La findet durch Neutronenbestrahlung von stabilem La_2O_3 am Forschungsreaktor in Geesthacht statt (siehe Kapitel 3.5.1, Seite 56). Es werden zwei $5 \times 5\text{ mm}^2$ große und $3,8\text{ }\mu\text{m}$ dicke GaN-Proben auf Saphir am Bonner Isotopenseparator implantiert. Die Implantationsenergie beträgt dabei 160 keV und die Implantationsdosis $8,3 \cdot 10^{13} \frac{\text{at}}{\text{cm}^2}$ für die erste Probe und $3,5 \cdot 10^{13} \frac{\text{at}}{\text{cm}^2}$ für die zweite Probe.

Das, nach der Implantation, mit einem Detektor der LSO-Anlage, aufgenommene Energiespektrum ist in Abbildung 4.16 zu sehen. Im Gegensatz zu ^{172}Lu sind hier Start- und Stopp-Energie der Kaskade im Spektrum gut zu erkennen, da

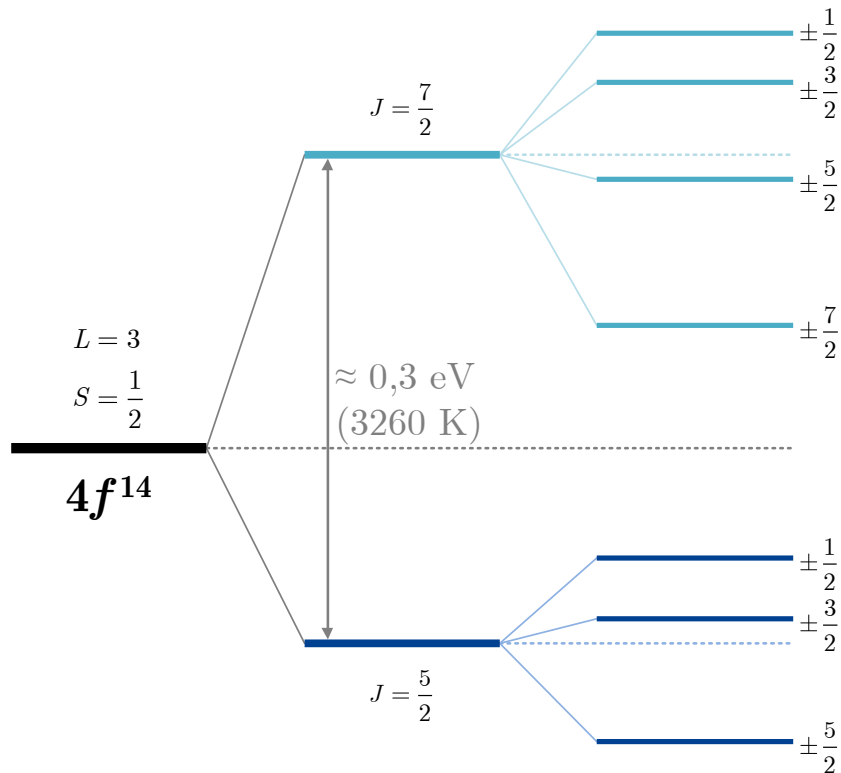


Abbildung 4.15: Das Energieniveau der $4f$ -Schale des Sondenkerns Ce^{3+} wird durch die Spin-Bahn-Kopplung $J = L + S$ in einem höher liegenden $J = \frac{7}{2}$ Zustand und einem niedrigeren $J = \frac{5}{2}$ Zustand aufgespalten. Die beiden Zustände haben einen Energieunterschied von $\approx 0,3 \text{ eV}$. Durch den Gitterfeldgradient von GaN werden diese beiden Zustände in weitere Kramers-Dubletts ($m_J = -J, -J + 1, \dots, J - 1, J$) aufgespalten. Es ist darauf zu achten, dass der Graph nicht maßstabsgetreu ist, die Energieunterschiede zwischen den Niveaus der Kramers-Dubletts sind im meV-Bereich.

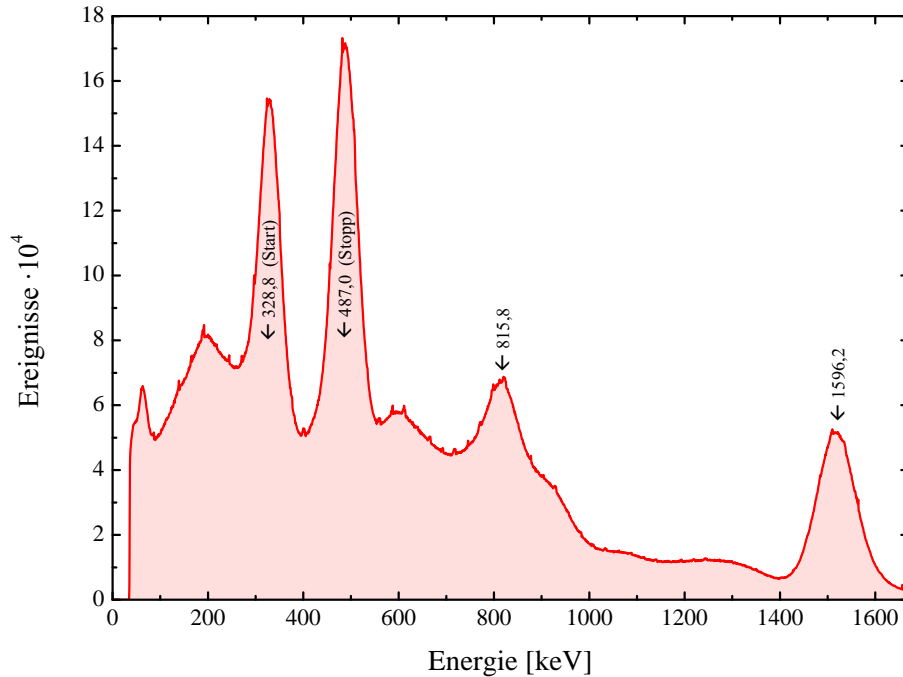


Abbildung 4.16: Energiespektrum einer mit ^{140}La implantierten GaN-Probe aufgenommen mit Detektor D der LSO-Anlage. In dem Spektrum sind die Start- und Stopp-Energien der $\gamma\gamma$ -Kaskade der PAC-Sonde ^{140}La gut zu erkennen, somit können die Energiefenster der SCA-Ausgänge der CFDD's ohne vorheriger Energiekalibrierung eingestellt werden.

sie beide nicht im Untergrund verschwinden. Die Maxima sind durch die gute Energieauflösung der LSO-Detektoren viel besser voneinander getrennt, als mit einer BaF_2 -Anlage möglich wäre. Aus diesen Gründen können die Energie-Fenster auch ohne vorheriger Kalibrierung eingestellt werden.

4.2.2 Messungen bei tiefen Temperaturen

Das Anlassen erfolgt für beide Proben bei 1300 K für 2 min unter Stickstoff-Atmosphäre mit einem *proximity cap*. Im Kryo-Refrigerator werden mit der ersten Probe Messungen bei 25 K und 100 K und mit der zweiten Probe bei 13 K und 293 K aufgenommen. Die Ergebnisse der Messungen sind in Abbildung 4.17 zusammengefasst. Die Aktivität der Proben ist so groß, dass die Messungen ausreichend Statistik zeigen. Dies ist an den kleinen Fehlerbalken der Datenpunkte zu erkennen. Trotz allem scheint in den Spektren keine ausgeprägte Frequenz erkennbar zu sein.

Wie schon in Kapitel 2.3 gezeigt wurde, hat die Messapparatur mit der Sonde ^{140}La ein zeitliches Auflösungsvermögen von 0,57 ns. Dies setzt voraus, dass ein

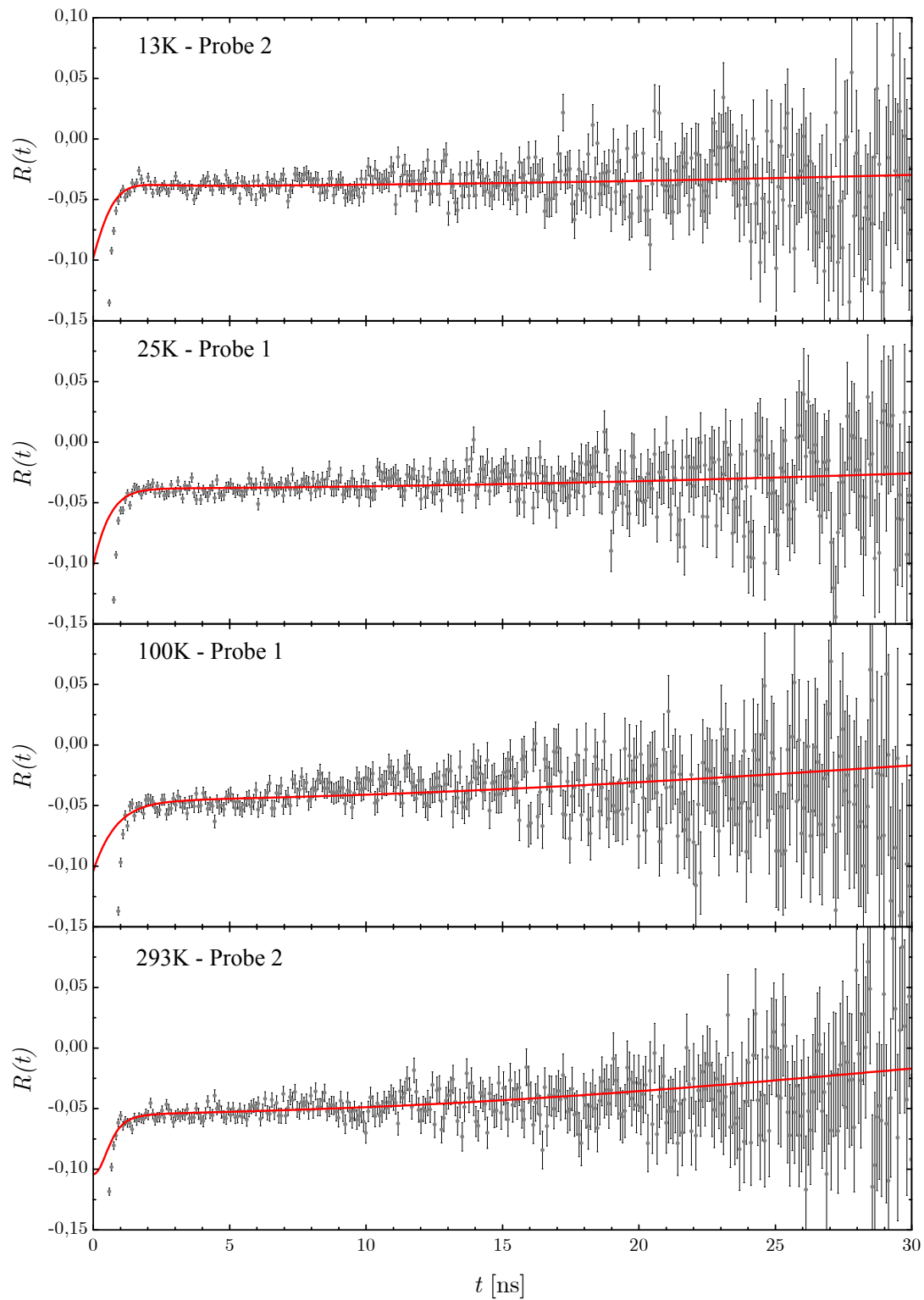


Abbildung 4.17: Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten gemessen mit der Sonde ^{140}La (^{140}Ce) in GaN.

