

Beschleunigermassenspektrometrie mit Isobarenscheidung in einem dedizierten gasgefüllten Magneten

Klaus Knie

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik
der Technischen Universität München zur Erlangung des
akademischen Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
genehmigten Dissertation.

Vorsitzender:

Prüfer der Dissertation: 1. Univ.-Prof. Dr. E. Nolte

2.

Die Dissertation wurde am bei der Technischen Universität
München eingereicht und durch die Fakultät für Physik am
angenommen.

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein dediziertes Nachweissystem für höchstempfindliche und universelle Messungen von langlebigen Radionukliden im Massenbereich $30 \leq A \leq 140$ (^{32}Si , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{53}Mn , ^{60}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{79}Se , ^{90}Sr , ^{93}Zr , $^{97,98,99}\text{Tc}$, ^{107}Pd , ^{126}Sn) mit Beschleunigermassenspektrometrie aufgebaut.

Am Anfang dieses Systems ist eine 3.5 m lange Flugzeitstrecke, bestehend aus zwei μ -Channelplatedetektoren, zur Unterdrückung des Untergrundes durch stabile Isotope des zu messenden Radionuklids. Die erreichte Zeitauflösung von 270 ps entspricht einer Massenauflösung von 1/500.

Direkt danach folgt ein gasgefüllter 135° -Dipolmagnet mit einem mittleren Ablenkradius von 90 cm als erster Schritt zur Separation des Untergrundes durch stabile Isobare. Die Magnetfeldgeometrie wurde u.a. mit Hilfe von Monte-Carlo-Rechnungen auf maximale Isobarentrennung optimiert. Im Massenbereich $A \approx 60$ wurde bei typischen Energien des Garching MP-Tandems eine Z -Auflösung von $\Delta Z/Z = 1/135$ erreicht. Dies entspricht einer Verbesserung gegenüber früheren Messungen mit einem gasgefüllten Q3D-Magnetspektrographen von ca. 30 %, bei gleichzeitig stark reduzierter Energieverluststreuung.

Am Ausgang des Magneten werden die Ionen in einer orts- und winkelempfindlichen Frischgitterionisationskammer mit multipler Energieverlust- und Winkelmessung nachgewiesen.

Durch die hohe Empfindlichkeit wurden erstmalige routinemäßige AMS-Messungen von ^{53}Mn in Meteoriten möglich. Wegen der, gegenüber anderen, ebenfalls durch Wechselwirkung mit kosmischer Strahlung produzierten Radionukliden, sehr langen Halbwertszeit von 3.7 Millionen Jahren ist ^{53}Mn hier von besonderem Interesse.

Ebenso kann die ^{59}Ni -Konzentration in Meteoriten bestimmt werden. Als Aktivierungsprodukt eignet es sich als Sonde für den Fluß an sekundären kosmischen Neutronen.

Das wie ^{53}Mn bisher noch nicht als AMS-Nuklid etablierte ^{60}Fe wurde in einer Kernreaktion quantitativ hergestellt und mit AMS nachgewiesen. Messungen in Meteoriten ergaben für die ^{60}Fe -Konzentration eine neue Obergrenzen von $1 \cdot 10^{-14}$ $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$.

^{36}Cl konnte, selbst ohne spezielle chemische Schritte zur Isobarenunterdrückung, mit hoher Effizienz und praktisch untergrundfrei nachgewiesen werden.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	2
Einleitung	6
1 Wechselwirkung von Ionen mit Materie	10
1.1 Ladungszustände von Ionen beim Durchgang durch Materie . . .	10
1.1.1 Das Bohr'sche Kriterium	10
1.1.2 Umladungsprozesse bei Stößen mit Targetatomen . . .	11
1.1.3 Mittlere Ladungszustände von Gleichgewichtsladungs- verteilungen	14
1.2 Energieverlust von Ionen beim Durchgang durch Materie . . .	16
1.2.1 Elektronischer Energieverlust für vollständig ionisierte Projektile	17
1.2.2 Elektronischer Energieverlust für unvollständig ioni- sierte Projektile	18
1.3 Kleinwinkelstreuung	18
2 Isobarentrennung bei AMS	22
2.1 Isobarenunterdrückung in der Ionenquelle	22
2.1.1 Sputterionenquellen für negative Ionen	22
2.1.2 Elektronenaffinitäten der gesputterten Teilchen	23
2.2 Isobarentrennung durch Nacktstrippen der Ionen	24
2.3 Isobarentrennung durch Energieverlustmessungen	26
2.3.1 Untergrundreduzierung durch Winkelmessung im De- tektor	27
3 Isobarentrennung in einem gasgefüllten Magnetfeld	29
3.1 Räumliche Trennung von Isobaren im gasgefüllten Magnetfeld	30
3.2 Breite der räumliche Verteilung eines Ionenstrahls nach dem Durchlaufen eines gasgefüllten Magneteten	32
3.2.1 Statistik der Ladungsfluktuationen	34
3.2.2 Strahlverbreiterung durch multiple Kleinwinkelstreu- ung	35
3.3 Optimierung der Magnetfeldgeometrie	36

3.3.1	Optimierung des Ablenk winkels	37
3.3.2	Abschätzung der Breite einer Ortsverteilung aus experimentellen Daten	37
3.3.3	Monte-Carlo-Rechnungen zur Bestimmung der Orts- und Energieverteilung nach einem gasgefüllten Magneten	40
4	Experimenteller Aufbau	46
4.1	Der 135°-Magnet	46
4.2	Die Ionisationskammer	48
4.2.1	Funktionsweise einer Frischgitterionisationskammer	48
4.2.2	Aufbau der Ionisationskammer	52
4.3	Die Flugzeitstrecke	53
4.4	Signalverarbeitung und Datenaufnahme	59
5	Testmessungen mit stabilen Isotopen	61
5.1	Detektorauflösung und Breite der Energieverlustsignale	61
5.1.1	Energieauflösung	61
5.1.2	Orts- und x-Winkelauflösung	62
5.1.3	y-Winkelauflösung	62
5.1.4	Zeitauflösung der Flugzeitstrecke	63
5.2	Trennung von Isobaren im Ort	65
5.2.1	Abhängigkeit der Breite \mathcal{W} vom Gasdruck	65
5.2.2	Abhängigkeit der Breite \mathcal{W} vom Gas	65
5.2.3	Test der Isobarentrennung durch gleichzeitigen Einschluß von ^{58}Ni - und ^{58}Fe -Ionen	67
6	AMS-Messungen von langlebigen Radionukliden	71
6.1	AMS-Messungen mit ^{36}Cl	71
6.2	AMS-Messungen mit ^{53}Mn	73
6.2.1	Erzeugung von negativen Manganmolekülionen	73
6.3	AMS-Messungen mit ^{59}Ni	75
6.4	AMS-Messungen mit ^{60}Fe	75
6.4.1	Erzeugung der ^{60}Fe -Eichquelle	77
6.5	AMS-Messungen mit ^{129}I	78
6.6	Vergleich mit anderen hochempfindlichen Nachweismethoden	80
6.6.1	Andere AMS-Methoden	80
6.6.2	Alternative Methoden	81
7	Messung kosmogener Radionuklide in extraterrestrischer Materie	83
7.1	Die kosmische Strahlung	83
7.2	Kosmogene Nuklide	84
7.2.1	Produktion kosmogener Radionuklide	86

8 Ausblick	94
8.1 Nachweis supernovaproduzierter Radionuklide	94
8.2 Rekonstruktion des Neutronenspektrums der Hiroshimabombe	95
Verzeichnis der häufig verwendeten Symbole	96
Verzeichnis der Abbildungen	98
Verzeichnis der Tabellen	100
Literaturverzeichnis	101
Danksagung	113

Einleitung

Die Bestimmung kleinster Konzentrationen langlebiger Radionuklide hat Anwendungen auf vielen wissenschaftlichen Gebieten, wie z.B. die Datierung abgestorbener biologischer Substanzen über das $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ -Verhältnis [Lib69]. Geringe Mengen langlebiger Radionuklide (z.B. ^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{53}Mn , ^{59}Ni) werden in extraterrestrischer Materie durch Kernreaktion von der kosmischen Strahlung erzeugt [HA64, RA72]. Die Bestimmung der Radionuklidkonzentrationen kann einerseits Aufschluß über Fluß, Härte, Zusammensetzung und zeitliches Verhalten der kosmischen Strahlung, andererseits über die Geschichte der extraterrestrischen Materie in einem Zeitraum von der Größenordnung der Halbwertszeit der betreffenden Radionuklide geben. Kosmogen oder antropogen produzierte Radionuklide in der Erdatmosphäre, wie z.B. ^{36}Cl oder ^{41}Ca , eignen sich als Tracer für atmosphärische Transportprozesse [LP67, Elm82, Zer95, ZFK⁺96]. In-situ produzierte kosmogene Radionuklide in der Erdkruste (z.B. ^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl) liefern Informationen über Expositionsalter und Erosionsraten von geologischen Proben [NWK⁺89, GRHP96]. Wegen den langen Halbwertszeiten eignen sich Radionuklide wie ^{14}C , ^{26}Al , ^{41}Ca oder ^{60}Fe sehr gut als biomedizinische Tracer für Langzeitstudien [MSF⁺90], wegen der geringen spezifischen Aktivität auch für Experimente am Menschen [KSH⁺96].

Eben wegen dieser geringen spezifischen Aktivität ist der Nachweis über Aktivitätsmessungen nur mit einer begrenzten Empfindlichkeit möglich. Ein anderer Weg, die langlebigen Radionuklide nachzuweisen, ist eine *A*- und *Z*-Analyse der einzelnen Atome in der Meßprobe.

Beschleunigermassenspektrometrie (AMS=**A**ccelerator **M**ass **S**pectrometry) ist eine hochsensitive Meßmethode zur Bestimmung der Konzentration i.a. langlebiger Radionuklide in einer Matrix des stabilen Elements mit Empfindlichkeiten bis zu $< 10^{-15}$ [Gov78, HKSY81, WPA84, GLE87, YR90, FFST93]. Nach dem ersten AMS-Experiment, in dem 1939 von Alvarez und Cronog das Verhältnis $^3\text{He}/^4\text{He}$ am 60-inch-Zyklotron in Berkeley gemessen wurde¹, wurde die Methode erst wieder in den 70er Jahren zur ^{14}C -Datierung aktuell, da gegenüber der Meßung des Zerfalls der ^{14}C -Kerne deren Zählung einen

¹Bei ^3He handelt es sich um kein Radionuklid, damals wurde aber angenommen, daß ^3He instabil und Tritium stabil ist.

drastische Verbesserung der Empfindlichkeit bei wesentlich kürzeren Meßzeiten und kleineren Probenmengen versprach. Um $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ -Verhältnisse von einigen 10^{-15} , wie sie in einer etwa 50.000 a alten Probe vorliegen, bestimmen zu können, ist der Untergrund bei der konventionellen Massenspektrometrie um viele Größenordnungen zu hoch. Untergrund durch das stabile Isobar ^{14}N oder durch höher geladene Ionen mit einer entsprechen vielfachen Masse von ^{14}C kann durch Verwendung von negativen Ionen vermieden werden, weil Stickstoff keine stabilen negativen Ionen bildet und mehrfach geladene stabile negative Ionen bis auf wenige Ausnahmen (z.B. zweifach geladene Kohlenstoffcluster [SWC90]) ebenfalls nicht gebildet werden. Dennoch ist der Untergrund für konventionelle Massenspektrometrie zu hoch, da Molekülionen mit nahezu gleicher Masse wie ^{14}C ($^{12}\text{CH}_2^-$, $^{13}\text{CH}^-$) nicht hinreichend unterdrückt werden können.

Beschleunigt man jedoch die Ionen auf Energien im MeV-Bereich, kann der molekulare Untergrund in einer Folie oder in einem Gasjet aufgebrochen und danach magnetisch separiert werden. Zudem erlaubt die hohe Energie eine Teilchenidentifizierung mit kernphysikalischen Meßmethoden.

Wegen der Vorteile durch den Einschub negativer Ionen, dem obligatorischen Stripper und der guten Strahlqualität werden AMS-Messungen heute fast ausschließlich mit Tandembeschleunigern durchgeführt. In Abbildung 0.1 ist das Grundprinzip einer AMS-Anlage gezeigt.

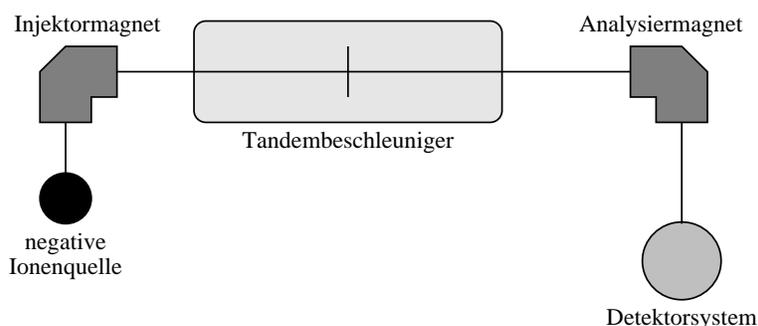


Abbildung 0.1: *Prinzipieller Aufbau einer AMS-Anlage. Nach einer ersten magnetischen (und elektrostatischen) Analyse werden die Ionen in den Tandembeschleuniger eingeschossen. Im Terminalstripper werden die Moleküle aufgebrochen und im nachfolgenden Analysiermagneten ein Ladungszustand des zu messenden Radioisotops selektiert. Das Detektorsystem ist je nach Anforderungen, Isotop und Energie verschieden.*

Für schwerere AMS-Isotope wie ^{36}Cl , ^{53}Mn , ^{59}Ni , ^{60}Fe usw. stellt sich die Situation schwieriger dar. Ein stabiles Isobar, das praktisch immer als Verunreinigung in der Meßprobe vorhanden ist, bildet in den meisten Fällen negative Ionen und ist die Hauptquelle für Untergrund. Der relative Massenunterschied zu den stabilen Nachbarisotopen ist bei höheren Massen geringer,

so daß diese nicht vollständig unterdrückt werden und somit ebenfalls zum Untergrund beitragen. Dieser Untergrund muß durch ein geeignetes Detektorsystem unterdrückt werden.

Während zur Messung von leichten Isotopen wie ^{10}Be , ^{14}C oder ^{26}Al kleine Beschleuniger mit einer Terminalspannung von 2-3 MV Terminalspannung wegen der erreichbaren sehr hohen Meßgenauigkeit von Vorteil sind² [KCF⁺96, GEG⁺96, RYB⁺94], wird zur effizienten Unterdrückung des Untergrundes bei schwereren Ionen deutlich mehr Energie benötigt. Der Unterschied zweier Isobare im differentiellen Energieverlust ist bei Energien unterhalb des Braggmaximums weniger deutlich ausgeprägt, während eine erhöhte Energieverluststreuung bei kleineren Energien zur Verbreiterung der Energieverteilungen im Detektor führt.

Eine Möglichkeit, isobaren Untergrund, allerdings nur mit kleinerem Z als dem des AMS-Nuklids, praktisch vollständig zu unterdrücken, besteht darin, die Ionen vollständig zu ionisieren [RYS79, KKN83]. Wegen der geringen Nacktstrippausbeuten sind bei dieser Methode aber sehr hohe Energien notwendig.

Ein anderer Weg zur Isobarenunterdrückung ist die Ablenkung des Ionenstrahls in einem gasgefüllten Magnetfeld. Die Ionen nehmen durch Wechselwirkung mit den Gasatomen einen mittleren Ladungszustand \bar{q} ein, der von der Kernladungszahl abhängt, so daß Isobare an verschiedenen Orten aus dem Magnetfeld austreten. Hierfür ist ebenfalls eine hohe Strahlenergie notwendig, da einerseits ein möglichst hoher Gasdruck wünschenswert ist, andererseits die Energie möglichst hoch sein soll, damit die Strahlverbreiterung durch multiple Kleinwinkelstreuung im Gas gering ist und die Ionen im Detektor noch genügend Energie für Energieverlustmessungen besitzen.

Die ersten AMS-Messungen dieser Art wurden am Argonne National Laboratory mit einem Enge-Splitpole-Magnetspektrographen durchgeführt [PGH⁺89], am Garching MP-Tandem ($TV_{max}=15\text{ MV}$) wurde hierfür der Q3D-Spektrograph gasgefüllt [FGK⁺87, MBF⁺92, KFK⁺94]. Aufgrund der bereits hier erreichten hohen Empfindlichkeit und Effizienz wurde im Rahmen dieser Arbeit ein für AMS-Anwendungen im Massenbereich $30 < A < 140$ dediziertes System, bestehend aus Flugzeitstrecke, gasgefülltem 135° -Diplomagneten und orts- und winkelauflösender Ionisationskammer mit multipler Energieverlustmessung, aufgebaut.

In Kapitel 1 dieser Arbeit werden relevante physikalische Grundlagen der Wechselwirkung von hochenergetischen Ionen mit Materie, wie Energieverlust, Kleinwinkelstreuung und Umladungsprozesse, behandelt.

Auf die sich daraus ergebenden Möglichkeiten zur Untergrundunterdrückung bei AMS-Anwendungen wird in Kapitel 2 eingegangen. Die Möglichkeit der Isobarenseparation in einem gasgefüllten Magneten wird gesondert in Kapitel

²Es ist ausreichend, wenn sichergestellt ist, daß alle Molekülionen im Terminal aufgebrochen werden.

3 besprochen.

Der experimentelle Aufbau ist in Kapitel 4 gezeigt, die Ergebnisse von ersten Testmessungen und AMS-Messungen von ^{36}Cl , ^{53}Mn , ^{59}Ni , ^{60}Fe und ^{129}I finden sich in den Kapiteln 5 und 6. Die Ergebnisse werden mit den anderer AMS-Methoden bzw. alternativen Meßmethoden wie Laserresonanzionisationsspektrometrie oder radiochemischer Neutronenaktivierungsanalys verglichen.

Im Kapitel 7 wird auf die Anwendung dieser Meßmethode in der extraterrestrischer Physik eingegangen, im abschließenden Kapitel 8 auf zwei weitere mögliche Anwendungen in der Astrophysik und Dosimetrie.

Kapitel 1

Wechselwirkung von Ionen mit Materie

Die typischen Teilchenenergien bei AMS-Anwendungen liegen in einem Bereich, wo keine Kernreaktionen in Betracht gezogen werden müssen, da die Coulombbarriere nicht überschritten wird. Die Wechselwirkungen zwischen den schnellen Ionen und den Targetatomen (z.B. Stripperfolie oder -gas, Gas in der Kammer des Magneten oder Gas in der Ionisationskammer) sind ausschließlich elektromagnetisch.

In diesem Kapitel werden drei für die Isobarensparation entscheidende Punkte behandelt: Umladung, Streuung und Energieverlust von Projektionen, bedingt durch die Wechselwirkungen mit dem Targetmaterial.

1.1 Ladungszustände von Ionen beim Durchgang durch Materie

Der mittlere Ladungszustand q_m eines Ions während seiner Wechselwirkung mit Materie ist in dieser Arbeit von zentraler Bedeutung. Die Trajektorie des Ions in einem gasgefüllten Magnetfeld wird durch seinen Ladungszustand ebenso bestimmt, wie sein differentieller Energieverlust dE/dx . Die Z -Abhängigkeit von q_m gibt deshalb die Möglichkeit, Isobare in einem gasgefüllten Magneten räumlich zu trennen sowie über ihren unterschiedlichen differentiellen Energieverlust im Detektor zu unterscheiden.

1.1.1 Das Bohr'sche Kriterium

Die ersten bedeutenden Arbeiten zu Strippwahrscheinlichkeiten für Ionen, die ein Medium durchdringen, stammen von Bohr [Boh40, Boh41]. Elektronen, deren Orbitalgeschwindigkeit v_e kleiner ist als die Geschwindigkeit des Projektilions v_P relativ zum Medium, werden durch Kollisionen mit den

Targetteilchen sehr wahrscheinlich gestrippt. Für Elektronen mit $v_e > v_P$ können die Wechselwirkungen mit den Potentialen der Targetatome als adiabatisch angesehen werden, d.h. für diese Elektronen sind die Potentialänderungen relativ langsam, und sie verbleiben am Ion. Das Bohr'sche Kriterium besagt, daß für $v_e = v_P$ ungefähr 50% der Elektronen gestrippt werden (Siehe auch Abschnitt 2.2).

1.1.2 Umladungsprozesse bei Stößen mit Targetatomen

Bei einem Stoß mit einem Targetatom kann ein Ion seine Ladung durch Verlust oder Einfang von Elektronen verändern. Die Wahrscheinlichkeit, daß ein Ion der Ladung q nach dem Stoß die Ladung q' hat, soll durch den Wirkungsquerschnitt $\sigma_{qq'}$ ausgedrückt werden. $Y_q(x)$ sei die Besetzungswahrscheinlichkeit des Ladungszustandes q nach einer Strecke x im Target. Bei einem Ensemble gleicher Ionen entsprechen die $Y_q(x)$ dann der Ladungsverteilung ($\sum_q Y_q(x) = 1$). Die Einheit für $\sigma_{qq'}$ ist cm^2 (pro Targetatom oder -molekül), für x Atome oder Moleküle pro cm^2 .

