

# Trägerfreies $^{22}\text{Na}$

Eine neue Quelle für  
die Positronenmikrosonde

von

Karsten Bennewitz

Diplomarbeit in Physik

angefertigt im

Institut für Strahlen- und Kernphysik

vorgelegt der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität

Bonn

April 1999

meiner Mutter

Ich versichere, daß ich diese Arbeit selbständig verfaßt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt, sowie die Zitate kenntlich gemacht habe.

Referent: Prof. Dr. K. Maier  
Korreferent: Prof. Dr. P. Herzog

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Die Positronenmikrosonde</b>	<b>4</b>
2.1	Prinzipieller Aufbau . . . . .	6
2.2	Die Positronenquelle . . . . .	6
2.2.1	Moderation der Positronen . . . . .	6
2.3	Strahlverkleinerung: Die Positronenmikroskopie . . . . .	8
<b>3</b>	<b>Das Material für eine neue Quelle</b>	<b>12</b>
3.1	Wege zur Produktion von $^{22}\text{Na}$ . . . . .	12
3.2	Die $^{22}\text{Ne}(\text{p},\text{n})^{22}\text{Na}$ -Reaktion . . . . .	16
<b>4</b>	<b>Das Neontarget</b>	<b>18</b>
4.1	Einige Eigenschaften von Neon . . . . .	19
4.1.1	Thermodynamische Größen . . . . .	19
4.1.2	Reichweite von Protonen in $^{22}\text{Ne}$ . . . . .	20
4.2	Der Kammeraufbau . . . . .	21
4.3	Das Targetfenster . . . . .	23
4.4	Kühlung des Targets . . . . .	27
4.4.1	Kälteerzeugung . . . . .	27
4.4.2	Messung und Regelung der Temperatur . . . . .	29
<b>5</b>	<b>Versuchsaufbau</b>	<b>31</b>
5.1	Befüllen des Targets . . . . .	33
5.2	Messung des Strahlstromes . . . . .	35

<b>6</b>	<b>Verarbeitung des <math>^{22}\text{Na}</math> zu einer punktförmigen Quelle</b>	<b>37</b>
6.1	Extraktion aus der Kammer . . . . .	37
6.2	Das Eintrocknen in eine sehr kleine Quelle . . . . .	39
<b>7</b>	<b>Messungen und Ergebnisse</b>	<b>42</b>
7.1	Die Strahlzeiten . . . . .	42
7.1.1	Die erste Probestrahlzeit . . . . .	42
7.1.2	Die „lange“ Strahlzeit . . . . .	43
7.2	Ergebnisse und Diskussion . . . . .	47
	<b>Zusammenfassung</b>	<b>50</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>50</b>
<b>A</b>	<b>Lieferfirmen</b>	<b>54</b>
<b>B</b>	<b>Photos des Experimentaufbaus</b>	<b>55</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>58</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Die Analysemethoden der Festkörperphysik werden heutzutage in immer kleiner werdenden Anwendungen genutzt. Im Rahmen der Mikrostrukturierung wird versucht, komplexe mechanische Systeme wie z. B. komplette Getriebe in winzigen Abmessungen zu entwickeln. Die Fortschritte der Halbleiterphysik führten innerhalb weniger Jahrzehnte vom Transistor zum Hochleistungsmikrochip und man strebt heute eine weitere Miniaturisierung der Halbleiterbauelemente an.

Bei der Beurteilung, welche Materialien als Werkstoffe verwendet werden können, spielen Defekte im Kristallgitter eine wichtige Rolle. Sie bestimmen fundamentale Eigenschaften wie Härte und Festigkeit, elektrische Leitfähigkeit oder zum Beispiel optische Konstanten. Auch die Materialermüdung von Werkstoffen führt lange vor der Zerstörung des Bauteils zu einer lokal erhöhten Fehlstellenkonzentration im gefährdeten Bereich.

Für die Erkennung und Analyse solcher Gitterfehler gibt es neben den klassischen Methoden wie der Röntgenbeugung eine Reihe von hochentwickelten Meßverfahren aus dem Bereich der Kernphysik (z.B. magnetische Kernresonanz (NMR), Myon-Spin-Rotation ( $\mu$ SR), gestörte  $\gamma$ - $\gamma$ -Winkelkorrelation (PAC)). Diese Methoden liefern zwar gute Informationen über Gitterfehler, jedoch stammen diese aus einem großen integralen Bereich des Festkörpers [BS92] .

Eine gute Möglichkeit, kleinste Strukturen wie Korngrenzen, Versetzungen oder Stapelfehler aufzulösen, stellt die Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM) mit einer Ortsauflösung bis zu 0,1 nm dar. Hierbei ist jedoch ein beachtlicher Aufwand bei der Probenpräparation nötig und es können keine zerstörungsfreien Materialuntersuchungen durchgeführt werden.

Die Positronen-Annihilation bietet eine ideale, zerstörungsfreie Ergänzung zu den

oben genannten Meßmethoden. Sie ist unter anderem sensitiv auf Leerstellenartige Fehlstellen und Versetzungen auf atomarer Skala [Wes73].

Die bisher funktionierenden Positronenmeßeinrichtungen können aufgrund ihrer Abbildungseigenschaften und der lateralen Ausdehnungen ihrer Quellen im mm-Bereich nur Auskünfte über ein relativ großes Volumen in der Probe geben. Die typischen Strahldurchmesser dieser Apparate liegen im Bereich von minimal einem halben Millimeter oder größer und können daher sehr feine Defektstrukturen wie sie zum Beispiel an Ermüdungsrissen auftreten nicht mehr auflösen.

Mit der Bonner Positronenmikrosonde, die im Sommer 1998 offiziell eingeweiht wurde, steht nun das weltweit erste funktionierende Gerät mit einem energievariablen Positronenstrahl von zur Zeit minimal  $7\mu\text{m}$  Strahldurchmesser zur Verfügung. Dieses Laborgerät entstand aus einer Zusammenarbeit der Firma LEO-Elektronenmikroskopie mit dem Institut für Strahlen- und Kernphysik. Es besteht aus einer Kombination von Positronenquelle und Moderator, welche am ISKP entwickelt wurde, und einem konventionellen Rasterelektronenmikroskop.

Um Defekte wie Einzelversetzungen, Einzelleerstellen oder Korngrenzen auflösen zu können, benötigt man allerdings eine noch feinere Ortsauflösung im Mikrometerbereich. Im Elektronenstrahlbetrieb der Mikrosonde sind Strahldurchmesser von 10 nm realisiert worden. Aufgrund des Diffusionsradius (100-500 nm) der Positronen in der Probe sind Strahlflecken von minimal einem halben  $\mu\text{m}$  Ausdehnung physikalisch sinnvoll. Die geringe Leuchtstärke der bisher verwendeten Positronenquelle führt jedoch bei solch einem Strahlengang zu sehr kleinen Zählraten und unvermeidbar langen Meßzeiten.

Ziel dieser Arbeit war die Entwicklung einer neuen Positronenquelle mit einer wesentlich höheren spezifischen Aktivität und somit einer größeren Leuchtstärke. Zudem soll die laterale Ausdehnung der aktiven Quelle sehr klein sein. Damit muß möglichst viel Aktivität auf einem kleinen Fleck untergebracht werden. Als Quellmaterial wird  $^{22}\text{NaCl}$  verwendet. Bei dem zur Zeit käuflich erhältlichen  $^{22}\text{NaCl}$  spielt die Selbstabsorption, d.h. die Absorption von emittierten Positronen im Quellmaterial selbst, eine entscheidende Rolle. Wegen der üblichen, kommerziellen Produktionsverfahren von  $^{22}\text{Na}$  ist dieses nur mit einer spezifischen Aktivität von etwa 1/100, d.h. einem aktiven  $^{22}\text{Na}$ -Atom pro 100 Atome Quellmaterial, erhältlich. Dadurch verhindert die Selbstabsorption bei einem Quelldurchmesser von  $300\mu\text{m}$  ab einer Aktivität von etwa 1-1,5 mCi eine weitere Erhöhung der Positronenemissionsrate. Bei hochreinem Ausgangsmaterial sollten

bis zu 50 mCi auf derselben Fläche plaziert werden können, ohne größere Verluste durch Selbstabsorption bei der  $e^+$ -Zählrate in Kauf nehmen zu müssen.

Gesucht ist ein Verfahren, bei dem man trägerfreies  $^{22}\text{Na}$  produzieren und dieses dann anschließend möglichst einfach hochrein in eine kleine Quelle für die Positronenmikrosonde extrahieren kann. Diese Suche und deren Realisation beschreibt die nun folgende Arbeit.

# Kapitel 2

## Die Positronenmikrosonde

Die Bonner Positronenmikrosonde ermöglicht Materialuntersuchungen mit einem Feinfokuspositronenstrahl. Informationen über den Aufbau der Probe gewinnt man mittels der Positronen-Annihilations-Spektroskopie.

Hierbei werden Positronen in die Probe implantiert, welche direkt aus radioaktiven Nukliden oder aus energievariablen, monochromatischen Positronenstrahlen stammen. Nachdem das Positron innerhalb weniger Pikosekunden auf thermische Energie abgebremst worden ist, diffundiert es bis zu seiner Zerstrahlung mit einem Elektron durch den Festkörper. In seinem (materialabhängigen) Diffusionsradius von 100-500 nm kann das Positron von Fehlstellen, die ein attraktives Potential darstellen, eingefangen werden. Im Falle von Leerstellen in Metallen beträgt dieses ungefähr 1eV, so daß das Positron mit seiner thermischen Energie  $E_{th} = \frac{3}{2}k_bT \approx 0,04eV$  (bei Raumtemperatur) bis zu seiner Annihilation nicht mehr entweichen kann [SL88]. Die Wahrscheinlichkeit der Zerstrahlung mit einem niederenergetischeren Valenz- oder Leitungselektron ist hier größer als auf einem Zwischengitterplatz. Bereits ab einer Leerstellenkonzentration von  $10^{-6}/\text{Atom}$  (1ppm) beobachtet man eine Abweichung in der Linienform der charakteristischen Vernichtungsstrahlung [Sch81].

Bei der Mikrosonde wird mittels eines Germanium-Detektors die Annihilationsstrahlung der Positronen von verschiedenen Bereichen einer Probe aufgenommen. Ein schematischer Aufbau ist in Abb.2.1 dargestellt [Haa97].

Im Rahmen der bisher durchgeführten Messungen mit diesem Gerät konnten z.B. Defektstrukturen im Bereich von Reißspitzen in AISI 321 Edelstahl [HMZ<sup>+</sup>98] und  $30\mu m$  große, durch Elektronenbeschuß geschädigte Bereiche, in Molybdän [MHZ<sup>+</sup>99] aufgelöst werden. Ferner sind Untersuchungen zum Elektrotransport (Heute wird oft die aus dem Englischen miserabel zurückübersetzte Bezeichnung

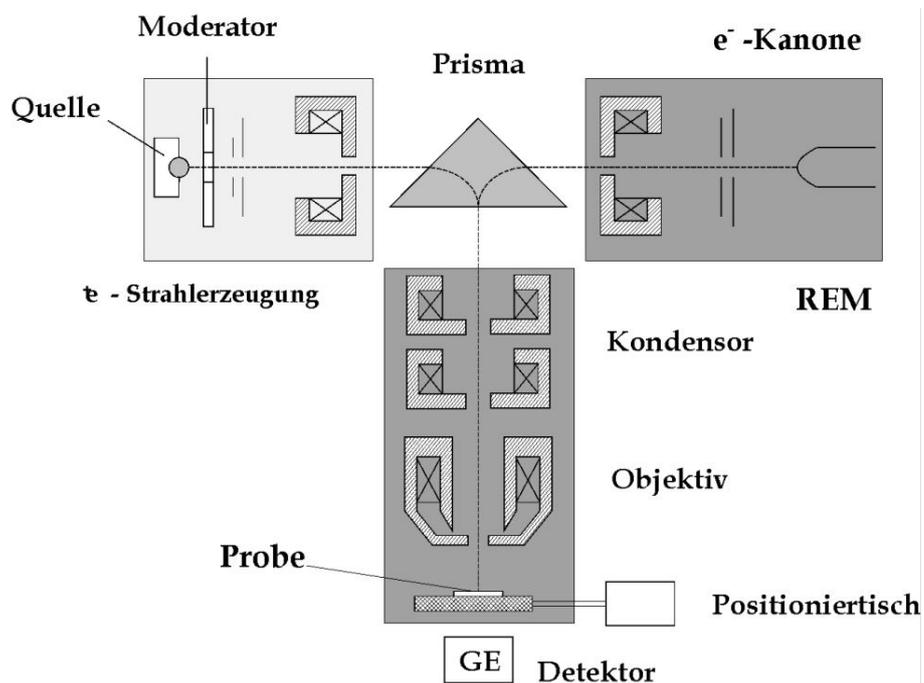


Abbildung 2.1: Gesamtaufbau der Positronenmikrosonde: Dunkelgrau unterlegt sind die Komponenten des konventionellen Rasterelektronenmikroskopes. Zwischen der Elektronenstrahlerzeugung und den Strahlabbildungssystemen wurde ein magnetisches Prisma eingesetzt, welches wahlweise den Positronen- oder den Elektronenstrahl auf die optische Achse der REM-Säule fokussiert.

Elektromigration verwendet) in Leiterbahnen geplant. (Elektromigration ist die Hauptausfallursache bei miniaturisierten Leiterbahnen, deren Mechanismus bis heute nicht vollständig geklärt werden konnte[AKM96].)

## 2.1 Prinzipieller Aufbau

Die Positronenmikrosonde besteht aus einem konventionellen Rasterelektronenmikroskop (REM: EM 960 A der Fa. LEO) mit einer zusätzlichen Positronenquelle. Zwischen Elektronenstrahlerzeugung und Strahlführung wurde ein magnetisches Prisma eingesetzt, so daß wechselweise von einer Seite Positronen und von der gegenüberliegenden Seite Elektronen in dieselbe Magnetoptik unter demselben Prismenstrom eingeleitet werden können (Abb.2.1). Man greift so auf Standardkomponenten der Elektronenmikroskopie zurück.

Elektronen und Positronen haben das gleiche Verhältnis von Ladung zu Masse und unterscheiden sich nur im Vorzeichen ihrer elektrischen Ladung. Sie werden in magnetischen Linsen auf dieselbe Art und Weise fokussiert, lediglich der Drehsinn der Spiralbahnen in den Magnetfeldern ist gegenläufig und bewirkt nur eine Bildrotation. Dadurch ist es möglich, sowohl für Elektronen als auch für Positronen identische Strahlengänge zu nutzen.

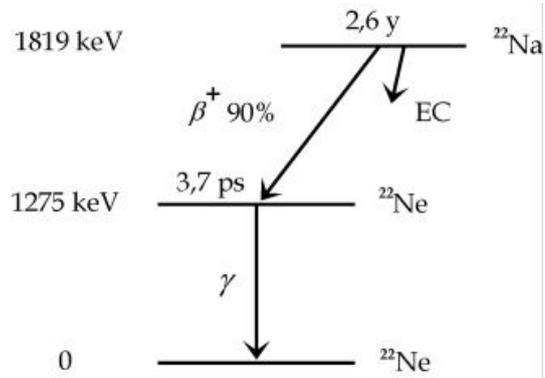
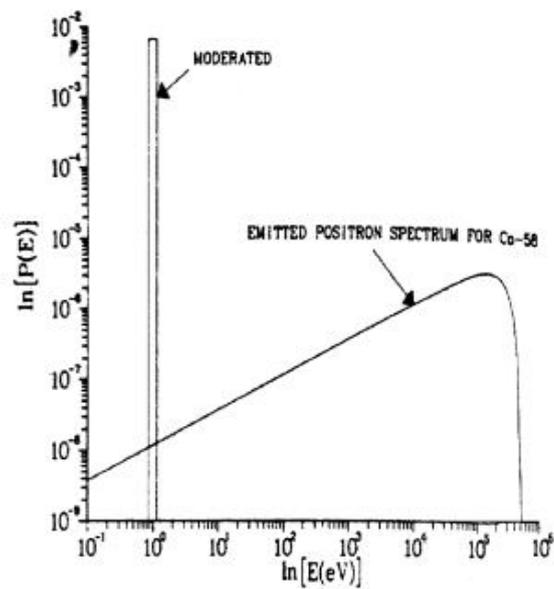
Im Messbetrieb wird zunächst der interessierende Bereich als Rasterelektronenbild dargestellt. Das REM dient hierbei als Zieleinrichtung für den Positronenstrahl. Anschließend wird auf Positronenbetrieb umgeschaltet und die Probe kann mit Hilfe der Positronen-Annihilations-Spektroskopie untersucht werden.

## 2.2 Die Positronenquelle

Als Positronenquelle wird  $^{22}\text{Na}$  (Abb.2.2) verwendet. Dieses Isotop ist aufgrund der hohen Positronenausbeute (90%), der geringen  $\beta^+$ -Energie (max. 545 keV) und der großen Halbwertszeit ( $t_{1/2} = 2,6$  a) besonders für den Einsatz in einem Laborgerät geeignet.

### 2.2.1 Moderation der Positronen

Sowohl für tiefensensitive Fehlstellenuntersuchungen als auch für die Strahlführung im Elektronenmikroskop benötigt man möglichst monoenergetische Positronen. Bei der Bonner Positronenmikrosonde wird hierfür das Verfahren der Einfachmoderation (Abb.2.3) angewandt [MR50].

Abbildung 2.2: Zerfallsschema von  $^{22}\text{Na}$ Abbildung 2.3: Vergleich zwischen dem direkten und moderierten  $\beta^+$ -Spektrum von  $^{58}\text{Co}$ . Ein einfaches Energiefilter ergabe eine um  $10^6$  geringere Effizienz [SL88].