ω_0 von 1,75 Grad/s noch problemlos aufgelöst werden kann. Bei einem Kernspin $I = 4$ ergibt sich aus

$$\nu_Q = \frac{56}{3\pi} \omega_0$$

eine Quadrupolkopplungskonstante von 10,4 GHz. Eine so schnelle Frequenz muss aber von einem elektrischen Feldgradienten der Größe $V_{zz} = 1,23 \cdot 10^{24} \text{ Vm}^{-2}$ hervorgerufen werden (siehe Gleichung 2.16, Seite 25). Typische Größenordnungen von V_{zz} in Festkörpern liegen aber bei 10^{20} bis 10^{22} Vm^{-2} . Ein sehr starker elektrischer Feldgradient mit einer sehr großen Quadrupolkopplungskonstante, die von der Apparatur nicht aufgelöst werden kann, ist also eher unwahrscheinlich.

Es ist weiterhin die Möglichkeit gegeben, dass die Sonden unterschiedlichen Umgebungen ausgesetzt sind. Durch die Implantation können viele Gitterschäden verursacht werden, die auch durch das Anlassen nicht ausgeheilt werden können. Die Implantationsdosis, die zwischen $10^{13} \frac{\text{at}}{\text{cm}^2}$ und $10^{14} \frac{\text{at}}{\text{cm}^2}$ lag, überschreitet zwar nicht die Amorphisierungsschwelle, doch lokal kann sie deutlich höher sein. Hinzu kommt der hohe Anteil stabilem ^{140}Ce , der die gleiche Masse wie ^{140}La besitzt und dadurch mit implantiert wird. Eine Erklärung dafür liegt in dem Herstellungsprozess. Die Halbwertszeit von ^{140}La ist 40 h. Zwischen Bestrahlung und Implantation vergehen ungefähr vier Tage, so sind in dieser Zeit etwa drei Viertel der Kerne schon zerfallen.

Wenn nun aber angenommen wird, dass der gemessene EFG in der gleichen Größenordnung liegt wie für ^{172}Lu in GaN, kann daraus auf die Größe der Quadrupolkopplungskonstante für ^{140}La in GaN zurückgeschlossen werden. Bei einem solchen Vergleich muss der Sternheimer-Parameter [56, 57] berücksichtigt werden. Der Sternheimer-Parameter beschreibt die positive oder negative Abschirmung, die durch die Hülle des Sondenkerns am Kernort ausgeübt wird. Nach Gupta und Sen [58] liegt der Sternheimer-Parameter $(1 - \gamma_\infty)$ für Ce^{3+} bei 65,84 und für Yb^{3+} bei 59,49, also ist der Unterschied für die beiden Sonden nicht groß.

Der mit der Sonde ^{172}Lu bei Raumtemperatur gemessene EFG liegt bei $V_{zz} = 3,70 \cdot 10^{21} \text{ Vm}^{-2}$ und die dazugehörige Quadrupolkopplungskonstante liegt bei $\nu_Q^{Lu} = 257 \text{ MHz}$. Hieraus lässt sich durch die Formel

$$\nu_Q^{La} = \frac{(1 - \gamma_\infty)_{La}}{(1 - \gamma_\infty)_{Lu}} \cdot \frac{Q_{La}}{Q_{Lu}} \cdot \nu_Q^{Lu}$$

für die Sonde ^{140}La eine Quadrupolkopplungskonstante von $\nu_Q^{La} = 35 \text{ MHz}$ berechnen. Die R-Wert-Spektren aus Abbildung 4.17 werden also mit einer langsamen und schwach gedämpften Frequenz angepasst. Die dazugehörigen Anpassungsdaten sind im Anhang in Tabelle A.2 auf Seite 104 zusammengefasst und in Abbildung 4.18 dargestellt.

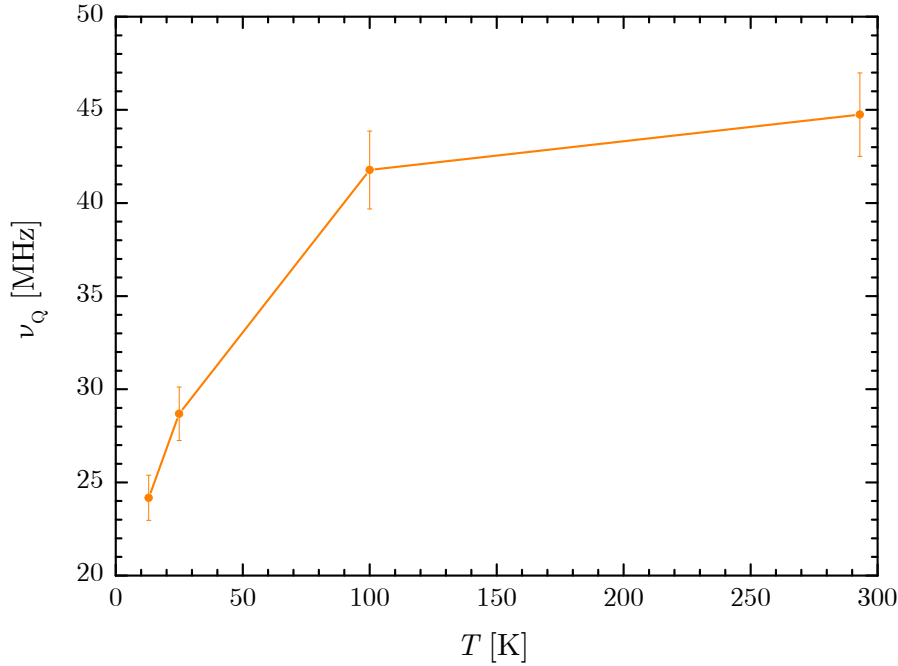


Abbildung 4.18: Temperaturabhängiges Verhalten der Quadrupolkopplungskonstante ν_Q von ^{140}La in GaN.

Der Anteil der langsamen Frequenz liegt bei Raumtemperatur ungefähr bei 50% und nimmt mit sinkender Temperatur ab. Die Quadrupolkopplungskonstante hat bei Raumtemperatur ein Frequenz von $\nu_Q = 45$ MHz und liegt somit in der angenommenen Größenordnung. Mit sinkender Temperatur wird die Quadrupolkopplungskonstante kleiner, der gesamte elektrische Feldgradient ist also bei tiefen Temperaturen kleiner.

Dieses Verhalten ist wie erwartet, da der Beitrag von der $4f$ -Schale mit sinkender Temperatur größer wird und gleichzeitig dem Gitterfeldgradienten entgegengesetzt ist. Allerdings wird hier bis 13 K kein Vorzeichenwechsel des gesamten elektrischen Feldgradienten beobachtet, wie es das Verhalten mit der Sonde ^{172}Lu bei ca. 50 K zeigte. Zu tieferen Temperaturen hin wurde der $4f$ -Schalen Beitrag von ^{172}Lu dominierend, wodurch ein Vorzeichenwechsel des gesamten elektrischen Feldgradienten hervorgerufen wurde. An dem Verlauf der Daten in Abbildung 4.18 ist also zu vermuten, dass bei ^{140}La der Beitrag der $4f$ -Schale kleiner ist und erst bei noch tieferen Temperaturen dominierend werden könnte.

Das effektive Quadrupolmoment der $4f$ -Schale $Q_{4f}^{\text{eff}}(T)$, der aus Gleichung 4.3 berechnet werden kann, ist von der Aufspaltung der Kramers-Dubletts $\langle m_J | 3\hat{m}_J^2 - \hat{J}^2 | m_J \rangle$ abhängig. Für die Sonde ^{140}La ergeben sich die folgenden Erwartungs-

werte der einzelnen m_J -Unterzustände

$$\langle m_J | 3\hat{m}_J^2 - \hat{J}^2 | m_J \rangle = \begin{cases} 10 & \text{für } m_J = \pm \frac{5}{2} \\ -2 & \text{für } m_J = \pm \frac{3}{2} \\ -8 & \text{für } m_J = \pm \frac{1}{2} \end{cases}$$

Durch die gegenüber der Sonde ^{172}Lu kleineren Werte ist somit auch das effektive Quadrupolmoment der $4f$ -Schale kleiner. Ein kleineres $Q_{4f}^{\text{eff}}(T)$ hat auch ein kleineren Gesamtbeitrag der $4f$ -Schale zur Folge. Aus diesem Grund wird die Annahme bestätigt, dass die $4f$ -Schale von ^{140}Ce einen schwächeren Einfluss als die von ^{172}Yb hat. Ein Vorzeichenwechsel des gesamten elektrischen Feldgradienten wird also erst bei tieferen Temperaturen erwartet.

Kapitel 5

Messungen in AlN

Die in dieser Arbeit verwendeten AlN-Proben stammen aus einem Wafer des Herstellers TDI¹. Die 0,5 μm dicke AlN-Schicht wurde per HVPE auf Saphir (Al_2O_3) aufgewachsen. Aus dem Wafer werden $5 \times 5 \text{ mm}^2$ große Proben geschnitten.

5.1 ^{172}Lu in AlN

Die Implantation des Radioisotops ^{172}Lu in AlN erfolgt an ISOLDE am CERN (siehe Kapitel 3.5.2, Seite 60). Die Implantationsenergie der ersten beiden Proben beträgt 30 keV. Somit ist gesichert, dass die implantierten Ionen nicht in das Substrat gelangen. Die Implantationsdosis der Proben beträgt ca. $10^{12} \frac{\text{at}}{\text{cm}^2}$. Nach dem Transport der Proben nach Bonn, ist die gemessene Aktivität der beiden Proben zusammen ca. 3 kBq. Das Anlassen der Proben geschieht in der RTA-Anlage für 2 min bei 1300 K unter Stickstoff-Atmosphäre mit *proximity cap*. Mit diesen Anlass-Parametern zeigt AlN maximales Ausheilen [59], bei höheren Temperaturen fängt eine Zersetzung der Oberfläche des Kristalls an.