Vor der Wechselwirkung mit dem Target ist die Ladungsverteilung im allgemeinen scharf, d.h. $Y_q(0) = \delta_{qq_i}$. Durch Umladungsstöße kann diese Ladungsverteilung verändert werden. Dies läßt sich durch ein System linearer Differentialgleichungen ausdrücken [DN68]:

$$\frac{d}{dx} Y_q(x) = \sum_{q'} (\sigma_{q'q} Y_{q'}(x) - \sigma_{qq'} Y_q(x)) \quad (1.1)$$

Die beiden Terme in Gleichung 1.1 entsprechen der Be- bzw. Entvölkerung des Ladungszustands q . Für die Gültigkeit von Gleichung 1.1 ist es wichtig, daß die Ionenhüllen nach einem Stoß genügend Zeit haben, sich abzuregen, damit die Wechselwirkungen immer mit den Grundzustand des Ions stattfinden. Ansonsten sind die $\sigma_{qq'}$ abhängig vom Anregungszustand des Ions. Diese Bedingung ist für verdünnte Gase erfüllt. Bei der Wechselwirkung mit Festkörpern werden höhere Ladungszustände häufiger bevölkert, da sich beim gleichen Ladungszustand mehr Elektronen auf äußeren, schwächer gebundenen Schalen befinden, von wo sie wahrscheinlicher beim nächsten Stoß verloren werden.

Nach hinreichend vielen Stößen stellt sich eine Gleichgewichtsladungsverteilung F_q ein, mit $\frac{d}{dx} F_q(x) = 0$. Dies ist relativ schnell der Fall¹, so daß der Energieverlust und die damit verbundene Änderung der $\sigma_{qq'}$ vernachlässigt werden kann. F_q kann mittels magnetischer Analyse des Ionenstrahls nach

¹Die Stripperfolien in einem Tandembeschleuniger sind beispielsweise nur einige $\frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$ dick

dem Target empirisch bestimmt werden. Eine bekannte Gleichgewichtsladungsverteilung läßt jedoch nur qualitative Aussagen über Umladungsquerschnitte zu.

Im allgemeinen wird eine Ladungsverteilung mit einer Gaußkurve um einen mittleren Ladungszustand \bar{q} angenähert, was für mittelhohe Ladungszustände ($0.25 \leq \frac{q}{Z_p} \leq 0.75$) und nicht zu große Differenzen $|q - \bar{q}|$ sehr gut mit Meßwerten übereinstimmt. Wenn nur Umladungsprozesse mit $\Delta q = 1$ berücksichtigt werden, kann man mit den Ansatz:

$$\begin{aligned}\sigma_{q,q-1} &= \sigma_c = A_c \exp [b_c(q - \bar{q})], \\ \sigma_{q,q+1} &= \sigma_l = A_l \exp [b_l(\bar{q} - q)], \\ A_c &= A_l \exp \left(\frac{b_l - b_c}{2} \right)\end{aligned}\tag{1.2}$$

eine Gaußverteilung um \bar{q} erreicht werden, wie in [Bel53] gezeigt wird. Dieser Ansatz für die Umladungsquerschnitte ist physikalisch plausibel, da für niedrige Ladungszustände wegen des Bohrkriteriums σ_l ansteigen und σ_c abfallen muß. Das gleiche gilt vice versa für hohe Ladungszustände. Für die Breite der Gaußkurve d_q (1σ) ergibt sich:

$$d_q = \frac{1}{\sqrt{b_c + b_l}}.\tag{1.3}$$

Berücksichtigt man auch Umladungen mit $\Delta q > 1$, bekommt die Gaußverteilung Ausläufer nach links bzw. rechts, je nachdem wie groß die Querschnitte für Einfang bzw. Abgabe mehrerer Elektronen sind. Da Einfang mehrerer Elektronen bei einem Stoß sehr unwahrscheinlich ist, sind in der Realität die Ausläufer meist in Richtung hoher Ladungszustände [Bet72].

Werte für die Parameter A_l und A_c können aus einer gemessenen Gleichgewichtsladungsverteilung nicht bestimmt werden. Um quantitative Aussagen über Umladungsquerschnitte, müssen Ladungsverteilungen Y_q gemessen werden, bevor sie, ausgehend von einem festen Ladungszustand q_i , das Gleichgewicht erreicht haben. Der experimentelle Aufbau hierzu besteht im wesentlichen aus einem Gasstripper ($d \approx 1 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$) und einem magnetischen Analysesystem [Bet72]. Die Umladungsquerschnitte können dann numerisch aus Gleichung 1.1 bestimmt werden. Abbildung 1.1 zeigt an der ETH Zürich gemessene Umladungsquerschnitte für 42 MeV ^{28}Si -Ionen mit Argon- bzw. Stickstofftargets [Zop93]. An diesen Kurve kann man erkennen, daß σ_l mit steigender Ladungszahl sinkt, während σ_c ansteigt, d.h. die Grundannahmen in Gleichung 1.2 sind mit diesen Meßwerten im Einklang. Zudem ist eine deutliche Abhängigkeit vom Targetmaterial zu erkennen. Sowohl σ_l als auch σ_c sind unter sonst gleichen Bedingungen bei Argon etwa doppelt so hoch als bei Stickstoff. Eine Vielzahl von Umladungsquerschnitten, allerdings meist

für kleinere Projektilenergien, ist in [Bet72] aufgeführt. Der qualitative Verlauf der Umladungsquerschnitte ist aber für alle schweren Ionen gleich.

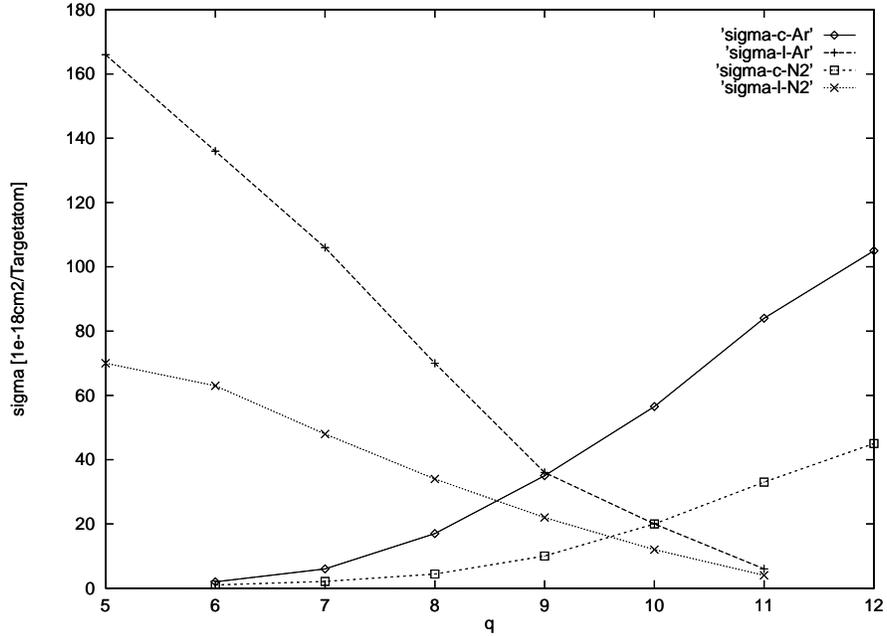


Abbildung 1.1: Gemessene Wirkungsquerschnitte für Einfang (σ_c) oder Verlust (σ_l) eines oder mehrerer Elektronen von ^{28}Si -Ionen ($E=42\text{ MeV}$) mit dem Ladungszustand q bei Wechselwirkung mit einem Argon- oder Stickstofftarget in Einheiten von 10^{-18} cm^2 pro Targetatom [Zop93].

Zur theoretischen Beschreibung von Umladungsquerschnitten wurden mehrere Ansätze gemacht [Boh48, Bel53, Glu55, Nik58, ND68], die aber wegen der Komplexität der Umladungsprozesse allesamt nur sehr ungenaue Ergebnisse liefern und meist nur einen limitierten Gültigkeitsbereich haben. In allen Theorien steigen jedoch die Umladungsquerschnitte, sowohl für Elektroneneinfang als auch für Elektronenverlust, mit der Kernladungszahl Z_T des Targetmaterials an. Es ergibt sich ein Zusammenhang

$$\begin{aligned}\sigma_l &\propto Z_T^{\frac{2}{3}} \dots Z_T^2, \\ \sigma_c &\propto Z_T^{\frac{1}{3}} \dots Z_T^{\frac{2}{3}},\end{aligned}\tag{1.4}$$

d.h. je höher die Kernladungszahl Z_T des Targets ist, desto mehr Umladungen finden bei gleicher Teilchendichte statt (siehe Abbildung 1.1).

1.1.3 Mittlere Ladungszustände von Gleichgewichts- ladungsverteilungen

Die ersten Ansätze zur Bestimmung des mittleren Ladungszustandes einer Gleichgewichtsladungsverteilung \bar{q} stammen von Bohr und basieren auf dem Bohr'schen Kriterium. Die daraus abgeleiteten Ergebnisse liegen zwar im Mittel 20–30% zu hoch, wegen der Plausibilität und qualitativen Richtigkeit sei hier aber kurz darauf eingegangen.

Die Orbitalgeschwindigkeit eines Elektrons mit der Hauptquantenzahl n beträgt bei einem wasserstoffähnlichen Ion $v_e = v_0 Z/n$, mit der Bohrgeschwindigkeit² v_0 . Um Abschirmungseffekte des Kernpotentials durch andere Elektronen zu berücksichtigen, kann man für v_e ansetzen:

$$v_e = \frac{Z_P^*}{n^*} v_0. \quad (1.5)$$

Z_P^* ist eine effektive Kernladungszahl für den Ort des betreffenden Elektrones. Sie wird so gewählt, daß das Coulombpotential einer (unabgeschirmten) Kernladung Z_P^* dem durch weiter innen liegende Elektronen abgeschirmten Kernpotential entspricht. Z_P^* muß somit ungefähr der Anzahl der weiter äußeren Elektronen, d.h. Elektronen mit Bahngeschwindigkeiten kleiner v_e , entsprechen. Setzt man $v_e = v_P$ und wendet das Bohr-Kriterium an, werden ebendiese äußeren Elektronen gestrippt. Für den mittleren Ladungszustand ergibt sich demnach $\bar{q} = Z_P^*$.

n^* ist die effektive Quantenzahl für die äußeren Elektronen. Für Ionen der Ladung $q \approx Z_P/2$ (oder genauer $v_0 < v_P < Z_P^{2/3} v_0$) entspricht sie in etwa $Z_P^{1/3}$. Für den mittleren Ladungszustand ergibt sich dann:

$$\bar{q} = \frac{v_P}{v_0} Z_P^{\frac{1}{3}}. \quad (1.6)$$

Bereits diese Überlegungen lieferten eine Abhängigkeit des mittleren Ladungszustandes \bar{q} des Projektils von seiner Kernladungszahl Z_P .

Eine semiempirische Formel für \bar{q} wurde von Dmitriev und Nikolaev angegeben [DN68]. Sie setzten sie die Orbitalgeschwindigkeit zu $v_e = Z_P^\alpha \cdot f\left(\frac{q}{Z_P}\right)$ an, wobei f eine monoton steigende Funktion ist. Anwendung des Bohrkriteriums und anschließendes Logarithmieren liefert:

$$\ln v_P = \alpha \cdot \ln Z_P + \ln f\left(\frac{\bar{q}}{Z_P}\right). \quad (1.7)$$

Im Bereich $0.3 \cdot Z_P \leq \bar{q} \leq 0.9 \cdot Z_P$ ist der lineare Zusammenhang von $\ln v_P$ und $\ln Z_P$ bei festem q/Z_P in guter Übereinstimmung mit Meßwerten. Die Steigung der Meßkurven ist jedoch abhängig vom Ionisierungsgrad \bar{q}/Z_P der Projektils, d.h. α ist wie f eine Funktion von \bar{q}/Z_P . Mit dem Ansatz $\alpha =$

² $v_0 = \frac{e^2}{\hbar} = 2.188 \cdot 10^6 \frac{\text{m}}{\text{s}}$

$\alpha_1 + \frac{\bar{q}}{Z_P}\alpha_2$, $f = f_1 + \frac{\bar{q}}{Z_P}f_2$ folgt dann aus Gleichung 1.7 für den mittleren Ladungszustand³:

$$\bar{q} = Z_P \cdot \frac{\ln\left(\frac{v_P}{f_1 Z_P^{\alpha_1}}\right)}{\ln(f_2 Z_P^{\alpha_2})}. \quad (1.8)$$

v_P ist in Einheiten von 10^8 cm/s einzusetzen. Die Parameter α_1 , α_2 , f_1 und f_2 werden an Meßdaten angepaßt. Sie haben je nach Target unterschiedliche Werte. Beispielsweise für Stickstoff oder Argontargets ist:

$$\alpha_1 = 0.4, \alpha_2 = 0.3, f_1 = 0.9 \text{ und } f_2 = 7.0,$$

für Festkörpertargets ist:

$$\alpha_1 = 0.1, \alpha_2 = 0.6, f_1 = 1.2 \text{ und } f_2 = 5.0.$$

Eine weitere Parametrisierung von gemessenen Gleichgewichtsverteilungen wurde von Betz et. al. [BHL⁺66] vorgenommen. Sie erhielten für $10 \leq Z_P \leq 92$ und $v \geq v_0$ einen mittleren Ladungszustand⁴:

$$\bar{q} = Z_P \cdot \left[1 - C \cdot \left(0.71 Z_P^a \frac{v_P}{v_0} \right) \right]. \quad (1.9)$$

Die Parameter C und a sind abhängig von Target und Projektil. Z.B. für Schwefelionen und Luftstripper ist $C = 1.135$ und $a = 0.067$.

Eine semiempirische Formel, die im Gegensatz zu Gleichung 1.8 und 1.9 universell für alle Gastargets und Projektilen gilt, wurde von Sayer gegeben [Say77]:

$$\bar{q} = Z_P \cdot \left(1 - 1.08 \cdot \exp \left[-80.1 Z_P^{-0.506} \left(\frac{v}{c} \right)^{0.996} \right] \right). \quad (1.10)$$

Für Festkörpertargets wird die mittlere Ladung beschrieben durch:

$$\bar{q} = Z_P \cdot \left(1 - 1.03 \cdot \exp \left[-47.3 Z_P^{-0.380} \left(\frac{v}{c} \right)^{0.860} \right] \right). \quad (1.11)$$

Die Parametrisierung von \bar{q} durch die Gleichung 1.10 von Sayer zeigt die beste Übereinstimmung mit Meßwerten (vergleiche auch Fig. 5.10 in [Bet72]). In Abbildung 1.2 sind die mittleren Ladungszustände für ⁵⁹Ni-Ionen, die sich aus den obigen Parametrisierungen ergeben gegen die Projektilenergie aufgetragen.

Bei allen Parametrisierungen ist der mittlere Ladungszustand abhängig von der Kernladungszahl Z_P des Projektils. Wegen der universellen Gültigkeit wird in dieser Arbeit i.a. Gleichung 1.10 von Sayer verwendet.

Für die Breite d_q einer Ladungsverteilung zeigen die Parametrisierungen

³In der Originalveröffentlichung steht $Z_P^{\alpha_1}$ fälschlicherweise in Zähler

⁴Die Energie z.B. eines ⁵⁹Ni-Ions mit der Geschwindigkeit v_0 beträgt 1.46 MeV

$$d_q = 0.35 Z_P^{0.55} \left[\left(\frac{\bar{q}}{Z_P} \right) \left(1 - \frac{\bar{q}}{Z_P} \right) \right]^{0.27} \quad (1.12)$$

für Gastargets, und

$$d_q = 0.48 Z_P^{0.45} \left[\left(\frac{\bar{q}}{Z_P} \right) \left(1 - \frac{\bar{q}}{Z_P} \right) \right]^{0.26} \quad (1.13)$$

für Festkörpertargets die beste Übereinstimmung mit Meßwerten [Say77].

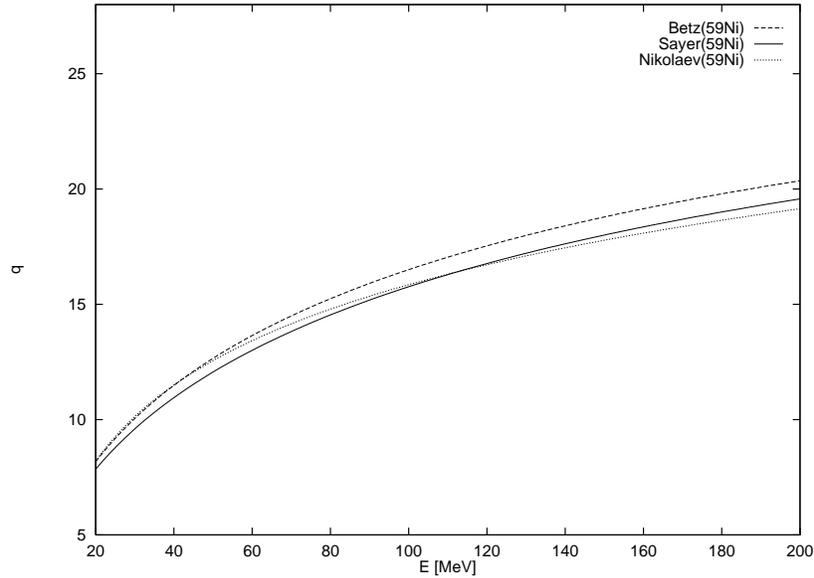


Abbildung 1.2: Mit Parametrisierungen von Nikolaev et. al., Betz et. al. und Sayer (Gleichungen 1.8,1.9,1.10) berechneter mittlerer Ladungszustand \bar{q} für ^{59}Ni -Ionen gegen deren Energie. In Gleichung 1.9 wurde mit $C=1.1$ ein mittlerer Wert eingesetzt, da in [BHL⁺66] kein Wert für Nickelprojektile angegeben ist.

1.2 Energieverlust von Ionen beim Durchgang durch Materie

Ein entscheidender Punkt, der eine Unterscheidung von isobaren, hochenergetischen Ionen erlaubt, ist die Z -Abhängigkeit des differentiellen Energieverlustes dE/dx (siehe Abschnitt 2.3).

Der Energieverlust, den Ionen beim Durchgang durch Materie erleiden, beruht auf der Streuung der Projektile an den Coulombfeldern der Targetkerne und -elektronen. Dementsprechend spricht man von nuklearem und elektronischem Energieverlust. Der nukleare Energieverlust wird durch Rutherfordstreuung der Projektile an den Targetkernen verursacht.

In dem für AMS-Experimente relevanten Energiebereich von einigen MeV bis zu einigen 100 MeV ist jedoch der nukleare Energieverlust nicht von Bedeutung. Sein Beitrag zum gesamten Energieverlust beträgt bei Energien über 200 keV/u weniger als 1%. Es ist also ausreichend, nur Stöße mit den Targetelektronen zu berücksichtigen.

1.2.1 Elektronischer Energieverlust für vollständig ionisierte Projektile

Folgende Ausführungen gelten nur für Ionen, die während der hier relevanten Prozesse alle Elektronen abgestrippt haben, so daß nur die Wechselwirkungen Projektilkern-Targetelektronen berücksichtigt werden müssen. In der Praxis gilt diese Bedingung im typischen Energiebereich eines Tandembeschleunigers nur für sehr leichte Ionen.

Ein Projektilion, das sich über eine Strecke l in Materie bewegt, erfährt einen Energieverlust ΔE . Es gilt:

$$\Delta E = \int_0^l \frac{dE}{dx}(E) dx. \quad (1.14)$$

Für hohe Projektilgeschwindigkeiten v_P ($E_P \approx 10$ MeV/u) läßt sich der differentielle elektronische Energieverlust $(dE/dx)_{el}$ durch die Bethe-Bloch-Gleichung [Bet30, Blo33] angeben. In ihrer nichtrelativistischen Form lautet sie:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{el} = 4\pi \frac{Z_P^2 e^4}{m_e v_P^2} n \ln \left(\frac{2m_e v_P^2}{I}\right), \quad (1.15)$$

mit I als effektivem Ionisationspotential und n als Elektronendichte im Target (Werte für I siehe z.B. [CP72]). Der Verlauf des differentiellen Energieverlustes ist in diesem Geschwindigkeitsbereich ungefähr proportional zu v_P^{-2} .

Bei kleineren Geschwindigkeiten müssen Abschirmungseffekte des Targetkernpotentials durch innere Hüllenelektronen berücksichtigt werden, weil der Abstand der beiden Stoßpartner größer wird. Die theoretische Behandlung von Lindhard und Scharff [LS61] ergibt

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{el} = 8\pi Z_P^{\frac{1}{2}} e^2 a_0 n \cdot \frac{Z_P Z_T}{(Z_P^{\frac{2}{3}} + Z_T^{\frac{2}{3}})^{\frac{3}{2}}} \cdot \frac{v_P}{v_0}. \quad (1.16)$$

In diesem Energiebereich besteht ein linearer Zusammenhang zwischen differentieller Energieverlust und Projektilgeschwindigkeit.

Sowohl im Lindhard-Scharff- (Gleichung 1.16) als auch Bethe-Bloch-Bereich (Gleichung 1.15) ist der differentielle Energieverlust abhängig von der Kernladungszahl Z_P des Projektils. Die wesentlich stärkere Abhängigkeit besteht aber im Bethe-Bloch-Bereich.

Der maximale differentielle Energieverlust zwischen beiden Bereichen wird als Braggpeak bezeichnet.

1.2.2 Elektronischer Energieverlust für unvollständig ionisierte Projektile

Für schwere Ionen müssen obige Überlegungen erweitert werden, weil hier die Projektile nicht mehr nackt sind. Das Target wechselwirkt nun mit dem nun ebenfalls abgeschirmten Coulombfeld des Projektils der Ladung q . Die Kernladungszahl Z_P in Gleichung 1.15 wird ersetzt durch die momentane Ladung q des Projektils. Es ergibt sich:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{el} = 4\pi \cdot \frac{q^2 e^4}{m_e v_P^2} \cdot n \cdot \ln\left(\frac{2m_e v_P^2}{I}\right). \quad (1.17)$$

Geht man von einem hinreichend dicken Target aus, können die Ionen mit genügend Targetatomen wechselwirken. Viele dieser Wechselwirkungen sind mit einer Abgabe oder Aufnahme der Elektronen verbunden, so daß es sinnvoll ist, einen mittleren (oder effektiven) Ladungszustand \bar{q} eines Ions einzuführen, um den die momentane Ladung q statistisch fluktuiert. \bar{q} kann dann anstelle von q in Gleichung 1.17 eingesetzt werden.