Die von der  $^{22}\text{Na}$ -Quelle emittierten Positronen mit einer kontinuierlichen  $\beta$ -Energie bis zu 545 keV (Intensitätsmaximum bei  $\approx 220$  keV) werden in einem Wolfram-Einkristall oberflächennah thermalisiert. Wolfram besitzt eine negative Austrittsarbeit für Positronen. Deshalb werden die Positronen, die zur Oberfläche zurückdiffundieren, von dort senkrecht emittiert. Die reemittierten Positronen haben dann eine Energie  $E = 2,6 \text{ eV}$  mit einer Unschärfe von  $\Delta E = 75 \text{ meV}$  (bei  $T = 300 \text{ K}$ ) [F<sup>+</sup>86].

Bei dem zur Zeit in der Apparatur verwendeten Moderatorsystem handelt es sich um eine Kombination aus Reflektions- und Durchstrahlungsmoderator. Eine 400 nm-dicke Wolframeinkristallfolie wird hierbei mittels Elektronenstrahlschweißens auf ein 660  $\mu\text{m}$  dickes Wolframeinkristallplättchen aufgebracht. Dieses enthält eine 300  $\mu\text{m}$  große konische Bohrung. Ein Teil der Positronen wird in der dünnen Folie moderiert. Von den die Folie durchstrahlenden Positronen gelangt ein großer Teil der in den moderatorseitigen Raumwinkel emittierten Positronen an die Innenseite der Wolframbohrung und wird dort moderiert. Die aus der Bohrung austretenden Positronen werden so in eine Phasenraumzelle emittiert, welche vergleichbar mit der einer Glühkathode ist.

Vom Wolframmoderator aus zieht ein elektrostatisches Zwischenpotential  $U_{\text{zieh}}$  die moderierten Positronen ab. Danach werden sie von der Kathode auf die gewählte Endenergie (5-30 kV) beschleunigt (Abb.2.4).

Durch die gewählte Geometrie und die geeigneten Potentialdifferenzen zwischen geerdeter Kathode, Absaugelektrode und an positiver Hochspannung liegender Quelle-Moderator-Kombination entsteht im Bereich der Kathode ein Kreuzungspunkt aller Positronen (Cross-Over). Dieser Punkt ist vergleichbar mit dem Cross-Over auf der gegenüberliegenden Elektronenseite an der Anode, von wo aus die eigentliche Strahlführung eines konventionellen REM beginnt.

## 2.3 Strahlverkleinerung: Die Positronenmikroskopie

Eine weitere Reduktion des Strahldurchmessers wird durch den Kondensator und das Objektiv des REM erreicht. Der Strahl gelangt dabei durch ein Abbildungssystem aus magnetischen Linsen, die ihn schließlich unterhalb des Objektivs auf einen Cross-Over fokussieren.

In der Elektronenmikroskopie beschreibt der Richtstrahlwert  $R$  die Qualität dieses Strahls [Dos40]:

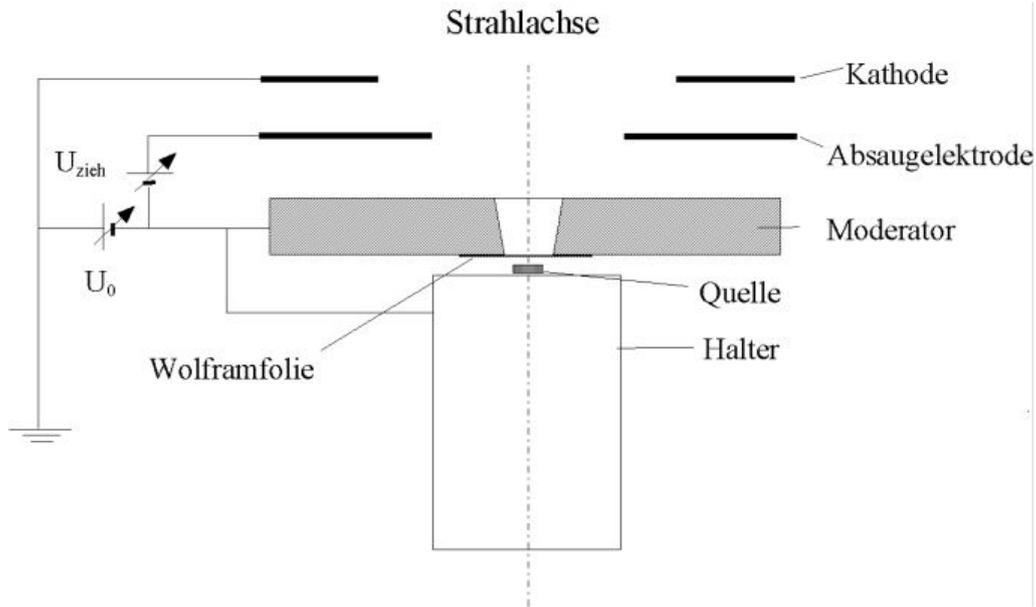


Abbildung 2.4: Skizze der Quellenordnung mit Potentialverhältnissen. Der Moderator und die Quelle befinden sich auf positiver Hochspannung  $U_0$ , welche zwischen 5 kV und 30 kV variiert werden kann.  $U_{Zieh}$  kann zur Fokussierung der Positronen auf die Kathode zwischen 0 und 3,5 kV gegenüber dem Moderatorpotential variiert werden.

$$R = \frac{I}{\frac{\pi^2}{4} \theta^2 d^2 E} \quad \begin{array}{l} I: \text{Intensität } e^+, d: \text{Strahldurchmesser} \\ E: \text{Energie, } \theta : \text{Aperturwinkel} \end{array} \quad (2.1)$$

Der Richtstrahlwert ist eine Funktion des Phasenraumes  $\Delta x \cdot \Delta p$ , wobei  $2x = d$  und  $p = p(\Theta, E)$  gilt. In den Richtwert geht der Satz von Liouville [Gol89] ein. Dieser besagt, daß bei ausschließlicher Anwendung von konservativen Kräften das Volumen im Phasenraum zeitlich konstant bleibt. Wird der Positronenstrahl durch ein Linsensystem verkleinert, d.h.  $\Delta x$  verringert, so kommt es zu einer Vergrößerung der Impulsunschärfe. Eine Abschätzung der Phasenraumvolumina ergibt:

- Im Elektronenbetrieb wird eine Wolfram Haarnadelkathode verwendet, welche am 1. Cross-Over einen Strahldurchmesser von  $\approx 50 \mu\text{m}$  bei einer Energieunschärfe von ca. 1 eV erzeugt. Daher kann man für die Phasenraumzelle

$$\Delta x \cdot \Delta p \leq \Delta x \cdot \sqrt{2m_e \Delta E} = 50 \mu\text{m} \cdot 1 \text{ keV}/c = 50 \cdot 10^{-3} \text{ eVm}/c$$

annehmen.

- Da die laterale Ausdehnung des Positronenstrahls am ersten Cross-Over höchstens dem Bohrungsdurchmesser ( $300\ \mu\text{m}$ ) entspricht, ergibt sich für den Positronenbetrieb bei einer Energieunschärfe von  $75\ \text{meV}$  :

$$\Delta x \cdot \Delta p \leq 300\ \mu\text{m} \cdot \sqrt{2m_e \Delta E} = 300\ \mu\text{m} \cdot 0,28\ \text{keV}/c = 84 \cdot 10^{-3}\ \text{eVm}/c$$

Der Wert für den Positronenbetrieb ist also weniger als doppelt so groß wie der für die Elektronenquelle abgeschätzte. Die Auflösungsgrenze des REM beträgt im Elektronenbetrieb etwa  $10\ \text{nm}$ . Weil das Positron ohnehin in der Probe einen typischen Diffusionsweg von etwa  $100\text{-}500\ \text{nm}$  zurücklegt bevor es zerstrahlt, sollte diese Auflösung für die Positronenspektroskopie voll und ganz ausreichend sein. Allerdings wird die hohe Auflösung im Elektronenbetrieb durch einen speziellen Strahlengang und eine sehr feine Blende ( $\varnothing \approx 40\ \mu\text{m}$ ) vor dem Objektiv erreicht, wobei ein Großteil der Elektronen herausgeschnitten wird. Im Positronenbetrieb wird momentan noch ein anderer Strahlengang mit einem Cross-Over weniger verwendet. Im Elektronenbetrieb wird dieser aufgrund der hohen Intensität zum Elektronenstrahl-Mikroschweißen genutzt. Die Auflösung des Elektronenmikroskops verschlechtert sich hierbei auf ca.  $1\ \mu\text{m}$ . Auch das Einfügen einer feinen Blende ( $< 100\ \mu\text{m}$ ) in den Positronenstrahl verringert die Zählraten so stark, daß die Meßzeiten pro Punkt unvertretbar lang würden.

Es wurden bisher Strahldurchmesser von  $\approx 10\ \mu\text{m}$  bei einer Zählrate von etwa  $100\ \text{Pos./sec.}$  im Germaniumdetektor erreicht. Dies entspricht einer Verkleinerung des Strahls um Faktor 30 ( $300\ \mu\text{m}$ -Moderator). Wünschenswert wäre ein Strahldurchmesser von  $1\ \mu\text{m}$  bei einer akzeptablen Zählrate, so daß feinere Objektdetails wie z.B. Korngrenzen besser aufgelöst werden könnten.

Hierzu benötigt man eine relativ starke Quelle mit einer großen Brillanz, d.h. die spezifische Aktivität (pro  $\text{cm}^2$ ) soll erhöht werden. Die Positronenquelle muß insgesamt folgende Anforderungen erfüllen:

- Da bei der Moderation nur  $\approx 5 \cdot 10^{-4}$  der einfallenden Positronen als monoenergetischer Strahl extrahiert werden können, benötigt man eine Quelle mit einer recht großen Gesamtaktivität. (Bisher wurde eine  $^{22}\text{Na}$ -Quelle mit etwa  $400\ \mu\text{Ci}$  ( $15\ \text{MBq}$ ) verwendet.)
- Da jedoch nur die Positronen, die durch die Bohrung in den Moderator eindringen, in den Strahlengang des Mikroskops gelenkt werden können, muß die gesamte Quelle über und sehr nahe vor der Bohrung positioniert werden. Somit darf diese nur eine recht kleine räumliche Ausdehnung ( $< 300\ \mu\text{m}$ )

besitzen. (Die zur Zeit eingebaute Quelle besitzt einen Quelldurchmesser von  $300\ \mu\text{m}$ .)

- Da die geometrischen Abmessungen der Quelle trotz hoher Gesamtaktivität klein bleiben sollen, ist eine hohe Leuchtstärke gefordert. Die Absorption im inaktiven Quellmaterial reduzierte bisher erheblich die Leuchtstärke. Um eine Quelle mit hoher spezifischer Aktivität (Leuchtstärke) herstellen zu können, benötigt man trägerfreies Ausgangsmaterial. Dies war bisher als  $^{22}\text{Na}$  nicht in befriedigender Qualität zu beschaffen.
- Die Halbwertszeit des verwendeten Isotops soll möglichst groß sein, um die Intervalle zwischen den erforderlichen Quellwechseln groß zu halten.
- Die Verzweigungsverhältnisse sollen für eine hohe Positronenausbeute günstig sein.
- Die  $\beta$ -Energie der beim Zerfall entstehenden Positronen muß möglichst gering sein, um so eine geringe Implantationstiefe im Moderator zu gewährleisten.

$^{22}\text{Na}$  ist aufgrund einer Halbwertszeit von 2,6 Jahren, einem Intensitätsmaximum der emittierten Positronen bei 220 keV Energie und eines Zerfalls zu 90% in Positronen der für die Bonner Positronenmikrosonde am besten geeignete Positronenstrahler. Ziel dieser Arbeit war nun die Produktion von trägerfreiem Ausgangsmaterial, welches dann auf einen Quelldurchmesser von 200-300  $\mu\text{m}$  eingetrocknet werden sollte.

# Kapitel 3

## Das Material für eine neue Quelle

Die für Annihilationsuntersuchungen in einer Mikrosonde benötigten Positronen können auf unterschiedliche Weise hergestellt werden. Hochintensive Positronenstrahler mit Flüßen bis zu  $1,8 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  [A<sup>+</sup>94] können durch Neutronenbestrahlung eines geeigneten Targetmaterials an einem Reaktor (z.B.  $^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$  [L<sup>+</sup>85]) oder durch Paarproduktion (z.B. an einem LINAC [H<sup>+</sup>82]) erzeugt werden. Da diese Positronen direkt von der Erzeugung zum experimentellen Aufbau geleitet werden, sind solche Untersuchungen nur mit einem hohen Aufwand an Infrastruktur (LINAC, Reaktor) und nur während des Strahlbetriebs durchführbar.

Für den Einsatz in einem Laborgerät geeignet sind hingegen Positronenquellen aus dem  $\beta^+$ -Zerfall künstlich erzeugter Nuklide. Solche Positronenstrahler können oft durch geeignete Kernreaktionen an einem Zyklotron hergestellt werden. In Tabelle 3.1 sind verschiedene positronenemittierende Isotope aufgeführt. Aufgrund der in Kapitel 2 erläuterten Anforderungen (lange Halbwertszeit, „hohe“ Positronenausbeute, geringe maximale  $\beta$ -Energie) wird in der Bonner Positronenmikrosonde  $^{22}\text{Na}$  Cl als Positronenquelle verwendet.

### 3.1 Wege zur Produktion von $^{22}\text{Na}$

In der Literatur lasen sich eine Reihe von bisher durchgeführten Reaktionen zur Herstellung von  $^{22}\text{Na}$  finden :

- Die  $^{19}\text{F}(\alpha,n)^{22}\text{Na}$ -Reaktion bei Bestrahlung von Fluor enthaltenden Targets mit  $\alpha$ -Teilchen im Energiebereich von 4-14 MeV [N<sup>+</sup>84, ABD87].
- Der  $^{23}\text{Na}(p,pn)$ -Prozeß mit natürlichem Natrium. Hierbei ist jedoch eine

Isotop	$e^+$ pro Zerfall [%]	max. $e^+$ - Energie [keV]	$T_{1/2}$
$^{18}\text{F}$	97	640	109m
$^{22}\text{Na}$	90	545	2,6y
$^{48}\text{V}$	50	696	16d
$^{58}\text{Co}$	15	470	71,3d
$^{64}\text{Cu}$	19	573	12,8h
$^{68}\text{Ge} \rightarrow ^{68}\text{Ga}$	88	1900	275d
$^{74}\text{As}$	29,5	1500	17,7d

Tabelle 3.1: Häufig verwendete Positronenemitter. Angegeben sind der prozentuale Anteil der  $e^+$  am Zerfall, die maximalen Positronenenergien im  $\beta^+$ -Spektrum und die Halbwertszeit  $T_{1/2}$  [LHP78]

erhebliche Kontamination des  $^{22}\text{Na}$  durch das Targetmaterial  $^{23}\text{Na}$  zu erwarten. Auf chemischem Weg sind die beiden Isotope anschließend nicht mehr zu trennen [ISS<sup>+</sup>91, Dmi86].

- Bestrahlung von natürlichem Magnesium mit Protonen. Die  $^{25}\text{Mg}(p,\alpha)^{22}\text{Na}$ - und die  $^{26}\text{Mg}(p,\alpha n)^{22}\text{Na}$ - Reaktionen führen im Energiebereich von 10-400 MeV zum gewünschten Ergebnis [ISS<sup>+</sup>91].
- Lenkt man Deuteronen im Energiebereich von 5-26 MeV auf natürliches Magnesium, so erzeugt  $^{24}\text{Mg}(d,\alpha)$ ,  $^{25}\text{Mg}(d,\alpha n)$  und  $^{26}\text{Mg}(d,\alpha 2n)$   $^{22}\text{Na}$  in größerem Umfang [Dmi86, RS<sup>+</sup>69]. Allerdings wird hierbei gleichzeitig  $^{23}\text{Na}$  in größeren Mengen produziert.
- Die  $^{27}\text{Al}(p,p\alpha n)^{22}\text{Na}$ -Reaktion hat eine Energieschwelle von 30MeV und besitzt bis 70 MeV einen guten Wirkungsquerschnitt [SM90]. Darüberhinaus besitzt die  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$ -Reaktion bei Energien über 300MeV einen ziemlich hohen Wirkungsquerschnitt [B<sup>+</sup>95].
- Bestrahlt man natürliches Neon mit  $\alpha$ -Teilchen, so erzeugt  $^{20}\text{Ne}(\alpha,2n)^{22}\text{Mg} \rightarrow ^{22}\text{Na}$ ,  $^{20}\text{Ne}(\alpha,d)^{22}\text{Na}$  und  $^{20}\text{Ne}(\alpha,np)^{22}\text{Na}$  ebenfalls  $^{22}\text{Na}$  [BSS94]. Der Ertrag dieser Reaktionen ist jedoch vergleichsweise gering (siehe Tab. 3.2).
- Schließlich gibt es noch 2 Arbeiten über den  $^{22}\text{Ne}(p,n)^{22}\text{Na}$  Übergang. Die Schwellenenergie dieser Reaktion beträgt 3,8 MeV [SSH89] und der Wirkungsquerschnitt liegt hier im Bereich von 6-15 MeV deutlich über 100mbarn [QTT96].

Zur kommerziellen Produktion werden die Reaktionen mit Aluminium und Magnesium genutzt. Dabei wird zum Beispiel parasitär eine Aluminiumscheibe in den beam dump eines großen Beschleunigers eingebracht. Diese wird über Monate hinweg mit einigen mA bestrahlt. Das erzeugte  $^{22}\text{Na}$  wird dann auf chemischem Weg herausgelöst und weiterverarbeitet. Ein großer Nachteil bei diesem Prozeß ist die geringe Reinheit des letztendlich verfügbaren  $^{22}\text{Na}$  [M<sup>+</sup>88].