Da die Aktivität nicht sehr groß ist, werden die zwei implantierten AlN-Proben zusammen in den Kryo-Refrigerator für die Messungen eingebaut. Die implantierten Oberflächen der Proben werden aneinander gelegt, so dass die austretende γ -Strahlung symmetrische Konditionen zu den Detektoren hat. Die Ergebnisse der Messungen zwischen 13 K und Raumtemperatur sind in Abbildung 5.1 zusammengefasst.

Die aufgenommenen R-Wert-Spektren zeigen durch eine relativ gute Statistik, dass die Aktivität der Proben ausreichend ist. Trotzdem ist es schwierig eine merkliche Veränderung über den kompletten Temperaturbereich in den Spektren zu erkennen. Die Schwingung, die in den ersten Nanosekunden noch erkennbar ist und als Frequenz interpretiert werden könnte, würde zwischen 1,8 GHz und

¹ Technologies Devices International, An Oxford Instruments Company, 12214 Plum Orchard Drive, Silver Spring, MD 20904, USA

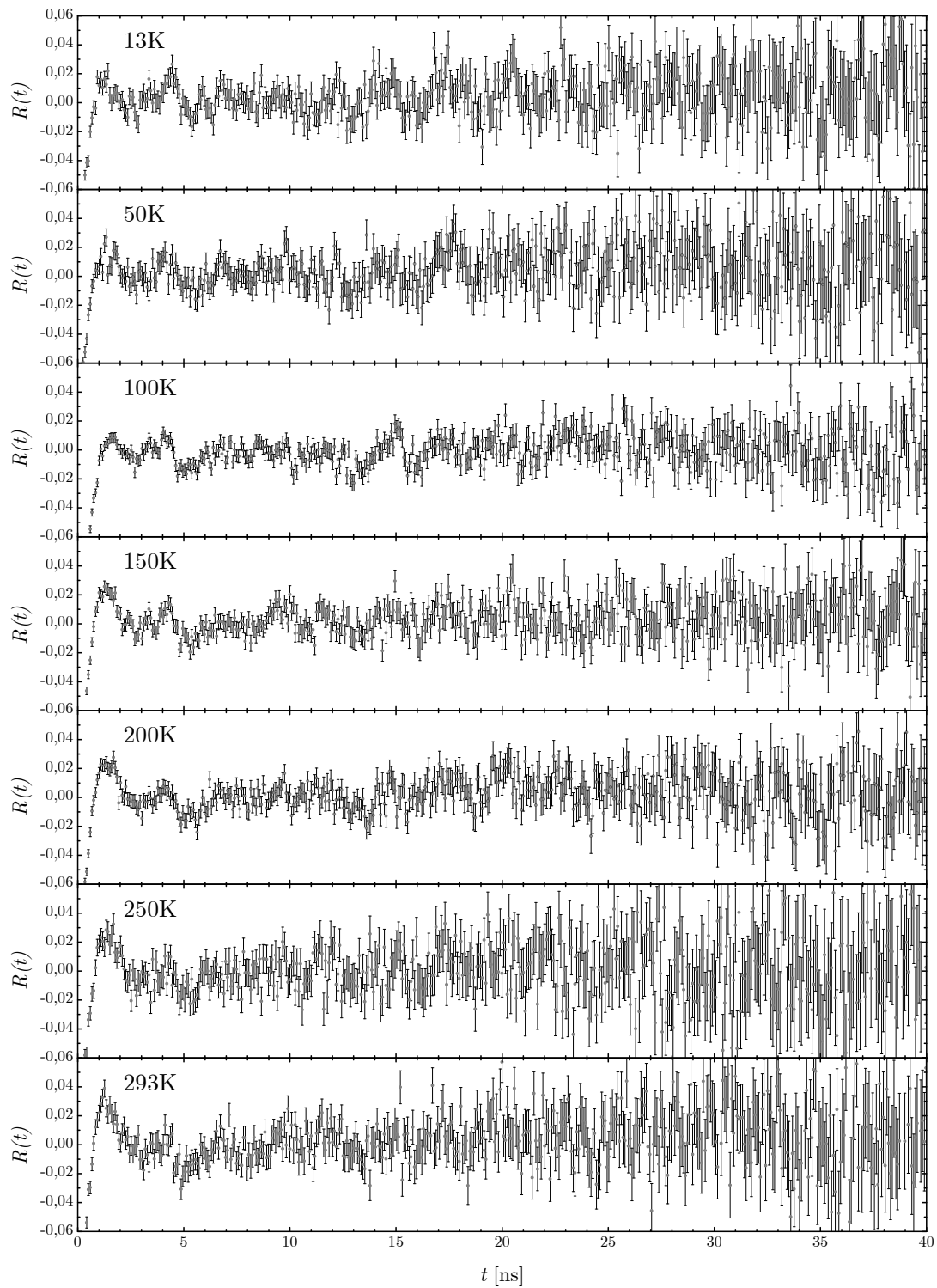


Abbildung 5.1: Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten gemessen mit der Sonde $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$ in AlN.

	$^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$	$^{140}\text{La}(^{140}\text{Ce})$	$^{181}\text{Hf}(^{181}\text{Ta})$	$^{111}\text{In}(^{111}\text{Cd})$
I	3	4	$\frac{5}{2}$	$\frac{5}{2}$
Q_K [b]	2,87	0,35	2,36	0,83
$(1 - \gamma_\infty)$	59,49	65,84	62	30
Messungen in GaN bei 293 K				
ν_Q [MHz]	257	45	334	6,1
V_{zz} [$\frac{\text{V}}{\text{m}^2}$]	$3,70 \cdot 10^{21}$	$5,29 \cdot 10^{21}$	$5,85 \cdot 10^{21}$	$3,04 \cdot 10^{20}$
$\frac{1}{(1-\gamma_\infty)}V_{zz}$	$6,22 \cdot 10^{19}$	$8,03 \cdot 10^{19}$	$9,44 \cdot 10^{19}$	$1,01 \cdot 10^{19}$
Messungen in AlN bei 293 K				
ν_Q [MHz]	632		572	33
V_{zz} [$\frac{\text{V}}{\text{m}^2}$]	$9,10 \cdot 10^{21}$		$1,00 \cdot 10^{22}$	$1,64 \cdot 10^{21}$
$\frac{1}{(1-\gamma_\infty)}V_{zz}$	$1,53 \cdot 10^{20}$		$1,62 \cdot 10^{20}$	$5,48 \cdot 10^{19}$

Tabelle 5.1: Die wichtigsten Eigenschaften der in dieser Arbeit verwendeten Sonden ^{172}Lu und ^{140}La und deren Hyperfeinwechselwirkung in GaN und AlN sollen hier zusammengefasst werden. Für einen Vergleich sind hier auch die Eigenschaften der gängigen Sonden ^{181}Hf und ^{111}In in den selben Nitrid-Halbleiter dargestellt [41].

1,9 GHz liegen. Wie schon in Kapitel 2.3 gezeigt wurde, hat die Messapparatur mit der Sonde ^{172}Lu ein zeitliches Auflösungsvermögen von 1,03 ns. Dies setzt voraus, dass ein ω_0 von $\approx 10^9$ rad/s noch aufgelöst werden kann. Bei einem Kernspin $I = 3$ ergibt sich aus

$$\nu_Q = \frac{10}{\pi} \omega_0$$

eine Quadrupolkopplungskonstante von ≈ 3 GHz. Also müsste die obige Frequenz problemlos aufgelöst werden.

Die Sonde ^{181}Hf weist ähnliche Eigenschaften wie ^{172}Lu auf. Es ist also möglich durch einen Vergleich der beiden Sonden die Größenordnung der Quadrupolkopplungskonstante von ^{172}Lu in AlN abzuschätzen. Das bei Raumtemperatur gemessene Verhältnis der Quadrupolkopplungskonstante von ^{181}Hf in AlN zu ^{181}Hf in GaN ist 1,71, das kann aus Tabelle 5.1 leicht berechnet werden. Wird nun davon ausgegangen, dass für die Sonde ^{172}Lu eine ähnliche Zunahme der Hyper-

feinwechselwirkung von GaN auf AlN stattfindet, so bekäme man eine Quadrupolkopplungskonstante von ^{172}Lu in AlN von etwa 440 MHz. Das ist aber eine Größenordnung kleiner, als diese Frequenz, die man in den ersten Nanosekunden vermuten könnte.

Zusätzlich lässt die Tatsache, dass die Spektren über den kompletten Temperaturbereich praktisch gar nicht variieren, darauf schließen, dass diese Störung nicht von irgendeiner Art Gitterdefekten oder von der Gitterstruktur selbst hervorgerufen wird. Wahrscheinlich kann sie eher auf Störungen in der Elektronik der Messapparatur selbst herrühren.

Weiterhin wird die Anpassung einer theoretischen Störfunktion an den Daten dadurch erschwert, dass die Spektren alle sehr stark gedämpft sind. Es liegt der Schluss nahe, dass die Proben ein stark uneinheitliches Gitter aufweisen. Sehen die Sondenkerne in ihrer Umgebung uneinheitliche Feldgradienten, zeigt sich das bei einer Winkelkorrelationsmessung durch ein sehr stark gedämpftes R-Wert-Spektrum. Das wäre also ein Grund dafür, dass keine ausgeprägte Frequenz in den Spektren zu sehen ist. Die Amorphisierung der Proben muss nicht zwingend eine Folge der Implantation sein. Die Herstellung solcher AlN-Wafer ist heutzutage noch nicht so ausgereift, wie beispielsweise bei GaN und darunter leidet die Qualität der epitaktisch aufgewachsenen Schichten. AlN-Wafer können auch lokal unterschiedliche Kristall-Qualität aufweisen.

Eine weitere Implantation zweier AlN-Proben erfolgt mit einer Energie von 50 keV und einer Implantationsdosis von etwa $10^{12} \frac{\text{at}}{\text{cm}^2}$. Die Aktivität der beiden Proben zusammen, am Messort in Bonn gemessen, beträgt etwa 1,5 kBq. Nach dem Anlassen, was nach den obigen Parametern geschieht, werden die Proben wieder zusammen in dem Kryo-Refrigerator eingebaut. In Abbildung 5.2 sind die Ergebnisse der Messungen dargestellt.

Wegen der, im Vergleich zu der ersten Implantation, geringeren Aktivität können nur drei Messungen bei unterschiedlichen Temperaturen aufgenommen werden. In Abbildung 5.3 ist der Verlauf der Quadrupolkopplungskonstante und separat der Verlauf der dazugehörigen Dämpfung in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen. Die dazugehörigen Anpassungsdaten sind im Anhang in Tabelle A.3 auf Seite 104 zusammengefasst.