Da \bar{q} aber, wie in Abschnitt 1.1 besprochen, von der Kernladungszahl abhängt, gilt dies auch für den differentiellen Energieverlust von schweren, nur teilweise gestrippten Ionen.

Daten für den differentiellen Energieverlust sind tabelliert, z.B. in [NS70, Zie80] und können mit darauf basierenden Computerprogrammen wie ENELOSS [Ern] oder TRIM [ZBL92] berechnet werden.

1.3 Kleinwinkelstreuung

Die Wechselwirkung der Projektile mit dem Targetmedium führt zur (multiplen) Streuung an den Targetatomen und somit zur Aufweitung des Ionenstrahls. Dadurch wird die räumlichen Isobarenseparation im gasgefüllten Magnetfeld verschlechtert, wie später in Kapitel 3 noch ausführlich behandelt wird.

Von Sigmund und Winterbon [SW74] wird diese Strahlaufweitung quantitativ behandelt⁵. Grundannahmen dieser Theorie sind:

1. Zufällige und homogene räumliche Verteilung der Streuzentren,
2. Zweierstöße mit azimuthaler Streusymmetrie,
3. vernachlässigbarer Energieverlust bei der Streuung,

⁵Alle Gleichungen in diesem Abschnitt sind in CGS-Einheiten angegeben.

4. kleine Streuwinkel.

Um unterschiedliche Projektil-Targetsysteme einheitlich behandeln zu können, müssen reduzierte Koordinaten eingeführt werden: eine reduzierte Targetdicke (bzw. Massenbelegung) τ^6 , mit

$$\tau = 4.08 \cdot 10^4 \frac{d[\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}]}{A_T \left(Z_P^{\frac{2}{3}} + Z_T^{\frac{2}{3}} \right)}, \quad (1.18)$$

und einen reduzierten Streuwinkel $\tilde{\alpha}$

$$\tilde{\alpha} = \frac{aE}{2Z_P Z_T e^2} \alpha = \frac{E}{\mathcal{A}} \alpha \quad (1.19)$$

mit $a = 0.465 \cdot 10^{-8} \text{cm} \left(Z_P^{2/3} + Z_T^{2/3} \right)^{-1/2}$ und $\mathcal{A} = 2Z_P Z_T e^2 a^{-1}$.

α ist hierbei der Winkel des Projektils zur Strahlachse nach der Wechselwirkung mit dem Target.

Die Winkelverteilungen $f(\tau, \tilde{\alpha})$ sind für ein Thomas-Fermi-Potential numerisch bestimmt und in [SW74] tabelliert.

Bei AMS-Messungen mit einem gasgefüllten Magneten entspricht das Gas in der Magnetkammer dem Target. Die Massenbelegung von einigen mg cm^{-2} ist hier aber so groß, so daß der Energieverlust der Projektile nicht mehr vernachlässigt werden kann (3. Grundannahme). In diesem Fall lassen sich die Werte von Sigmund und Winterbon nicht mehr direkt übernehmen.

Die Halbwertsbreiten $\tilde{\alpha}_{\frac{1}{2}}$ der Winkelverteilungen $f(\tau, \tilde{\alpha})$ wurden durch die Funktion

$$\tilde{\alpha}_{\frac{1}{2}}(\tau) = 0.437\tau^{0.634} \quad (1.20)$$

angefittet [Fae]. Im Bereich im Bereich $5 < \tau < 2000$ beträgt der Fehler dieser Näherung weniger als 5%⁷.

Zur Bestimmung von der Breite der Winkelverteilung $\alpha_{\frac{1}{2}}$ muß über Teilstücke $\Delta\tau$ summiert werden, die hinreichend klein sind, um den Energieverlust vernachlässigen zu können.

Aus Gleichung 1.20 folgt, so lange die Energieänderung in der Dicke $\tau_0 = n_i \Delta\tau$ vernachlässigbar ist:

$$\tilde{\alpha}_{\frac{1}{2}}(\tau_0) = n^{0.634} \tilde{\alpha}_{\frac{1}{2}}(\Delta\tau) = \left[\sum_{i=0}^{n-1} (\Delta\tau_i)^{-0.634} \right]^{0.634}, \quad (1.21)$$

⁶Für ⁵⁹Ni-Ionen in Stickstoff ergibt sich für die reduzierte Massenbelegung $\tau = 453d$ [mg cm^{-2}].

⁷In einer Veröffentlichung von Burch und Green [BG75] wird $\tilde{\alpha}(\tau) = 0.347\tau^{0.754}$ angegeben. Die Übereinstimmung dieses Fits mit experimentellen Werten⁸ liegt im Bereich von $\pm 20\%$.

und analog, für sich ändernde Energie, wegen Gleichung 1.19

$$\alpha_{\frac{1}{2}}(\tau_0) = \left(\sum_{i=0}^{n-1} \left[\frac{\mathcal{A}\tilde{\alpha}_{\frac{1}{2}}(\Delta\tau)}{E(i\Delta\tau)} \right]^{1.58} \right)^{0.634}, \quad (1.22)$$

$$\alpha_{\frac{1}{2}}(\tau_0) = \mathcal{A} \cdot \underbrace{0.437\Delta\tau^{0.634}}_{\tilde{\alpha}_{\frac{1}{2}}(\Delta\tau)} \left(\sum_{i=0}^{n-1} [E(i\Delta\tau)]^{-1.58} \right)^{0.634}. \quad (1.23)$$

$E(i\Delta\tau)$ ist diejenige Energie, die ein Teilchen mit der Anfangsenergie E_0 nach einer Strecke $i \cdot \Delta\tau$ im Absorber noch besitzt⁹. Gleichung 1.23 läßt sich in Integralform darstellen:

$$\alpha_{\frac{1}{2}}(\tau_0) = 0.437\mathcal{A} \left(\int_0^{\tau_0} [E(\tau)]^{-1.58} d\tau \right)^{0.634} \quad (1.24)$$

Vernachlässigt man die Energieabhängigkeit des differentiellen Energieverlustes¹⁰ dE/dx , kann man mit $E(\tau) = E_0 - \mathcal{E}\tau$ das Integral in Gleichung 1.24 lösen und es ergibt sich schließlich:

$$\alpha_{\frac{1}{2}}(\tau_0) = 0.617\mathcal{A} \left(\frac{1}{\mathcal{E}} \left[(E_0 - \mathcal{E}\tau_0)^{-0.58} - E_0^{-0.58} \right] \right)^{0.634}. \quad (1.25)$$

Die mit Gleichung 1.25 berechnete Breite ist in guter Übereinstimmung mit experimentellen Werten in Abschnitt 3.3.2. In den Abbildungen 1.3 und 1.4 ist die sich aus Gleichung 1.25 ergebende Abhängigkeit der Kleinwinkelstreuung von der Ionenenergie bzw. von der Kernladungszahl des verwendeten Gases dargestellt.

⁹Die Exponenten 1.58 und 0.634 in Gleichung 1.22 und 1.23 sind wegen der Form der Winkelverteilung $f(\tau, \tilde{\alpha})$. Im Falle einer Gaußverteilung stünde an ihrer Stelle 2 und $\frac{1}{2}$.

¹⁰Bei AMS-Messungen von z.B. ⁵⁹Ni ist der typische Energiebereich der Ionen während ihrer Wechselwirkung mit dem Stickstoffgas in der Magnetkammer 180–90 MeV. Ihr differentieller Energieverlust steigt hierbei nach [NS70] von 31.0 auf $35.5 \frac{\text{MeV}}{\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}}$, so daß der Fehler durch Verwendung eines mittleren Energieverlustes maximal 6% beträgt.

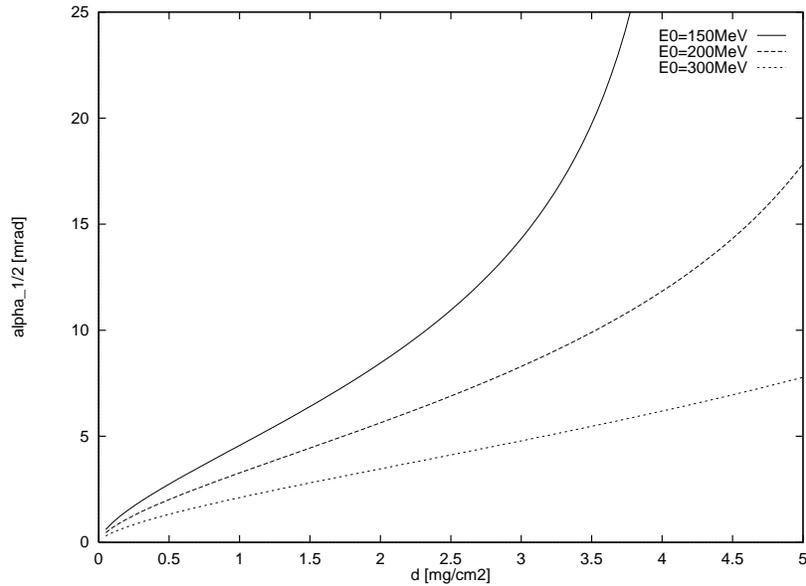


Abbildung 1.3: Nach Gleichung 1.25 berechnete Halbwinkel $\alpha_{\frac{1}{2}}$ der Kleinwinkelstreuung von ^{59}Ni -Ionen mit einer Einschussenergie E_0 von 150, 200 und 300 MeV in Stickstoffgas gegen die Massenbelegung des Targets.

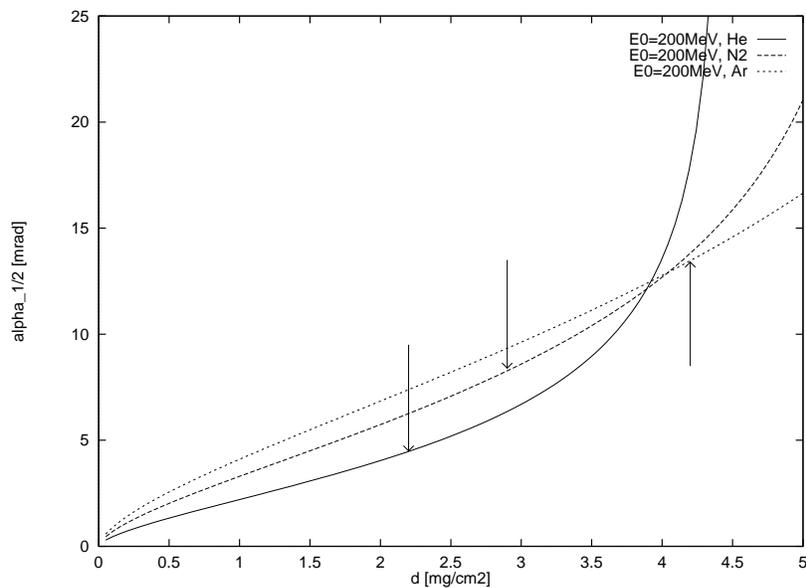


Abbildung 1.4: Nach Gleichung 1.25 berechnete Halbwinkel $\alpha_{\frac{1}{2}}$ der Kleinwinkelstreuung von ^{59}Ni -Ionen mit einer Einschussenergie $E_0 = 200$ MeV in Helium, Stickstoff und Argon. Diejenigen Massenbelegungen, bei denen die Projektilenergie auf 100 MeV abgenommen hat, sind durch Pfeile gekennzeichnet. Sie entsprechen ungefähr den Gasdrücken, die bei AMS-Messungen verwendet würden.

Kapitel 2

Isobarentrennung bei AMS

Will man die Konzentration eines Radionuklids mit AMS messen, werden alle Strahlführungselemente auf die entsprechende magnetische Steifigkeit $B\rho = \sqrt{2Em}/(qe)$ des ausgewählten Ladungszustandes q nach dem Stripper eingestellt. Da die Terminalspannung und somit auch die Energie eines bestimmten Ladungszustandes gegeben ist, kann das gesamte Strahlführungssystem als ein hochselektives Massenfilter betrachtet werden. Zwei Isobare wie z.B. das Radionuklid ^{59}Ni und das stabile ^{59}Co haben jedoch bei gleichem Ladungszustand die gleiche Steifigkeit¹ und werden deswegen prinzipiell nicht unterschieden. Das gleiche gilt auch für die elektrostatischen Elemente im Injektionsbereich. Durch diesen Umstand wird das stabile Isobar, das sich auch noch nach einer chemischen Reduktion als Verunreinigung in der Probe befindet, zur Hauptquelle für Untergrund bei vielen AMS-Messungen. In den folgenden beiden Kapiteln wird auf einige Möglichkeiten zur Unterdrückung isobarischen Untergrundes eingegangen.

2.1 Isobarenunterdrückung in der Ionenquelle

2.1.1 Sputterionenquellen für negative Ionen

Am Beispiel der in dieser Arbeit verwendeten Hochstromionenquelle mit sphärischem Ionisator [Mid83, Urb86, KSU88] soll das Prinzip einer Sputterionenquelle für negative Ionen erläutert werden (siehe Abb. 2.1).

Aus einem beheizten Reservoir wird Cäsiumdampf in die Quelle geleitet, welcher sich auf dem ca. 1000°C heißem Ionisator aus Tantal niederschlägt. Die Elektronenaustrittsarbeit Φ von Tantal liegt mit 4.1 eV [MW75] über der Ionisationsenergie (3.89 eV) von Cäsium [Wea70]. Dadurch ist es für Cäsium möglich, als positives Ion zu desorbieren. Die positiven Cs-Ionen werden mit

¹Der Massenunterschied ist zu klein, um zwei Isobare zu unterscheiden.

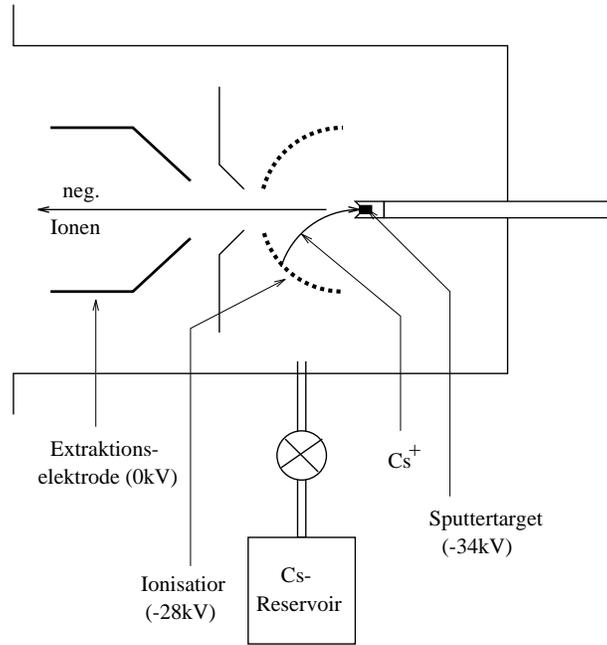


Abbildung 2.1: *Schematischer Aufbau einer Hochstromionenquelle.*

6 kV Sputterspannung auf das Target (AMS-Probe) hin beschleunigt und sputtern dort neutrale Atome oder Moleküle, sowie positive und negative Ionen und Molekülionen. Die negativen Ionen werden durch die selben 6 kV Sputterspannung in Richtung Ionisator beschleunigt und mit 28 kV Extraktionsspannung aus der Quelle abgesaugt.

2.1.2 Elektronenaffinitäten der gesputterten Teilchen

Das Verhältnis von negativen und neutralen gesputterten Teilchen Z^-/Z^0 läßt sich näherungsweise durch die Langmuir-Saha-Gleichung [LK23] ausdrücken:

$$\frac{Z^-}{Z^0} \propto \frac{g^-}{g^0} \exp\left(\frac{EA - \phi}{kT_e}\right). \quad (2.1)$$

ϕ ist hierbei die Elektronenaustrittsarbeit aus der Targetoberfläche. Dadurch, daß sich Cäsiumdampf auch auf dem Target niederschlägt, wird die Elektronenaustrittsarbeit in den meisten Fällen deutlich reduziert und die Ausbeute an negativen Ionen erhöht. T_e ist die Elektronentemperatur. Wenn man annimmt, daß die Geschwindigkeit der Elektronen der der gesputterten Teilchen ($E=10-20$ eV [CC69]) entspricht, ergibt sich für $k \cdot T_e$ ein Wert in der Größenordnung von 10 meV. Die Faktoren g^0 und g^- berücksichtigen die Anzahl der möglichen Spineinstellungen neutraler und negativer Teilchen.

Ein wichtiger Parameter bei der Erzeugung negativer Ionen ist die Elektronenaffinität EA der gesputterten Teilchen, d.h. diejenige Energie, die frei wird, wenn man ein Elektron an ein freies, neutrales Atom oder Molekül anlagert. Bei einigen Elementen wie z.B. Stickstoff, Magnesium, Mangan oder allen Edelgasen ist sie kleiner als null. Diese Elemente bilden keine stabilen negativen Ionen. Dadurch werden sehr empfindliche und genaue AMS-Messungen von ^{14}C ($EA=1.263\text{ eV}$), ^{26}Al ($EA=0.5\text{ eV}$) oder ^{129}I ($EA=3.066\text{ eV}$) [Smi82], auch mit kleinen Beschleunigern, möglich.

Ähnliches läßt sich durch den Einschuß von Molekülionen erreichen. So ist bei Verwendung von $^{41}\text{CaH}_3^-$ das stabile Isobar ^{41}K als 3-Hydrid um etwa sieben Größenordnungen unterdrückt [RYP⁺81]. Bei ^{60}Fe -Messungen ist das störende Isobar ^{60}Ni ($EA=1.156\text{ eV}$) gegenüber Eisen ($EA=0.16\text{ eV}$) im extrahierten Strom um Faktor zwanzig überhöht. Durch den Einschuß von Oxidationen lassen sich jedoch vergleichbare Ströme erreichen ($EA(\text{FeO})=1.49\text{ eV}$) [SFKK95].

2.2 Isobarentrennung durch Nacktstrippen der Ionen

Wenn das AMS-Isotop eine höhere Kernladungszahl als das stabile Isobar hat, kann es davon abgetrennt werden, wenn man alle Elektronen abstrippt [RYS79, KKN83]. Das Radionuklid $^A_Z\text{X}_{A-Z}$ hat dann die Ladung $q = Z$, während das Isobar $^A_{Z-1}\text{Y}_{A-Z+1}$ maximal die Ladung $q = Z - 1$ annehmen kann. Es läßt sich dann durch einen nachfolgenden Ablenkmagneten praktisch vollkommen separieren. Durch die gute Unterdrückung ist es sogar möglich, den Beschleuniger mit einem makroskopischen Pilotstrahl des stabilen Isobars über Schlitzzsteuerung zu stabilisieren. Bei allen anderen diskutierten Meßmethoden erfolgt die Spannungsstabilisierung i.a. mit einem Generating Voltmeter.

Nach dem Bohr'schen Kriterium (siehe Abschnitt 1.1.1) wird ein Elektron der K-Schale im Mittel dann gestrippt, wenn seine Orbitalgeschwindigkeit $v_{e_K} = Zv_0$ kleiner ist als die Geschwindigkeit des Ions. In Abbildung 2.2 ist die Nacktstrippwahrscheinlichkeit P_{strip} gegen die Ionengeschwindigkeit v_P aufgetragen. Um die Meßdaten von verschiedenen Ionen verwenden zu können, wurde auf die Geschwindigkeit eines K-Schalenelektrons v_{e_K} des betreffenden Ions normiert.

Aus diesen Daten ist ersichtlich, daß, vor allem für schwere Ionen, für eine effiziente Messung hohe Energien nötig sind. Allerdings sollte die Energie nicht zu hoch gewählt werden, da sonst die Schwelle für Kernreaktionen überschritten wird und durch (p,n)-Reaktionen der Isobarionen in der letzten Stripperfolie das AMS-Radionuklid produziert werden kann.