Außer  $^{22}\text{Na}$  entstehen bei der Bestrahlung eine Reihe weiterer Reaktionsprodukte (unter anderem auch  $^{23}\text{Na}$ ) und im dann folgenden, recht aufwendigen, chemischen Prozeß werden weitere Verunreinigungen eingebracht. Weil die Trägerfreiheit aber bei den meisten Positronenanwendungen keine so entscheidende Rolle spielt, kann auf diese Weise kostengünstig  $^{22}\text{Na}$  in größeren Mengen produziert werden. Das Material der bisher verwendeten Quelle wurde auf diesem Weg hergestellt und besitzt eine spezifische Aktivität von 100 mCi/mg NaCl. Dies ist verglichen mit den möglichen 6300 mCi/mg für reines  $^{22}\text{NaCl}$  sehr wenig.

Bei den Proton-induzierten Reaktionen mit Magnesium benötigt man angereichertes Magnesium. Gleichzeitig wird  $^{23}\text{Na}$  erzeugt. Zudem stellt auch hier das aufwendige chemische Separationsverfahren eine Quelle weiterer möglicher Verunreinigungen dar.

Das bei Reaktionen mit Fluor entstehende  $^{22}\text{Na}$  liegt nach der Bestrahlung als NaF vor. Die Extraktion aus dem Target und anschließende Verarbeitung zu einer punktförmigen Quelle erfordern größeren chemischen Aufwand (NaF ist außerdem stark hygroskopisch). Der Umgang mit Fluortargets ist zudem recht kritisch und der Ertrag an  $^{22}\text{Na}$  pro  $\mu\text{Ah}$  Strahlstrom ist gering.

In Tabelle 3.2 ist ein Vergleich der verschiedenen Produktionsmöglichkeiten von  $^{22}\text{Na}$  aufgeführt.

Für unsere Anwendung entscheidend ist die Reinheit des erzeugten  $^{22}\text{Na}$ . Daher muß die Aktivität auf einfache Art und Weise aus der Kammer zu separieren sein, ohne unnötige Verunreinigungen auf dem chemischen Verfahrensweg einzubringen. Weiterhin soll bei der Bestrahlung möglichst wenig  $^{23}\text{Na}$  simultan erzeugt werden, weil sich dieses auf chemischem Weg nicht mehr vom aktiven  $^{22}\text{Na}$  trennen läßt und eine nachträglich nicht mehr zu entfernende Kontamination darstellt.

Die  $^{22}\text{Ne}(\text{p},\text{n})^{22}\text{Na}$ -Reaktion erscheint aufgrund dieser Anforderungen am besten geeignet. Das Edelgas Neon geht mit dem erzeugten Natrium keinerlei stabile Verbindungen ein. Reaktives Natrium kann daher leicht durch das inerte Neon

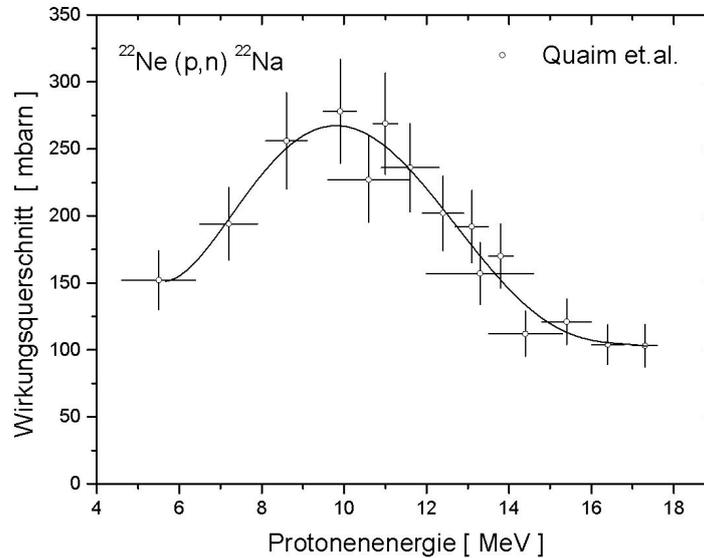
Reaktion	Energiebereich [MeV]	Ausbeute [ $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ ]
$^{19}\text{F}(\alpha, \text{n})$	14 $\rightarrow$ 4	0,59
$^{nat}\text{Ne}(\alpha, \text{x})$	27 $\rightarrow$ 16	0,68
$^{22}\text{Ne}(\text{p}, \text{n})$	15 $\rightarrow$ 6	8,2
$^{23}\text{Na}(\text{p}, \text{x})$	70 $\rightarrow$ 15	59
$^{23}\text{Na}(\text{d}, \text{x})$	22 $\rightarrow$ 10	0,81
$^{nat}\text{Mg}(\text{p}, \text{x})$	400 $\rightarrow$ 300	140
	70 $\rightarrow$ 100	31,5
$^{nat}\text{Mg}(\text{d}, \text{x})$	26 $\rightarrow$ 5	5,2
$^{27}\text{Al}(\text{p}, \text{x})$	600 $\rightarrow$ 400	171
	70 $\rightarrow$ 25	14,6

Tabelle 3.2: Vergleich der verschiedenen Verfahren zur Herstellung von  $^{22}\text{Na}$  [QTT96]. Angegeben ist der jeweils betrachtete Energiebereich, in dem die Produktionsrate pro  $\mu\text{Ah}$  berechnet wurde.

zu den Targetwänden diffundieren und sich dort niederschlagen. Das erzeugte  $^{22}\text{Na}$  läßt sich von hier leicht wieder ablösen [SSH89].

Weiterhin ist die Erzeugung von  $^{23}\text{Na}$  stark unterdrückt, weil es nur über die  $^{22}\text{Ne}(\text{p}, \gamma)$  Reaktion erzeugt werden kann. Diese ist aus Gründen der Impulserhaltung gegenüber der  $^{22}\text{Ne}(\text{p}, \text{n})$  Umwandlung stark benachteiligt und hat einen viel kleineren Wirkungsquerschnitt [LB74].

Der Ertrag an  $^{22}\text{Na}/\mu\text{Ah}$  ist bei der  $^{22}\text{Ne}(\text{p}, \text{n})^{22}\text{Na}$ -Reaktion zudem relativ groß, so daß in kurzer Zeit ausreichende Mengen an Aktivität erzeugt werden können. Daher wurde diese Reaktion gewählt.

Abbildung 3.1: Anregungsfunktion der  $^{22}\text{Ne}(p,n)^{22}\text{Na}$  Reaktion

### 3.2 Die $^{22}\text{Ne}(p,n)^{22}\text{Na}$ -Reaktion

Die  $^{22}\text{Ne}(p,n)^{22}\text{Na}$ -Reaktion hat eine Schwellenenergie von 3,8 MeV und einen maximalen Wirkungsquerschnitt von 278 mbarn bei 10 MeV. Das Bonner Zyklotron kann Protonen bis auf 14,5 MeV bei ausreichendem Strahlstrom beschleunigen. Die Produktion des  $^{22}\text{Na}$  ist daher am Institut für Strahlen- und Kernphysik (ISKP) durchführbar.

In Abbildung 3.1 ist der Wirkungsquerschnitt der  $^{22}\text{Ne}(p,n)^{22}\text{Na}$  Reaktion dargestellt. Er wurde zuerst 1989 von Saam [SSH89] bei 3 verschiedenen Energien und 1995 von Quaim [QTT96] bei 15 weiteren Energien vermessen. Die Ausbeute an  $^{22}\text{Na}$  pro  $\mu\text{Ah}$  lässt sich anhand des Wirkungsquerschnitts mit folgender Formel berechnen:

$$N_R(E_p) = \int_{E_{th}}^{E_p} \frac{\sigma(E) Qn}{dE/dx} dE \quad (3.1)$$

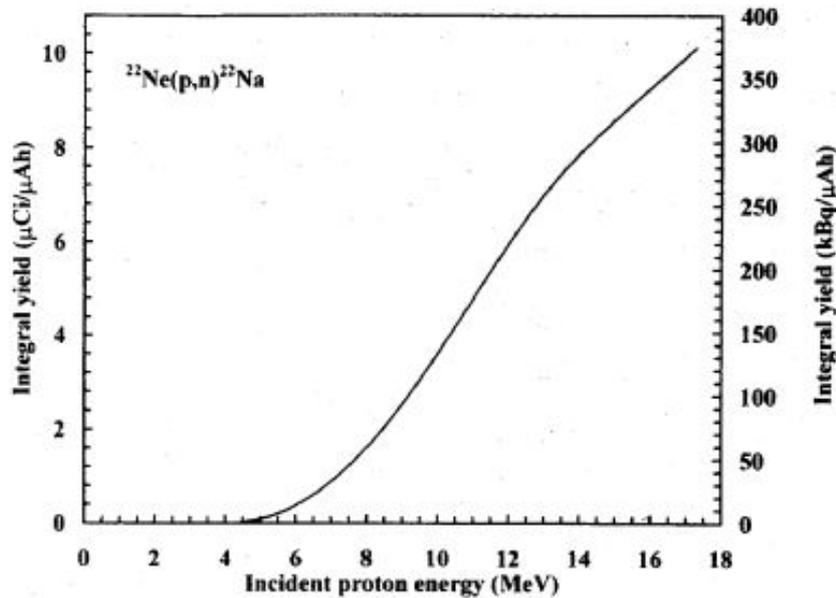


Abbildung 3.2: Aus der Anregungsfunktion (Abb.3.1) berechneter Ertrag an  $^{22}\text{Na}/\mu\text{Ah}$  (aus [QTT96])

mit  $N_R$  : Erzeugte Anzahl von  $^{22}\text{Na}$  Atomen  
 $\sigma(E)$  : Wirkungsquerschnitt  
 $n = \frac{\rho N_A}{M}$ , Teilchenzahldichte des  $^{22}\text{Ne}$   
 $Q$  : integrierte Anzahl von Protonen  
 $E_p$  : Protonenenergie  
 $E_{Th}$  : Schwellenenergie

In Abbildung 3.2 ist das Ergebnis dieser von Quaim [QTT96] durchgeführten Rechnung graphisch dargestellt. Mit einer Protonenenergie von 14 MeV im Target erzeugt man eine Aktivität von ungefähr  $7,5 \mu\text{Ci}$   $^{22}\text{Na}$  pro  $\mu\text{Ah}$  Strahlstrom.

Quaim und Saam benutzten zur Bestimmung des Wirkungsquerschnittes gasförmiges, natürliches Neon ( 90,5%  $^{20}\text{Ne}$ , 0,5%  $^{21}\text{Ne}$ , 9,2%  $^{22}\text{Ne}$  ) und extrapolierten die Daten auf 100% angereichertes  $^{22}\text{Ne}$ . Die Reaktionen von  $^{20}\text{Ne}$  und  $^{21}\text{Ne}$  liefern nur einen vernachlässigbaren Anteil an  $^{22}\text{Na}$ .

# Kapitel 4

## Das Neontarget

Aus den in Kapitel 3 berechneten Produktionsraten wird deutlich, daß nur unter Verwendung von isotonenangereichertem  $^{22}\text{Ne}$  akzeptable Mengen an Aktivität ( $\approx 1,5\mu\text{Ci}$ ) in endlicher Strahlzeit ( $\approx 200$  Stunden) erzeugt werden können.

Das Neon wurde anders als bei Saam [SSH89] und Quaim [QTT96] in flüssiger Form bei Temperaturen um 25 K bestrahlt. Dadurch war das Target sehr viel kleiner als bei Verwendung von gasförmigem Neon und man umging einige weitere für gasförmige Targets übliche Nachteile:

- Die geringe Dichte von Gasen führt zu sehr langen Reichweiten der Protonen. Quaim verwendete 5 Kammern mit jeweils 2,5 cm Länge, Saam eine Kammer mit 20 cm. Bei diesen Laufstrecken macht sich die Strahlaufweitung deutlich bemerkbar, so daß entweder von Anfang an ein großer Kammerdurchmesser oder ein trapezförmiger Targetquerschnitt gewählt werden muß.
- Die lokale Verringerung der Dichte, bedingt durch das Aufheizen des Gases durch den Strahl, begrenzt bei gegebener Targetlänge den maximalen Strahlstrom. So konnte Quaim nur mit 100-200 nA einstrahlen.
- Aufgrund der schlechten Wärmeleitungseigenschaften von Gasen ist bei den meisten Gastargets eine zusätzliche Kühlung des Einschufensfensters notwendig. Diese entfällt bei dem hier verwendeten Target.

Bei einem flüssigen Neontarget können Protonen auf einer Länge von 6mm problemlos auch bei höheren Strahlströmen bis unter die Schwellenenergie abgebremst werden. Dadurch ist das erzeugte  $^{22}\text{Na}$  nach der Bestrahlung auf einer sehr viel kleineren Targetoberfläche verteilt. Das Herauslösen der Aktivität durch

Auswaschen erfordert erheblich geringere Mengen an Flüssigkeit und es werden somit weniger Verunreinigungen in das  $^{22}\text{Na}$  eingeschleust.

## 4.1 Einige Eigenschaften von Neon

### 4.1.1 Thermodynamische Größen

In Tabelle 4.1 sind die für die Auslegung der Kammer relevanten Eigenschaften von Neon aufgeführt.

Siedepunkt bei 1013,25 hPa	27,1 K
Dichte der Flüssigkeit (27,1 K)	1,21 g/cm <sup>3</sup>
Verhältnis von Dampf zu Flüssigkeitsdichte	126
Thermische Leitfähigkeit der Flüssigkeit	113 $\frac{\text{W}}{\text{m}\cdot\text{K}}$
1 cm <sup>3</sup> Flüssigkeit (27,1 K) ergibt Gasvolumen bei 288 K	1412 cm <sup>3</sup>

Tabelle 4.1: Einige Eigenschaften von Neon bei 27,1 K unter 1013,25 hPa  
(aus [Han86])

Die thermische Leitfähigkeit des flüssigen Neons ermöglicht eine Wärmeabfuhr von 13 W bei einem Kammerdurchmesser von 5 mm, einer Kammerlänge von 6 mm und einem Temperaturgradienten von 3 K von der Mitte zum Rand. Dies setzt allerdings eine homogene Energiedeposition des Protonenstrahls im Target voraus. Durch den turbulenten Wärmeaustausch wird noch etwa 5 mal so viel Wärme an die Targetwände transportiert.

Das Sieden des gesamten Kammerinhaltes aufgrund zu schlechter Wärmeleitung ist daher auszuschließen.

Das Verhältnis von Dampf zu Flüssigkeitsdichte bei 1013,25 hPa (Faktor 126) geht in die Auslegung der Gesamtlänge der Strahlkammer mit ein. Man kann die Reichweite von Protonen in flüssigem Neon mit homogener Dichte gut bestimmen. Durch die hohe lokale Energiedeposition des Protonenstrahls bilden sich jedoch aller Wahrscheinlichkeit nach einzelne Dampfblasen im Target. Die Dichte in diesen Blasen ist dann unter Normaldruck um den Faktor 126 geringer. Erhöht man im Strahlbetrieb allerdings den Druck auf z.B. 20 bar, so ist die Dichte in den Dampfblasen nur noch um den Faktor 6 kleiner. So läßt sich die Reichweite der Protonen in einem durchgehenden „Dampfkanal“ abschätzen. Eine ununterbrochene „Bläschenspur“ erscheint aufgrund der auftretenden

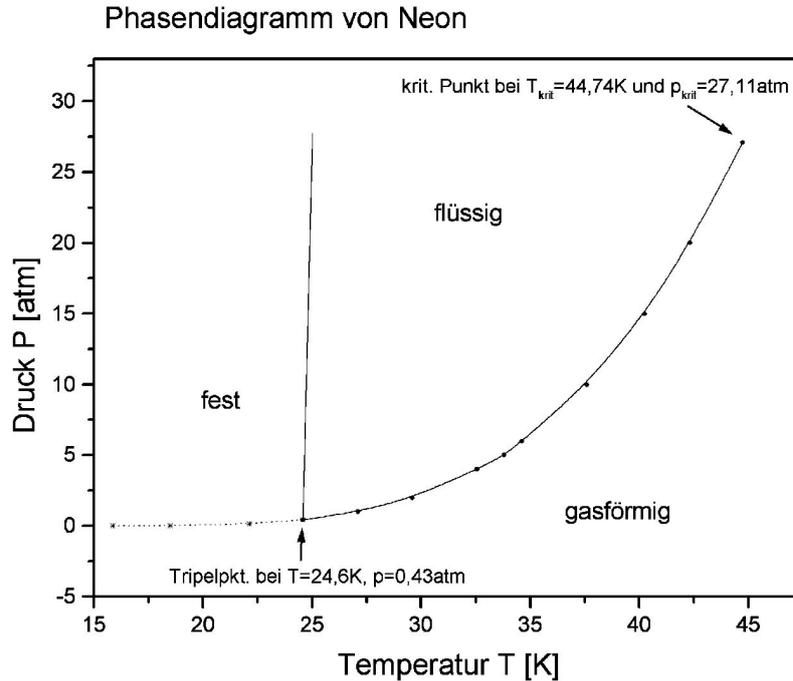


Abbildung 4.1: Dampf- und Sublimationsdruckkurve von Neon (aus [GS61]). Angegeben sind auch der kritische Punkt und der Tripelpunkt

Turbulenz wiederum sehr unwahrscheinlich.