Auffällig ist zunächst der, im Vergleich zu GaN, geringere Anteil der schwach gedämpften Frequenz. Das hängt damit zusammen, dass bei der Herstellung der AlN-Wafer, wie schon eben erwähnt, die Qualität der einkristallinen Struktur der aufgewachsenen AlN Schichten noch stark leidet.

Die Größe der Quadrupolkopplungskonstante ist bei Raumtemperatur $\nu_Q = (632 \pm 10)$ MHz, woraus ein elektrischer Feldgradient von $V_{zz} = (9 \pm 1) \cdot 10^{21} \text{ Vm}^{-2}$ berechnet werden kann. Im Vergleich zu GaN ist der EFG in AlN also um einen Faktor von etwa 2,46 größer. Dies spiegelt das Verhalten mit der Sonde ^{181}Hf

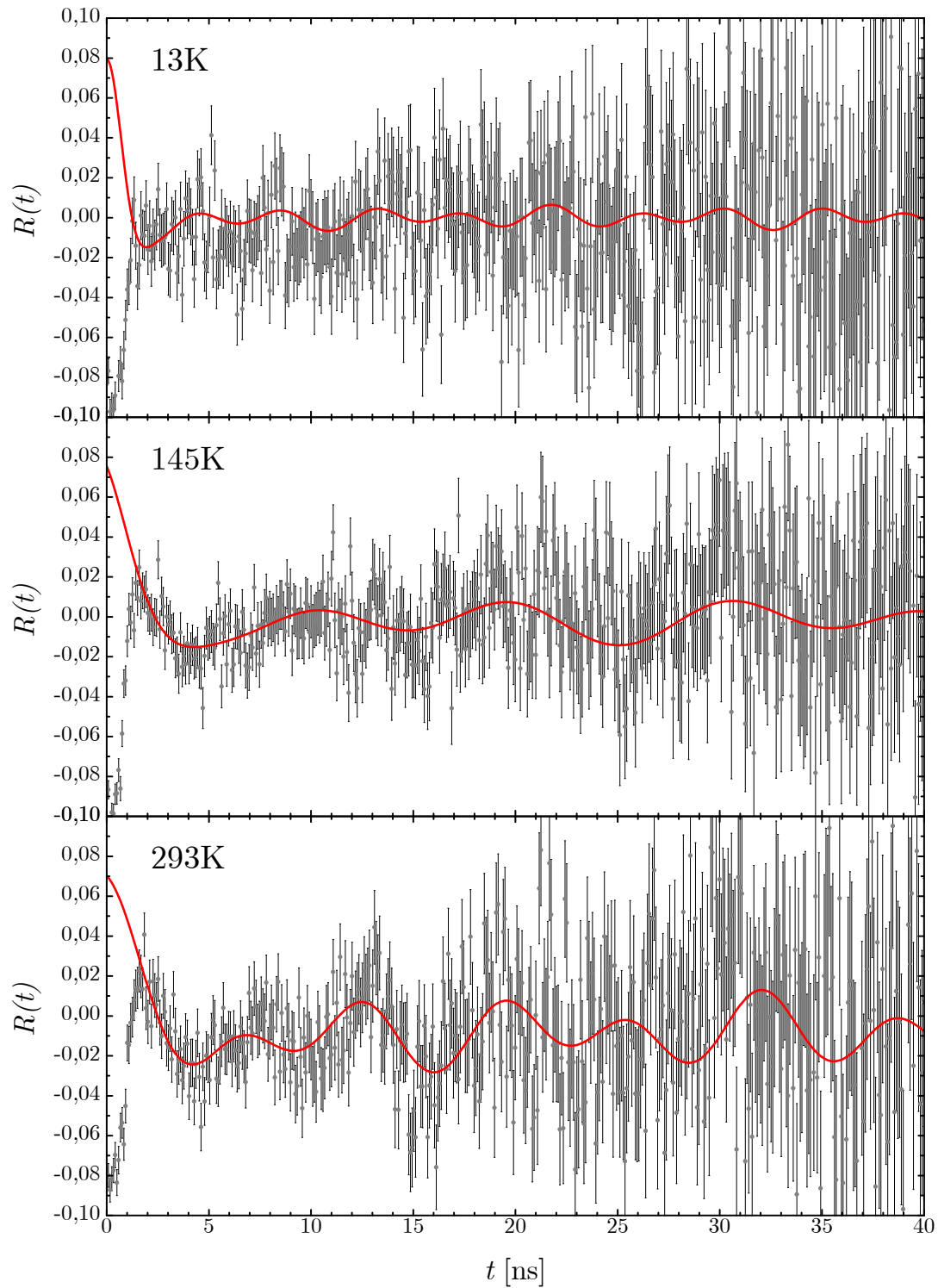


Abbildung 5.2: Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten gemessen mit der Sonde $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$ in AlN.

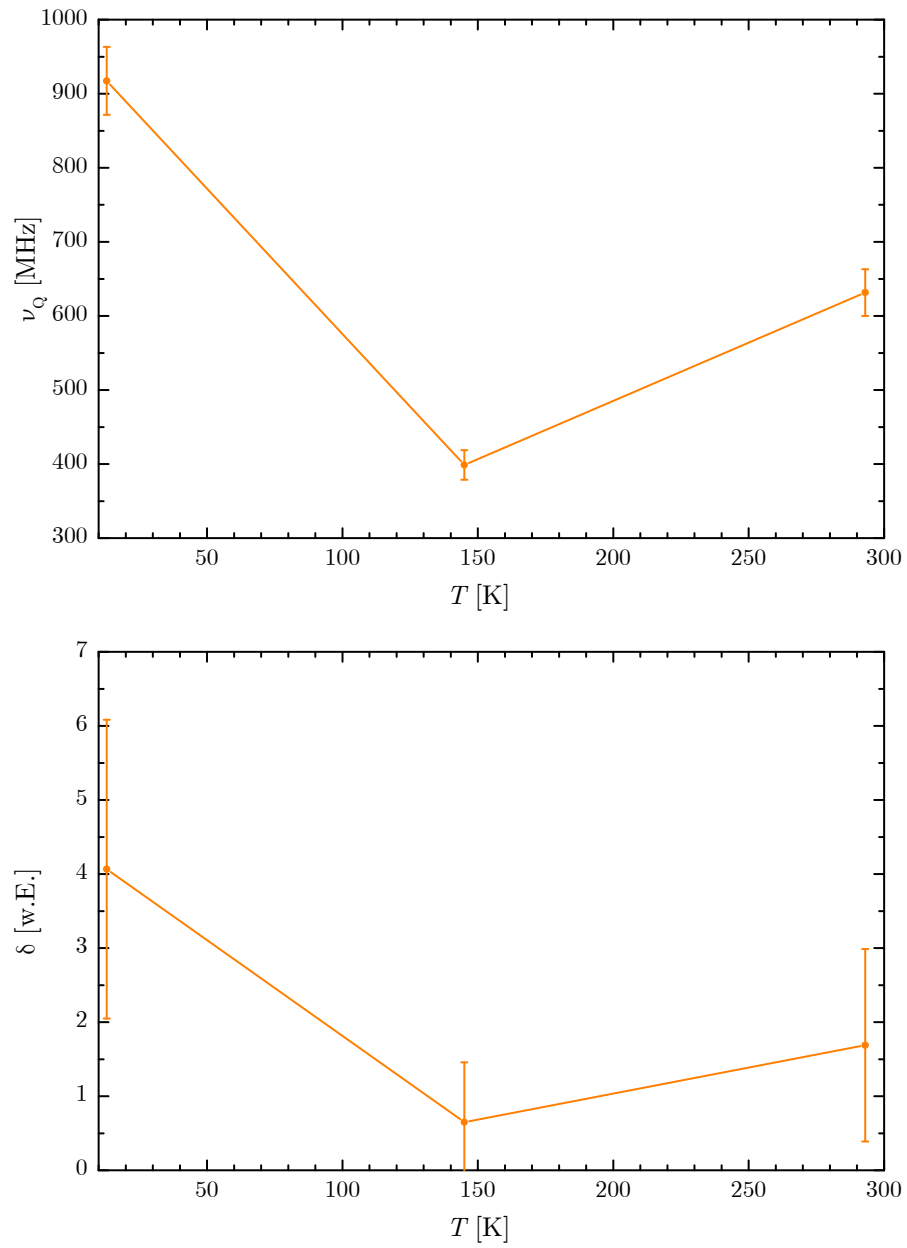


Abbildung 5.3: Temperaturabhängigkeit der Quadrupolkopplungskonstante ν_Q und der dazugehörigen Dämpfung δ .

wider, bei der der elektrische Feldgradient in AlN um den Faktor 1,71 größer war als in GaN.

Bei 145 K ist die Quadrupolkopplungskonstante mit $\nu_Q = (399 \pm 6)$ MHz kleiner als bei Raumtemperatur. Dies ist zu erwarten, da der Beitrag der $4f$ -Schale der Sonde zu tiefen Temperaturen hin zunimmt und gleichzeitig zu dem Gitterfeldgradienten entgegengesetztes Vorzeichen hat. Bei 13 K steigt die Frequenz der Quadrupolkopplungskonstante mit $\nu_Q = (917 \pm 14)$ MHz wieder stark an, allerdings lässt sich diese Messung nur sehr schwer anpassen.

Nun könnte man zwischen 145 K und 13 K ein Vorzeichenwechsel des gesamten elektrischen Feldgradienten erwarten, wie das schon bei GaN der Fall war (siehe Kapitel 4.1.3). So würde der gesamte EFG mit sinkender Temperatur stetig abnehmen und zu sehr tiefen Temperaturen vom EFG der $4f$ -Schale dominiert werden. Es stehen zu wenige AlN-Proben zur Verfügung, dass dieses Verhalten besser und mit deutlich mehr Messungen bestätigt und beschrieben werden kann. Eine quantitative Interpretation der Messdaten ist hier also nicht möglich.

Es konnte aber bewiesen werden, dass es möglich ist eine Seltene Erde als Sonde für PAC-Untersuchungen bei tiefen Temperaturen einzusetzen, obwohl der elektrische Feldgradient, der von den Elektronen der $4f$ -Schale hervorgerufen wird, zu tiefen Temperaturen hin eine immer stärker dominierende Rolle spielt.

Zusammenfassung

Das steigende Interesse an Halbleitern mit großer, direkter Bandlücke, wie Galliumnitrid (GaN) und Aluminiumnitrid (AlN), waren Motivation diese mit der Methode der gestörten Winkelkorrelation (PAC) zu untersuchen. Die gestörte Winkelkorrelation ermöglicht es, Eigenschaften des elektrischen Feldgradienten in diesen Materialien zu erforschen. Geeignete Sonden für solche Untersuchungen sind die Radioisotope $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$ und $^{140}\text{La}(^{140}\text{Ce})$.