Für ^{59}Ni liegt die höchste Nacktstrippausbeute, die bei einer AMS-

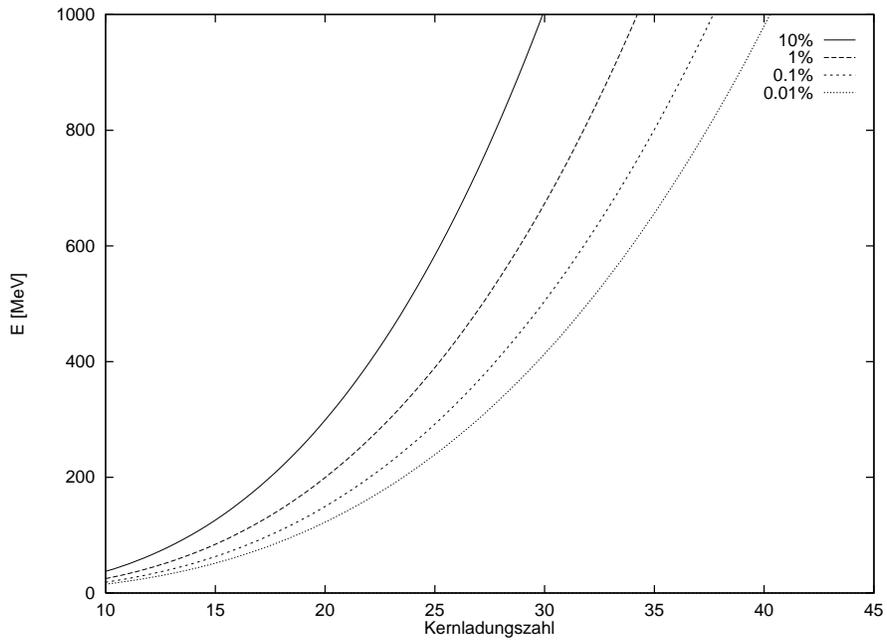
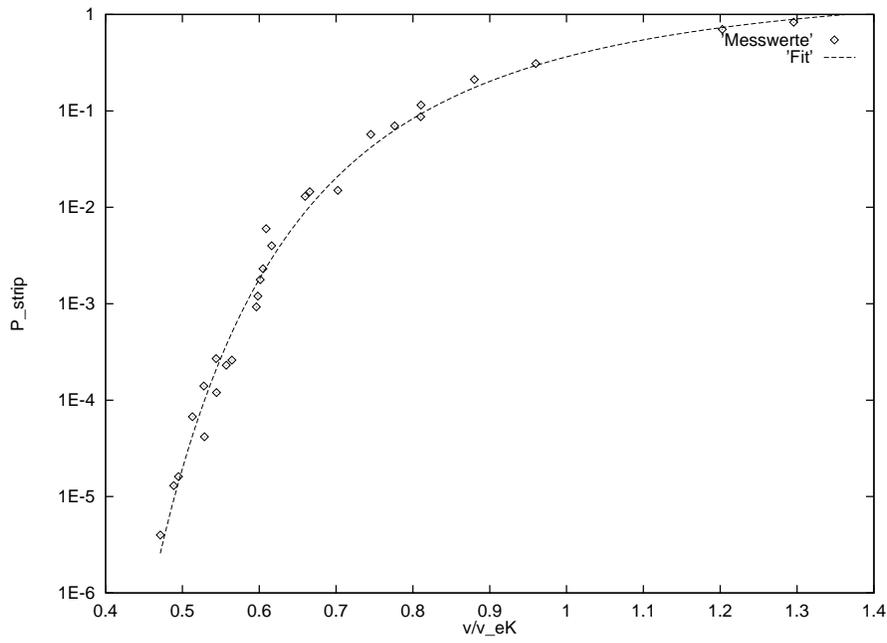


Abbildung 2.2: Oberes Bild: Nackstrippwahrscheinlichkeit P_{strip} gegen die Ionengeschwindigkeit v_P , normiert auf die Bohrgeschwindigkeit v_{e_K} eines K-Elektrons [Rüh92, Mün, Fra, Mok].

Unteres Bild: Aus den oberen Fit bestimmte Energie, die ein Ion der Kernladungszahl Z für eine Nackstrippausbeute von 10%, 1%, 0.1% bzw. 0.01% benötigt.

Messung erreicht wurde bei 10% [KAG⁺93]. Die Nickelionen wurden bei diesem Experiment am Argonne National Laboratory mit dem ATLAS-Beschleunigersystem, bestehend aus Tandem und supraleitendem Linearbeschleuniger, auf eine Energie von 641 MeV beschleunigt. Die höchste am Garching Beschleunigerlabor erreichte Nacktstrippwahrscheinlichkeit für Nickelionen liegt bei $1.2 \cdot 10^{-4}$ bei 334 MeV [Rüh88].

2.3 Isobarentrennung durch Energieverlustmessungen

Eine weitere Möglichkeit, Ionen mit verschiedener Kernladungszahl zu unterscheiden, ist die Messung ihres Energieverlustes in einem Detektorsystem. Für AMS-Anwendungen werden meist Gasionisationskammern verwendet. Sie haben gegenüber Halbleiterzählern den Vorteil, unempfindlich gegen Strahlenschäden zu sein. Durch Anpassung des Gasdruckes lassen sie sich sehr universell verwenden. Eine Aufteilung der Anode in mehrere Sektoren erlaubt eine differenzierte Aussage über den Energieverlust der Ionen im Gas und eine Messung des Ortes. Ihre Energieauflösung liegt im Bereich von 1–2%.

Der unterschiedliche Energieverlust von Isobarionen mit gleicher Geschwindigkeit v_P beruht auf ihren unterschiedlichen mittleren Ladungszustand \bar{q} (siehe Gleichung 1.10 und Abbildung 3.2) während ihrer Wechselwirkung mit dem Detektorgas, und der Abhängigkeit des differentiellen Energieverlustes dE/dx im Bethe-Bloch-Bereich vom Ladungszustand (siehe Gleichung 1.17): $dE/dx \propto \bar{q}^2$. Tatsächlich beträgt $\Delta(dE/dx)/(dE/dx)$ etwas weniger als $\Delta\bar{q}^2/\bar{q}^2$, weil im Lindhard-Scharff-Bereich die Ladungszustandsabhängigkeit des Energieverlustes nicht so ausgeprägt ist (siehe Gleichung 1.16 und Abbildung 2.3).

In Abbildung 2.3 ist auch zu erkennen, daß für Isobare mit höherer Kernladungszahl $\Delta(dE/dx)/(dE/dx)$ im Bereich der Energieauflösung des Detektors ist, so daß die Isobarenunterdrückung mit steigender Kernladungszahl schlechter wird.

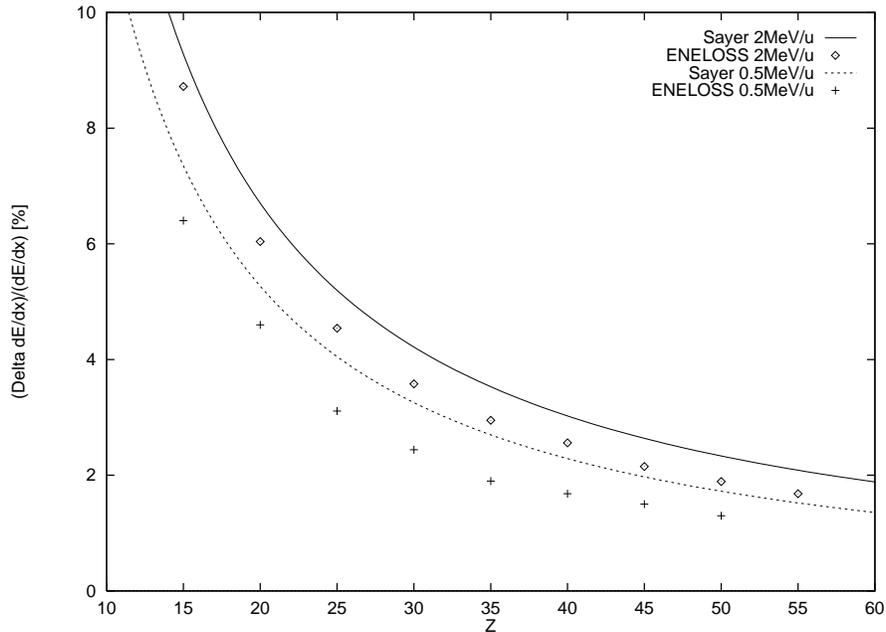


Abbildung 2.3: Relativer Unterschied zweier Isobare mit $\Delta Z=1$ im differentiellen Energieverlust in Isobutan bei 2 MeV/u bzw. 0.5 MeV/u gegen die Kernladungszahl. Für die durchgezogenen Kurven wurden nur die relativen Unterschiede der Quadrate der mittleren Ladungszustände berücksichtigt (berechnet nach Gleichung 1.10). Die Punkte sind mit dem Programm ENELOSS [Ern] berechnet.

2.3.1 Untergrundreduzierung durch Winkelmessung im Detektor

Wird ein Ion z.B. in der Eingangsfolie des Detektors gestreut, so verläuft seine Trajektorie nicht mehr senkrecht zur Detektorebene. Dadurch wird ein höherer differentieller Energieverlust vorgetäuscht, so daß, wenn die Kernladungszahl des gestreuten Ions kleiner ist, als die seines Isobars, die Isobaren-trennung über die Energieverlustmessung verschlechtert wird.

Bei AMS-Messungen mit einem gasgefüllten Magneten (siehe Kapitel 3) ist der Energieverlust in der Magnetkammer Z -abhängig, so daß Isobare auch über ihr Gesamtenergiesignal unterschieden werden können² (siehe Abbil-

²Auch Isobare, die am gleichen Ort aus der Magnetkammer austreten, haben normalerweise unterschiedliche Energie, d.h. ihr mittlerer Ladungszustand q_m in der Magnetkammer war nicht identisch. Dies kann verstanden werden, wenn man bedenkt, daß die Trajektorienelemente von Umladungsstoß zu Umladungsstoß nicht kommutativ sind. Abweichungen des momentanen Ladungszustandes q vom mittleren Ladungszustand \bar{q} am Anfang der Trajektorie haben auf den Austrittsort des Ions viel größeren Einfluß als Abweichungen am Ende. D.h. ein gasgefüllter Magnet darf nicht als eine Art der Energieverlustmessung betrachtet werden, die den Energieverlust eindeutig auf den Ort abbildet.

dung 5.4). Durch den Energieverlust bei der Streuung wird die Gesamtenergie reduziert, wodurch ebenfalls die Isobarentrennung erschwert werden kann. Durch eine Winkelmessung im Detektor kann dieser Untergrund jedoch unterdrückt werden.

In Abbildung 2.4 soll dies am Beispiel eines ^{59}Co -Ions, das an einem Kohlenstoffatom der Detektorfolie nach dem gasgefüllten Magneten elastisch gestreut wurde, gezeigt werden.

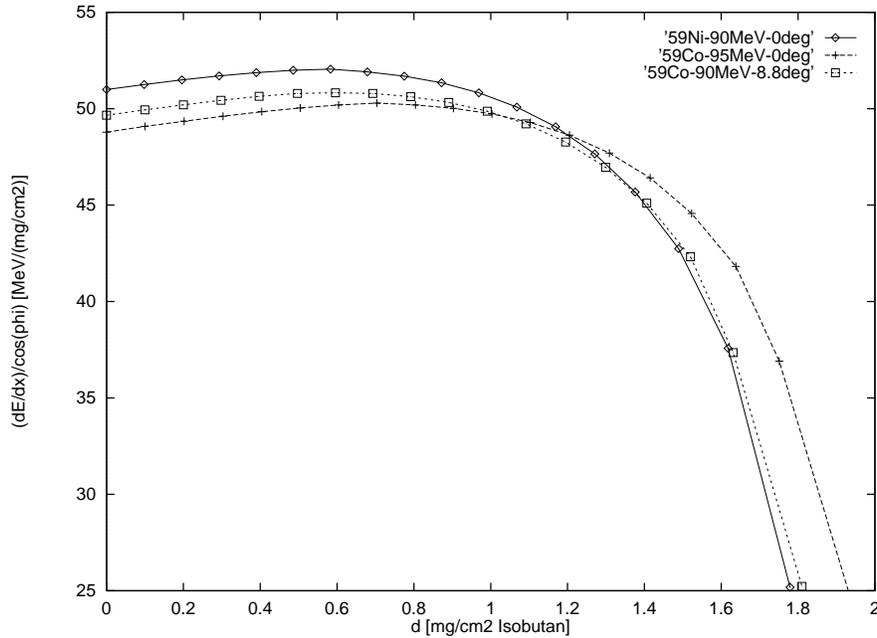


Abbildung 2.4: Mit *ENELOSS* berechnetes dE/dx , bzw. vorgetäushtes dE/dx eines gestreuten ^{59}Co -Ions mit 90 MeV , eines ungestreuten ^{59}Co -Ions mit 95 MeV und eines ungestreuten ^{59}Ni -Ions mit 90 MeV gegen den Weg senkrecht zur Detektorebene (ausgedrückt in mg cm^{-2} Isobutan).

Der Streuwinkel ϕ von 8.8° wurde so gewählt, daß der Energieverlust von 5 MeV durch die Streuung dem höheren Energieverlust eines ^{59}Ni -Ions ($E_0=190\text{ MeV}$) in der gasgefüllten Magnetkammer entspricht, d.h. daß das gestreute ^{59}Co -Ion in der Gesamtenergie nicht mehr von einem ^{59}Ni -Ion unterscheidbar ist. Durch die Streuung wird zudem ein höherer differentieller Energieverlust vorgetäuscht, der von dem eines ^{59}Ni -Ions sehr viel schwieriger zu unterscheiden ist, als der eines ungestreuten ^{59}Co -Ions.

Kapitel 3

Isobarentrennung in einem gasgefüllten Magnetfeld

Für Ionen mit steigender Kernladungszahl wird die Unterdrückung isobarischen Untergrundes durch Energieverlustmessungen zunehmend ineffektiv (siehe Abschnitt 2.3). Ein weiteres Problem stellt oft die hohe Detektorzählrate dar, wenn das störende Isobar weder bei der Probenaufbereitung noch in der Ionenquelle genügend stark unterdrückt werden kann. Folgen sind geringe Empfindlichkeiten und, weil der Strom in der Ionenquelle reduziert werden muß, lange Meßzeiten.

Nacktstrippen der Ionen (siehe Abschnitt 2.2) ist nur bei Isobaren mit kleinerem Z als dem des zu messenden Radionuklids möglich. ^{32}Si -, ^{60}Fe -, ^{90}Sr -, ^{93}Zr - oder ^{107}Pd -Messungen sind mit dieser Methode prinzipiell nicht möglich. Für schwere Radionuklide wird die Transmission wegen der Nacktstrippausbeuten (siehe Abbildung 2.2) so gering, daß ebenfalls sehr lange Meßzeiten und zudem große Probenmengen erforderlich sind.

Eine andere Möglichkeit zur Isobarensparation besteht in einem gasgefüllten Magneten, den die Ionen vor einem ortsempfindlichen Detektor durchlaufen. AMS-Nuklide und störende Isobare werden aufgrund ihres unterschiedlichen mittleren Ladungszustands $barq$ darin in zwei Strahlen aufgespalten (siehe Abschnitt 3.1). Die Vorteile dieser Methode sind:

- Die räumliche Trennung der Isobare ist neben den Energieverlustmessungen im Detektor ein weiterer Unterdrückungsschritt.
- Die Transmission wird durch den gasgefüllten Magneten praktisch nicht verschlechtert.
- Die Isobare können aus dem Detektor ausgeblendet werden, so daß hohe Ionenquellenströme, d.h. kurze Meßzeiten, bei moderaten Detektorzählraten möglich sind.
- Die Methode ist universell für alle AMS-Nuklide anwendbar.

Diese Methode wurde erstmals am Argonne National Laboratory für AMS angewendet, wo ein Enge-Split-Pole-Magnetspektrograph mit Gas gefüllt wurde [HPK⁺85, PGH⁺89, Pau90]. Am Garching Tandem wurden Messungen mit einem gasgefüllten Q3D-Magnetspektrographen durchgeführt [FGK⁺87, BFG⁺90, MBF⁺92]. Am EN-Tandem der ETH Zürich wird ein gasgefüllter 180°-Magnet zur Unterdrückung des isobaren Untergrundes eingesetzt [Zop93].

3.1 Räumliche Trennung von Isobaren im gasgefüllten Magnetfeld

Wie in Abschnitt 1.1 dargestellt wurde, stellt sich für Ionen beim Durchgang durch ein gasgefülltes Volumen durch Umladungsstöße mit den Gasatomen ein mittlerer Ladungszustand \bar{q} ein. Basierend auf dem Bohr'schen Kriterium kann dieser abgeschätzt werden zu $\bar{q} = Z_P^{1/3} v_P/v_0$ (siehe Gl. 1.6). In dieser einfachen Betrachtung zeigt sich nur eine Abhängigkeit von der Geschwindigkeit v_P und Kernladungszahl Z_P der Projektionen. Für die mittlere magnetische Steifigkeit $\bar{B}\rho$ der Ionen während ihrer Wechselwirkung mit dem Targetmaterial gilt dann:

$$\bar{B}\rho = \frac{m_P v_P}{\bar{q}e} = \frac{m_P v_0}{Z_P^{1/3} e}. \quad (3.1)$$

Die mittlere magnetische Steifigkeit ist in dieser Näherung unabhängig von der Geschwindigkeit eines Projektils, sondern nur von dessen Masse und Kernladungszahl. Aufgrund dessen werden gasgefüllte Magneten zur Identifikation von Spaltfragmenten verwendet, da diese eine breite Geschwindigkeitsverteilung besitzen [CF58, Arm61, AEG⁺70, LEB⁺76].

Die Abhängigkeit der magnetischen Steifigkeit in einer gasgefüllten Region von der Kernladung des Projektilions erlaubt ebenso Trennung von Isobaren bei AMS-Messungen (siehe Abbildung 3.1).

Verwendet man zur Berechnung des mittleren Ladungszustandes die Formel von Sayer (siehe Gleichung 1.10), ergeben sich z.B. für das Isobarenpaar ⁵⁹Ni–⁵⁹Co mittlere Ladungszustände und Steifigkeiten wie in Abbildung 3.2 dargestellt. Auch hier zeigt sich, daß die magnetische Steifigkeit nur schwach von der Projektilgeschwindigkeit bzw. -energie abhängt.

Der mittlere Ladungszustand von ⁵⁹Ni bei 150 MeV ist mit 18.01 höher als der von ⁵⁹Co mit 17.56. Dieser Unterschied kann verstanden werden, wenn man bedenkt, daß ⁵⁹Ni ein Elektron mehr in der 3d-Schale besitzt als ⁵⁹Co. Für dieses Elektron ist die Orbitalgeschwindigkeit deutlich kleiner als die Geschwindigkeit des 150-MeV-Projektilions, so daß es mit sehr großer Wahrscheinlichkeit in Gas gestrippt wird. Daß nun der mittlere Ladungszustand von Nickel nicht um 1, sondern nur um 0.45 höher ist als von Kobalt, liegt

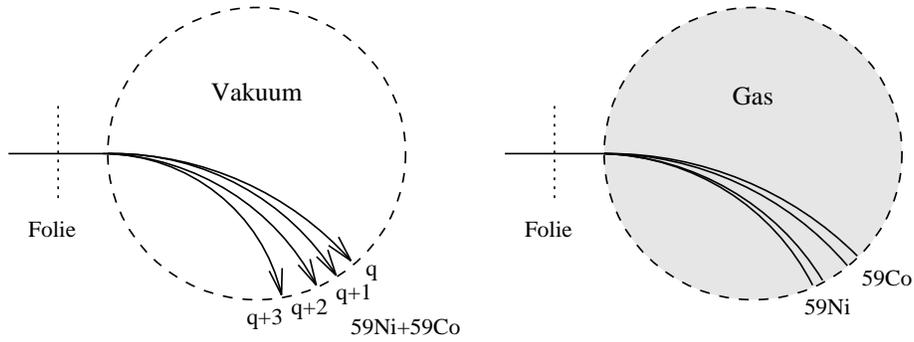


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Trennung von Isobaren in einem gasgefüllten Magnetfeld. Im Vakuum spalten die einzelnen Ladungszustände des Ionenstrahls auf, die Trajektorien sind aber für zwei Isobare mit gleicher Ladung praktisch identisch. Befüllt man den Magneten mit Gas, fluktuiert die Ladung der einzelnen Ionen um einen mittleren Ladungszustand \bar{q} , der von der Kernladungszahl abhängt, und Isobare (z.B. ^{59}Ni und ^{59}Co) werden im Ort getrennt.

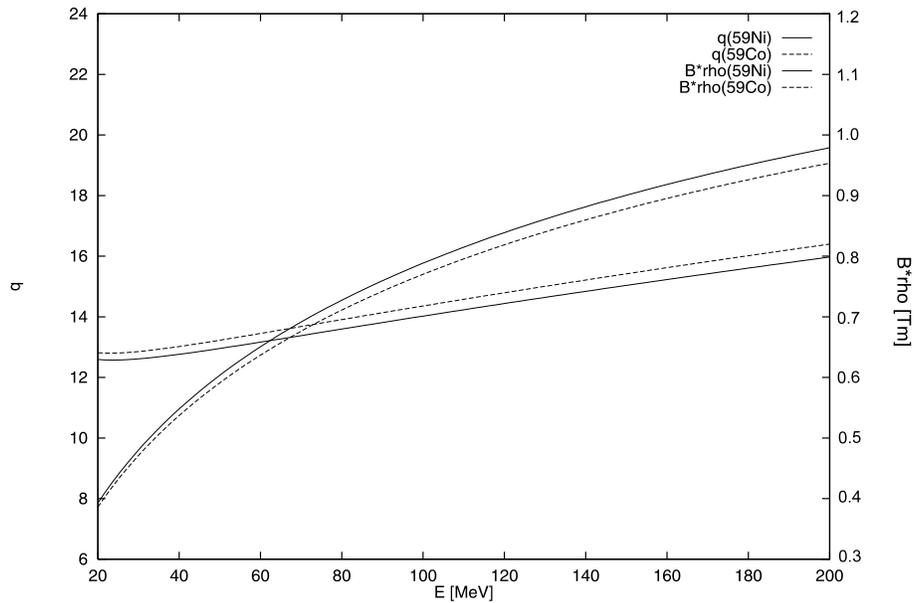


Abbildung 3.2: Mit der Parametrisierung von Sayer (Gleichung 1.10) berechneter mittlerer Ladungszustand und mittlere magnetische Steifigkeit (flache Kurven) für ^{59}Ni - und ^{59}Co -Ionen gegen deren Energie.

an der höheren Kernladungszahl von Nickel. Dadurch sind Elektronen von Nickel etwas besser gebunden, haben höhere Orbitalgeschwindigkeiten, und werden somit nicht so wahrscheinlich gestrippt als die von Kobalt.