Die Ausdehnung um den Faktor 1412 bei Erwärmen der Flüssigkeit auf Zimmertemperatur ist für die Berechnung der benötigten Gasmenge an  $^{22}\text{Ne}$  ( $\approx 200\text{ cm}^3$ , siehe Abschn. 4.2) und für sicherheitstechnische Aspekte relevant. Bei Ausfall der Kühlung muß die gesamte Gasmenge in einer Überdrucksicherung aufgefangen werden.

Abbildung 4.1 zeigt das Phasendiagramm von Neon. In einem Temperaturbereich von 24,5 bis 44,7 K ist die Bestrahlung von flüssigem Neon unter Drücken von 0,4 bis 27,5 bar möglich. Das Einfrieren des Targets sollte vermieden werden, weil so der Transport von Wärme durch Turbulenz unterbunden wird. Zudem erschwert eingefrorenes Neon die Diffusion der erzeugten  $^{22}\text{Na}$ -Atome an die Innenwände.

#### 4.1.2 Reichweite von Protonen in $^{22}\text{Ne}$

Die Gesamtlänge des flüssigen Neontargets wurde so gewählt, daß die Protonen mindestens bis unter die Schwellenenergie von 3,6 MeV abgebremst werden. Die

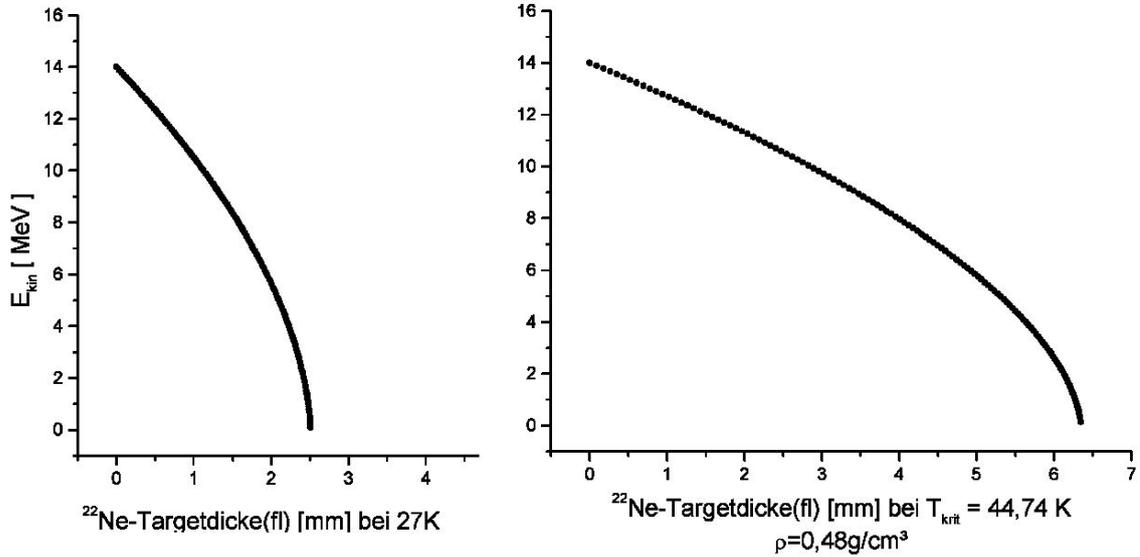


Abbildung 4.2: Berechnete Eindringtiefe von Protonen in flüssigem Neon bei  $p=1\text{atm}$ ,  $T=27\text{K}$  und  $p_{krit}$ ,  $T_{krit}$

Reichweite der Protonen wurde nach [H<sup>+</sup>90]

$$-\frac{dE}{dx} = 4\pi N_A r_e^2 m_e c^2 z^2 \frac{Z}{A} \frac{1}{\beta} \left[ \ln\left(\frac{2m_e c^2 \gamma^2 \beta^2}{I}\right) - \beta^2 \right] \quad (4.1)$$

mit  $N_A$  : Avogadrokonstante  
 $r_e$  : klass. Elektronenradius  
 $m_e c^2$  : Ruhemasse des Elektrons  
 $z$  : Ladung der einfallenden Ionen  
 $Z$  : Kernladungszahl des Targets  
 $A$  : Massenzahl  
 $I$  : Ionisationskonstante ( $I \approx Z^{0,9} eV$ )

mit dem Programm „beblo“ [Sch] berechnet. Ein Vergleich mit [Zie80] bestätigte diese Rechnung. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.2 dargestellt. Bei der Dichte des flüssigen Neons von  $1,2\text{g/cm}^3$  bei  $27\text{K}$  konnte für Protonen eine Reichweite von  $2,5\text{mm}$  abgeschätzt werden. Unter kritischen Bedingungen ( $T=45\text{K}$ ,  $\rho=0,48\text{g/cm}^3$ ) würde der Strahl eine Eindringtiefe von  $6,5\text{mm}$  erreichen.

## 4.2 Der Kammeraufbau

Das Neon wurde vor Beginn einer Strahlzeit auf  $25\text{K}$  gekühlt. Der einfallende Protonenstrahl heizt dann das Target auf und erhöht den Kammerdruck.

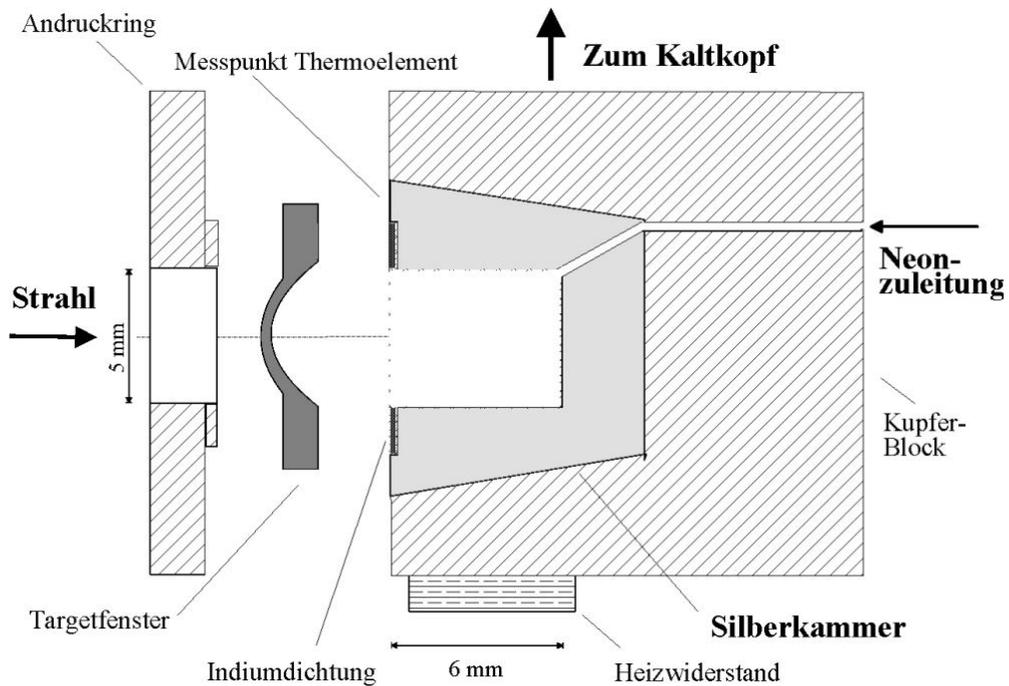


Abbildung 4.3: Schematische Ansicht der Targetkammer

Abschätzungen ergaben, daß durch Blasenbildung über den gesamten Strahlverlauf maximal kritische Bedingungen erreicht werden. Somit muß die Gesamtlänge des Targets mindestens 6 mm betragen.

Nach Einschätzung der Zyklotronoperateure ist am gewählten Strahlplatz 3 (siehe Abb.?) ein Strahldurchmesser von ca. 4 mm realisierbar. Daher wurde ein Kammerdurchmesser von 5 mm gewählt, um etwas Abstand zu den Wänden einzuhalten. Somit waren die geometrischen Kammerabmessungen festgelegt. Das Volumen der Strahlkammer betrug  $0,13 \text{ cm}^3$  und es wurde daher etwa  $200 \text{ cm}^3$  an gasförmigem  $^{22}\text{Ne}$  unter Normalbedingungen benötigt.

Als Kammermaterial wurde Silber verwendet. Es besitzt eine sehr gute Wärmeleitfähigkeit und ist zudem chemisch resistent gegenüber Salzsäure. Das gewonnene  $^{22}\text{Na}$  soll nach der Bestrahlung zunächst mit ultrareinem Wasser als NaOH aus der Kammer ausgewaschen werden. Das dann noch verbleibende  $^{22}\text{Na}$  kann mit wässriger Salzsäure herausgelöst werden.

Abbildung 4.3 zeigt den Aufbau der Strahlkammer. Diese besteht aus einem

konischen Silberrundmaterial, in welches ein Sackloch mit 5 mm Durchmesser eingefräst ist. Das nicht gezeigte Einschußfenster wird über einen Edelstahl-andruckring gegen die Indiumdichtung gepreßt. Indium ist wegen der tiefen Temperaturen als Dichtungsmaterial unersetzlich. Das in die Silberkammer hart eingelötete Edelstahlröhrchen ist mit einer nach außen führenden Kupferzuleitung verbunden. Aufgrund der schlechten Wärmeleitungseigenschaften von Edelstahl erzeugt man in der Nähe der Targetkammer einen gewollten Temperaturgradienten, welcher ein Zufrieren der Zuleitung verhindern soll.

Der das weich eingelötete Silberdrehteil enthaltende Kupferblock ist mit der Kühlung verschraubt. An diesem Kupferblock sind zwei Heizwiderstände und ein Thermoelement zur Messung und Regelung der Temperatur angebracht.

### 4.3 Das Targetfenster

Ein besonderes Augenmerk galt der Entwicklung des Einschußfensters. Diesem Bauteil sollte später eine wichtige Bedeutung zukommen. An ein Targetfenster werden folgende Anforderungen gestellt:

- Im Fenster selbst soll möglichst wenig Strahlenergie absorbiert werden. Das Fenstermaterial darf also eine nicht zu große Kernladungszahl haben und muß möglichst dünn gebaut sein.
- Der Betriebsdruck des Targets wurde mit maximal 40 bar angesetzt. Beim Ein- und Ausschalten des Strahlstromes waren zudem große Druckschwankungen zu erwarten. Daher wurde eine große Zugfestigkeit bei guter Dauerbelastbarkeit vom Fenstermaterial gefordert.
- Die Aktivierung durch den Strahl soll möglichst gering sein. Da ein Dauereinsatz über mehrere Wochen hinweg geplant war, können sonst beträchtliche Mengen an Aktivität erzeugt werden. Diese erschweren den Ausbau des Fensters nach der Strahlzeit unnötig.

Es wurden umfangreiche Vorversuche zur Auswahl eines geeigneten Werkstoffes für das Targetfenster unternommen. Hierfür wurde eine Drucktesteinrichtung gebaut. Mittels eines Kolbens wird Wasser in einem Zylinder komprimiert und auf die zu testende Folie gedrückt (Abb. 4.4). Die Verwendung von Wasser als Druckübertragungsmedium hat gegenüber Gasen den Vorteil, daß in Wasser quasi keine Energie in Form von Kompressionsarbeit gespeichert wird. Bei Gasen wird diese Energie bei Zerreißen der Folie schlagartig frei.

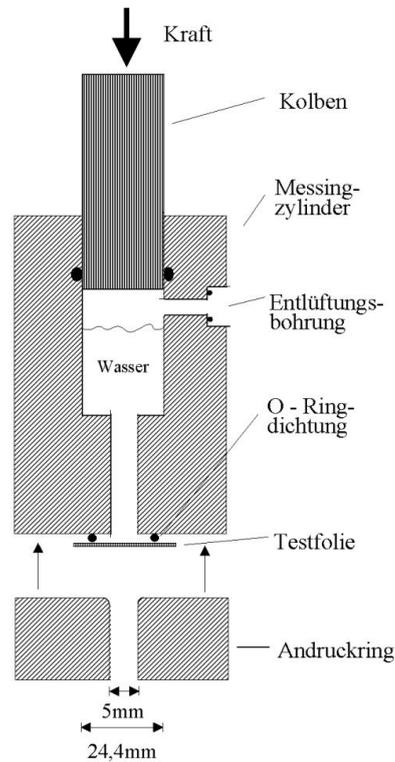


Abbildung 4.4: Die Drucktesteinrichtung: Mit einer Hydraulikpresse wird der Kolben heruntergedrückt. Das Wasser überträgt den Druck auf die Folie, welche von dem Andruckring gegen die O-Ring-Dichtung gepreßt wird. Die Entlüftungsbohrung ermöglicht das Ablassen von Luft vor dem Drucktest.

Mit der gemessenen maximalen Kraft (Hydraulikpresse) auf den Kolben und der Querschnittsfläche kann dann der jeweilige Berstdruck der verschiedenen Folien bestimmt werden. Dieser kann auch theoretisch gemäß

$$p_{max} = \frac{d \cdot 2 \cdot s_r}{r} \quad \begin{array}{l} d: \text{Foliendicke} \\ s_r: \text{Zugfestigkeit} \\ r: \text{Hauptkrümmungsradius} \end{array} \quad (4.2)$$

abgeschätzt werden [HO76]. Schwierig gestaltet sich in Formel 4.2 die Bestimmung des Hauptkrümmungsradius. Man kann annehmen, daß dieser in der Größenordnung der Targetöffnung liegt.

Die wichtigste Erkenntnis aus 4.2 ist, daß der Zerreißdruck einer Folie der Foliendicke und der Zugfestigkeit des verwendeten Materials direkt proportional ist. Tabelle 4.2 gibt die Zerreißfestigkeiten einiger als Fenstermaterial in Frage kom-

mender Werkstoffe wieder.

Material	Zugfestigkeit [M Pa]
Aluminium W6 (99,9%,weich)	50-95
Aluminium F15 (99,9%,hart)	150-190
Aluminium F53 ( AlZnMgCu1,5)	530
Titan (geglüht)	230-460
Ti90Al16V4	1034-1410
Stahl 34Cr4	900-1100

Tabelle 4.2: Zugfestigkeiten verschiedener Fenstermaterialien

Die Tests begannen mit Folien aus gewalztem Reinstaluminium. Dieses Material ist in (fast) beliebigen Dicken erhältlich und die Aktivierung von längerlebigen Folgeprodukten ist äußerst gering. Es wurde bei Überlastung ein Aufreißen der Folie von der Mitte her beobachtet. Der Nachteil von Reinstaluminium ist dessen geringe Zugfestigkeit. Eine  $200\ \mu\text{m}$  starke Folie zerriß bereits bei 110 bar, wobei bei dieser Dicke schon 10% der Strahlenergie ( $\approx 1,5\ \text{MeV}$ ) im Fenster absorbiert würden.

Um eine größere Druckbelastbarkeit bei geringerer Foliendicke zu erreichen, wurden darauf jeweils mehrere Stahlfolien in 50 und  $100\ \mu\text{m}$  Dicke untersucht. Diese hielten reproduzierbar einem Druck von maximal 160 bzw. 430 bar stand. Auch hier wurde das Aufreißen von der Mitte her beobachtet (Abb. 4.6 a). Der Energieverlust ist mit 1 bzw. 2 MeV gerade noch akzeptabel, jedoch werden Stahlfolien sehr stark aktiviert. So hat zum Beispiel die Reaktion  $^{56}\text{Fe} (p,n) ^{56}\text{Co}$  im Bereich von 10-15 MeV einen Wirkungsquerschnitt von 400 mbarn. Die Halbwertszeit von  $^{56}\text{Co}$  beträgt 78,8 d. Die Aktivität des Fenstermaterials läge nach der Bestrahlung in der Größenordnung der an  $^{22}\text{Na}$  erzeugten.

Bei den Titan- bzw. TiAlV- Folien sind ähnliche Aktivierungen über  $^{48}\text{Ti} (p,n) ^{48}\text{V}$  zu erwarten. Daher wurden sie nicht in die Tests mit einbezogen.

Die hochfeste Aluminium-Legierung F53 ist nur in Platten ab 3 mm Stärke erhältlich. Daher wurden diese auf  $100\ \mu\text{m}$  heruntergefräst. Die Druckversuche

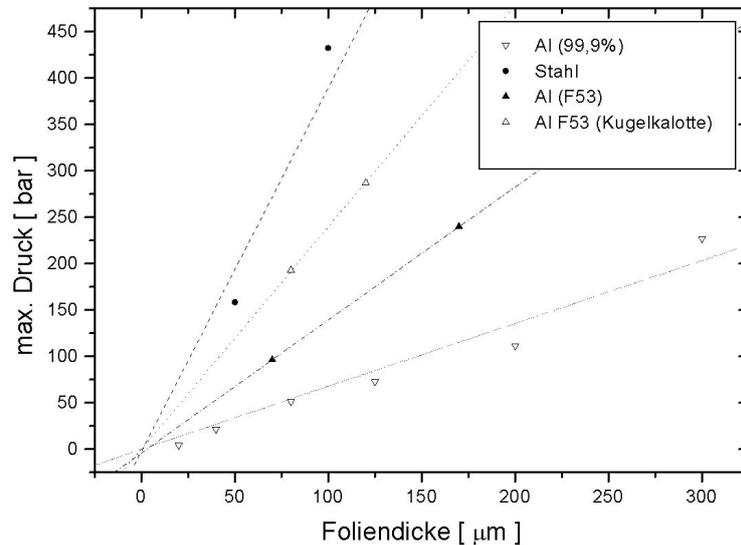


Abbildung 4.5: Vergleich der verschiedenen Fenstermaterialien: Gezeigt ist der maximale Druck vor Reiß der Probe

zeigten eine doppelt höhere Belastbarkeit gegenüber dem Reinstaluminium. Die Folien rissen jedoch nicht wie gewohnt zuerst in der Mitte ein, sondern brachen am Rand auf (Abb. 4.6 b). Zunächst wurde eine Kerbwirkung des Andruckringes vermutet und daraufhin dessen Kanten noch stärker überrundet. Dies änderte jedoch nichts am Zerreißdruck der Folien. Das Material war zu spröde, konnte nicht in die ideale „parabolische“ Form gebracht werden und brach frühzeitig bei der Verformung im Randbereich.