Ein Ziel dieser Arbeit war, die Produktion und die Implantation der PAC-Sonde $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$, die bisher an der ISOLDE-Einrichtung am CERN stattgefunden hatte, an den Messort nach Bonn zu verlagern. Hier ist die Sonde durch Bestrahlung mit α -Teilchen einer Thulium-Folie (Kernreaktion: $^{169}\text{Tm}(\alpha, n)^{172}\text{Lu}$) erfolgreich am Bonner Zyklotron hergestellt worden. Die Implantation in GaN am Bonner Isotopenseparator hat zu brauchbaren Proben geführt. Allerdings bedarf diese Methode noch der Verbesserung, denn die Aktivität der implantierten Proben reichte meist nur für eine einzige Messung, obwohl ein Messprogramm mit derselben Probe wünschenswert gewesen wäre.

Das Verhalten des elektrischen Feldgradienten von $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$ in GaN wurde bei tiefen Temperaturen untersucht. Da die thermischen Ausdehnungskoeffizienten von GaN sehr klein sind, wurde hier ein weitgehend konstanter Wert erwartet. Bei sinkender Temperatur nimmt der absolute Wert des elektrischen Feldgradienten bis etwa 50 K ab und dann wieder zu, bis ab ca. 16 K eine Sättigung eintritt. Diese Änderung der Steigung deutet auf einen Vorzeichenwechsel des gemessenen elektrischen Feldgradienten hin. Unter dieser Annahme nimmt mit sinkender Temperatur der EFG stetig ab oder stetig zu, je nachdem ob bei Raumtemperatur ein positiver oder ein negativer EFG angenommen wird.

Dieses unerwartete Verhalten konnte mit einem theoretischen Modell beschrieben werden, welches von zwei Beiträgen zum gesamten elektrischen Feldgradienten ausgeht. Zum einen ein weitgehend konstanter Beitrag von dem EFG, der vom Wurtzitgitter des Galliumnitrids hervorgerufen wird, der sogenannte Gitterfeldgradient, und zum anderen einen stark temperaturabhängigen Anteil von der $4f$ -Schale der Lanthanoid-Sonde.

In kristallinen Gittern nimmt Ytterbium bevorzugt die Wertigkeit $3+$ ein. In dem $3+$ Zustand besitzt ^{172}Yb ein Loch in der $4f$ -Schale und produziert da-

durch einen zusätzlichen EFG, der vom Quadrupolmoment der $4f$ -Schale abhängt. Dieses Quadrupolmoment hängt seinerseits von der Aufspaltung der Spin-Bahn-Kopplung durch den Gitterfeldgradienten in den m_J -Unterzuständen ab. Die Temperaturabhängigkeit dieses Beitrages ist durch die unterschiedliche Besetzung der Kramers-Dubletts gegeben, die der Boltzmann-Verteilung genügen.

Dieses Modell liefert etwas unterschiedliche Werte, in Abhängigkeit davon ob bei Raumtemperatur ein positiver oder ein negativer Gitterfeldgradient angenommen wird. Ein Vergleich der experimentellen Daten mit den theoretisch berechneten Werten begünstigt die Annahme eines positiven Gitterfeldgradienten. Hier ist der energetische Abstand des untersten Zustand, den das Loch der $4f$ -Schale bei Temperaturen nahe dem absoluten Nullpunkt einnimmt, zum nächst-höheren Zustand kleiner als im Falle eines negativen Gitterfeldgradienten. Dies bewirkt einen früheren Anstieg des gemessenen elektrischen Feldgradienten schon bei tieferen Temperaturen (siehe Abbildung 4.14).

Ein solches Verhalten sollte auch für die Sonde $^{140}\text{La}(^{140}\text{Ce})$ nachvollzogen werden. Diese nimmt in GaN die Wertigkeit $3+$ an und besitzt somit ein Elektron in der $4f$ -Schale. $^{140}\text{Ce}^{3+}$ bietet damit den umgekehrten Fall zu $^{172}\text{Yb}^{3+}$. Durch einen Vergleich der beiden Sonden und unter der Annahme eines gemessenen elektrischen Feldgradienten der gleichen Größenordnung, konnten die mit ^{140}La aufgenommenen Spektren mit einer sehr langsamen und sehr schwach gedämpften Quadrupolkopplungskonstante ν_Q angepasst werden.

Mit sinkender Temperatur – bis 13 K – wird der gemessene EFG kleiner. Das wurde erwartet, da der Beitrag der $4f$ -Schale dem Gitterfeldgradienten entgegengesetzt ist und zu tieferen Temperaturen vom Betrag her größer wird. Allerdings hat die $4f$ -Schale von ^{140}Ce einen schwächeren Einfluss als die von ^{172}Yb , weil die Aufspaltung der Kramers-Dubletts durch den Gitterfeldgradienten kleinere Erwartungswerte hat. Diese führen ihrerseits zu einem kleineren effektiven Quadrupolmoment der $4f$ -Schale.

Untersuchungen mit der Sonde $^{172}\text{Lu}(^{172}\text{Yb})$ in AlN sollten ähnliche Ergebnisse, wie für GaN, ergeben. Leider konnten hier nur wenige Proben hergestellt werden. Die Messreihe der ersten Proben war nicht reproduzierbar und bei der Messreihe der zweiten Proben war die Aktivität so gering, dass nur drei Messungen bei unterschiedlichen Temperaturen durchgeführt werden konnten. Die Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten zeigt einen ähnlichen Verlauf wie bei GaN, so ist hier ein ähnliches Verhalten annehmbar. Es müssen allerdings weitere Messungen erfolgen, um dies zu bestätigen und um eine quantitative Interpretation zu ermöglichen.

Anhang A

Anpassungsdaten

In den folgenden Tabellen sind die angepassten Daten der Messungen der Proben, die zu interpretierbaren Ergebnissen führten, zusammengefasst. Jede Probe ist mit dem Datum der Herstellung, der Probenart (Dicke der Schicht und Nitrid-Halbleiter), dem Isotopenseparator, mit dem die Implantation durchgeführt wurde, und der Ausheiltemperatur gekennzeichnet. *BONIS* steht für den Bonner Isotopenseparator und *ISOLDE* ist die Herstell- und Separator-Anlage am CERN. Die einzelnen Proben sind nach dem Datum der Herstellung und nach der Messtemperatur T sortiert. Die Anpassungsdaten sind: der Anisotropiekoeffizient A_{22} , die additive Konstante c_{add} , der Anteil der angepassten Frequenz, die Quadrupolkopplungskonstante ν_Q , die Dämpfung δ und der elektrische Feldgradient V_{zz} .

A.1 ^{172}Lu in GaN

In der folgenden Tabelle sind die angepassten Daten der Messungen der Implantationen von ^{172}Lu in Galliumnitrid zusammengefasst.

T [K]	A_{22}	c_{add}	Anteil 1 [%]	ν_Q [MHz]	δ [%]	V_{zz} [$\frac{\text{V}}{\text{m}^2}$]
06.02.2007 – 11 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1273 K						
293	0,21	–0,0221	100	258(8)	153(12)	$3,72 \cdot 10^{21}$
02.03.2007 – 11 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1273 K						
293	0,08	–0,0017	23	260(8)	12(4)	$3,75 \cdot 10^{21}$
27.04.2007 – 11 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1273 K						
293	0,08	0,0080	100	258(8)	350(19)	$3,72 \cdot 10^{21}$

Fortsetzung auf der nächsten Seite

T [K]	A_{22}	c_{add}	Anteil 1 [%]	ν_Q [MHz]	δ [%]	V_{zz} [$\frac{V}{m^2}$]
24.07.2007 – 11 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1273 K						
293	0,06	−0,0019	100	258(8)	500(22)	$3,72 \cdot 10^{21}$
18.10.2007 – 11 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1273 K						
293	0,08	0,0026	42	259(8)	9(3)	$3,74 \cdot 10^{21}$
10.11.2007 – 11 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1273 K						
75	0,08	0,0018	100	73(2)	1000(32)	$1,05 \cdot 10^{21}$
125	0,08	0,0017	100	169(5)	479(22)	$2,43 \cdot 10^{21}$
293	0,08	0,0015	41	262(8)	1(1)	$3,78 \cdot 10^{21}$
19.01.2008 – 11 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1273 K						
25	0,08	−0,0003	100	−372(11)	190(14)	$−5,37 \cdot 10^{21}$
75	0,10	0,0000	100	76(4)	602(25)	$1,01 \cdot 10^{21}$
293	0,10	0,0000	100	258(8)	28(5)	$3,72 \cdot 10^{21}$
08.05.2008 – 3,8 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1300 K						
50	0,08	−0,0005	100	−65(2)	1307(36)	$−9,32 \cdot 10^{20}$
293	0,08	−0,0017	100	328(10)	58(8)	$4,72 \cdot 10^{21}$
29.07.2008 – 3,8 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1300 K						
40	0,08	0,0049	100	−127(4)	1035(32)	$−1,83 \cdot 10^{21}$
50	0,08	0,0047	100	−65(2)	2180(47)	$−9,33 \cdot 10^{20}$
293	0,08	0,0075	25	247(7)	9(3)	$3,56 \cdot 10^{21}$
11.02.2009 – 3,8 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1300 K						
13	0,08	0,0087	100	−617(19)	29(5)	$−8,89 \cdot 10^{21}$
20	0,08	0,0055	100	−521(16)	91(10)	$−7,51 \cdot 10^{21}$
40	0,08	0,0044	100	−134(7)	409(20)	$−3,69 \cdot 10^{21}$
16.11.2009 – 3,8 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1300 K						
13	0,08	0,0057	29	−410(12)	29(5)	$−5,91 \cdot 10^{21}$
293	0,08	0,0027	32	268(8)	8(3)	$3,86 \cdot 10^{21}$

Fortsetzung auf der nächsten Seite

T [K]	A_{22}	c_{add}	Anteil 1 [%]	ν_Q [MHz]	δ [%]	V_{zz} [$\frac{\text{V}}{\text{m}^2}$]
30.06.2010 – 3,8 μm GaN – <i>ISOLDE</i> – RTA 1300 K						
13	0,08	−0,0022	100	−645(19)	13(4)	$−9,29 \cdot 10^{21}$
20	0,08	−0,0006	100	−495(15)	75(9)	$−7,13 \cdot 10^{21}$
30	0,08	−0,0055	100	−257(8)	282(17)	$−3,70 \cdot 10^{21}$
293	0,08	−0,0079	100	257(8)	2(1)	$3,70 \cdot 10^{21}$
01.10.2010 – 3,8 μm GaN – <i>ISOLDE</i> – RTA 1300 K						
4	0,08	0,0037	100	−632(19)	15(4)	$−9,11 \cdot 10^{21}$
13	0,08	0,0004	100	−625(19)	19(4)	$−9,00 \cdot 10^{21}$
16	0,08	0,0003	100	−604(18)	32(6)	$−8,71 \cdot 10^{21}$
18	0,08	0,0000	100	−548(16)	38(6)	$−7,90 \cdot 10^{21}$
20	0,08	0,0004	100	−496(15)	62(8)	$−7,14 \cdot 10^{21}$
23	0,08	−0,0008	100	−406(12)	87(0)	$−5,84 \cdot 10^{21}$
25	0,08	−0,0019	100	−376(11)	85(9)	$−5,41 \cdot 10^{21}$
293	0,10	−0,0044	100	257(8)	1(1)	$3,70 \cdot 10^{21}$

Tabelle A.1: Anpassungsdaten der Messungen von ^{172}Lu in Galliumnitrid

A.2 ^{140}La in GaN

In der folgenden Tabelle sind die angepassten Daten der Messungen der Implantation von ^{140}La in Galliumnitrid zusammengefasst.