In Abbildung 3.3 ist der relative Unterschied in der magnetischen Steifigkeit $\Delta(B\rho)/(B\rho)$ für einige AMS-Isotope und deren stabile Isobare gegen die Teilchenenergie dargestellt. Im Bereich höherer Energien zeigt sich auch hier nur mehr eine schwache Energieabhängigkeit von $\Delta(B\rho)/(B\rho)$.

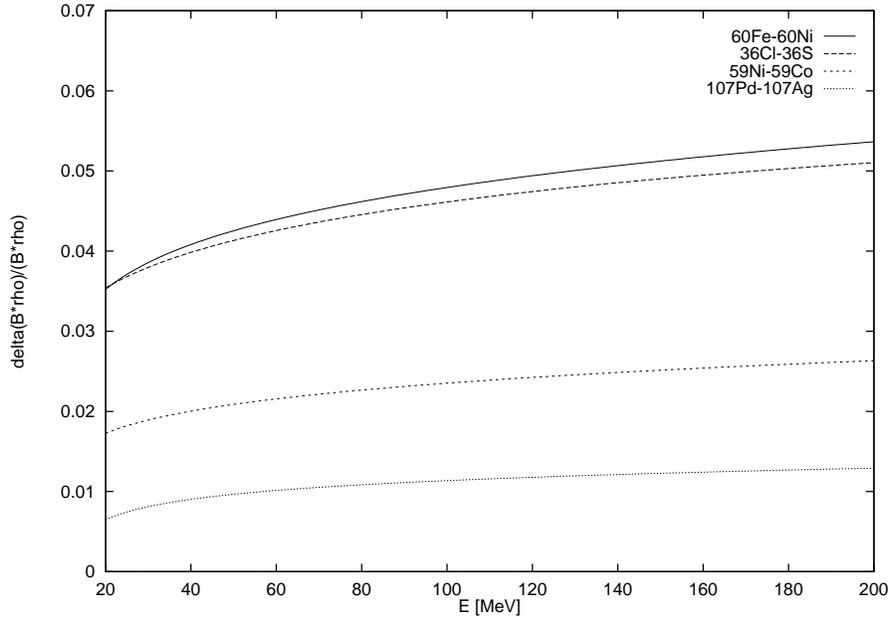


Abbildung 3.3: Mit der Parametrisierung von Sayer (Gleichung 1.10) berechneter relativer Unterschied $\Delta(B\rho)/(B\rho)$ in der magnetischen Steifigkeit von einigen AMS-Isotopen und deren stabilen Isobare gegen die Teilchenenergie.

3.2 Breite der räumliche Verteilung eines Ionenstrahls nach dem Durchlaufen eines gasgefüllten Magneten

Das Durchlaufen eines gasgefüllten Magneten führt zu einer Verbreiterung des Ionenstrahls im Ort, insbesondere in x-Richtung (senkrecht zu den magnetischen Feldlinien). Diese Verbreiterung hat zwei Ursachen:

1. Die Fluktuation des momentanen Ladungszustand q eines einzelnen Ions um den mittleren Ladungszustand \bar{q} ist ein statistischer Prozess (siehe Abschnitt 1.1). Der mittlere Ladungszustand q_m des Ions muß

nicht genau mit dem mittleren Ladungszustand \bar{q} der Ladungsverteilung übereinstimmen. Dies führt zur Verbreiterung des Strahls in x-Richtung.

2. Durch Stöße werden die Ionen gestreut (siehe Abschnitt 1.3) und der Strahl wird in x- und y-Richtung verbreitert.

Um verschiedene Magnetfeldgeometrien mit unterschiedlicher Dispersion vergleichen zu können, wird im weiteren die Halbwertsbreite \mathcal{W} eines Strahls in x-Richtung, ebenso wie die räumliche Trennung \mathcal{D} zweier Isobare, in Einheiten von $\Delta(B\rho)/(B\rho)$ angegeben. \mathcal{W} setzt sich aus der Breite \mathcal{W}_{stat} , die durch die Statistik der Ladungsfluktuationen bedingt ist, und der Breite aufgrund der multiplen Kleinwinkelstreuung, \mathcal{W}_{kws} , zusammen. Da beide Prozesse als voneinander unabhängig betrachtet werden können, läßt sich \mathcal{W} ansetzen zu¹:

$$\mathcal{W} = \sqrt{\mathcal{W}_{stat}^2 + \mathcal{W}_{kws}^2}. \quad (3.2)$$

Die Auflösung oder Separation für zwei Isobare wird mit \mathcal{S} bezeichnet. Sie wird definiert als:

$$\mathcal{S} = \frac{\mathcal{D}}{\mathcal{W}}. \quad (3.3)$$

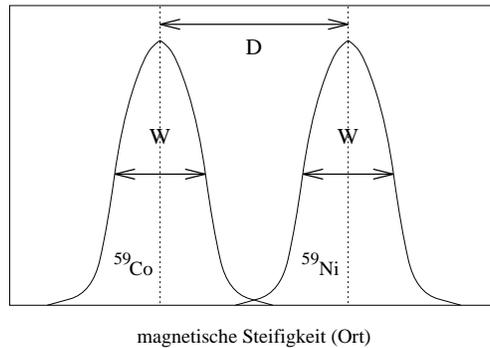


Abbildung 3.4: Definition der Breite \mathcal{W} und des Abstandes \mathcal{D} der Ortsverteilungen zweier Isobare.

Weil sowohl der absolute Abstand zweier Ortsverteilungen als auch die absoluten Breiten der Ortsverteilungen mit steigender Dispersion ansteigen, sind \mathcal{D} , \mathcal{W} und somit \mathcal{S} weitgehend unabhängig von der Dispersion des verwendeten magnetischen Systems, wie in Abbildung 3.5 gezeigt ist.

Um das störende Isobar möglichst effizient unterdrücken zu können, muß die Separation \mathcal{S} maximiert werden.

¹Gleichung 3.2 ist nicht ganz exakt, da die Winkelverteilung durch Kleinwinkelstreuung $f(\tau, \tilde{\alpha})$ nicht genau gaußförmig ist, und somit die entsprechende Ortsverteilung ebenfalls nicht.

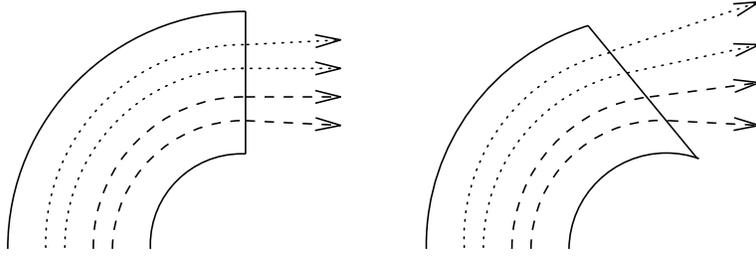


Abbildung 3.5: *Absoluter Abstand zweier Ortsverteilungen und absolute Breiten der Ortsverteilungen für Magnetssysteme mit niedriger (links) und hoher (rechts) Dispersion. \mathcal{D} , \mathcal{W} (in $\Delta(B\rho)/(B\rho)$) und \mathcal{S} sind in beiden Fällen gleich.*

Der Abstand \mathcal{D} ist im wesentlichen nur abhängig von dem Unterschied in der magnetischen Steifigkeit $\Delta(B\rho)/(B\rho)$ der beiden Isobare. Die Dispersion des magnetischen Systems spielt hierbei keine entscheidende Rolle, wenn \mathcal{D} in Einheiten von $\Delta(B\rho)/(B\rho)$ ausgedrückt wird. Die Energieabhängigkeit von \mathcal{D} ist nur schwach, wie in Abbildung 3.3 zu sehen ist. Zudem ist die Energie in der Praxis durch die maximale Terminalspeisung des verwendeten Beschleunigers und die Ausbeuten der einzelnen Ladungszustände beschränkt. Um eine optimale Isobarenspeisung zu erhalten, muß also die Breite \mathcal{W} der Ortsverteilungen minimiert werden.

3.2.1 Statistik der Ladungsfluktuationen

Um eine geringe Breite \mathcal{W}_{stat} zu erhalten sind möglichst viele Umladungsstöße im Magnetfeld nötig, so daß die statistischen Fluktuationen der mittleren magnetischen Steifigkeiten $(B\rho)_m$ der einzelnen Ionen um die mittlere Steifigkeit $\bar{B}\rho$ eines Ensembles möglichst gering sind. Die Anzahl der Umladungsstöße ist proportional zum Gasdruck p (bzw. der Massenbelegung d), so daß gilt²:

$$\mathcal{W}_{stat} \propto \sqrt{p} \propto \sqrt{d}. \quad (3.4)$$

Eine Begrenzung des Gasdruckes ist der Energieverlust der Ionen, die nach dem gasgefüllten Magneten noch genügend Restenergie besitzen sollen, um Energieverlustmessungen im Detektor möglich zu machen. Um trotzdem einen genügend hohen Druck einstellen zu können, ist eine möglichst hohe Energie zu wählen.

Die Anzahl der Umladungen kann auch durch Verwendung eines Gases mit hohen Umladungsquerschnitten $\sigma_{qq'}$ erhöht werden³:

²Die Energieabhängigkeit der absoluten Umladungsquerschnitte, relativ zu $\bar{q}(E)$, wurde hierbei vernachlässigt, was aber in guter Näherung möglich ist.

³Eine stärkere Abhängigkeit der Umladungsquerschnitte σ_c und σ_l von der momentanen Ladung q (d.h. steilere Kurven in Abbildung 1.1) würde zu kleineren absoluten

$$\mathcal{W}_{stat} \propto \sqrt{\sigma_{qq'}}. \quad (3.5)$$

Im allgemeinen haben Gase mit hohem Atomgewicht deutlich größere Umladungsquerschnitte als leichte Gase (siehe auch Abbildung 1.1). Allerdings ist dann der Energieverlust der Ionen auch höher, so daß nur kleinere Drücke möglich sind, was wiederum zu einer Verschlechterung der Statistik führt.

3.2.2 Strahlverbreiterung durch multiple Kleinwinkelstreuung

Die Verbreiterung des Strahles durch multiple Kleinwinkelstreuung, die zu \mathcal{W}_{kws} führt, ist ebenfalls von mehreren Parametern abhängig. Aus Gleichung 1.19 folgt für den Streuwinkel $\alpha \propto E$ und somit:

$$\mathcal{W}_{kws} \propto \frac{1}{E_0}. \quad (3.6)$$

Gleichung 3.6 gilt nur für sehr kleine Massenbelegungen, bei denen der Energieverlust der Ionen vernachlässigt werden kann. Ist dies nicht der Fall, wird die Abhängigkeit der Breite \mathcal{W}_{kws} von der Einschußenergie E_0 stärker (siehe Gleichung 1.24), da die Energie während der Wechselwirkung mit dem Gas bei niedrigen Einschußenergien überproportional abnimmt. Die Energieabhängigkeit von $\alpha_{\frac{1}{2}}$ für größere Massenbelegungen ist in Abbildung 1.4 für drei verschiedene Einschußenergien dargestellt.

Mit steigendem Druck bzw. steigender Massenbelegung nimmt die Anzahl der Stöße zu und somit auch \mathcal{W}_{kws} . Aus Gleichung 1.20 folgt für kleine Massenbelegungen:

$$\mathcal{W}_{kws} \propto d^{0.634} \propto p^{0.634}. \quad (3.7)$$

Für größere Massenbelegungen ist, wie oben, Gleichung 1.24 anzuwenden. Der Verlauf von $\mathcal{W}_{kws} = \alpha_{\frac{1}{2}}[\text{mrad}] \frac{\pi}{1000\sqrt{2}}$ ist in den Abbildungen 1.3 und 1.4 dargestellt. Der Faktor $1/\sqrt{2}$ ist deswegen notwendig, weil zur Bestimmung von \mathcal{W}_{kws} nur die Komponente von $\alpha_{\frac{1}{2}}$ in x-Richtung beiträgt.

Bei Verwendung von Gasen mit hohem Atomgewicht nimmt der Streuwinkel bei einem Einzelstoß und damit ebenfalls \mathcal{W}_{kws} zu. Bei gleichem totalen Energieverlust im Gas folgt aus Gleichung 1.24:

$$\mathcal{W}_{kws} \propto \mathcal{A} \propto Z_T \sqrt{Z_P^{\frac{2}{3}} + Z_T^{\frac{2}{3}}}. \quad (3.8)$$

Für die Verläufe von $\alpha_{\frac{1}{2}}$ für verschiedene Gase siehe auch Abbildung 1.4.

Schwankungen von q um \bar{q} führen, wodurch \mathcal{W}_{stat} ebenfalls reduziert würde. Hinweise auf Gase mit solchem Verhalten konnten aber in der Literatur nicht gefunden werden

In Tabelle 3.2.2 sind die Ergebnisse dieser Überlegungen nochmals zusammengefaßt.

	\mathcal{W}_{stat}	\mathcal{W}_{kws}	$\delta E/E_{rest}$	E_{rest}
$p \uparrow$	\downarrow	\uparrow	\uparrow	\downarrow
$A_T \uparrow$	(\downarrow)	\uparrow	\uparrow	=
$\sigma_{qq'} \uparrow$	\downarrow	(\uparrow)	(\uparrow)	=
$E_0 \uparrow$	\downarrow	\downarrow	\downarrow	\uparrow

Tabelle 3.1: *Abhängigkeiten von Strahlbreite, Restenergie und Energieverluststreuung von Gasdruck, Gasart, Umladungsquerschnitten und Einschußenergie. Die Pfeile in Klammern sind keine direkte Abhängigkeit, jedoch haben i.a. Gase mit kleinem A nur niedrige Umladungsquerschnitte. Bei Gasdruck und Gasart muß ein Kompromiß gefunden werden, die Einschußenergie ist so hoch wie möglich zu wählen.*

3.3 Optimierung der Magnetfeldgeometrie

Ein weiterer wichtiger Parameter, von dem die Separation \mathcal{S} abhängt, ist die Geometrie des Magnetfeldes und des gasgefüllten Bereiches. Bei einem Enge-Split-Pole- oder Q3D-Spektrographen (siehe Abbildungen 3.7 und 3.6) herrscht in nur 40–50% des gasgefüllten Bereiches ein Magnetfeld, der Rest sind Driftstrecken im feldfreien Raum. Nachteile einer derartigen Feldanordnung sind:

1. Die Anzahl der Umladungen, die zur Isobarentrennung beitragen entspricht nur 40–50% aller Umladungen. Da der Gasdruck durch den Energieverlust der Ionen im Gas limitiert ist, kann prinzipiell keine so gute Statistik der Ladungsfluktuationen erreicht werden, wie in Systemen mit höherem Überlapp von gasgefüllten Bereich und Magnetfeld. In solchen Systemen würde somit \mathcal{W}_{stat} reduziert.
2. In den feldfreien Driftstrecken findet keine Isobarentrennung statt, allerdings wird der Strahl durch Kleinwinkelstreuung verbreitert. \mathcal{W}_{kws} ist somit größer als in Magnetfeldanordnungen ohne Driftstrecken.
3. Aufgrund der Magnetfeldgeometrie von Spektrographen (siehe Abbildung 3.7 und 3.6) können Ionen, die den Detektor am gleichen Ort erreichen, stark unterschiedliche Trajektorienlängen haben, was eine breitere Verteilung der Restenergie zur Folge hat. Dadurch wird weitere Isobarentrennung durch Energieverlustmessungen im Detektor erschwert.

Ein einfacher Dipolmagnet sollte demnach zur einer besseren Isobarensparation führen. Hier herrscht in nahezu 100% des gasgefüllten Bereichs Magnetfeld und durch die niedrigere Dispersion sind die Längenunterschiede von Trajektorien mit gleichem Ort sehr gering.

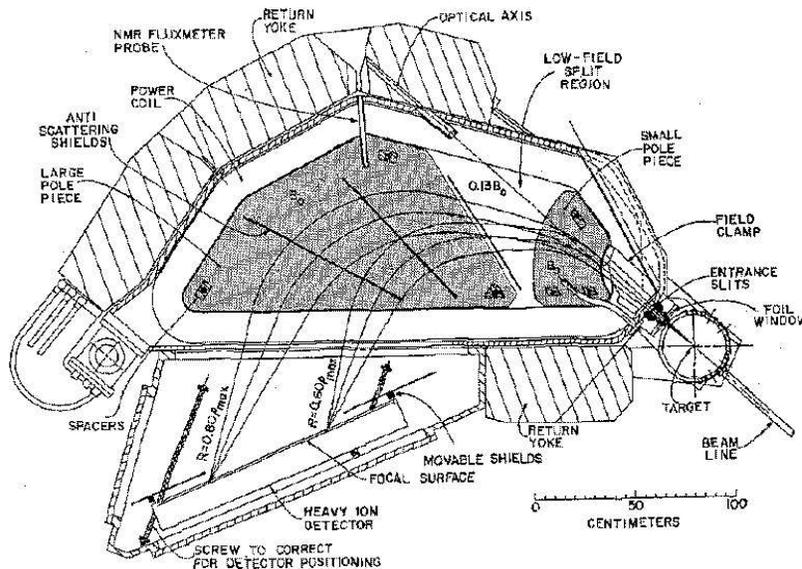


Abbildung 3.6: Experimenteller Aufbau für AMS-Messungen mit dem gasgefüllten Enge-Split-Pole [Pau90]

3.3.1 Optimierung des Ablenk winkels

Der optimale Ablenk winkels eines gasgefüllten Dipolmagneten läßt sich aus folgender einfachen Überlegung abschätzen:

Betrachtet man die mittleren Trajektorien zweier Isobare in erster Näherung als Kreise, verhält sich deren Abstand d nicht linear zum Ablenk winkel ϕ , sondern ungefähr wie $1 - \cos\phi$ (siehe Abbildung 3.8). Bei 180° ist d zwar maximal, aber die mittleren Trajektorien sind parallel, d.h. es findet keine weitere Trennung mehr statt, die Strahlen werden aber nach wie vor verbreitert. Die beste Separation liefert demnach ein etwas kleinerer Ablenk winkel von $110\text{--}150^\circ$.

3.3.2 Abschätzung der Breit einer Ortsverteilung aus experimentellen Daten

Für die nachfolgenden Überlegungen werden Daten aus [PGH⁺89] verwendet. Hier wurde an einem mit Stickstoff gefüllten Enge-Split-Pole-Spektrographen für verschiedene Isotope, Gasdrücke und Einschußenergien die Breite \mathcal{W} des

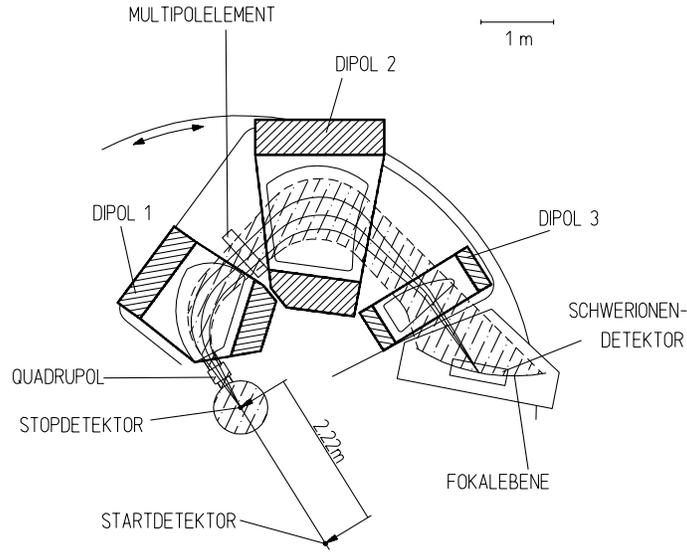


Abbildung 3.7: *Experimenteller Aufbau für AMS-Messungen mit dem gasgefüllten Q3D-Magnetspektrographen.*

Strahls gemessen. Die Ergebnisse für einen ^{58}Ni -Strahl mit 200 MeV sind in Abbildung 3.9 dargestellt.