Abhilfe brachte hier ein „Vorformen“ des F53. In der feinmechanischen Werkstatt gelang es Herrn Eichler, mit der CNC-Fräse eine Kugelkalotte (Kugelradius 10 mm) aus dem Vollmaterial zu fertigen (Abb. 4.6 c,d). Dies brachte eine erhebliche Steigerung in der maximalen Druckbelastbarkeit. Im Außenbereich blieb ein 1 mm starker Rand mit Durchmesser 20 mm stehen, an dem das Targetfenster später eingespannt werden konnte.

Abbildung 4.5 zeigt eine Übersicht aller Drucktests. Erkennbar ist der lineare Zusammenhang zwischen Druck und Foliendicke.



Abbildung 4.6: Ansicht der verschiedenen Folienmaterialien nach den Drucktests. Oben links (a): ebene Stahlfolie mit Riß von der Mitte ausgehend; oben rechts (b): ebene Probe aus F53 gefräst, mit „ausgestanztem“ Fenster; unten (c,d): Kugelkalotte, aus F53 herausgefräst mit eher mittigem Riß (c).

Nach Abschluß aller Drucktests wurde eine Kalotte aus Aluminium F53 in  $100\ \mu\text{m}$  Dicke gewählt, da diese den besten Kompromiß zwischen Haltbarkeit, Aktivierung und Strahlverlusten darstellte. Die in den Strahlzeiten verwendeten Fenster wurden vorher unter Drücken von 110 bar geprüft, um so eventuelle Schädigungen durch die Bearbeitung aufzudecken.

## 4.4 Kühlung des Targets

### 4.4.1 Kälteerzeugung

Um das Neon während der Strahlzeit ununterbrochen auf Temperaturen um 25 K zu halten, sind für diesen Temperaturbereich beachtliche Kühlleistungen nötig.

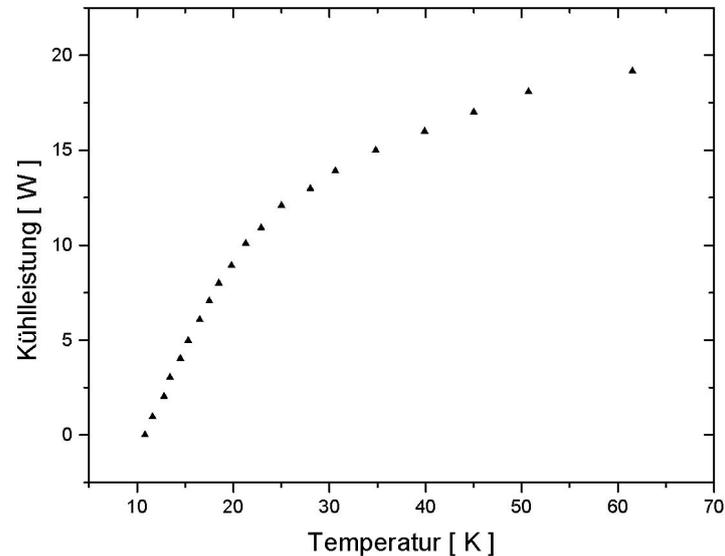


Abbildung 4.7: Kühlleistung des Kaltkopfes unter Experimentbedingungen. Gemessen wurde die Endtemperatur, welche sich bei einer bestimmten elektrischen Heizleistung einstellte. Man erkennt deutlich das Abflachen der Leistungskurve zu höheren Temperaturen hin.

Bei einem angestrebten Strahlstrom von  $1\ \mu\text{A}$  und  $14,5\ \text{MeV}$  Protonenenergie werden bei vollständigem Stoppen des Strahls im Target  $14,5\ \text{W}$  an „Heizleistung“ deponiert. Unter Verwendung von flüssigem Helium als Kühlmittel läge der Verbrauch bei  $20,5\ \text{Liter}$  in der Stunde. Dies ist zum einen unpraktikabel, zum anderen sehr teuer. Bei einer geplanten Strahlzeit von  $200\ \text{h}$  benötigte man  $4100\ \text{l}$  flüssiges Helium.

Daher wurde ein zweistufiger Kaltkopf (RGD 1245 der Fa. Leybold) mit einem geschlossenen Helium-Kreislauf verwendet, welcher nach dem Gifford-McMahon Prinzip [Han86] arbeitet. Für den Betrieb wird so lediglich ein Kühlwasserkreislauf und ein  $3\ \text{kW}$  Stromanschluß benötigt. Als Isoliervakuum genügt ein Druck kleiner  $10^{-3}\ \text{mbar}$ .

Um das Target gegen die Wärmestrahlung der Vakuumwände zu schützen, wurde es mit einigen Lagen Superisolation (Mylar) umwickelt. Die tiefste erreichbare Temperatur lag bei  $10\ \text{K}$ . In Abbildung 4.7 ist eine Leistungskurve des Kaltkopfes unter den Experimentbedingungen dargestellt.

### 4.4.2 Messung und Regelung der Temperatur

Die Temperatur wird mit einem Gold/Eisen Thermoelement gemessen. Zwei Drähte aus Gold und Eisen sind an einem Ende wärmeleitend am Target befestigt und elektrisch miteinander verbunden. Die übrigen beiden Enden befinden sich voneinander isoliert in einer 0°C-Referenzzelle.

Die Thermospannung konnte auf einem Digitalvoltmeter abgelesen werden. Typische Werte für diese Spannung liegen bei etwa 2 mV pro 100 K Temperaturdifferenz. Die Spannung wird zusätzlich in einem Spannungs/Stromwandler verstärkt und an einen PID-Regler weitergeleitet. Dieser steuert ein Netzgerät an, welches zwei am Target befestigte Heizwiderstände mit Strom versorgt. Der Einbau einer Heizung ist aus zwei Gründen sinnvoll. Zum einen ist die Leistung des Kaltkopfes nicht regelbar und das Target würde ohne Strahlstrom innerhalb kürzester Zeit auf 10 K abgekühlen und einfrieren. Zum anderen kann durch die Heizung die Targetkammer bei abgeschaltetem Kaltkopf zu Belüftungszwecken schnell aufgewärmt werden. Abbildung 4.8 zeigt den für die Erzeugung von regelbaren, tiefen Temperaturen relevanten Aufbau.

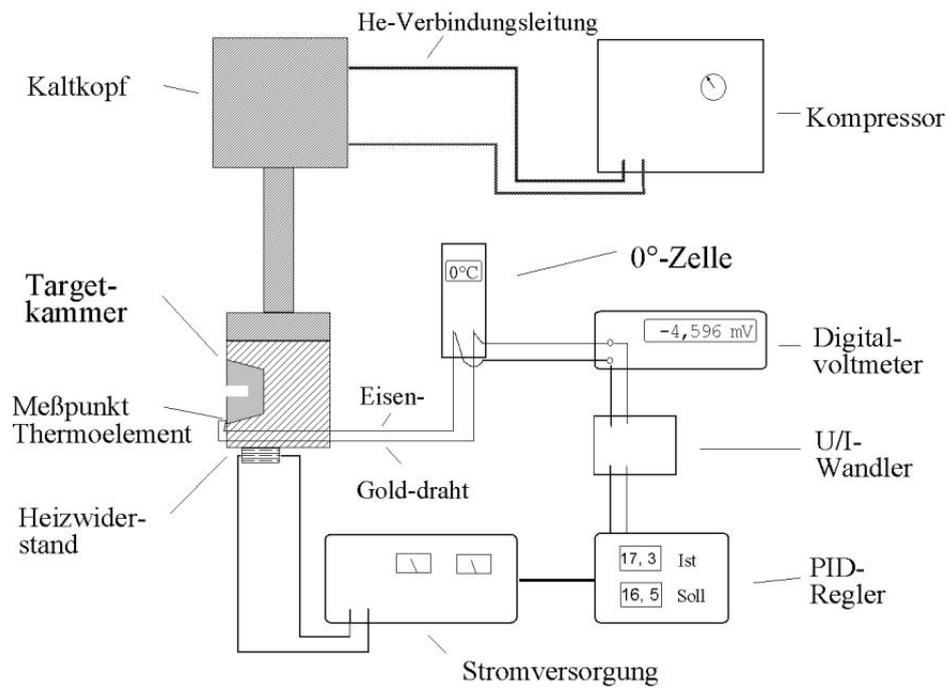


Abbildung 4.8: Schematische Darstellung des Aufbaus zur Erzeugung und Regelung der tiefen Temperaturen. Am System Eisen/Gold-Draht entsteht eine Thermospannung, welche von der 0-Zelle aus über Kupferlitzen weitergeleitet wird.

# Kapitel 5

## Versuchsaufbau

Die Bestrahlung des flüssigen Neontargets fand am Strahlplatz 3 des Zyklotrons im ISKP statt. Abbildung 5.1 zeigt den Versuchsaufbau am Zyklotronstrahlplatz. Die Turbopumpe evakuiert im Strahlbetrieb das T-Stück sowie Teile des Strahlrohrs und sorgt für das Isoliervakuum, wenn das Ventil zum Strahlrohr geschlossen ist.

Mit einer Fernsehkamera kann durch den Plexiglasflansch der direkt vor der Targetöffnung angebrachte Leuchtschirm beobachtet werden. Dieser ist aus Aluminium, hat eine 5 mm große Bohrung in der Mitte und ist mit Zinksulfid als Leuchtstoff bestrichen. Der Strahl kann zur Fokussierung auf den Aluschirm gelenkt werden. Sollte der Strahl während des Betriebs abdriften, so ist er direkt auf dem Leuchtschirm zu sehen.

Eine zweite Fernsehkamera überträgt die Manometeranzeige des Targetdrucks in die Zyklotronwarte. Auf diesem Bild können auch Bewegungen der Überdrucksicherung beobachtet werden. Diese besteht aus einem Zylinder und einem Kolben, welcher durch ein Gewicht beschwert ist. Steigt der Druck im Target über einen bestimmten Wert, wird der Kolben angehoben und das Neon expandiert in den Zylinder. Es stellt sich ein Gleichgewicht zwischen Kraft auf den Kolben und Gasdruck im Zylinder ein. Auf diese Weise kann bei plötzlichem Sieden der gesamte Targetinhalt aufgenommen werden, ohne Neon zu verlieren.

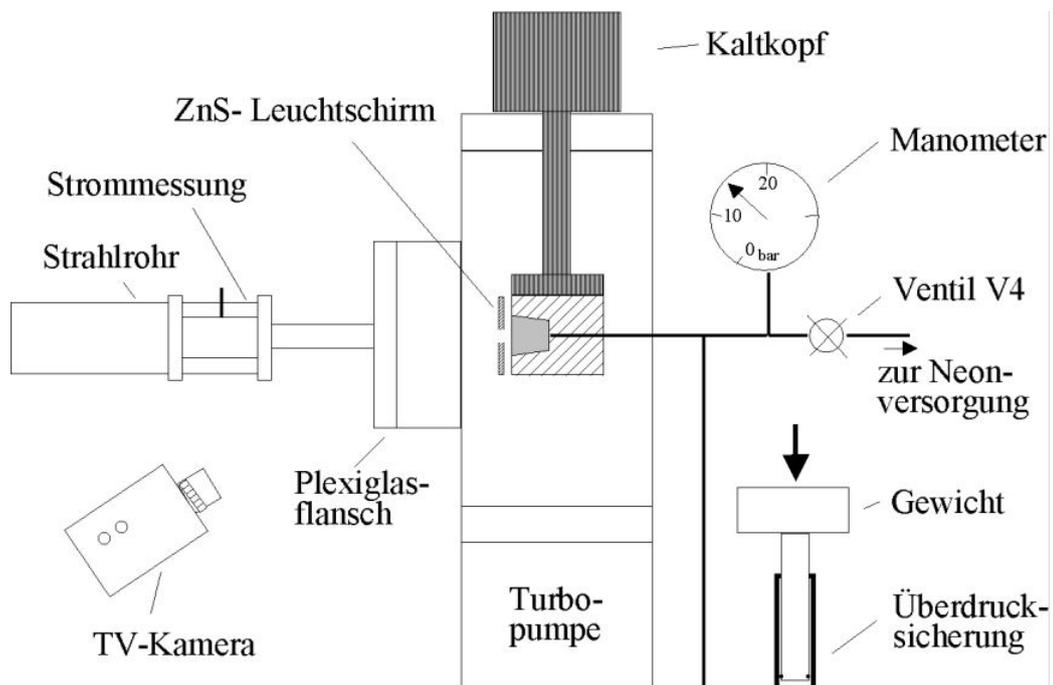


Abbildung 5.1: Versuchsaufbau am Strahlplatz 3. Gezeigt ist das Vakuum-T-Stück, welches an das Strahlrohr angeflanscht wurde. Im Strahlbetrieb bleibt V 4 geschlossen.

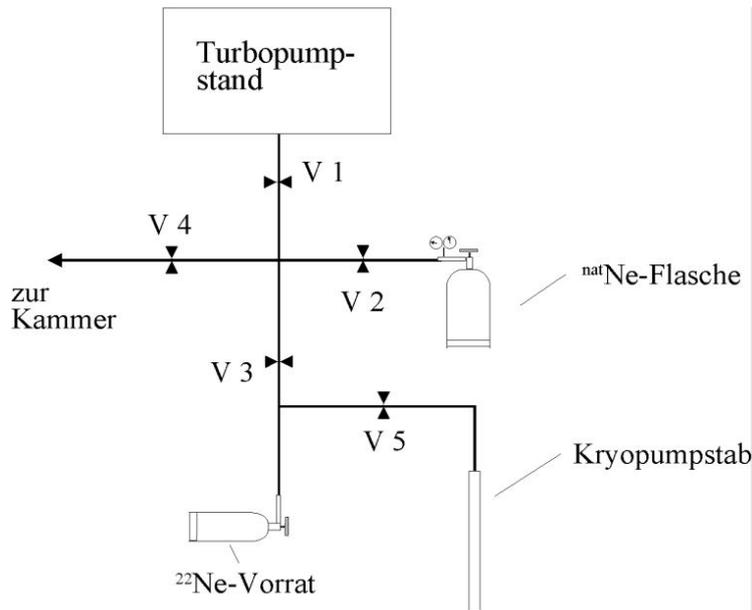


Abbildung 5.2: „Schaltplan“ der Neonleitungen zum Befüllen des Targets. V1 - V5 sind Ventile mit sehr kleinem Totvolumen.

## 5.1 Befüllen des Targets

Das Befüllen und Entleeren des Targets ist über das Ventil V4 möglich. V4 ist an ein System aus Rohrleitungen und Kleinstvolumenventilen angeschlossen. Abbildung 5.2 gibt eine Übersicht der Anordnung. Der Füllvorgang lief folgendermaßen ab:

- Zunächst wurden alle Ventile (bis auf die Flaschenventile der beiden Neonflaschen) geöffnet und das komplette System abgepumpt.
- Dann wurden die Leitungen und die Kammer zwei mal mit natürlichem Neon durchgespült.
- Zur Teststrahlzeit wurden die Ventile V1 und V3 geschlossen und das natürliche Neon konnte durch V2 und V4 in die Kammer gelangen. Dann wurde das Target bei geöffneten Ventilen bis unter den Siedepunkt des Neons abgekühlt, V4 wurde geschlossen und der Strahlbetrieb konnte beginnen.
- Vor der Hauptstrahlzeit wurden V1, V2 und V5 geschlossen und das  $^{22}\text{Ne}$  wurde durch V3 und V4 in das Target „kryogepumpt“. Nach Erreichen von 11 K wurde V4 geschlossen und V5 geöffnet. So kann bei Ausfall

der Kühlung oder Ähnlichem während der Strahlzeit das  $^{22}\text{Ne}$  durch Öffnen von Ventil 4 schnellstmöglich in den Vorratsbehälter und den Kryopumpstab expandieren.

Das verwendete  $^{22}\text{Ne}$  wurde in einer Stahlflasche mit 0,5l Rauminhalt unter einem Druck von 2 bar geliefert. Der Kryopumpstab besteht aus einem Edelstahlrohr, an welches eine Kupferzuleitung hart angelötet ist, und besitzt einen Rauminhalt von etwa  $30\text{ cm}^3$ . Durch langsames Eintauchen des Edelstahlrohres in flüssiges Helium kondensiert das Neon im Rohr aus und das gesamte im Target befindliche  $^{22}\text{Ne}$  kann zurückgewonnen werden.

Um einen hohen Druck im Target zu erreichen, muß die unbestrahlte, dennoch aber mit der Kammer verbundene Menge an Gas (Totvolumen) möglichst klein sein. Deshalb wurden als Leitungen Kupferrohre mit 0,6 mm Innendurchmesser verwendet und ein Ventil ohne großes Eigenvolumen entwickelt.