T [K]	A_{22}	c_{add}	Anteil 1 [%]	ν_Q [MHz]	δ [%]	V_{zz} [$\frac{\text{V}}{\text{m}^2}$]
07.05.2009 – 3,8 μm GaN – <i>BONIS</i> – RTA 1300 K						
13	-0,105	0	38	24(1)	2(1)	$2,86 \cdot 10^{21}$
25	-0,105	0	36	29(1)	3(2)	$3,39 \cdot 10^{21}$
100	-0,105	0	43	42(2)	6(2)	$4,94 \cdot 10^{21}$
293	-0,105	0	51	45(2)	0,5(0,5)	$5,29 \cdot 10^{21}$

Tabelle A.2: Anpassungsdaten der Messungen von ^{140}La in Galliumnitrid

A.3 ^{172}Lu in AlN

In der folgenden Tabelle sind die angepassten Daten der Messungen der Implantation von ^{172}Lu in Aluminiumnitrid zusammengefasst.

T [K]	A_{22}	c_{add}	Anteil 1 [%]	ν_Q [MHz]	δ [%]	V_{zz} [$\frac{\text{V}}{\text{m}^2}$]
01.07.2010 – 0,5 μm AlN – <i>ISOLDE</i> – RTA 1300 K						
13	0,08	-0,0070	12	917(14)	4(2)	$1,32 \cdot 10^{22}$
145	0,08	0,0016	18	399(6)	1(1)	$5,75 \cdot 10^{21}$
293	0,08	-0,0074	30	632(10)	2(1)	$9,10 \cdot 10^{21}$

Tabelle A.3: Anpassungsdaten der Messungen von ^{172}Lu in Aluminiumnitrid

Anhang B

Energiespektren

B.1 Vergleich vor und nach der Implantation

Die Aufnahme eines Energiespektrums mit einem Germanium-Detektor nach der α -Bestrahlung einer Thulium-Folie am Bonner Zyklotron zeigt, dass neben ^{172}Lu auch das ^{171}Lu entsteht (siehe Abbildung B.1). Neben der Kernreaktion $^{169}\text{Tm}(\alpha, n)^{172}\text{Lu}$, die einen maximalen Wirkungsquerschnitt von 60 mb bei 21 MeV hat, findet die konkurrierende Kernreaktion $^{169}\text{Tm}(\alpha, 2n)^{171}\text{Lu}$ statt, deren maximaler Wirkungsquerschnitt mit 640 mb bei 27 MeV liegt. Da sich die beiden Kurven etwas überlappen, ist es nicht möglich die volle Breite des Wirkungsquerschnittes von bei der Produktion ^{172}Lu zu nutzen, ohne dass auch ^{171}Lu dabei entsteht. Nach der Implantation am Bonner Isotopenseparator von ^{172}Lu in GaN sind im Energiespektrum (siehe Abbildung B.2) nur noch Linien der implantierten Sonde zu sehen.

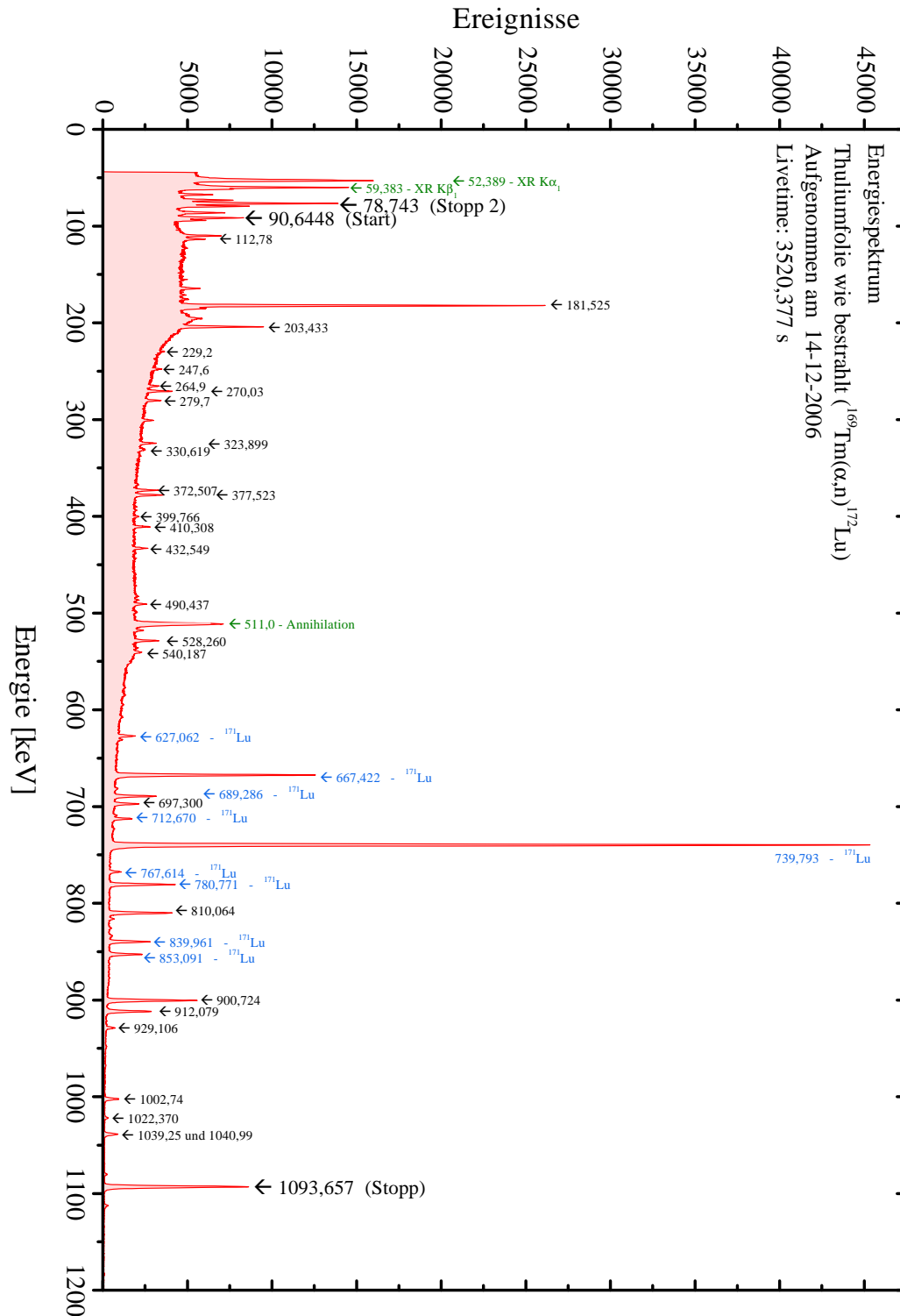


Abbildung B.1: Energiespektrum von ^{172}Lu in Thulium aufgenommen mit einem Germaniumdetektor.

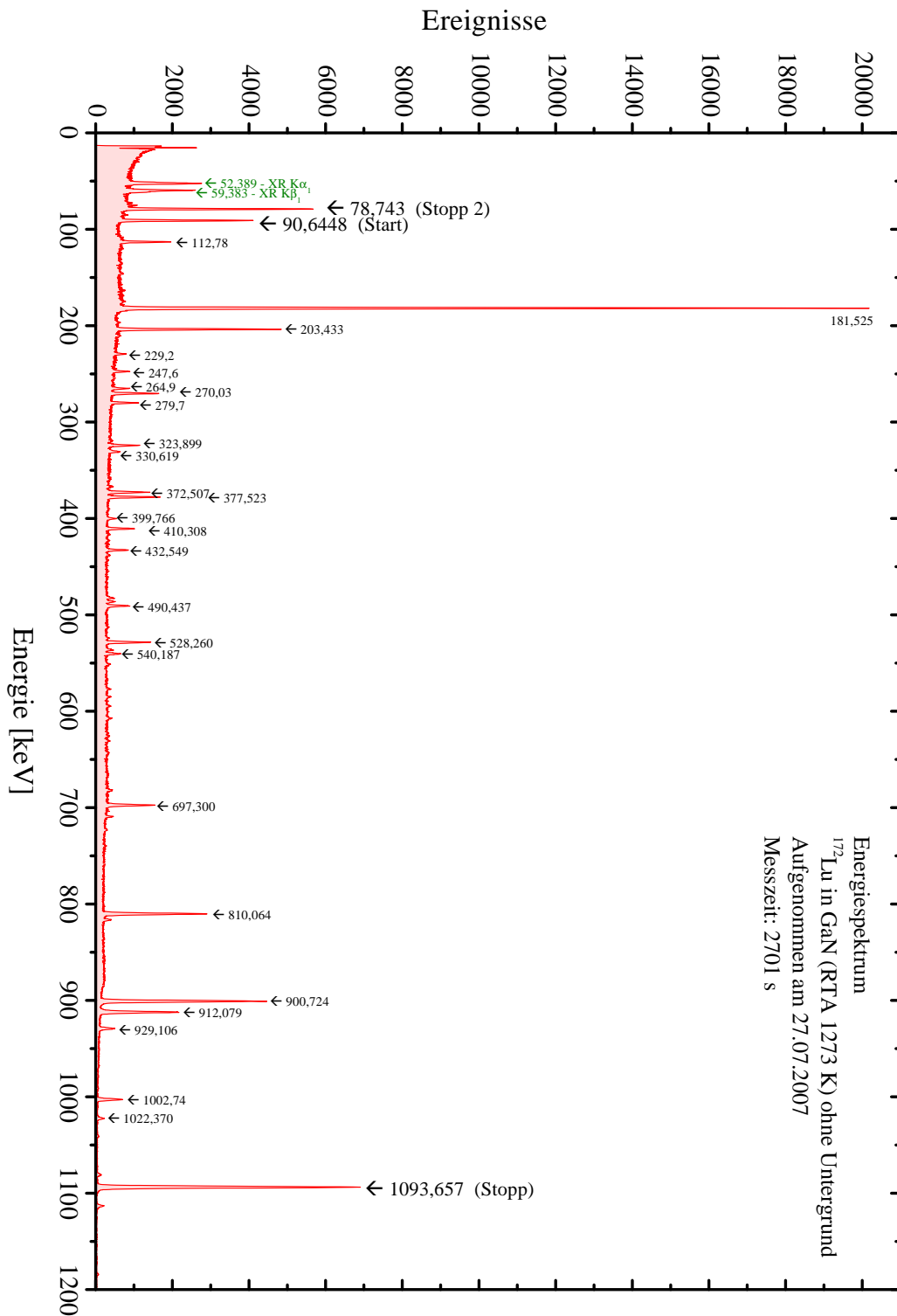


Abbildung B.2: Energiespektrum von ^{172}Lu in GaN implantiert aufgenommen mit einem Germaniumdetektor.