Mit steigendem Druck p (bzw. steigender Massenbelegung d) nimmt die Anzahl der Umladungsstöße zu, die Statistik wird verbessert, \mathcal{W}_{stat} und somit auch $\mathcal{W} = \sqrt{\mathcal{W}_{stat}^2 + \mathcal{W}_{kws}^2}$ nehmen ab. Bei weiter steigendem Druck wird die Umladungsstatistik zwar weiterhin verbessert, jedoch wird nun die Stahlverarbeitung durch Kleinwinkelstreuung dominant und \mathcal{W} nimmt wieder zu. Aufgrund der rein statistischen Natur von \mathcal{W}_{stat} muß die Proportionalität

$$\mathcal{W}_{stat}(d) \propto \frac{1}{\sqrt{d}} \quad (3.9)$$

erfüllt sein. Setzt man \mathcal{W}_{kws} als Polynom zweiten Grades an, ergibt sich für die gesamte Breite:

$$\mathcal{W}(d) = \sqrt{\underbrace{(C_0 + C_1 d + C_2 d^2)^2}_{\mathcal{W}_{kws}} + \underbrace{\left(\frac{C_3}{\sqrt{d}}\right)^2}_{\mathcal{W}_{stat}}}. \quad (3.10)$$

Diese Funktion wurde mit den Fitparametern C_i an die Meßwerte angefitet. Die beste Übereinstimmung mit den Meßwerten ergibt der Parametersatz $C_1 = 0.001184$, $C_2 = 0.000727$, $C_3 = 0.021$. C_0 wurde zu 0 gewählt, damit für $d \rightarrow 0$ auch $\mathcal{W}_{kws} \rightarrow 0$ gilt. Mit diesem Parametersatz ergeben sich für \mathcal{W}_{kws} etwas kleinere Werte, als die Berechnung nach Gleichung 1.25 liefern würde. Der Grund hierfür ist die letzte Driftstrecke im Split-Pole, wo die absolute Strahlbreite (in cm) aufgrund der hohen Dispersion schon so groß

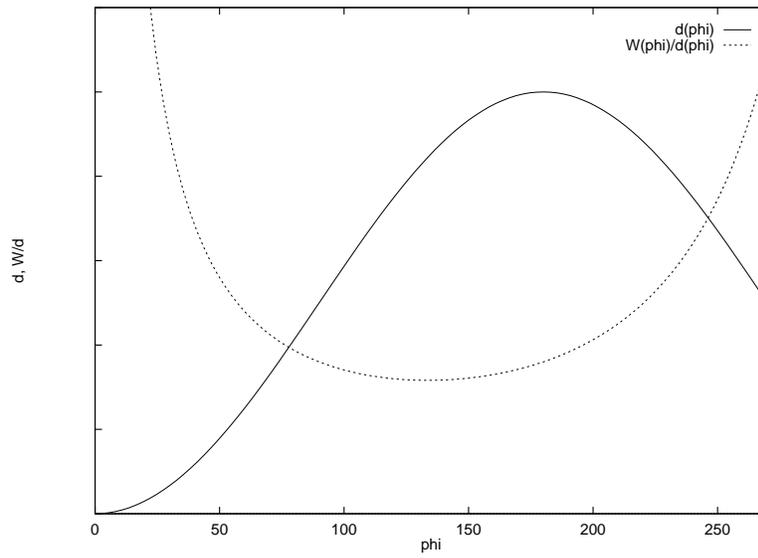
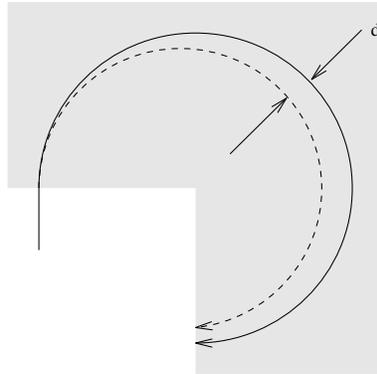


Abbildung 3.8: *Abhängigkeit des Abstandes d der mittleren Trajektorien zweier Isobare vom Ablenkwinkel ϕ . In der Näherung, daß die Breite einer Ortsverteilung W [cm] proportional zum Strecke im Gas und somit zu ϕ ist, ergibt sich ein optimale Separation bei $\phi=135^\circ$*

ist, daß Kleinwinkelstreuungen in diesem Bereich keinen großen Beitrag mehr zur relative Breite \mathcal{W}_{kws} (in $\Delta(B\rho)/(B\rho)$) liefern. Außerdem ist gerade in diesem Bereich die Kleinwinkelstreuung wegen der niedrigeren Energie am höchsten.

Betrachtet man nun einen einfachen Dipolmagneten, bei dem statt in 40% in über 90% des gasgefüllten Bereiches Magnetfeld herrscht, ergibt sich:

$$\mathcal{W}_{stat,dipol}(d) \approx \sqrt{\frac{40\%}{90\%}} \cdot \mathcal{W}_{stat,splitpole}(d). \quad (3.11)$$

Der Unterschied von \mathcal{W}_{kws} ist dagegen unbedeutend, so daß sich, wie in Abbildung 3.9 zu sehen, eine deutlich Reduktion von \mathcal{W} ergibt. Da der Isobarenabstand \mathcal{D} nur vom dem Unterschied in der magnetischen Steifigkeit und nicht von der Magnetfeldanordnung abhängt, wird die Isobarenseparation \mathcal{S} im gleichen Maße verbessert wie \mathcal{W} .

\mathcal{W} wird nach dieser Abschätzung von 1.53% auf 1.12% $\Delta(B\rho)/(B\rho)$ reduziert (siehe dazu auch Abbildung 3.10).

Ein weiterer wichtiger Punkt ist, daß die maximale Separation nun bei niedrigerer Massenbelegung stattfindet. Während bei einem System mit 40% B-Feld-Gas-Überlapp 2.5 mg cm⁻² Stickstoff nötig sind, sind es bei 90% nur mehr 2.1 mg cm⁻². Dadurch steht im Detektor mehr Restenergie zur weiteren Isobarentrennung zur Verfügung, und die Energieunschärfe des Strahles ist geringer.

3.3.3 Monte-Carlo-Rechnungen zur Bestimmung der Orts- und Energieverteilung nach einem gasgefüllten Magneten

Die analytische Bestimmung der Breite \mathcal{W} eines Ionenstrahls nach dem Durchlaufen eines gasgefüllten Magneten ist aus zwei Gründen schwierig. Erstens sind die Umladungsquerschnitte $\sigma_{qq'}$ i.a. nicht oder nur sehr ungenau bekannt. Dadurch wird die Bestimmung von \mathcal{W}_{stat} nur qualitativ möglich. Zweitens können zwei Ionen mit gleichem mittleren Ladungszustand q_m verschiedene Orte haben, da die einzelnen Trajektorienelemente zwischen den Umladungen nicht kommutativ sind.

Wegen dem zweiten Grund ist es erforderlich, die Ortsverteilungen mit einem Monte-Carlo-Code zu berechnen. Die Ergebnisse sind zwar nur qualitativ richtig, können wichtige Informationen über die Magnetfeldanordnung geben. Das Programm RAYTRACE [SE67], ursprünglich zur Trajektorienberechnung in Magnetspektrographen geschrieben, wurde erweitert, so daß Trajektorien für gasgefüllte Magnetsysteme berechnet werden können⁴ [PGH⁺89].

⁴Aus der mittleren freien Weglänge ohne Umladung λ , abhängig von der Massenbelegung und dem totalen Umladungsquerschnitt $\sigma_{tot,q}$, wird mit einer Zufallszahl p

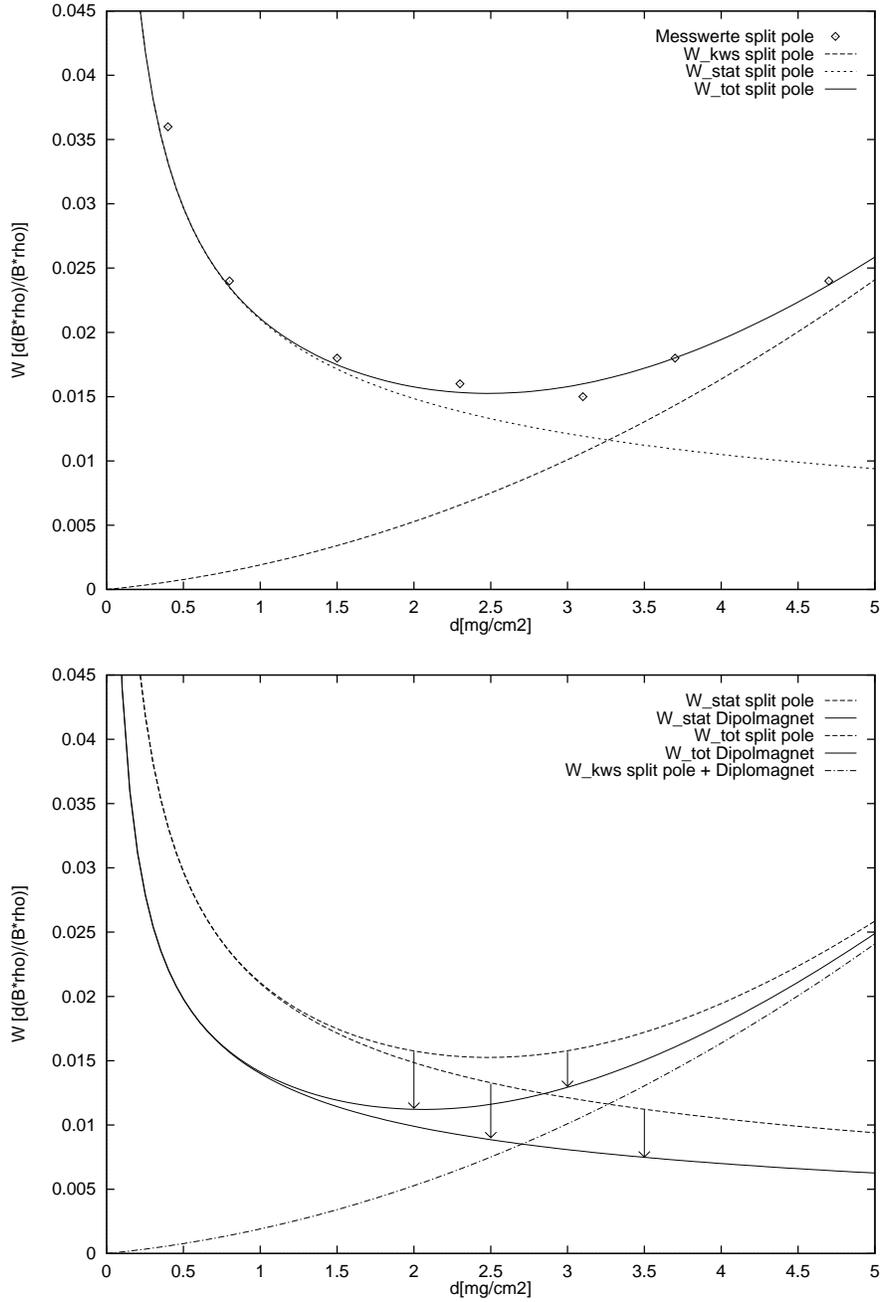


Abbildung 3.9: Oberes Bild: Strahlbreite \mathcal{W} von ^{58}Ni -Ionen mit 200 MeV gegen den Druck (bzw. die Massenbelegung des Gases) in einem mit Stickstoff gefüllten Enge-Split-Pole-Magnetspektrographen. Die Meßwerte [PGH⁺ 89] wurden angefitet und die Fitfunktion in Anteile für \mathcal{W}_{stat} und \mathcal{W}_{kws} zerlegt. Unteres Bild: Aufgrund der Verbesserung der Umladungsstatistik wird in einem Dipolmagneten mit einem Überlapp Gas-B-Feld von ca. 90% (anstatt 40–50%) eine Reduktion von \mathcal{W}_{stat} um $\sqrt{\frac{40\%}{90\%}}$ erwartet, und somit ebenso eine Reduktion von \mathcal{W} .

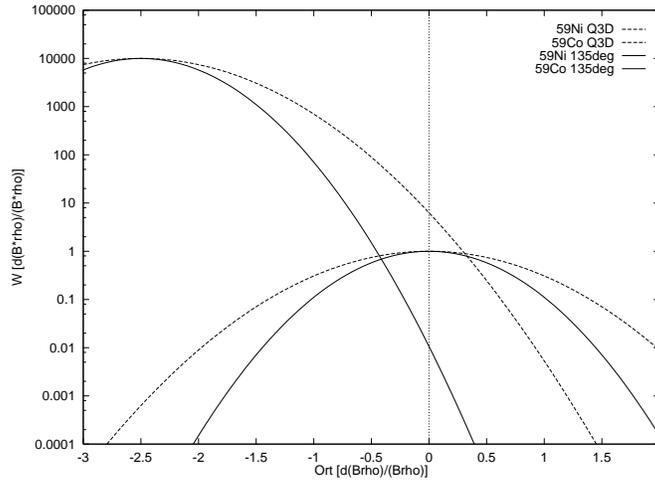


Abbildung 3.10: Reduktion des ^{59}Co -Untergrundes im ^{59}Ni -Bereich durch Verringerung der Breite der Ortsverteilungen von 1.53% auf 1.12%. Die Verteilungen sind hier als Gaußkurven angenommen. Die ^{59}Co -Konzentration ist das 10^4 -fache der ^{59}Ni -Konzentration, was bei einer ^{59}Co -Verunreinigung der Meßprobe von 10 ppb einen $^{59}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnis von 10^{-12} entspricht.

In den Abbildungen 3.11 und 3.12 sind mit RAYTRACE berechnete Orts- und Energieverteilungen von ^{59}Ni - und ^{59}Co -Ionen in einem mit Stickstoff gefüllten Q3D-Magnetspektrographen und einem 135° -Dipolmagnet gezeigt. Die Einschubenergie betrug jeweils 190 MeV, die Massenbelegung 2.3 mg cm^{-2} . Die Breite der Ortsverteilungen im Q3D ist, verglichen mit Meßwerten [KFK⁺94], etwa um einen Faktor 2.4 zu hoch. Die Abstand der beiden Verteilungen ist in sehr guter Übereinstimmung mit den Meßwerten.

Für eine 135° -Magneten ergibt sich bei gleichen Eingangsparametern eine Verbesserung der Separation \mathcal{S} von 0.71 auf 1.20. In der Realität sollte diese Verbesserung nicht ganz so deutlich sein, weil wegen der offensichtlich zu kleinen Umladungsquerschnitte, die im Programm verwendet werden, der absolut dominierende Anteil an der Strahlbreite auf der als zu schlecht angenommenen Umladungsstatistik beruht. Gerade aber die Verbesserung der

($0 \leq p \leq 1$) eine Strecke $l = -\lambda \ln p$ errechnet, nach der das Ion der Ladung q nach $q' = q \pm 1$ umgeladen wird. Ob Einfang oder Verlust eines Elektrons, wird ebenfalls mit einer Zufallszahl entschieden, wobei die Wahrscheinlichkeiten entsprechend den Einfangs- bzw. Verlustwirkungsquerschnitten $\sigma_{q,q-1}$ und $\sigma_{q,q+1}$ sind. Umladungsprozesse mit $\Delta q > 1$ werden vernachlässigt. Die Berechnung der Umladungsquerschnitte erfolgt im wesentlichen nach [DN68].

Bei jedem Umladungsstoß wird das Ion, entsprechend der Massenbelegung über die Strecke l , zusätzlich gestreut. Der Winkel wird zufällig ausgewählt, normiert auf eine berechnete Verteilung nach [BG75].

Der Energieverlust wird nach [Zie80] entsprechen der Länge der Trajektorie im Gas und dem mittleren Ladungszustand q_m des Ions berechnet.

Statistik ist der Vorteil eines einfachen Dipolmagneten.

Skaliert man die berechnete Breite \mathcal{W} von 2.46% mit dem Faktor 2.4 von oben, erhält man für einen 135°-Dipolmagneten $\mathcal{W} = 1.03\%$. Dieser Wert ist in sehr guter Übereinstimmung mit der Abschätzung, die im vorherigen Abschnitt aufgrund der Meßwerte mit dem Enge-Split-Pole gemacht wurde und 1.12% ergab⁵.

Die Berechnungen von einem 90°- und einem 180°-Dipolmagneten ergeben eine schlechtere Ortseparation als bei 135° (siehe Tabelle 3.2 und auch Abbildung 3.8).

Wie bereits oben erwähnt, ergibt sich, wegen der gegenüber einem Spektrographen sehr niedrigen Dispersion, eine deutlich schärfere Restenergieverteilung, was eine effizientere Isobaren- und Isotopenunterdrückung durch Energieverlustmessungen in einer Ionisationskammer erlaubt (siehe Abbildung 3.12 und Tabelle 3.2).

ϕ	$E_0[\text{MeV}]$	$d[\frac{\text{mg}}{\text{cm}^2}]$	\mathcal{D}	\mathcal{W}	\mathcal{S}	$\delta E_{tot}[\text{MeV}]$
90°	190	2.3	2.95%	2.63%	1.12	–
135°	190	2.3	2.95%	2.46%	1.20	1.86
180°	190	2.3	2.68%	2.59%	1.10	–
Q3D	190	2.3	2.33%	3.27%	0.71	≈ 5

Tabelle 3.2: Ausgangswerte und Ergebnisse der RAYTRACE-Monte-Carlo-Rechnungen zur Bestimmung der Orts- und Energieverteilung von ⁵⁹Ni- und ⁵⁹Co-Ionen nach einem gasgefüllten Magneten.

ϕ : Ablenkwinkel, E_0 : Einschußenergie, d : Massenbelegung (N_2), \mathcal{D} : Abstand ⁵⁹Ni–⁵⁹Co in $\Delta(B\rho)/(B\rho)$, \mathcal{W} : Breite der Ortsverteilung (FWHM) in $\Delta(B\rho)/(B\rho)$, \mathcal{S} : \mathcal{D}/\mathcal{W} , δE_{tot} : Breite der Energieverteilung von Ionen mit dem gleichen Ort (FWHM).

⁵In dieser Abschätzung wurde von nur 90% Überlapp B-Feld–Gas ausgegangen, während in der RAYTRACE-Rechnung mit 100% gerechnet wurde, wodurch der berechnete Wert etwas niedriger ausfallen muß. Andererseits wurde mit 190-MeV-⁵⁹Ni-Ionen gerechnet, während die Abschätzung auf Daten von 200-MeV-⁵⁸Ni-Ionen basiert. Beide Effekte heben sich in etwa auf, so daß der Unterschied hauptsächlich durch die Überschätzung von \mathcal{W}_{stat} kommt.

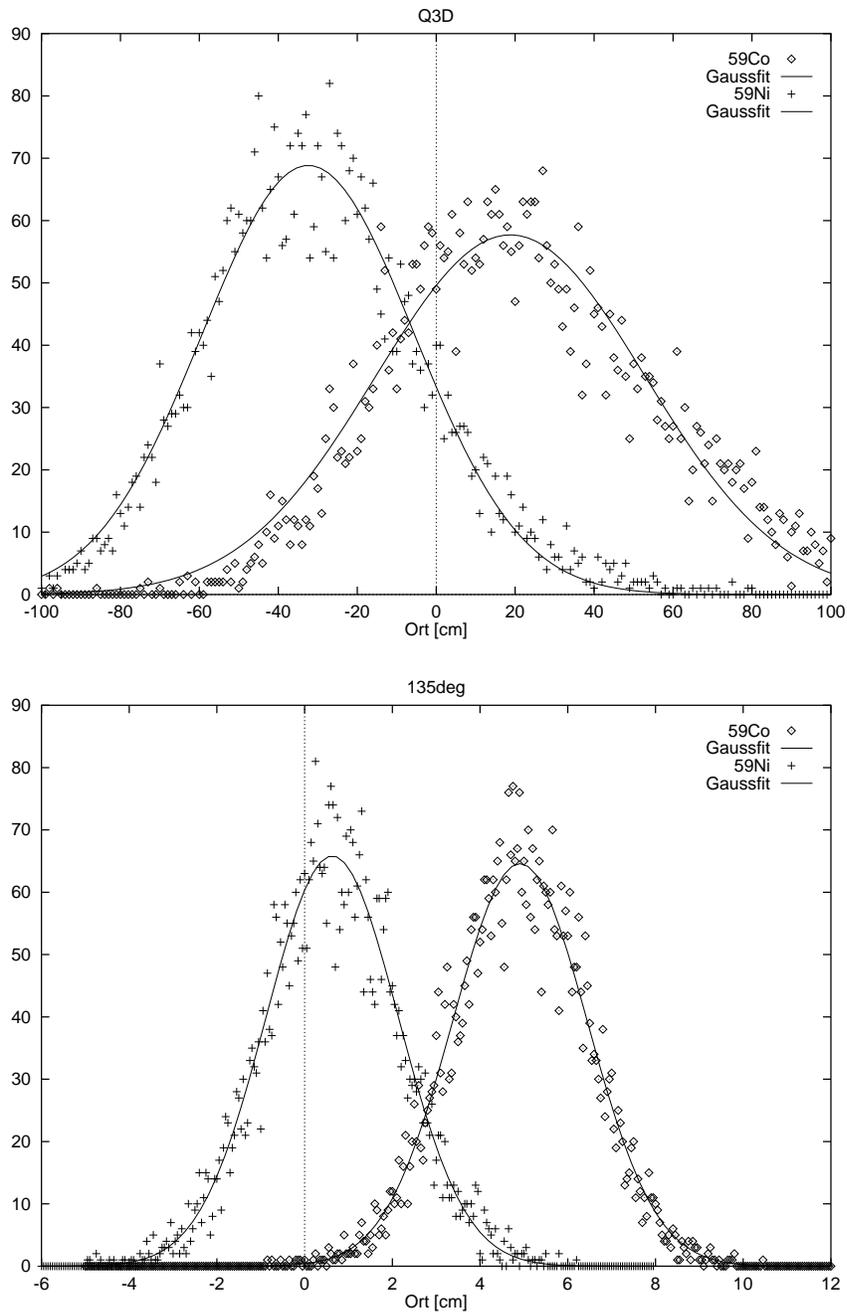


Abbildung 3.11: *RAYTRACE*-Monte-Carlo-Rechnung der Ortsverteilung von ^{59}Ni - und ^{59}Co -Ionen in einem gasgefüllten Q3D-Magnetspektrographen und in einem 135° -Magneten. Für die Ausgangswerte und Ergebnisse siehe Tabelle 3.2