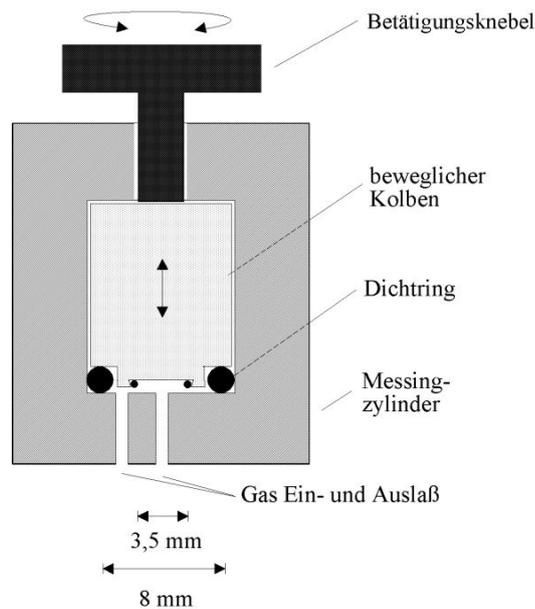


Abbildung 5.3: Das Kleinstvolumenventil: Dargestellt ist der geöffnete Zustand. Zum Schließen wird der Kolben nach unten bewegt und drückt den inneren O-Ring zusammen. Der äußere Dichtring steht permanent unter Spannung und dichtet gegen die Umgebung ab.

Die Funktionsweise dieses Ventils beruht auf der Schließdifferenz zweier verschieden starker O-Ringe. Der in Abbildung 5.3 gezeigte, äußere O-Ring wird

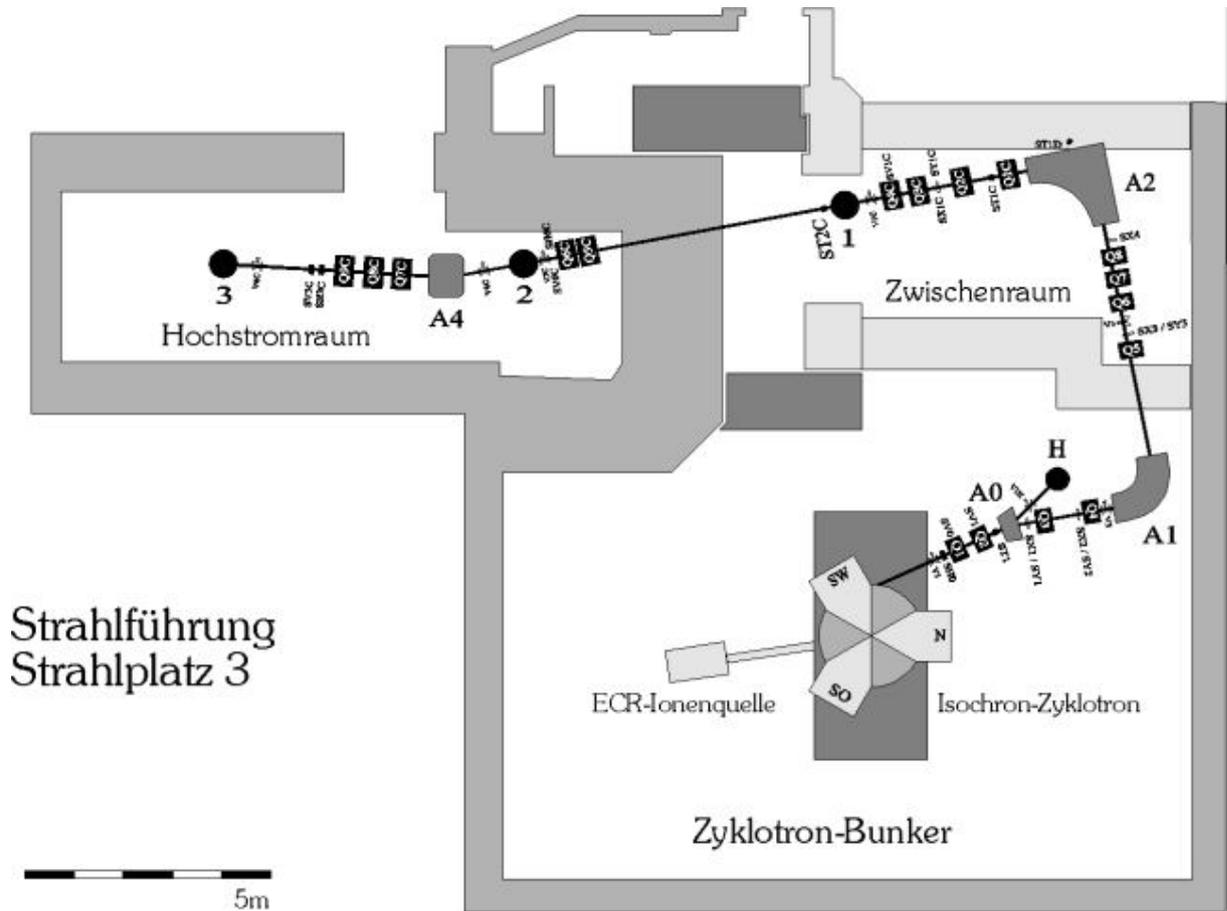


Abbildung 5.4: Teilansicht des Bonner Zyklotrons: Abgebildet sind die Strahlerzeugung, die Strahlführung sowie einige Strahlplätze

permanent vorgespannt und der innere, kleinere O-Ring wird als Schalter genutzt.

Mit dieser Anordnung baut sich nach Einfüllen des Neons ein Überdruck von 8 bar bei einer Temperatur von 37 K auf. Nach einiger Betriebszeit sollte sich bei dieser Temperatur, falls kein Neon entwichen war, wieder derselbe Druck einstellen. Über zehn Strahltag und zwei Wochen Pause hinweg war dieser Zustand stabil.

## 5.2 Messung des Strahlstromes

Abbildung 5.4 zeigt einen Lageplan des Zyklotrons am ISKP mit den einzelnen Strahlplätzen. Im Betrieb kann hinter Strahlplatz 1 ein Stopper (ST2C) zwischengeschaltet werden, mit dem der Strahlstrom exakt bestimmt werden

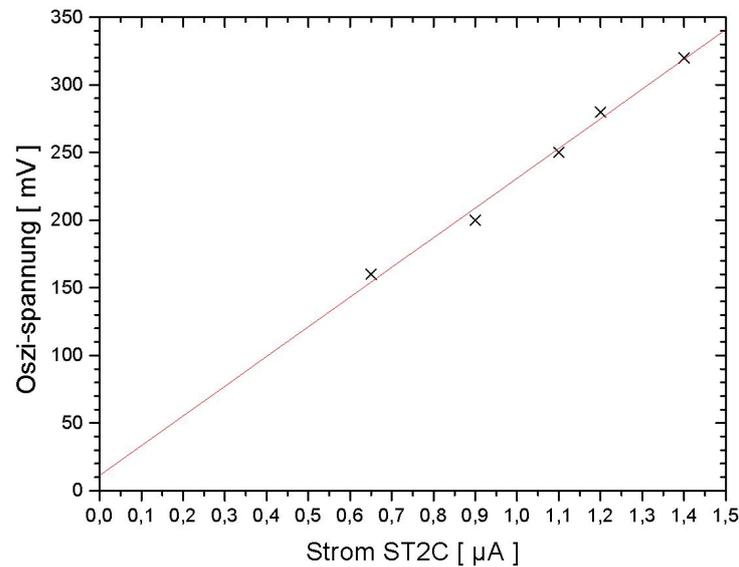


Abbildung 5.5: Der Influenzladungsmesser: Aufgetragen ist die Höhe des Ausgangsspannungssignals gegen den Strom am Stopper ST2C.

kann. Vor Beginn des Experiments wurde dieser Wert bei abgeschaltetem Ablenkmagneten A4 mit einem in Geradeausrichtung befindlichen Faraday-Cup verglichen. Es ergab sich eine Transmission durch die Streukammer 2 von nahezu 100%. Während des Experiments konnte der Strom dann von einem direkt vor dem Target angebrachten Influenzladungsmesser angezeigt werden.

Das Meßverfahren beruht auf der Erzeugung von Bildladungen in einem isolierten Rohr (Kondensator) bei Durchflug der einzelnen Protonenpakete. Das Signal wurde verstärkt und auf einem Oszilloskop ausgegeben. Die Kalibrationskurve in Abbildung 5.5 zeigt den graphischen Auftrag der Spannungsamplitude bei verschiedenen Strömen am ST2C. So konnte der Strahlstrom während des Strahlbetriebs „berührungslos“ überwacht werden. Da der Strahl über längere Zeit stabil blieb, genügte ein Protokoll der Änderungen bzw. Unterbrechungen der Stromstärke, um die akkumulierte Ladungsmenge und damit die erzeugte Aktivität hinreichend genau abzuschätzen.

# Kapitel 6

## Verarbeitung des $^{22}\text{Na}$ zu einer punktförmigen Quelle

### 6.1 Extraktion aus der Kammer

In der Arbeit von Saam wurde das Natrium zu 98% durch Auswaschen der Kammer mit destilliertem Wasser entfernt [SSH89]. Die inneren Kammerwände waren aus Aluminium. Das atomare Natrium geht als NaOH in Lösung und kann anschließend durch Neutralisieren der Natronlauge mit Salzsäure als NaCl eingedampft werden.

Aus dem chemisch edleren Silber werden noch weniger Verunreinigungen ausgewaschen. Zudem kann im ersten Waschgang auch direkt Salzsäure verwendet werden, da Silber nicht von HCl angelöst wird.

In einer ersten Teststrahlzeit wurde  $1\mu\text{Ci } ^{22}\text{Na}$  erzeugt (Kapitel 7.1.1). Das Target wurde dann im Heißlabor des ISKP zerlegt und die Spektren der einzelnen Bauelemente aufgenommen:

- Das Spektrum der verschlossenen Kammer diente der Bestimmung der erzeugten Aktivität und ist in Kapitel 7.1.1 dargestellt.

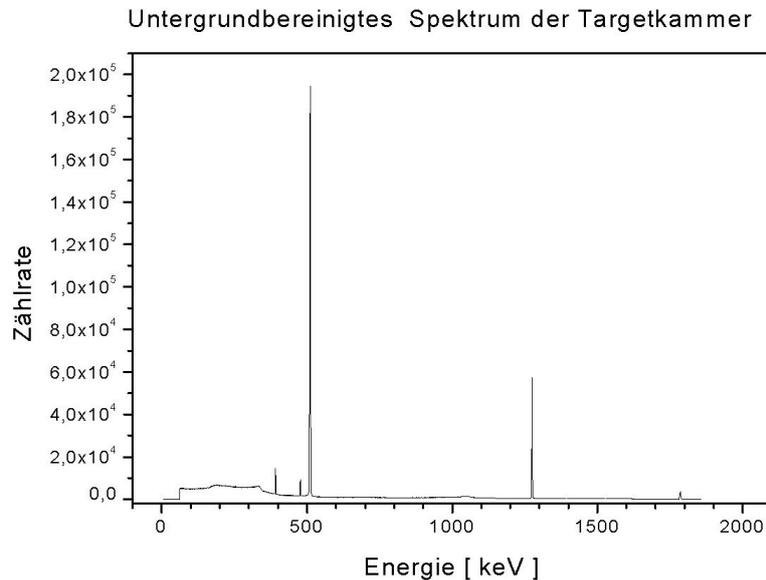


Abbildung 6.1: Spektrum der Strahlkammer nach Demontage des Strahlfensters. Im Wesentlichen sind nur die Linien des  $^{22}\text{Na}$  zu erkennen.

- In Abbildung 6.1 ist das Spektrum der Silberkammer ohne Targetfenster zu sehen. Hierin sind zusätzlich zu den Natriumlinien nur noch zwei weitere Peaks bei 475 und 393 keV enthalten. Diese haben jedoch verglichen mit der 511 und 1275 keV Linie eine verschwindend geringe Intensität. Weiterhin ist noch der Summenpeak der 511 und 1275 keV Linien bei 1786 keV zu erkennen, der durch gleichzeitige Detektion von zwei Photonen entsteht.
- Abbildung 6.2 zeigt das Spektrum des Targetfensters. Zusätzlich zur Kontamination des Fensters mit  $^{22}\text{Na}$  sind im Fenstermaterial selbst weitere Isotope aktiviert worden.

Das  $^{22}\text{Na}$  auf dem Targetfenster wurde mit destilliertem Wasser abgelöst. Nach drei Waschgängen mit jeweils  $1\ \mu\text{l}$  Flüssigkeit blieb nur noch wenig  $^{22}\text{Na}$  am Fenster übrig. Ebenso wurde die Kammer mit destilliertem Wasser und anschließend mit Salzsäure ausgespült. Ein Spektrum der extrahierten Flüssigkeiten zeigt Abbildung 6.3. Es sind keine radioaktiven Kontaminationen des  $^{22}\text{Na}$  zu erkennen.

Insgesamt konnte mehr als 80% der erzeugten  $^{22}\text{Na}$ -Aktivität aus dem Target herausgelöst werden.

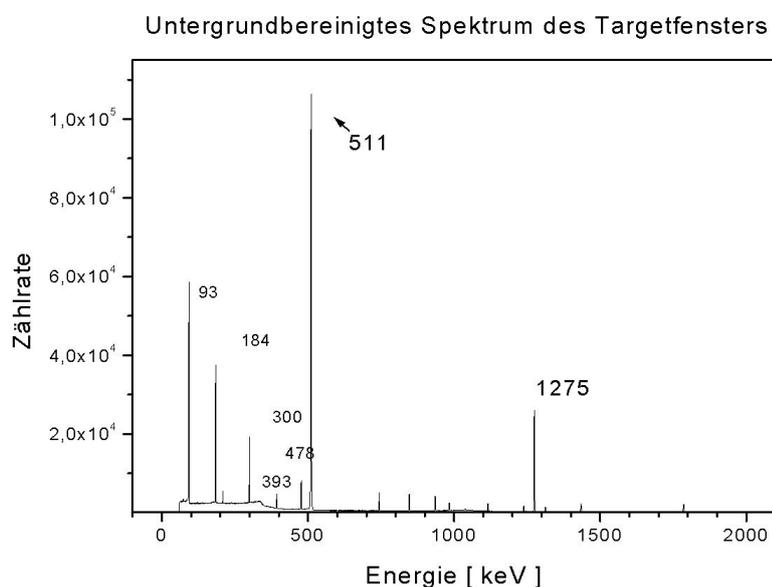


Abbildung 6.2: Spektrum des Targetfensters. Neben den beiden  $^{22}\text{Na}$ -Peaks sind noch eine Reihe weiterer Linien zu erkennen.

## 6.2 Das Eintrocknen in eine sehr kleine Quelle

Das in der Flüssigkeit gelöste Salz sollte auf einem ca.  $300\ \mu\text{m}$  großen Bereich eingetrocknet und dann als Quelle verwendet werden. Bisher sind umfangreiche Vorversuche mit inaktivem NaCl durchgeführt worden.

In einem Wassertropfen wird bei Verdunsten zuerst am Rand die Sättigungskonzentration überschritten und es bilden sich hier die ersten Kristallkeime [Zam97]. An diesen lagert sich dann bevorzugt weiteres NaCl an. Es bildet sich ein Salzring mit wenig NaCl in der Mitte (Salzränder).

Zunächst wurde versucht, das Salz in eine  $200 \times 200\ \mu\text{m}$  große Bohrung einzutrocknen. Durch die Kapillarwirkung stieg die Flüssigkeit an den Rändern hoch und es bildeten sich Salzringe am oberen Rand der Bohrung. Aufgrund des geringen Volumens der Bohrung wurde oft versehentlich zu viel Flüssigkeit eingefüllt. Das überlaufende Wasser verteilte dann das Salz auf der äußeren Fläche. Diese Vorgehensweise ist daher für aktives Material ungeeignet.

In weiteren Tests wurde ein Tropfen an einen  $250\ \mu\text{m}$  Wolframdraht gehängt. Um ein Ausbreiten des Tropfens zu den Rändern und der Mantelfläche des Drahtes

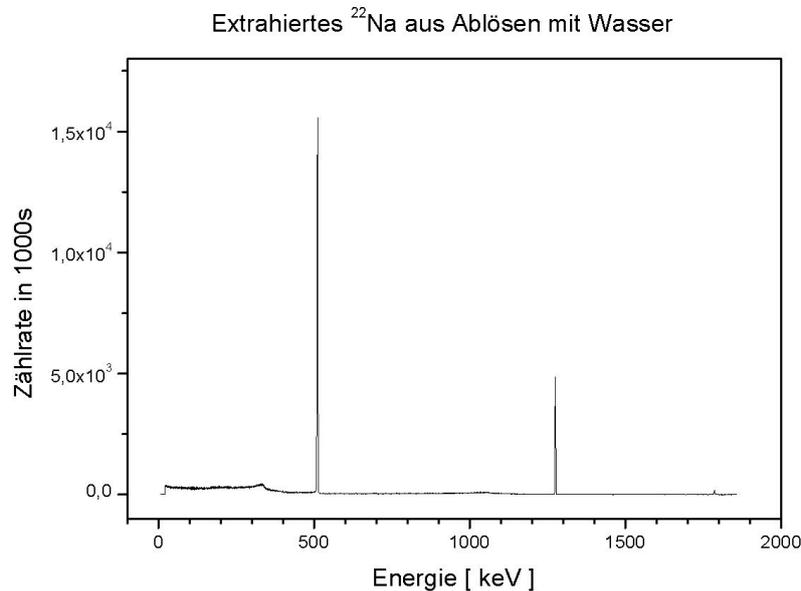


Abbildung 6.3: Spektrum des  $^{22}\text{Na}$  gelöst in Wasser, mit dem das Targetfenster zuerst abgewaschen wurde. Das Spektrum enthält nur die Zerfallslinien des  $^{22}\text{Na}$ .

hin zu unterdrücken, wurde das untere Drahtende sorgfältig poliert und die Mantelfläche mit Teflon-Trennmittel eingesprüht. Nach Anhängen des Tropfens bildete sich eine flache Kuppe aus. Beim Verdunsten der Flüssigkeit wurde die Sättigungslöslichkeit auf einem größeren Bereich gleichzeitig überschritten. Dadurch bildete sich eine gleichmäßige Salzbedeckung aus. Das „Nachfüllen“ des Tropfens war durch Eintauchen in die Flüssigkeit möglich. In kurzer Zeit kann das bereits auskristallisierte NaCl nicht wieder in Lösung gehen.