Literaturverzeichnis

- [1] H. Haken und H.C. Wolf: *Atom- und Quantenphysik*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 6. Auflage, 1996, ISBN 3-540-61237-8.
- [2] T. Mayer-Kuckuk: *Kernphysik*. Teubner, Stuttgart, 4. Auflage, 1984, ISBN 3-519-33021-0.
- [3] T. Mayer-Kuckuk: *Atomphysik*. Teubner, Stuttgart, 5. Auflage, 1997, ISBN 3-519-43042-8.
- [4] G. Schatz, A. Weidinger und M. Deicher: *Nukleare Festkörperphysik*. Vieweg+Teubner Verlag, Wiesbaden, 4. Auflage, 2010, ISBN 978-3-8351-0228-6.
- [5] H. Frauenfelder and R.M. Steffen: *Alpha-, beta- and gamma-ray spectroscopy*, volume 2. K. Siegbahn (editor), North Holland Publishing Company, Amsterdam, 1965.
- [6] M.J.L. Yates: *Finite solid angle corrections*, volume 2. K. Siegbahn (editor), North Holland Publishing Company, Amsterdam, 1965.
- [7] Thomas Schaefer: *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 Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität, Bonn, Mai 1992.
- [8] R. Nutt and C.L. Melcher: *Current and future developments with LSO, a scintillator with excellent characteristics for PET*. In *6ème Conférence Internationale "Instrumentation en Médecine Nucléaire"*, volume 5, number 2, pages 152–155, Lyon, March 1999. Revue de l'Acomen.
- [9] R. Valentini and R. Vianden: *PAC studies with LSO scintillation crystals*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 623(3):1002–1008, August 2010, ISSN 0168-9002. 10.1016/j.nima.2010.07.084.
- [10] Photonis – Imaging Sensors: *Photomultiplier Tubes – Product Specifications – XP2020*, 1998. <http://www.photonis.com>.

- [11] A. Lempicki and J. Glodo: *Ce-doped scintillators: LSO and LuAP*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A, 416(2–3):333–344, 1998, ISSN 0168-9002. 10.1016/S0168-9002(98)00689-5.
- [12] FAST ComTec GmbH: *MCA-3 Series Multichannel Analyzer User Manual – Version 3*. FAST ComTec Communication Technology GmbH, Grünwalder Weg 28a, D-82041 Oberhaching, August 2009. <http://www.fastcomtec.com>.
- [13] Ronan Nédélec: *Time Zero Calculation – TZCal – Version 1.2.0.14*. Arbeitsgruppe Nukleare Festkörperphysik am Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität, Bonn, 2006.
- [14] A.R. Arends, C. Hohenemser, F. Pleiter, H. De Waard, L. Chow, and R.M. Suter: *Data reduction methodology for perturbed angular correlation experiments*. Hyperfine Interactions, 8(1–3):191–213, April 1980, ISSN 0304-3843 (PRINT) 1572-9540 (ONLINE). 10.1007/BF01026869.
- [15] Ronan Nédélec: *Nightmare*. Arbeitsgruppe Nukleare Festkörperphysik am Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität, Bonn, 2007.
- [16] E. Dafni, R. Bienstock, M. H. Rafailovich, and G. D. Sprouse: *Tables of $S_{nN}^{k_1 k_2}$ and s_{kn} for γ -ray perturbed angular correlations with quadrupole interactions*. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 23(4):315–347, 1979, ISSN 0092-640X. 10.1016/0092-640X(79)90024-X.
- [17] K. Kopitzki und P. Herzog: *Einführung in die Festkörperphysik*. Teubner, Stuttgart, Leipzig, Wiesbaden, 4. Auflage, 2002, ISBN 3-519-33083-0.
- [18] Ioffe Physical Technical Institute: *New semiconductor materials archive – Physical properties of semiconductors*, February 2011. <http://www.ioffe.rssi.ru/SVA/NSM/Semicond/>.
- [19] Vadim Siklitsky: *New semiconductor materials – Characteristics and properties*, February 2011. <http://matprop.ru/>.
- [20] Y. Taniyasu, M. Kasu, and T. Makimoto: *An aluminium nitride light-emitting diode with a wavelength of 210 nanometres*. Nature, 441(7091):325–328, 2006, ISSN 0028-0836. 10.1038/nature04760.
- [21] A.J. Steckl and J.M. Zavada: *Optoelectronic properties and applications of rare-earth-doped GaN*. Materials Research Society - MRS Bulletin, 24(9):33–38, September 1999, ISSN 08837694.
- [22] R.B. Firestone: *Table of isotopes*. John Wiley & Sons, Inc., New York, 8th edition, 1996, ISBN 0471-14918-7.

- [23] B. Singh: *Nuclear Data Sheets for $A = 172$* . Nuclear Data Sheets, 75(2):199–376, 1995, ISSN 0090-3752. 10.1006/ndsh.1995.1025.
- [24] C. Günther, H. Blumberg, W. Engels, G. Strube, J. Voss, R. M. Lieder, H. Luig, and E. Bodenstedt: *Observation of dipole-octupole mixture in the gamma-decay of the 1174 keV isomeric state of ^{172}Yb and its magnetic moment*. Nuclear Physics, 61(1):65–86, 1965, ISSN 0029-5582. 10.1016/0029-5582(65)90936-3.
- [25] H.F. Wagner and J. Lange: *Investigation of the two quasiparticle rotational band at 1172 keV in ^{172}Yb and determination of the g_r -factor of the 3^+3 band head*. Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei, 242(4):292–303, August 1971, ISSN 0304-8853. 10.1007/BF01396978.
- [26] M. Forker and H.F. Wagner: *Determination of the ratio of the quadrupole moments of the 1174 keV and the 78 keV levels in ^{172}Yb* . Nuclear Physics A, 138(1):13–18, 1969, ISSN 0375-9474. 10.1016/0375-9474(69)90376-5.
- [27] R.L. Rasera and A. Li-Scholz: *Perturbed-angular-correlation study of electric-quadrupole interactions in ^{172}Yb in thulium metal and oxide lattices*. Physical Review B, 1(5):1995–2006, March 1970. 10.1103/PhysRevB.1.1995.
- [28] R. Nédélec and R. Vianden: *On the effective anisotropy of the 91–1,094 keV $\gamma\gamma$ -cascade in ^{172}Yb* . Hyperfine Interactions, 192(1):109–115, 2009, ISSN 0304-3843. 10.1007/s10751-009-9906-y.
- [29] N. Nica: *Nuclear Data Sheets for $A = 140$* . Nuclear Data Sheets, 108(7):1287–1470, 2007, ISSN 0090-3752. 10.1016/j.nds.2007.06.001.
- [30] H.J. Körner, E. Gerdau, C. Günther, K. Auerbach, G. Mielken, G. Strube und E. Bodenstedt: *Das magnetische Moment des 2,083 MeV-Zwei-Protonen-Niveaus des gerade-gerade-Kerns Ce^{140}* . Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei, 173(2):203–220, 1963, ISSN 0939-7922. 10.1007/BF01377960.
- [31] A.V. Mohan Rao, S. Mukherjee, and J. Rao: *Investigation of alpha particle induced reactions on thulium*. Pramana - Journal of physics, 38(3):279–290, 1992, ISSN 0304-4289. 10.1007/BF02875374.
- [32] A.V. Mohan Rao and S.N. Chintalapudi: *Pre-equilibrium decay process in alpha particle induced reactions on thulium and tantalum*. Journal of the Physical Society of Japan, 63(1):84–91, 1994. 10.1143/JPSJ.63.84.
- [33] J. Sau, A. Demeyer et R. Chéry: *Étude expérimentale et analyse des fonctions d'excitation $^{165}\text{Ho}(\alpha, \chi_n)$ et $^{169}\text{Tm}(\alpha, \chi_n)$* . Nuclear Physics A, 121(1) :131–144, 1968, ISSN 0375-9474. 10.1016/0375-9474(68)90502-2.

- [34] N.L. Singh, S. Agarwal, and J. Rama Rao: *Comparative study of pre-equilibrium models and mechanism of alpha particle induced reactions*. Journal of the Physical Society of Japan, 59(11):3916–3924, 1990. 10.1143/JPSJ.59.3916.
- [35] N.L. Singh and S.B. Gurjar: *Excitation functions studies of $^{169}\text{Tm}(\alpha, \chi\text{n})^{173-x}\text{Lu}$ reactions from 30–70 MeV energies*. DAE Symposium on Nuclear Physics, Contributed Papers, 36B(11):246, 1993.
- [36] James F. Ziegler: *SRIM – The Stopping and Range of Ions in Matter*, August 2010. <http://www.srim.org>, visited on 20.08.2010.
- [37] K.O. Nielsen: *The development of magnetic ion sources for an electromagnetic isotope separator*. Nuclear Instruments and Methods, 1(6):289–301, 1957, ISSN 0369-643X. 10.1016/0369-643X(57)90025-7.
- [38] CERN - European organization for nuclear research: *The ISOLDE Facility*, October 2009. <http://isolde.web.cern.ch>, visited on 22.10.2009.
- [39] Guido Marx: *Aufbau und Test einer RTA - Kurzzeit-Temper-Anlage*. Diplomarbeit, Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität, Bonn, Oktober 1990.
- [40] Andreas Möller: *Aufbau und Test eines elektronischen Temperaturreglers für die RTA - Kurzzeit-Temper-Anlage*. Diplomarbeit, Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität, Bonn, Juni 1992.
- [41] Katharina Lorenz: *Implantationsstudien an Gruppe-III-Nitriden*. Dissertation, Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität, Bonn, Juli 2002.
- [42] Air Products and Inc. Chemicals: *Technical manual for displax closed-cycle refrigeration system*. Air Products and Chemicals, Inc. – APD - Cryogenics, 1919 Vultee Street, Allentown, Pennsylvania 18103, February 1978.
- [43] R.J. Molnar, W. Götz, L.T. Romano, and N.M. Johnson: *Growth of gallium nitride by hydride vapor-phase epitaxy*. Journal of Crystal Growth, 178(1–2):147–156, 1997, ISSN 0022-0248. 10.1016/S0022-0248(97)00075-4.
- [44] M. Balcerzyk, M. Moszyński, M. Kapusta, D. Wolski, J. Pawelke, and C.L. Melcher: *YSO, LSO, GSO and LGSO. A study of energy resolution and nonproportionality*. IEEE Transactions on Nuclear Science, 47(4):1319–23, August 2000, ISSN 0018-9499. 10.1109/23.872971.