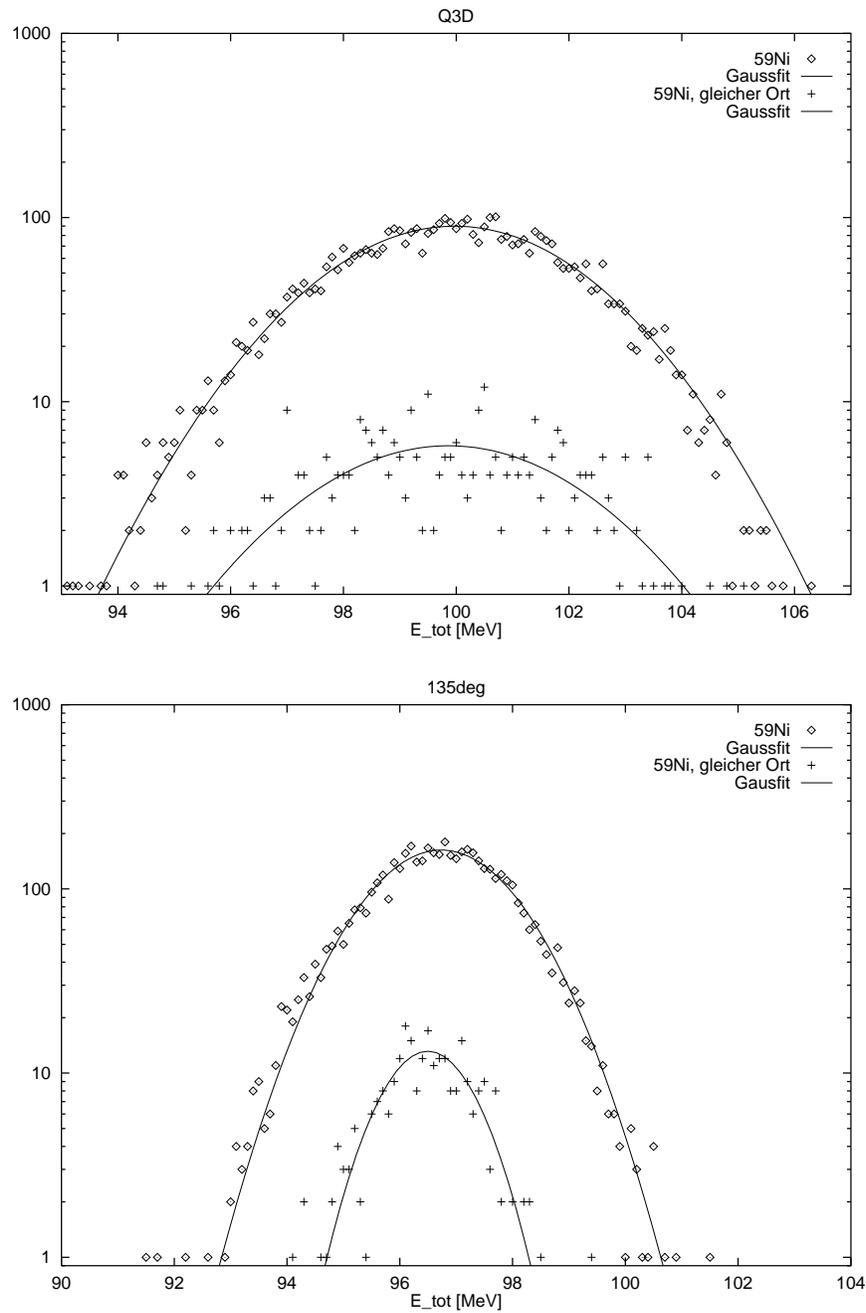


Abbildung 3.12: *RAYTRACE*-Monte-Carlo-Rechnung der Energieverteilung von ^{59}Ni -Ionen nach einem gasgefüllten Q3D-Magnetspektrographen und einem 135° -Magneten. Bei den jeweils unteren Kurven wurde eine Fensterbedingung auf den Ort gesetzt, die oberen Kurven sind die ortsunabhängigen Energieverteilungen. Für die Ausgangswerte und Ergebnisse siehe Tabelle 3.2

Kapitel 4

Experimenteller Aufbau

Wie in Kapitel 3.3 dargestellt, lassen sich von einem 135° -Dipolmagneten gegenüber dem Q3D-Magnetspektrographen Vorteile in der Isobarensparation erwarten. In dieser Arbeit wurde deshalb das gasgefüllte Analysiermagnet System GAMS aufgebaut. Auf seine einzelnen Komponenten, die Flugzeitstrecke, den gasgefüllten 135° -Dipolmagneten und die Ionisationskammer wird in den folgenden Abschnitten eingegangen.

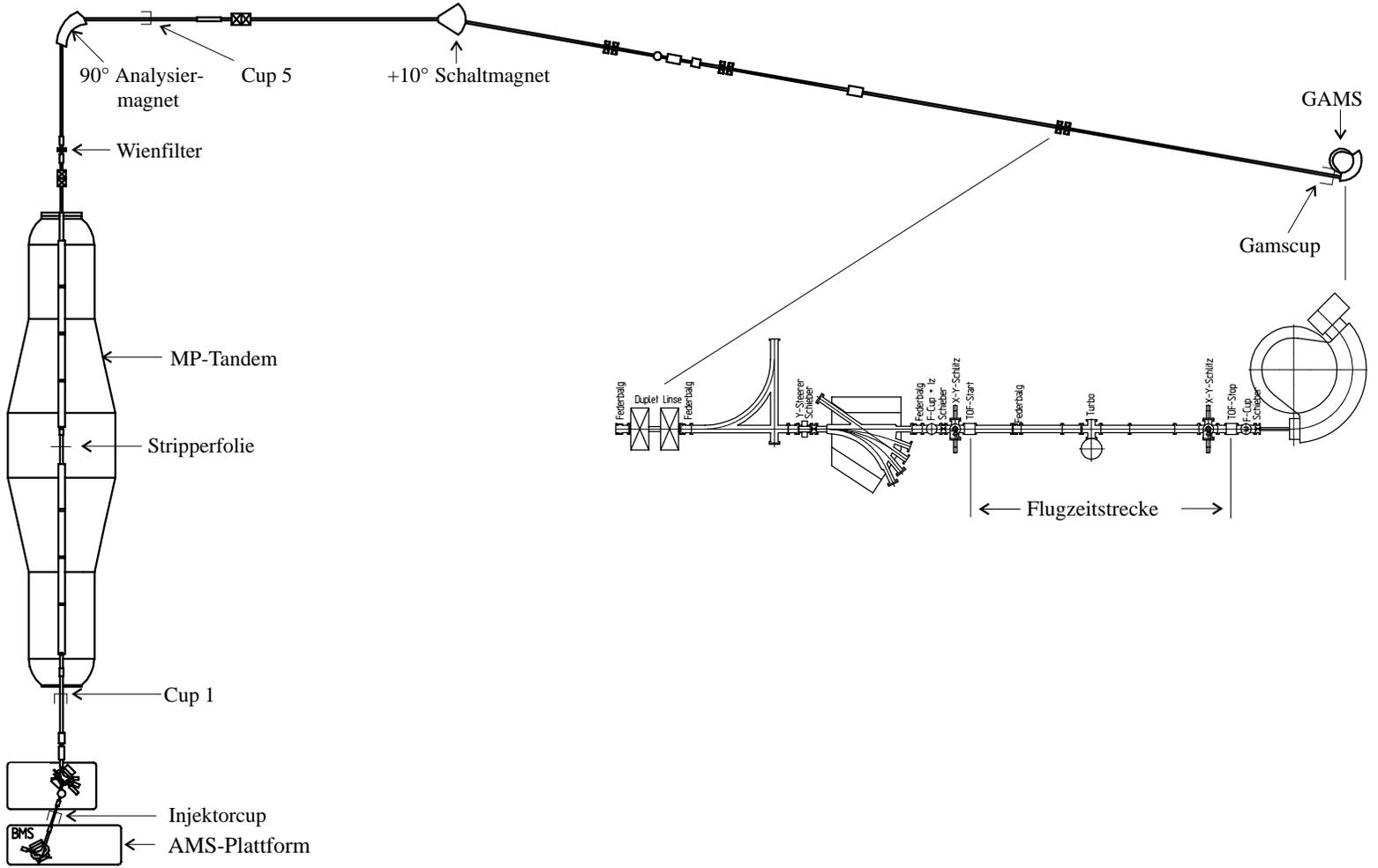
In Abbildung 4.1 ist der gesamte Meßaufbau gezeigt. Der Strahl wird von der Quadrupollinse vor dem Schaltmagneten auf den Stopdetektor der Flugzeitstrecke fokussiert. In der Flugzeitstrecke sind keine optischen Elemente mehr, weil die Ionen durch die Folie im Startdetektor in verschiedene Ladungszustände gestrippt werden.

4.1 Der 135° -Magnet

Ein gasgefüllter Magnet für AMS-Anwendungen muß mehrere Anforderungen erfüllen:

1. Der Ablenkwinkel soll im Bereich zwischen 110° und 150° liegen (siehe Abschnitt 3.3.1)
2. Die mittlere magnetische Steifigkeit in Gas nimmt mit der Kernladungszahl der Ionen zu. Um Ionen bis zu $Z \approx 50$ ablenken zu können, sollte $B\rho > 1 \text{ Tm}$ erreichbar sein.
3. Da die Trajektorien nicht exakt kreisförmig sind, muß über einen relativ breiten Bereich homogenes Magnetfeld herrschen (siehe Abbildung 1.2).
4. Aus praktischen Gründen sollte der Magnet möglichst leicht und kompakt sein.

Abbildung 4.1: Experimenteller Aufbau.



An der GSI stand der ehemalige Ablenkmagnet des Massenseparators SIDONIE [CMS70, NBBS87] zur Verfügung, der bis auf Punkt 2 alle Anforderungen erfüllte. Der Ablenkwinkel beträgt 135° ¹, und mit der Polschuhbreite von 40 cm ist ein homogenes Magnetfeld über einen breiten Bereich möglich. Die Bauform als C-Magnet ist sehr kompakt, so daß der Magnet bei einem mittleren Ablenkradius von 85 cm ein relativ geringes Gewicht von ca. 16 t hat.

Das maximal erreichbare Magnetfeld betrug nur 0.6 T, was einem $B\rho$ von 0.51 Tm entspricht. Durch den sehr großen Polschuhabstand von 13 cm (innen) bis 15 cm (außen) ging etwa die Hälfte der der Feldenergie ins Streufeld. Zudem war die Fläche der Polschuhe mit 7300 cm^2 größer als die des Rückflusses mit 6650 cm^2 , d.h. vor den Polschuhen ging der Rückfluß in magnetische Sättigung.

Aus diesen Gründen wurden neue Polschuhe und eine neue Magnetkammer angefertigt (siehe Abbildung 4.2 und 4.4). Der Polschuhabstand wurde auf 7.1 cm reduziert, die Breite auf 30 cm. Hierdurch ist eine lichte Höhe der Magnetkammer von 5 cm möglich, so daß keine Strahlverluste durch Kleinwinkelstreuung in y-Richtung entstehen sollten. Die Breite des Bereichs mit homogenem B-Feld ist mit ca. 16 cm ausreichend für AMS-Messungen. Durch diese Umbaumaßnahmen kann jetzt ein Magnetfeld von 1.25 T bei einem Strom von 100 A erreicht werden. Das maximale Feld ist durch Sättigungseffekte in den Polschuhen begrenzt, wie in Abbildung 4.3 gezeigt ist. Bei einem mittleren Radius von 90 cm lassen sich nun Ionen bis zu einer magnetischen Steifigkeit von 1.12 Tm ablenken. Dies entspricht einem Z von ungefähr 60. Die Dispersion des Magneten beträgt $1.55\text{ cm}/\%(B\rho)$.

Der Magnet steht auf einem Tisch, der eine Justage in x-, y- und z-Richtung sowie eine Drehung des Magneten zuläßt. An dem Tisch waren Rollen angebracht. Dadurch konnte der Magnet außerhalb der Experimentierhalle mit einem Kran auf den Tisch gesetzt und anschließend auf Schienen zum Experimentierplatz gefahren werden.

Der Aufbau der Magnetkammer und der Detektorkammer ist in Abbildung 4.4 gezeigt.

4.2 Die Ionisationskammer

4.2.1 Funktionsweise einer Frischgitterionisationskammer

Eine Ionisationskammer ist prinzipiell ein gasgefüllter Plattenkondensator der Kapazität C (siehe Abbildung 4.5). Durch Stöße der Projektionen mit

¹Die Polschuhe sind am Eingang und Ausgang jeweils 9 cm verkürzt, so daß wegen den Streufeldern der Winkel im Magnetfeld ca. 135° beträgt.

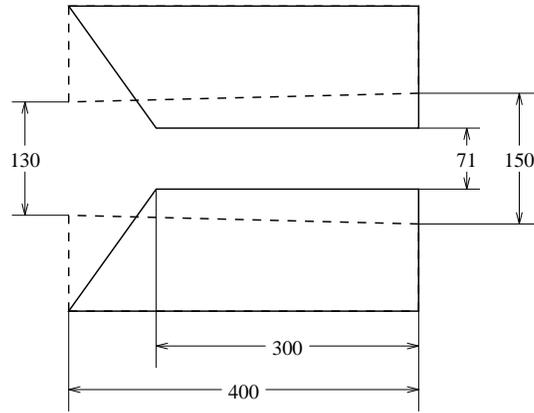


Abbildung 4.2: Querschnitt durch die neuen (durchgezogene Linie) und alten (gestrichelte Linie) Polschuhe. Durch die Reduktion des Polschuhabstandes von 130–150 mm auf 71 mm und der Polschuhbreite von 400 mm auf 300 mm konnte das maximale B-Feld von 0.6 T auf 1.25 T gesteigert werden.

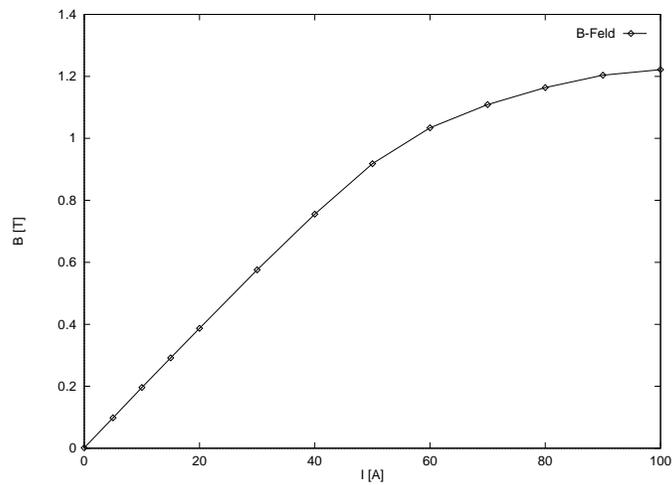


Abbildung 4.3: Mit den neuen Polschuhen erreichbares Magnetfeld gegen den Strom.

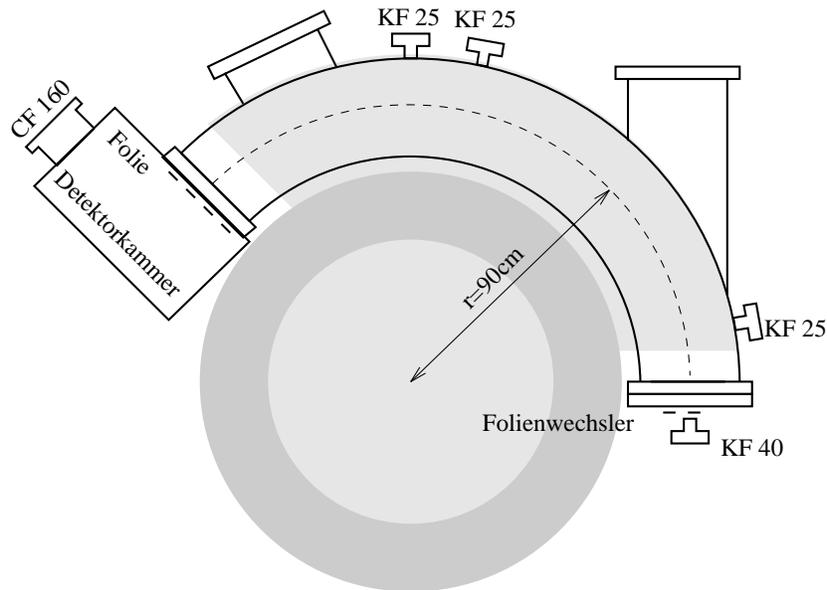


Abbildung 4.4: Aufbau der Magnetkammer und der Detektorkammer. Drei Eingangsfolien ($30 \mu\text{g cm}^{-2}$ Capton) mit einem Durchmesser von 25 mm befinden sich auf einem Folienwechsler direkt am Eingang der Magnetkammer. Das Eingangsfenster ist 3 cm links von der Mitte der Magnetkammer angebracht, damit sich die nicht genau kreisförmigen Trajektorien der Ionen im Gas in einem Bereich mit möglichst homogenen B -Feld befinden. Die Magnetkammer ist aus 5 mm dickem Aluminium geschweißt. Zusätzlich sind zur Verstärkung oben und unten ebenfalls 5 mm dicke Aluminiumrippen aufgeschweißt. Die Höhe der Kammer beträgt 70 mm, die lichte Höhe 50 mm. In 0° -Richtung befindet sich ein Ausgang, an dem sich ein Detektor anflanschen läßt, um nur die Flugzeitstrecke nutzen zu können. Die drei Kleinflansche dienen zur Druckregelung in der Magnetkammer. Die Detektorkammer besteht aus 8 mm bzw. 15 mm (Frontplatte) dickem Edelstahl. Die lichten Maße der Kammer betragen $507 \cdot 180 \cdot 305 \text{ mm}^3$. Das Eintrittsfenster hat eine Größe von $200 \cdot 45 \text{ mm}^2$. Die Detektorfolie ist mit Epoxykleber auf eine Leiterplatte geklebt, die mit einem O-Ring gegen die Innenseite der Detektorkammer gedichtet wird.

den Gasatomen werden freie Ladungsträger erzeugt, die zur Anode (Elektronen) oder Kathode (Ionen) abgesaugt werden.

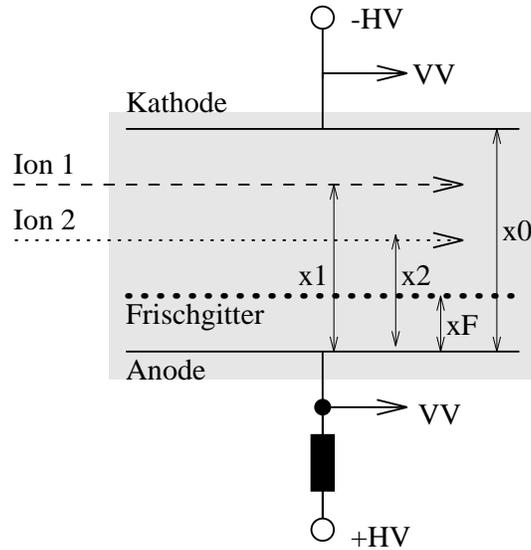


Abbildung 4.5: *Prinzipieller Aufbau einer Frischgitterionisationskammer.*

Im einfachsten Fall (kein Frischgitter, abgeklemmte Spannungsversorgung) läßt sich die Spannungsänderung ΔU durch ein einfallendes Projektil über die Änderung des Energieinhalts des Kondensators abschätzen zu:

$$\Delta U = \frac{Ne}{Cx_0} \underbrace{(v_{ion}t_{ion} + v_e t_e)}_{x_0}. \quad (4.1)$$

Hierbei ist N die Anzahl der durch das Ion erzeugten freien Ladungsträger², v_{ion} bzw. v_e die Driftgeschwindigkeit der Ionen bzw. Elektronen im Gas und t_{ion} bzw. t_e die Zeit, die das Ion (Elektron) vom Erzeugungsort zur Kathode (Anode) benötigt. ΔU ist also nur abhängig von der Anzahl der erzeugten freien Ladungsträger, d.h. von der durch das Ion im Detektor deponierten Energie.

Die Driftgeschwindigkeit der Ionen ist um etwa drei Größenordnungen kleiner als die der Elektronen³. Die Sammelzeit der Ionen t_{ion} liegt im ms-Bereich, wodurch der Detektor nicht für höhere Zählraten geeignet ist⁴.

²Der W -Wert ($W = E/\bar{N}$) eines Gases ist die Energie, die benötigt wird, um im Mittel ein freies Ladungsträgerpaar zu erzeugen. Z.B. für Isobutan ist $W=23$ eV [Kle87]. N ist als Folge der statistischen Ionisierungen ebenso ein statistischer Parameter. Wegen der vielen Stöße bei Projektilen mit einigen MeV/u sind die statistischen Fluktuationen aber sehr gering.

³Bei einem Feld von $E/p = 2$ V cm⁻¹ mbar⁻¹ in Isobutan beträgt die Driftgeschwindigkeit der Elektronen etwa $4 \cdot 10^6$ cm/s, für Ionen etwa $1.4 \cdot 10^3$ m/s [Kle87]

⁴Außerdem würde der Kondensator immer mehr entladen.

Schließt man über einen Widerstand R mit $t_e \ll RC \ll t_{ion}$ eine Spannungsversorgung an die Elektroden, erhält man zeitlich kurze Signale, denn die Ionenkomponente des Signals fließt nicht mehr in den Vorverstärker, sondern wird durch das Netzgerät kompensiert. ΔU aus Gleichung 4.1 wird dann abhängig vom Erzeugungsort der Elektronen:

$$\Delta U = \frac{Ne}{Cx_0} \underbrace{v_e t_e}_{x_i}. \quad (4.2)$$

x_i ist der Abstand der Spur des Ions i von der Anode (siehe Abbildung 4.5). Verwendet man zwischen Anode und Kathode ein Frischgitter, das auf einem mittleren Potential liegt, können nur mehr Elektronen unterhalb des Gitters einen Effekt auf die Anode haben. Die Signale sind dann wieder unabhängig vom Entstehungsort der freien Ladungsträger:

$$\Delta U = \frac{Ne}{Cx_0} \underbrace{v_e t_{e,FG \rightarrow A}}_{x_F}. \quad (4.3)$$

4.2.2 Aufbau der Ionisationskammer

Als Detektor nach dem gasgefüllten Magneten wird eine Frischgitterionisationskammer verwendet, in der die Ionen gestoppt werden. Die sensitive Breite von maximal⁵ 20 cm entspricht etwa 13% in der magnetischen Steifigkeit. I.a. wird wegen der geringen erforderlichen Kammerdrucks von maximal 50 mbar Isobutan (C_4H_{10}) als Detektorgas verwendet.