Abbildung 6.4 zeigt Mikroskopaufnahmen des Wolframdrahtes mit der eingetrockneten Salzsicht. Es ist eine gleichmäßige Salzbedeckung auf der Drahtunterseite zu erkennen. Die Salzkristalle auf der Seite des Drahtes entstanden durch zu tiefes Eintauchen in die Flüssigkeit.

Leider konnten im Rahmen dieser Arbeit keine Versuche mit aktivem Material durchgeführt werden, die eine quantitative Analyse ermöglicht hätten.



Abbildung 6.4: Mikroskopaufnahme eines  $250\ \mu\text{m}$  großen Wolframdrähtchens. An die Unterseite wurde ein Tropfen mit NaCl-Lösung angehängt und eingetrocknet.

# Kapitel 7

## Messungen und Ergebnisse

### 7.1 Die Strahlzeiten

Die neue Quelle für die Mikrosonde soll etwa 1 mCi Gesamtaktivität besitzen. Nach einer Probestrahlzeit konnten aus dem Target 80% der erzeugten Aktivität extrahiert werden (Kapitel 6.1). In zwei Wochen Strahlzeit ( $\approx 200h$ ) können bei optimalem Betrieb 1,5 mCi erzeugt werden (Kapitel 3). In einer ersten, kürzeren Strahlzeit sollten diese Annahmen überprüft werden.

#### 7.1.1 Die erste Probestrahlzeit

In einem Vorversuch sollten durch Bestrahlung von natürlichem Neon ( $9,2\%^{22}\text{Ne}$ ) einige  $\mu\text{Ci } ^{22}\text{Na}$  erzeugt werden. Hierbei konnte der gesamte Versuchsaufbau getestet werden.

Kurz vor dem geplanten Termin dieser Strahlzeit fiel die Senderöhre des Zyklotrons aus. Die nächste Bestrahlung war kurzfristig nur mit polarisierten Protonen möglich. Die Pol-Quelle lieferte zu diesem Zeitpunkt Protonen mit einer Energie von etwa 12 MeV bei einem Strom von maximal 250 nA. Das Target wurde 8 Stunden bestrahlt. In dieser Zeit sollten nach Diagramm 3.2 etwa  $1,1 \mu\text{Ci } ^{22}\text{Na}$  produziert werden.

Nach der Strahlzeit ergaben Messungen eine Kammeraktivität von etwa  $1 \mu\text{Ci}$ , ausgewertet im 1275 keV Peak des  $^{22}\text{Na}$ . Das mit einem Germaniumdetektor aufgenommene Spektrum der Kammer ist in Abbildung 7.1 dargestellt.

Während des Experiments sollte ebenfalls der Druckaufbau bei Erwärmung des Targets untersucht werden. Ein Druckaufbau über 4 bar war jedoch aufgrund

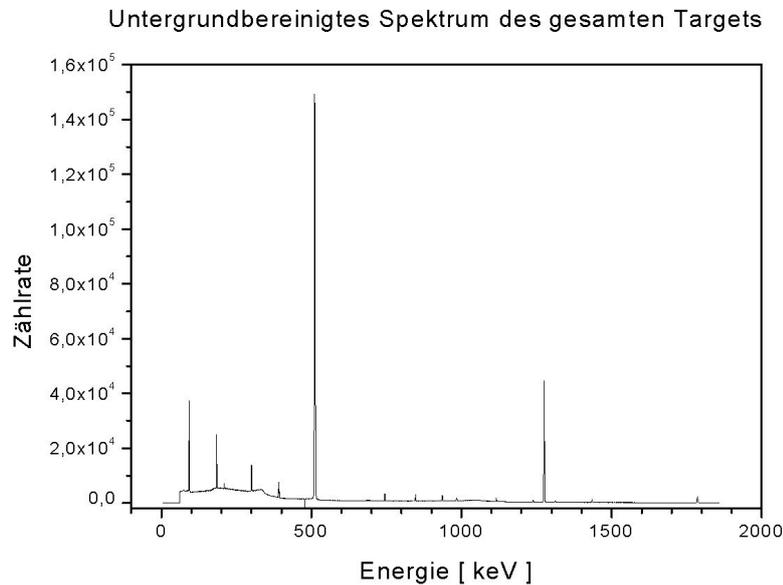


Abbildung 7.1: Spektrum der Strahlkammer, 10 Tage nach der Bestrahlung. Es sind außer  $^{22}\text{Na}$  weitere Positronenemitter erzeugt worden, so daß der 511 keV Peak nicht zur Auswertung der  $^{22}\text{Na}$ -Aktivität geeignet ist.

eines defekten Manometeranschlusses nicht möglich.

Die Temperatur während des Strahlbetriebs betrug am Meßpunkt 25 K und es wurde ein Überdruck von 2 bar bei 250 nA erreicht. Nach Beendigung des Versuchs wurde das Neon in einen Wellbalg expandiert, um das bestrahlte Neon auf mögliche Aktivierungen oder Kontaminationen mit  $^{22}\text{Na}$  hin zu untersuchen. Es wurde keinerlei Aktivität gemessen. Das gebildete, atomare Natrium hatte sich vollständig auf den Innenwänden der Targetkammer niedergeschlagen.

### 7.1.2 Die „lange“ Strahlzeit

Nach dem erfolgversprechenden Vorversuch sollte nun die für eine Mikrosondenquelle nötige Aktivität an  $^{22}\text{Na}$  produziert werden. Die 2 Wochen Strahlbetrieb wurden in zwei Abschnitten von je einer Woche durchgeführt. So bestand die Möglichkeit, nach einer Woche eventuelle Veränderungen am Versuchsaufbau vorzunehmen.

Das Rohrleitungssystem zum Füllen und Entleeren des Targets wurde noch

einmal völlig überarbeitet. In Tests mit natürlichem Neon konnte bei einer Temperatur von 37 K ein Druck von 8 bar in der Kammer erzeugt werden. Drücke von 20 bar und mehr blieben über längere Zeit bei konstanter Temperatur stabil. Die Dichtigkeit des Aufbaus konnte durch einen reproduzierbaren Gasdruck von 8 bar bei 37 K auch nach der ersten Woche Strahlzeit nachgewiesen werden.

Die Überdrucksicherung wurde auf einen Betätigungsdruck von 30 bar eingestellt. Das verwendete Fenster hatte eine Dicke von 110  $\mu\text{m}$  und sollte einem Druck von bis zu 260 bar standhalten. Es wurde vor der Strahlzeit in der Drucktesteinrichtung mit 110 bar geprüft. Der Kammerdruck im Strahlbetrieb lag bei 20 bar. Der getestete Sicherheitsfaktor des Einschußfensters war größer 5, der aufgrund der Fensterdicke zu erwartende Sicherheitsfaktor betrug 14.

Vor Beginn der Strahlzeit wurde das Target von 11 auf 25 K aufgeheizt. Mit Einschuß der Protonen stieg der Kammerdruck schnell auf 18 bar bei 1  $\mu\text{A}$  Strom an. Der Einstellwert der Heizungsregelung wurde dann auf 20 K heruntergestellt. So war gesichert, daß das Target allein durch die vom Strahl deponierte Energie ohne elektrische Zusatzheizung erwärmt wurde. Im Dauerbetrieb war eine maximale Stromstärke von 1,1  $\mu\text{A}$  möglich. Höhere Ströme führten zu einer langsamen Erwärmung des Targets. Bei einem Strom von 1  $\mu\text{A}$  stellte sich eine Gleichgewichtstemperatur am Thermoelement von 25 K ein. Der Temperaturgradient vom Thermoelement zum Neon sollte maximal 5 K betragen (Kapitel 4). Ein Kammerdruck von 18 bar deutete somit auf das erwartete, partielle Sieden des flüssigen Neons hin.

In der ersten Woche wurde das Target insgesamt 82,5 Stunden mit einem mittleren Strom von 0,95  $\mu\text{A}$  bei einer Protonenenergie von 14,2 MeV bestrahlt. Rechnerisch ergibt das eine erzeugte Aktivität von etwa 600  $\mu\text{Ci}$  (22 MBq)  $^{22}\text{Na}$ . Nach zwei Tagen Abklingzeit wurde ein Spektrum der Kammer in eingebautem Zustand aufgenommen (Abbildung 7.2). Die Transmission für  $\gamma$ -Quanten mit 1275 keV Energie betrug bei diesem Aufbau 12%. Zum Vergleich wurde mit derselben Geometrie, jedoch bei 85% Transmission ein Spektrum der Mikrosondenquelle eingelesen (Abbildung 7.3).

Die Auswertung der beiden 1275 keV-Peaks unter Berücksichtigung der Transmission ergab als Aktivität der Targetkammer das 1,3-fache der Mikrosondenquellstärke ( $\approx 450 \mu\text{Ci}$ ). Somit wurden in der Kammer während der ersten Woche ca. 585  $\mu\text{Ci}$   $^{22}\text{Na}$  erzeugt. Dies liegt dicht an dem zuvor berechneten Wert. Der Strahl wurde also im Target mindestens bis unter die Energieschwelle von 3,6 MeV abgebremst. Die Blasenbildung im flüssigen Neon wurde offenbar richtig abgeschätzt.

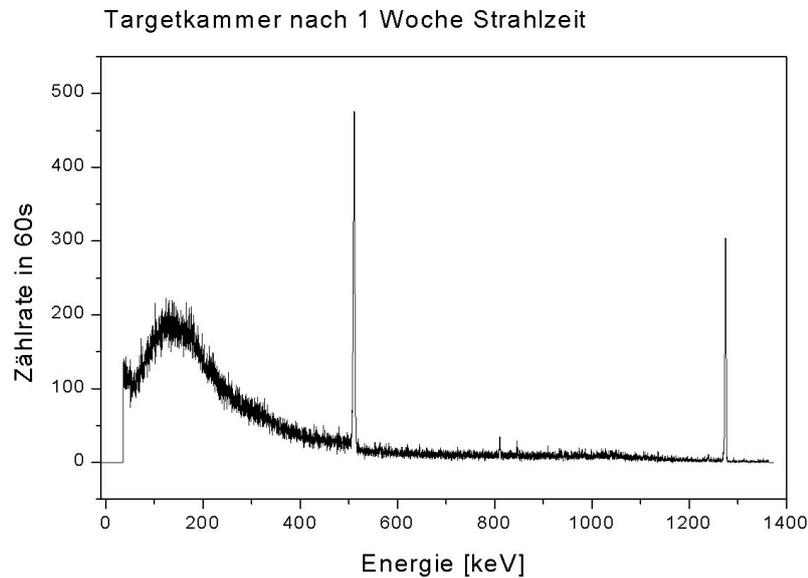


Abbildung 7.2: Spektrum der eingebauten Kammer nach 1 Woche Strahlzeit mit 12% Transmission durch die Kammerwand. Die  $^{22}\text{Na}$ -Linien dominieren das Spektrum.

Nach einer Woche Pause wurde das Experiment fortgeführt. Nach 25 Stunden Strahlzeit unter  $1\ \mu\text{A}$  fiel dann das Zyklotron aus. Die folgende Reparatur nahm eine Woche in Anspruch. Die Heizung wurde in den langen Strahlpausen aus Sicherheitsgründen abgeschaltet und das Target kühlte auf 10 K ab.

Bei Wiederaufnahme des Strahlbetriebs baute sich zunächst trotz eines Strahlstroms von  $1\ \mu\text{A}$  nur sehr zögerlich ein Druck von 4 bar auf. Es wurde angenommen, daß die Zuleitung der Kammer in der langen Pause zugefroren war und die Strahlzeit wurde unterbrochen. Der Druck von 4 bar blieb trotz abgeschaltetem Strahlstrom und eingekühltem Target zunächst konstant. Das Target wurde sehr langsam aufgewärmt und der Druck fiel auf 0 bar ab. Bei einer Temperatur von 37 K wurden danach 8 bar erreicht.

Die Bestrahlung wurde fortgesetzt und ein Protonenstrom von  $1\ \mu\text{A}$  erzeugte wieder einen Druck von 18 bar. Nach 3 Stunden Strahlzeit platzte dann das Targetfenster und das Neon siedete in das umgebende Vakuumsystem. Die

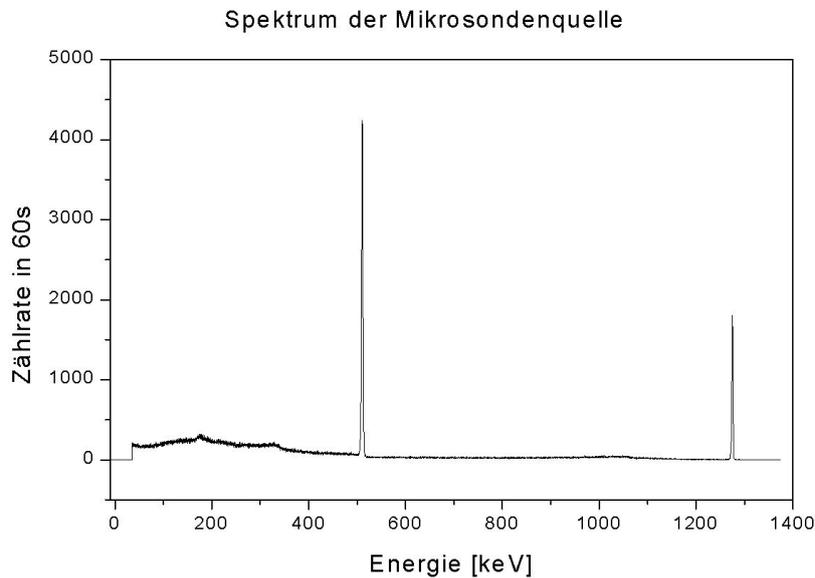


Abbildung 7.3: Spektrum der bisher verwendeten Mikrosondenquelle (85% Transmission)

Bruchstücke des Targetfensters und die mitgerissenen Teile der Superisolation deuteten auf eine Explosion des Kammerinhaltes hin. Das Zyklotronstrahlrohr wurde bis zum Ablenkmagneten A2 (siehe Abb. 5.4) mit  $^{22}\text{Na}$  kontaminiert. Die Aktivität konnte jedoch leicht mit destilliertem Wasser und Alkohol abgewaschen werden.

In Abbildung 7.4 ist ein Spektrum der eingebauten Targetkammer nach dem Bruch des Targetfensters unter derselben Detektoranordnung wie zuvor dargestellt. Die wesentlich höhere Zählrate deutet darauf hin, daß sich etwa  $1/3$  der erzeugten Aktivität nicht mehr in der abschirmenden Silberkammer, sondern auf den Innenseiten des Vakuum-T-Stücks befindet. Von dort konnte es nicht in ausreichender Reinheit extrahiert werden.

## 7.2 Ergebnisse und Diskussion

Die gemessene Aktivität nach einer Woche Strahlzeit bestätigt andere Messungen zum Wirkungsquerschnitt [SSH89, QTT96] und die Rechnungen zur Produk-

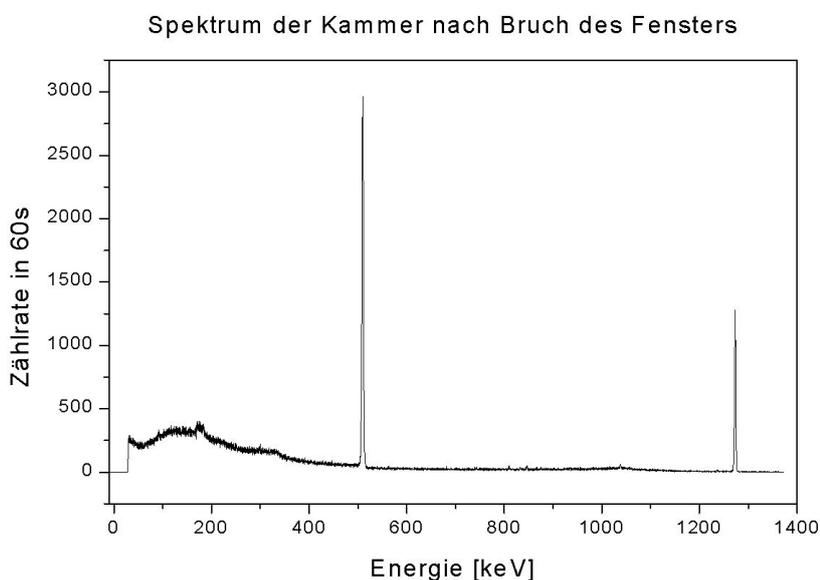


Abbildung 7.4: Spektrum der eingebauten Targetkammer nach Abbruch der Strahlzeit. Es wurde dieselbe Detektoranordnung wie bei der vorhergehenden Messung verwendet.

tionsrate an  $^{22}\text{Na}$  pro  $\mu\text{Ah}$ . Die  $^{22}\text{Ne}(p,n)^{22}\text{Na}$ -Reaktion ist zur Erzeugung größerer Mengen an  $^{22}\text{Na}$  daher durchaus geeignet.