- [45] P. Dorenbos, J.T.M. De Haas, C.W.E. van Eijk, C.L. Melcher, and J.S. Schweitzer: *Non-linear response in the scintillation yield of $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^{3+}$* . IEEE Transactions on Nuclear Science, 41(4):735–737, August 1994, ISSN 0018-9499. 10.1109/23.322780.
- [46] R.S. Raghavan and P. Raghavan: *A new method for differential perturbed angular correlation measurements*. Nuclear Instruments and Methods, 92(3):435–437, 1971, ISSN 0029-554X. 10.1016/0029-554X(71)90421-6.
- [47] A.R. Chuhuran-Long, A. Li-Scholz, and R.L. Rasera: *Temperature dependence of the electric field gradient at ytterbium impurities in thulium metal*. Physical Review B, 8(5):1791–1798, September 1973. 10.1103/PhysRevB.8.1791.
- [48] C. Liu, A. Wenzel, B. Rauschenbach, E. Alves, A.D. Sequeira, N. Franco, M.F. da Silva, J.C. Soares, and X.J. Fan: *Amorphization of GaN by ion implantation*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 178(1–4):200–203, 2001, ISSN 0168-583X. 10.1016/S0168-583X(00)00456-0, Materials Science with Ion Beams.
- [49] M. Leszczynski, T. Suski, H. Teisseyre, P. Perlin, I. Grzegory, J. Jun, S. Porowski, and T.D. Moustakas: *Thermal expansion of gallium nitride*. Journal of Applied Physics, 76(8):4909–4911, 1994. 10.1063/1.357273.
- [50] V. Kirchner, H. Heinke, D. Hommel, J.Z. Domagala, and M. Leszczynski: *Thermal expansion of bulk and homoepitaxial GaN*. Applied Physics Letters, 77(10):1434–1436, 2000. 10.1063/1.1290491.
- [51] K. Królas, M. Rams, A. Forget, and J. Wojtkowska: *Paramagnetic fluctuations in $\text{Yb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ investigated with ^{172}Yb PAC probe*. Hyperfine Interactions, 120–121(1):231–23, March 1999, ISSN 0304-3843. 10.1023/A:1017071206102.
- [52] D. Torumba, V. Vanhoof, M. Rots, and S. Cottenier: *Hyperfine interactions at lanthanide impurities in Fe*. Physical Review B, 74(1):014409, July 2006. 10.1103/PhysRevB.74.014409.
- [53] H.A. Kramers: *General theory of the paramagnetic rotation in crystals*. Proceedings of the Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen te Amsterdam, 33:959–972, 1930, ISSN 0370-0348.
- [54] V. Zevin, G. Zwicknagl, and P. Fulde: *Temperature dependence of the 4f quadrupole moment of Yb in YbCu_2Si_2* . Physical Review Letters, 60(22):2331–2334, May 1988. 10.1103/PhysRevLett.60.2331.

-
- [55] K. Tomala, D. Weschenfelder, G. Czjzek, and E. Holland-Moritz: *Intermediate valence and the 4f quadrupole moment in YbCu₂Si₂: A ¹⁷⁴Yb Mössbauer study*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 89(1-2):143–152, September 1990, ISSN 0304-8853. 10.1016/0304-8853(90)90718-6.
- [56] R.M. Sternheimer: *On nuclear quadrupole moments*. Physical Review, 80(1):102–103, October 1950. 10.1103/PhysRev.80.102.2.
- [57] R.M. Sternheimer: *Shielding and antishielding effects for various ions and atomic systems*. Physical Review, 146(1):140–160, June 1966. 10.1103/PhysRev.146.140.
- [58] R.P. Gupta and S.K. Sen: *Sternheimer shielding-antishielding; rare-earth ions*. Physical Review A, 7(3):850–858, March 1973. 10.1103/PhysRevA.7.850.
- [59] K. Lorenz and R. Vianden: *Defect recovery in AlN and InN after heavy ion implantation*. Physica Status Solidi (C), 0(1):413–416, 2003, ISSN 1610-1642. 10.1002/pssc.200390076.

Veröffentlichungen zu dieser Arbeit

1. R. Valentini and R. Vianden: *PAC studies with LSO scintillation crystals*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Volume 623, Number 3, Pages 1002–1008, August 2010, ISSN 0168-9002, 10.1016/j.nima.2010.07.084
2. R. Valentini and R. Vianden: *Angular correlation studies on ^{172}Lu (^{172}Yb) in GaN and measurements at low temperatures*. Hyperfine Interactions, Springer Netherlands, Volume 197, Number 1, Pages 149–153, 2010, ISSN 0304-3843, 10.1007/s10751-010-0229-9

Abbildungsverzeichnis

2.1	Winkelverteilung von γ -Strahlung für orientierte Kerne	13
2.2	Schematische Darstellung einer $\gamma\gamma$ -Kaskade	14
2.3	Richtungen und Winkel in Winkelkorrelationsexperimenten	15
2.4	Blockschaltbild eines <i>Fast-Slow</i> -Koinzidenzkreises	17
2.5	Magnetische Aufspaltung der m -Unterzustände (Kernspin 3)	21
2.6	Elektrische Aufspaltung der m -Unterzustände (Kernspin 3 und 4)	24
2.7	Kegelstumpfförmige Szintillationskristalle in 2D und 3D	27
2.8	Promptkurven für die Zeitauflösung der LSO-Apparatur	29
2.9	Spektrale Empfindlichkeit eines XP2020	30
2.10	Schematischer Aufbau der Vier-Detektor-Anlage	31
2.11	Aufnahme-Logik der Vier-Detektor-Anlage	32
2.12	Beispiel Störfunktion mit starker Dämpfung (Kernspin 3)	34
2.13	Beispiel ungedämpfte Störfunktion einer Sonde (Kernspin 3 und 4)	35
2.14	Beispiel gedämpfte Störfunktion einer Sonde (Kernspin 3 und 4)	35
3.1	Direkter und indirekter Bandübergang	38
3.2	Bandlücke gegen Gitterparameter a einiger Halbleiter	39
3.3	Wurtzitstruktur	40
3.4	GaN-LED dotiert mit unterschiedlichen Seltenen Erden	45
3.5	Energiespektrum von ^{172}Lu (Ge-Detektor)	46
3.6	Partielles Zerfallsschema von ^{172}Lu (^{172}Yb)	47
3.7	Partielles Zerfallsschema von ^{140}La (^{140}Ce)	49
3.8	Wirkungsquerschnitt von ^{172}Lu	52

3.9	Energieverteilung von α -Teilchen hinter dem Al-Absorber	53
3.10	Energieverlauf von 24 MeV α -Teilchen in Thulium	54
3.11	Zeitabhängige Produktion von ^{172}Lu -Kerne	55
3.12	GKSS Forschungsreaktor	56
3.13	Bonner Isotopenseparator <i>BONIS</i>	58
3.14	Beschleuniger-Anlage am CERN	60
3.15	ISOLDE-Halle	61
4.1	Energiespektrum von ^{172}Lu (LSO-Detektor)	66
4.2	^{172}Lu in Tm wie bestrahlt, gemessen mit der LSO-Anlage	68
4.3	^{172}Lu in Tm wie bestrahlt, gemessen mit der BaF ₂ -Anlage	68
4.4	Wurtzitstruktur und Gitterfeldgradient	69
4.5	^{172}Lu in GaN bei Raumtemperatur gemessen - stark gedämpft	70
4.6	^{172}Lu in GaN bei Raumtemperatur gemessen	72
4.7	Temperaturabhängigkeit des EFG's von ^{172}Lu in GaN	74
4.8	Temperaturabhängigkeit von ν_Q und δ von ^{172}Lu in GaN	75
4.9	Temperaturabhängigkeit und Vorzeichen von ν_Q von ^{172}Lu in GaN	76
4.10	Temperaturabhängigkeit des EFG's von ^{181}Hf in GaN	76
4.11	Aufspaltung der $4f$ -Schale von Yb^{3+}	78
4.12	Modell mit positivem und negativem Gitterfeldgradienten	81
4.13	Vergleich Modelle und Aufspaltung der $4f$ -Schale	82
4.14	Vergleich Modelle mit experimentellen Daten	83
4.15	Aufspaltung der $4f$ -Schale von Ce^{3+}	85
4.16	Energiespektrum von ^{140}La (LSO-Detektor)	86
4.17	Temperaturabhängigkeit des EFG's von ^{140}La in GaN	87
4.18	Temperaturabhängigkeit von ν_Q von ^{140}La in GaN	89
5.1	Temperaturabhängigkeit des EFG's von ^{172}Lu in AlN (2009)	92
5.2	Temperaturabhängigkeit des EFG's von ^{172}Lu in AlN (2010)	95
5.3	Temperaturabhängigkeit von ν_Q und δ von ^{172}Lu in AlN (2010)	96

B.1	Energiespektrum von ^{172}Lu in Tm (Ge-Detektor)	106
B.2	Energiespektrum von ^{172}Lu in GaN implantiert (Ge-Detektor) . .	107

Tabellenverzeichnis

2.1	Übergangsfrequenzen ω_n für Kernspin 3 und 4	25
2.2	Umrechnungsfaktoren von ω_0 in ν_Q	26
3.1	Eigenschaften einiger Gruppe-III-Nitride	41
3.2	Eigenschaften des Zwischenzustandes der Kaskade von ^{172}Yb . . .	47
3.3	Eigenschaften des Zwischenzustandes der Kaskade von ^{140}Ce . . .	50
3.4	Strahl-Eigenschaften des Bonner Isochron-Zyklotrons	52
5.1	Vergleich unterschiedlicher Sonden in Gruppe-III-Nitride	93
A.1	Anpassungsdaten der Messungen von ^{172}Lu in GaN	103
A.2	Anpassungsdaten der Messungen von ^{140}La in GaN	104
A.3	Anpassungsdaten der Messungen von ^{172}Lu in AlN	104