Durch den Bruch des Targetfensters konnte leider die für die Mikrosonde benötigte Gesamtmenge an Aktivität nicht erzeugt werden. Um in den nächsten zwei Jahren ausreichende Positronenzählraten zu gewährleisten, sollte die Quelle eine Stärke von mindestens einem mCi haben. Der Einbau einer (nahezu) trägerfreien  $400\ \mu\text{Ci}$ -Quelle würde an Zählrate im Germaniumdetektor keine Vorteile bringen, wohl aber im Strahldurchmesser.

Für das Versagen des Targetfensters gibt es folgende Erklärungen:

- Das Fenstermaterial ist eventuell durch Strahlenschäden so stark geschwächt worden, daß es dem Betriebsdruck nicht mehr standhalten konnte. Bei einem anderen Gastargetexperiment wurden vergleichbare Aluminiumlegierungen (Duran) als Fenstermaterial ein Jahr lang im Dauereinsatz verwendet [Eve]. Der Strahlstrom betrug hier ebenfalls  $1\ \mu\text{A}$  und die Betriebstemperatur lag bei 300 K. Strahlenschäden in Aluminium können bei

dieser Temperatur im Gegensatz zu 20-30 K ausheilen. Da die Hauptfestigkeit des F53 auf Ausscheidungshärtungen zurückzuführen ist, würden Gitterfehler die Festigkeit vermutlich nicht wesentlich verringern. Das Material versprödet jedoch. Durch die Formgebung des verwendeten Targetfensters tritt im Betrieb keine starke Beanspruchung durch Wechselverformung auf. Die Versprödung sollte die maximale Druckbelastbarkeit nicht erheblich reduzieren.

- Ein anderer Ansatz berücksichtigt die bekannte Bildung von  $N_xO_y$ -Molekülen im Target. Stickstoff und Sauerstoff könnten durch „Kryopumpvorgänge“ während der langen Strahlpausen in die Targetkammer gelangt sein. Da die Heizung abgeschaltet wurde, kühlte das Target auf 10 K ab. Das im gesamten System befindliche Neon friert bei diesen Temperaturen in der Nähe der Targetkammer aus und „evakuiert“ somit den auf Zimmertemperaturen liegenden Teil des Versuchsaufbaus. Größere Lecks waren hier wegen der sehr guten Überdruckbeständigkeit (über 3 Wochen keine meßbaren Verluste an  $^{22}\text{Ne}$  bei 100 h Strahlbetrieb mit 18 bar) auszuschließen. Allerdings deutet das Zufrieren der Kupferzuleitungen nach der letzten Strahlpause auf eine neu entstandene Leckstelle im Rohrsystem unter Vakuum hin.

Die im flüssigen Neon befindlichen Stickstoff- und Sauerstoffatome bilden dann unter Bestrahlung  $N_xO_y$ -Moleküle. Ist hiervon eine kritische Menge erzeugt worden, so kann mit Hilfe des Protonenstrahls eine Kettenreaktion in Gang gesetzt werden, bei der die Bindungsenergie von allen Molekülen nahezu gleichzeitig freigesetzt wird (Explosion). Dies würde eine gewaltige Druckwelle erzeugen.

Das Targetfenster könnte so durch einen zu hohen Druck zerstört worden sein ohne daß die Überdrucksicherung aktiv werden konnte. Die Probleme beim Wiederaufstart nach der zweiten Woche Strahlpause bestärkten diese Theorie. Während des ersten einwöchigen Strahlbetriebs konnte der Protonenstrahl nach kurzen Ausfällen des Zyklotrons wiederholt ohne Probleme in ein auf 20 K abgekühltes Target eingeschossen werden. Der stark verzögerte Druckaufbau 3 Stunden vor dem Totalausfall ist ein massiver Hinweis auf eingefrorene Luft im Zuleitungssystem, was leider nicht rechtzeitig erkannt wurde.

Die exakte Ursache für den Ausfall des Targetfensters konnte nicht hinreichend geklärt werden, jedoch erscheint die zweite Hypothese als sehr wahrscheinlich.

# Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde ein Experiment zur Bestrahlung von flüssigem Neon bei geregelten Temperaturen von 10-40 K und Drücken von 1-20 bar aufgebaut.

Die Eignung der  $^{22}\text{Ne}(\text{p},\text{n})^{22}\text{Na}$ -Reaktion zur Erzeugung von trägerfreiem  $^{22}\text{Na}$  wurde mit diesem Aufbau erfolgreich getestet. Eine Aktivität von  $0,8\ \mu\text{Ci}$   $^{22}\text{Na}$  konnte auf einfache Weise durch Auswaschen mit  $10\ \mu\text{l}$  destilliertem Wasser separiert werden.

Mit der Entwicklung der Aluminium-Kugelkalotte steht für die Zukunft ein leistungsfähiges Targetfenster zur Verfügung, das bei kleinen Strahlenergieverlusten und geringer Aktivierung eine hohe Drucksicherheit bietet.

Die Vorversuche zum Eindampfen der kleinen Quelle verliefen sehr vielversprechend. Hieraus kann mit wenig zusätzlichem Aufwand eine praktikable Methode zur Herstellung kleinster Quellen abgeleitet werden.

Durch die Unterbrechung der Strahlzeit konnte nicht genügend Aktivität für eine neue Mikrosondenquelle produziert werden. Eine Wiederholung des Experiments nach Klärung der Ausfallursache bietet sich daher an.

# Literaturverzeichnis

- [A<sup>+</sup>94] A. van Veen et al. *Slow positron beam technique for solids and surfaces*. Conf. Proceed. 303 (1994). New York
- [ABD87] P. Albert, G. Blondiaux und J. Debrun. *Handbook on Activation Cross Sections*. IAEA, Wien (1987)
- [AKM96] E. Arzt, O. Kraft und U. E. Möckl. Phys. Bl., **52** (1996) 227
- [B<sup>+</sup>95] R. Bodemann et al. *New measurements of the monitor reactions on Al and Cu*. INDC. Jülich
- [BS92] Bergmann-Schäfer. *Festkörper*. Walter de Gruyter (1992)
- [BSS94] J. Q. L. de Britto, A. S. F. de Sousa und A. G. da Silva. *Thick target yield of <sup>22</sup>Na using 27 MeV  $\alpha$ -particles on natural Ne*. Rad. Nucl. Chem. Lett., **187** (2) (1994) 143
- [Dmi86] P. P. Dmitriev. *Radionuclide yield in reactions with protons...* Report INDC, International Atomic Energy Agency, Wien (1986)
- [Dos40] J. Dosse. Z. Phys., **115** (1940) 530
- [Eve] Eversheim. *private Mitteilung*
- [F<sup>+</sup>86] D.A. Fischer et al. Phys. Rev., **33** (1986) 4479
- [Gol89] H. Goldstein. *Klass. Mechanik*. Aula-Verlag, Wiesbaden (1989)
- [GS61] Grau und Schäfer. *Dampfdruck der Elemente*, Band Bd.II/2a. Landolt-Börnstein, Springer Verlag, 6. Auflage (1961)
- [H<sup>+</sup>82] R. H. Howell et al. Appl.Phys.Lett., **40** (8) (1982) 751
- [H<sup>+</sup>90] Hernandez et al. *Passage of particles through matter*. Phys.Lett.B, **236** (1990) III.13

- [Haa97] M. Haaks. *Ortsaufgelöste Positronenspektroskopie an thermisch und/oder mechanisch beanspruchten Werkstoffen*. Diplomarbeit, ISKP, Universität Bonn (1997)
- [Han86] B. A. Hands. *Cryogenic Engineering*. Academic Press (1986)
- [HMZ+98] M. Haaks, U. Männig, C. Zamponi, K. Bennewitz und K. Maier. *Ermüdungsriß in Edelstahl AISI 321*. Vortragsbericht DPG-Tagung (1998)
- [HO76] A. Higdon und E. H. Ohlsen. *Mechanics of materials*. John Wiley and sons, New York (1976)
- [ISS+91] A. S. Iljinov, V. G. Semenov, M.P. Semenova, N. M. Sobolevsky und L.V. Udolenko. *Radionuklidproduktion bei mittleren Energien*. neue Serie 13a. Landolt-Börnstein, Springer Verlag (1991)
- [L+85] K. G. Lynn et al. Phys. Rev. Let., **54** (1985) 1702
- [LB74] J. Lorenzen und D. Brune. *Handbook of nuclear activation cross-sections*. rep. no. 156. IAEA, Wien (1974)
- [LHP78] C. M. Lederer, J. M. Hollander und I. Perlman. *Tables of Isotopes*. J. Wiley and sons, New York (1978)
- [M+88] G. R. Massoumi et al. Nucl. Inst. Metho. Phys. Res., **B30** (1988) 592
- [MHZ+99] U. Männig, M. Haaks, C. Zamponi, K. Bennewitz und K. Maier. *Elektronenbestrahltes Molybdän*. DPG-Tagung (1999)
- [MR50] L. Madansky und F. Rasetti. Phys. Rev., **79** (1950) 397
- [N+84] E. B. Norman et al.  $^{22}\text{Na}$  cross section from the  $^{19}\text{F}(\alpha, n)$  reaction. Phys. Rev., **C30** (1984) 1339
- [QTT96] S. M. Quaim, S. Takacs und F. Tarkanyi. *Excitation function of  $^{22}\text{Ne}(p, n)^{22}\text{Na}$* ... App. Radiat. Isot., **47** (3) (1996) 303
- [RS+69] H. F. Roehm, J. Steyn et al. Inorg. Nucl. Chem., **31** (1969) 3345
- [Sch] J. Schüth. *Bethe-Bloch-Programm*. private Mitteilung
- [Sch81] H. E. Schäfer. *Habilitationsschrift*. Universität Stuttgart (1981)
- [SL88] P. J. Schultz und K. G. Lynn. Rev. Mod. Phys., **60** (3) (1988) 701

- [SM90] G. F. Steyn und F. J. Mills. *Appl. Radiat. Isot.*, **41** (1990) 315
- [SSH89] B. Saam, M. Skalsey und J. van House. *Measurement of the cross section  $^{22}\text{Ne}(p,n)^{22}\text{Na}$* . *Phys. Rev. C*, **40** (4) (1989) 1563
- [Wes73] R. N. West. *Advances in Physics*. **22** (1-6) (1973) 263
- [Zam97] C. Zamponi. Diplomarbeit, Mineralogisch-Petrologisches Institut der Universität, Bonn (1997)
- [Zie80] J. F. Ziegler. *Handbook of stopping cross-sections...*, Band 5. Pergamon Press, Oxford (1980)

# Anhang A

## Lieferfirmen

Kaltkopf	Leybold RGD 1245	Kühlleistung 10 W bei 20 K geschlossener Heliumkreislauf
Turbopumpen	Pfeiffer TMU-520	Pumpvolumen $520 \frac{l}{s} (N_2)$
	Pfeiffer TSH-260-D	Turbo-Drag-Pumpstand mit Membranvorpumpe Pumpvolumen $260 \frac{l}{s} (N_2)$
Silber	Allgemeine Gold- und Silberhandel	Granulat, Reinheit 3.0
$^{22}\text{Neon}$	Promochem	Isotopenanreicherung 99,9%

# Anhang B

## Photos des Experimentaufbaus



Abbildung B.1: Das „Schaltbrett“ mit den Kleinstvolumenventilen



Abbildung B.2: Experimentaufbau: der Kaltkopf, die Strommessung und der Plexiglasflansch mit dem Target

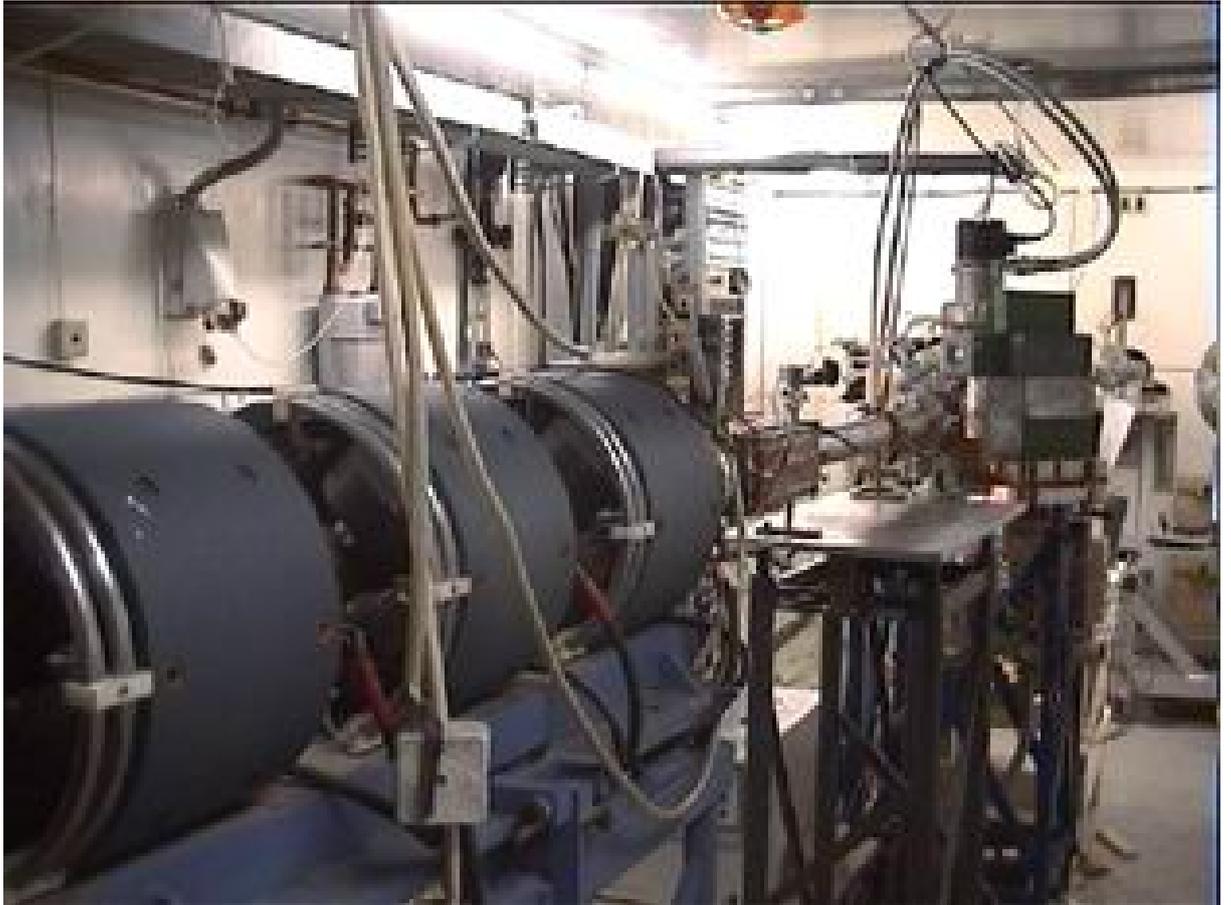


Abbildung B.3: Das Strahlrohr am Strahlplatz 3 mit angeschlossenem Experiment

# Danksagung

Ich danke...

Prof. Dr. Karl Maier für das Thema der Arbeit sowie die hervorragende fachliche, ideenreiche und menschliche Betreuung, auch außerhalb der Uni.

Prof. Dr. Peter Herzog für das Interesse, die Übernahme des Korreferats und das temporäre Asyl in seinem Labor.

den „Mikrosondlern“ Matz Haaks, Ulli Männig und Christiane Zamponi für das freundschaftliche Arbeitsklima und die tatkräftige Unterstützung bei allen „Problemchen“.

den übrigen „Maiers“: Moritz Beckmann, Dr. Carsten Bühner, Christoph Bommas, Dr. Jo Schüth, Markus Stumm, Tobias Wider, den „Ehemaligen“ Uli Grünewald, Dr. Christoph Hugenschmidt und Dr. Joachim Reske - für die tolle Atmosphäre in der Gruppe und den Spaß auch nach „Feierabend“. Sie haben meine Erzeugung „lokaler Entropiemaxima“ und die „Materialbeschaffung aus ihren Labors“ stets gelassen hingenommen. Insbesondere möchte ich noch einmal Moritz Beckmann für die Unterstützung beim Experimentieren / Ausdrucken auch am Wochenende danken.

dem Team des Zyklotrons, hier besonders den Operateuren Herrn Birkenbach, Herrn Lehmann und Herrn Momper für die Hilfe und das Bereitstellen einiger Tassen schwarzen Kaffees zu später Stunde.

den Mitgliedern der feinmechanischen Werkstatt, die unzählige Änderungen „in letzter Minute“ klaglos hingenommen haben. Herr Eichler hat mit dem Bau der Kugelkalotte das Unmögliche möglich gemacht.

...,„Danke“ ...

dem Elektroniklabor für die Hilfsbereitschaft und die Toleranz gegenüber Unwissenden (Der Bildschirm hat sogar einen Helligkeitsregler).

dem Schreiner Herrn Lenz für die perfekte Anfertigung eines Experimentiertisches.

den „guten Geistern“ des Hauses Frau Schoppmann, Frau Gatzweiler, Herrn Dr. Mertler, Herrn Seul und Herrn Noller.

allen, die mich durch mein außeruniversitäres Studentenleben begleitet haben; vor allem Rudi Aubermann, Matthias Niemeyer, Marion Linn und Uwe Süring, auf die ich mich stets verlassen konnte.

der Firma Oligo Lichttechnik, hier besonders Ralf Keferstein, für die Finanzierung meines Studiums durch studentische „Aushilfstätigkeiten“.

meinem Vater, meinem Bruder und meinen Verwandten für den Beistand und den Trost in der schweren Zeit im Dezember 98.

Daggi für die letzten 7 Jahre und das Verständnis, wenn ich mal wieder erst morgens aus der Uni kam.

meiner Mutter für die viel zu kurze Zeit, die ich mit Ihr hatte.