Da sich Isobare im differentiellen Energieverlust unterscheiden (siehe Abschnitt 2.3), ist die Anode senkrecht zur Strahlrichtung in fünf Energieverluststreifen $\Delta E_1 - \Delta E_5$ aufgeteilt (siehe Abbildung 4.6). Das Frischgitter ist kapazitiv mit der Kathode gekoppelt (siehe 4.8), wodurch nur Elektronen zwischen Anode und Gitter ein Signal influenzieren können. Dadurch kann ein unabhängiges Signal E_{tot} für die Gesamtenergie vom Frischgitter abgenommen werden.

Um den x-Ort des Ions bestimmen zu können, ist der erste Energieverluststreifen diagonal geteilt. Der Ort wird dann berechnet zu⁶

$$\text{Ort} = \frac{l_s}{2} \left(\frac{S(\Delta E_1 l) - S(\Delta E_1 r)}{S(\Delta E_1 l) + S(\Delta E_1 r)} \right). \quad (4.4)$$

$S(\Delta E_i)$ sind die Signalhöhen der jeweiligen Anodensegmente, l_s ist die Länge, über welche das Anodensegment geteilt ist ($l_s = 14.5$ cm).

⁵je nach verwendeter Anodenplatte

⁶Die Rechnung stimmt nur dann exakt, wenn man den differentiellen Energieverlust über dem Anodensegment als konstant annimmt. Die Änderung von dE/dx über den Anodensegment ist aber bei zwei Isobaren sehr ähnlich, so daß die berechneten Orte relativ zueinander wieder richtig sind.

Dadurch, daß der ΔE_3 -Streifen ebenfalls geteilt ist, kann durch eine zweite Ortsmessung der horizontale Winkel der Ionen im Detektor bestimmt werden. Die Detektorsignale von den einzelnen Anodensegmenten und dem Frischgitter werden kapazitiv ausgekoppelt und in die Vorverstärker gegeben (siehe Abbildung 4.8). In einem HF-dichten Gehäuse außerhalb befinden sich zehn Vorverstärkerplatinen (zwei Reserve) vom Typ GAT Micro-CATSA.

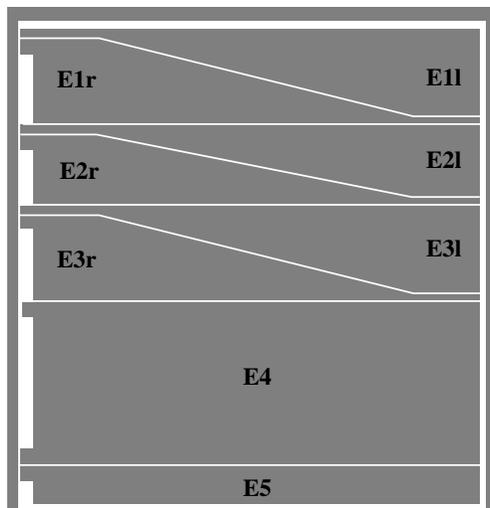


Abbildung 4.6: Ansicht der Anodenleiterplatte ($185 \cdot 195 \text{ mm}^2$, der Strahl kommt von oben). Im normalen Betrieb sind die Energieverlustsektoren ΔE_{2l} und ΔE_{2r} kurzgeschlossen. Um die Energieverlustsektoren ist ein sogenannter Guard-Ring, der auf Anodenpotential liegt. Dadurch wird verhindert, daß Ladungen durch Kriechströme abfließen können.

4.3 Die Flugzeitstrecke

Die stabilen Isotope des AMS-Nuklids, die je nach Konzentration bis zu fünfzehn Größenordnungen häufiger in der Ionenquelle erzeugt werden, können in den meisten Fällen nicht vollständig durch das Strahlführungssystem und den Detektor unterdrückt werden⁷. So können z.B. einige Ionen eine Umladung am Restgas auf der Hochenergieseite des Beschleunigers machen, so daß am Ende die magnetische Steifigkeit mit der des AMS-Isotops übereinstimmt. Bei schwereren Isotope ist die Unterdrückung schlechter, weil sie zudem durch eine Streuung genau so viel Energie verlieren können, daß ihre magnetische Steifigkeit mit der eingestellten übereinstimmt. Im allgemeinen ist die Unterdrückung um so schlechter, je kleiner der relative

⁷Der Unterschied der Trajektorien im gasgefüllten Magneten ist zu klein, um Isotope separieren zu können

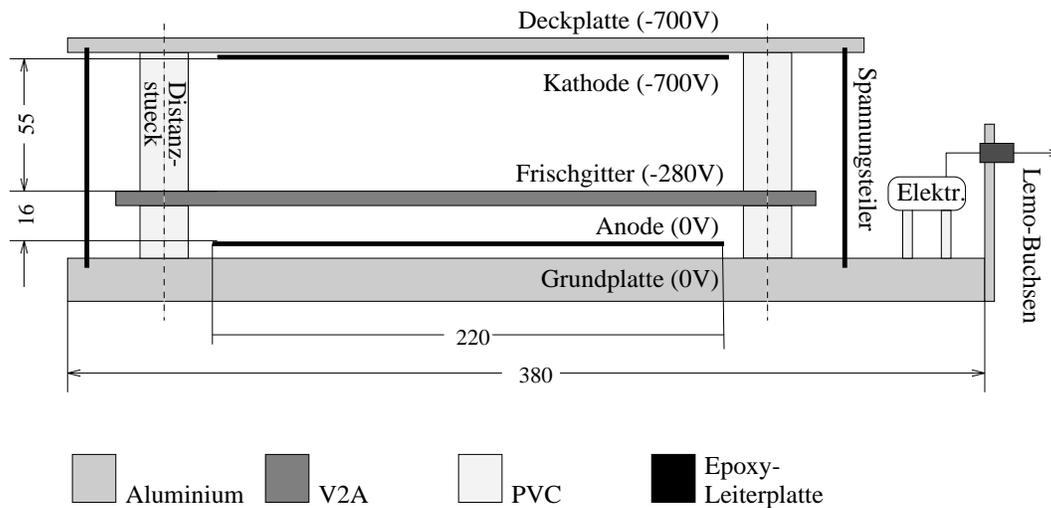


Abbildung 4.7: Vorderansicht der Ionisationskammer (der Strahl geht in die Zeichenebene).

Der Detektor steht offen in der Detektorkammer. Seitlich und hinter dem Frischgitter befinden sich Leiterplatten mit je acht vertikalen Metallstreifen als Potentialringe. Auf die Eingangsfolie sind Aluminiumstreifen aufgedampft, die ebenfalls mit einem Spannungsteiler versehen sind. Um ein möglichst homogenes Feld im Inneren des Detektors zu gewährleisten, gehen die Potentialringe über einen großen Bereich, um Feldverzerrungen durch Randeffekte auszuschließen.

Die Anodenstruktur ist auf eine Leiterplatte geätzt. Durch Austausch dieser Leiterplatte ist es sehr einfach möglich, andere Strukturen zu verwenden. Ebenso lassen sich die Abstände Anode–Frischgitter und Frischgitter–Kathode durch Austausch der Distanzringe leicht verändern.

Unterhalb der Anode ist die Grundplatte ausgefräst, um die Kapazität der Anode gegen Masse möglichst klein zu halten.

Das Frischgitter ist auf einen 5 mm dicken V2A-Rahmen gewickelt. Der Drahtabstand beträgt 1 mm bei einem Durchmesser von 50 μm .

Die Eintrittsfolie ist mit Epoxykleber auf eine Leiterplatte geklebt, die, mit einem O-Ring gedichtet, an der Detektorkammer befestigt ist. Es können verschieden große Fenster verwendet werden, damit, je nach Messung, das AMS-Isotop im mittleren Bereich des Detektors nachgewiesen wird, und das störende Isobar so stark wie benötigt ausgeblendet werden kann.

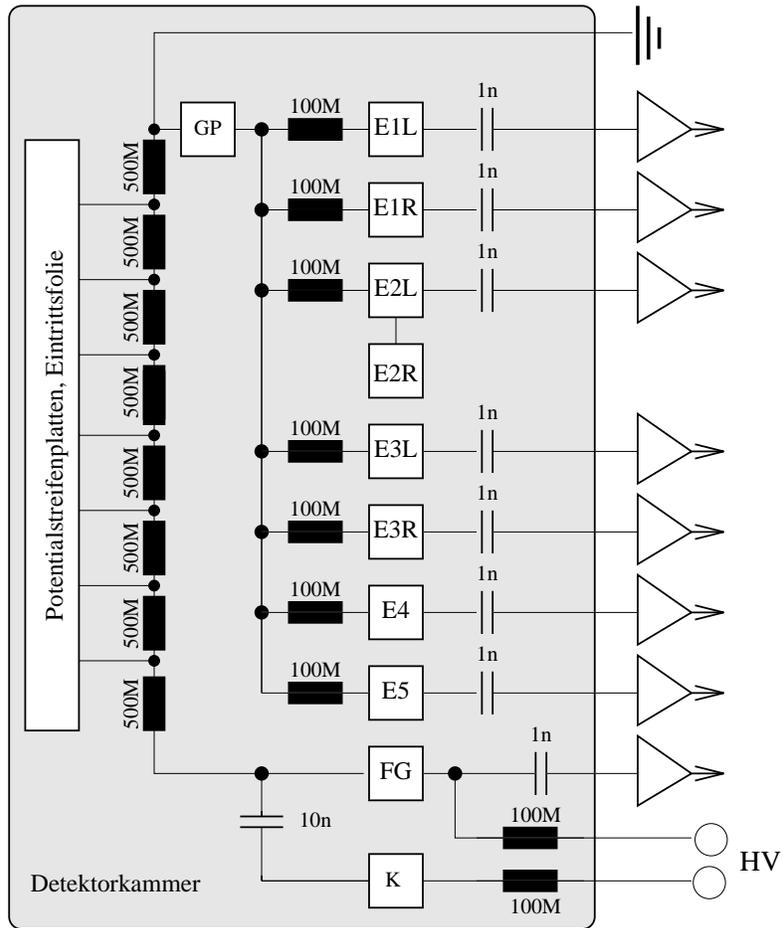


Abbildung 4.8: *Schaltplan der Detektorelektronik*

Massenunterschied zum AMS-Isotop ist. Wie alle bisherigen Messungen gezeigt haben, besitzen die Isotope, die das Detektorsystem erreichen, gleiche magnetische Steifigkeit. Wegen $B\rho \propto mv$ müssen sie sich demnach in ihrer Geschwindigkeit unterscheiden.

Bei nahezu allen Startdetektoren fliegen die Ionen durch eine dünne Folie und werden dabei gestrippt. Deshalb sollte man nach dem Startdetektor auf strahloptische Elemente verzichten⁸. Man kann also die Flugzeitstrecke nicht sehr lang machen, d.h. die Zeitauflösung sollte bei 1 ns oder darunter liegen. Der Flugzeitunterschied von z.B. einem ^{59}Ni -Ion mit 190 MeV und einem ^{60}Ni -Ion gleicher Steifigkeit beträgt 680 ps/m.

Am Laboratori Nazionali di Legnaro wurden Flugzeitdetektoren mit einer Zeitauflösung von 280 ps für α -Teilchen entwickelt [SSLS82]. Der prinzipielle Aufbau gleicht dem in Abbildung 4.9. Die Ionen schlagen aus einer dünnen Kohlenstoffolie (einige $\mu\text{g cm}^{-2}$) Elektronen, die durch ein dahinterliegendes Gitter auf ca. 1 keV beschleunigt, von einem elektrostatischen Spiegel in ein μ -Channelplate gelenkt und dort verstärkt werden. Die Ionen werden aufgrund ihres hohen m/q nicht merklich abgelenkt. Durch die Geometrie des Detektors ist die Länge der Trajektorien der Elektronen unabhängig von ihrem Ausgangspunkt.

Bei AMS-Messungen in München wurde dieser Detektortyp ebenfalls verwendet. Das Stoppsignal lieferte ein Siliziumzähler [Mül89] oder ein Parallelplattenlawinenzähler in der Targetkammer des gasgefüllten Q3D [Ban91, Kas93]. Die Zeitauflösung lag in beiden Fällen bei 250–300 ps.

In dieser Arbeit wurden die μ -Channelplatedetektoren als Start- und Stopdetektoren verwendet. Sie haben gegenüber einem Parallelplattenzähler den Vorteil, daß nur eine statt vier Folien benötigt wird und keine Gasregelung erforderlich ist⁹.

Die alte Version der Detektoren [Mül89] wurde modifiziert, um höhere Signale und weniger Untergrund zu erhalten (siehe Abbildung 4.9):

- Anstelle von 2-fach-Channelplates wurden 3-fach-Channelplates¹⁰ verwendet. Dadurch sind bei schweren Ionen Signalhöhen bis zu mehreren Volt bei Anstiegszeiten unter 1 ns erreichbar. Somit ist sichergestellt, daß die Signale nicht elektronisch verstärkt werden müssen.

⁸Es ist auch möglich, sehr lange Flugzeitstrecken zu verwenden, und das Strahlführungssystem auf den häufigsten Ladungszustand nach der Startdetektorfolie einzustellen. Die Strahlverluste dadurch betragen dann allerdings ca. 75%. Ein weiteres Problem ist die höhere Zählrate am Startdetektor, wenn er schon am Anfang des Strahlführungssystems plziert ist.

⁹Der Parallelplattenzähler wurde bei den Q3D-Messungen deswegen verwendet, weil er in die bereits gasgefüllte Targetkammer gesetzt werden konnte, um eine möglichst lange Flugzeitstrecke zu haben.

¹⁰Hamamatsu F 1094-31

- Um zu verhindern, daß δ -Elektronen aus der Folie direkt in das Channelplate gelangen, wurden die Abstände der Folie und des Channelplates vergrößert.
- Der Abstand der beiden Spiegelgitter wurde von 5 mm auf 10 mm vergrößert. Dadurch konnten die Gitterabstände ebenfalls vergrößert werden (vorne von 1 mm auf 1.5 mm, hinten von 1 mm auf 3 mm). Der große Gitterabstand beim hinteren Gitter ist wichtig, weil Elektronen, die aus dem hinteren Gitter geschlagen werden, durch das vordere Gitter auf das Channelplate beschleunigt werden können.
- Die Channelplates werden mit 6-kV-Netzgeräten mit einem maximalen Strom von 1 mA versorgt, damit die anliegenden Spannungen bei hohen Zählraten nicht einbrechen. Die einzelnen Spannungen werden über einen Spannungsteiler erzeugt.
- Um Reflektionen zu verhindern, müssen Eingang und Ausgang des Channelplates kapazitiv an Masse gekoppelt werden. Statt der beiden 820 pF SMD-Kondensatoren, die für die höheren Spannungen bei einem dreistufigen Channelplate nicht mehr geeignet waren, wurden je zwei gegenüberliegende konventionelle Hochspannungskondensatoren (100 pF am Ausgang, 470 pF am Eingang) eingebaut. Eine Signalverschlechterung durch die etwas längeren Leitungswege wurde nicht festgestellt.
- Da das Leitungsende an der Anode von unbestimmter Impedanz ist, wurde auf den 50- Ω -Abschluß verzichtet.
- Um die Dämpfung der hochfrequenten Signalanteile zu reduzieren (d.h. kurze Signalanstiegszeiten zu erreichen) und die Reflektionen niedrig zu halten, wurden anstelle der BNC-Verbindungen und RG58-Kabel speziell für HF-Anwendungen ausgelegte SMA-Verbindungen und RG223-Kabel verwendet.

Bei dem Startdetektor wird eine sehr homogene Kohlenstoffolie (ca. $10 \mu\text{g cm}^{-2}$) eingesetzt. Üblicherweise wird auf dem Glasträger, bevor die Folie aufgedampft wird, eine Betainlösung aufgebracht. Das Lösungsmittel wird verdunstet, und die Folie kann dann vom Glasträger abgetrennt werden. Kristalline Struktur, die der Zucker Betain beim Verdunsten des Lösungsmittels bildet, findet sich auf der Folie wieder. Durch diese Dickeninhomogenitäten erleiden die Ionen unterschiedlichen Energieverlust in der Folie, was einen Ausläufer des Flugzeitpeaks hin zu längeren Flugzeiten zur Folge hat [Mül89]. Wird stattdessen eine Seifenlösung (Lensodel) auf den Träger aufgebracht, lassen sich deutlich glattere Folien erreichen. Wegen ihrer mechanischen

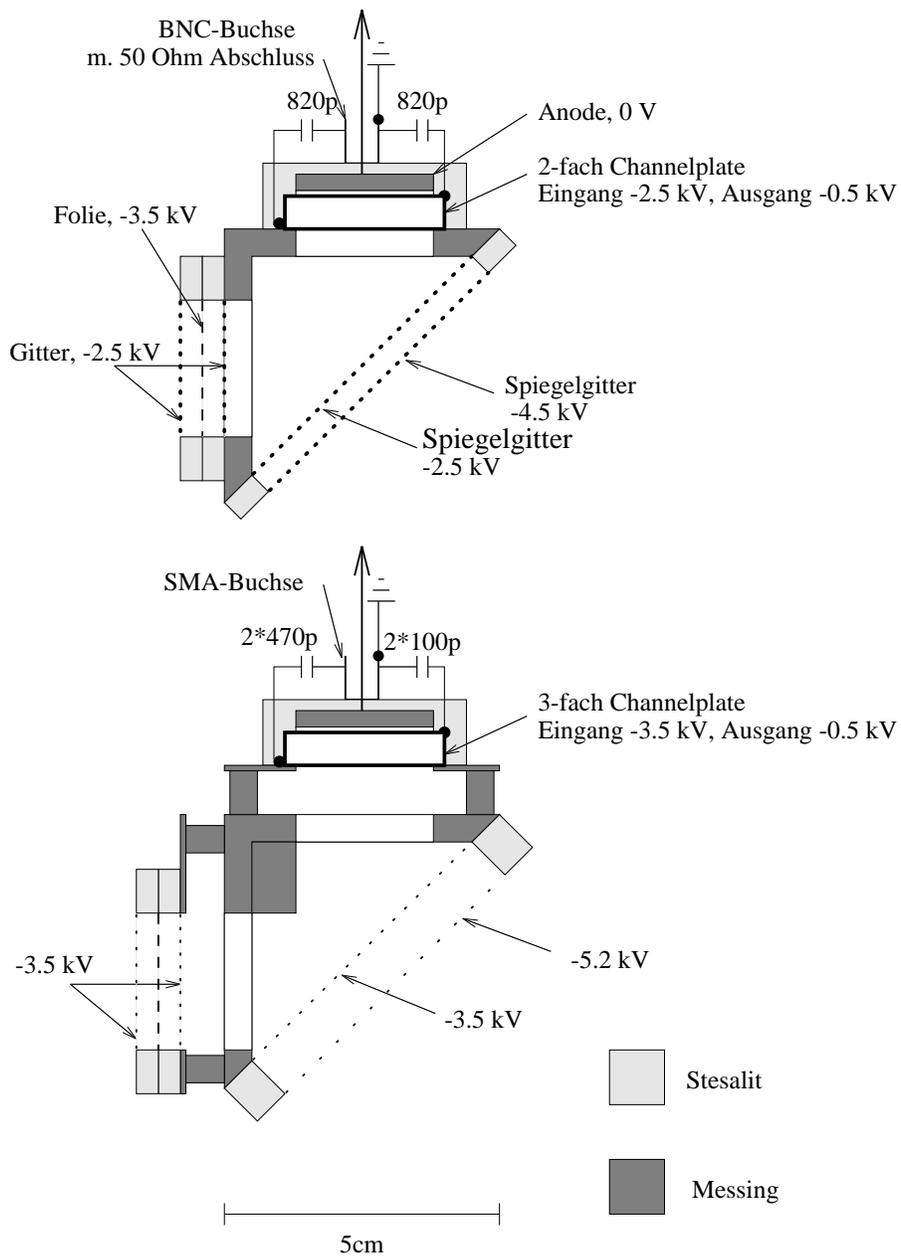


Abbildung 4.9: Aufbau der μ -Channelplate-Flugzeitdetektoren: alte Version (oben) und modifizierte Version (unten).

Empfindlichkeit werden diese Folien aber nur für den Startdetektor verwendet.

Durch das hohen Streufeld des Magneten am Ort des Stopdetektors (bis zu 30 mT) würden die Elektronen so stark abgelenkt werden, daß sie das Channelplate nicht erreichen könnten. Aus diesem Grund wurde ein Gehäuse aus magnetischen Stahl angefertigt, um das Magnetfeld abzuschirmen.

4.4 Signalverarbeitung und Datenaufnahme

Die Verschaltung der Datenaufnahmeelektronik ist in Abbildung 4.10 dargestellt. Es steht für jedes Ereignis folgender Rohdatensatz zur Verfügung:

e11-e5: Energieverlustsignale der Anodensegmente $\Delta E_{1l} - \Delta E_5$
et: Gesamtenergiesignal E_{tot} vom Frischgitter
tof: Flugzeit
dt: Zeitdifferenz $\Delta E_2 - \Delta E_4$ (\rightarrow y-Winkel)

Aus diesen *raw data* werden folgende *cooked data* errechnet:

e1c = **e11+e1r**, Energieverlustsignal ΔE_1
e3c = **e31+e3r**, Energieverlustsignal ΔE_3
p Ort 1, berechnet aus ΔE_{1l} und ΔE_{1r}
p2 Ort 2, berechnet aus ΔE_{3l} und ΔE_{3r}
dp Differenz aus Ort 1 und Ort 2 (\rightarrow x-Winkel)

Die anderen *cooked data*, wie z.B. **etc**, sind identisch zu den entsprechenden *raw data*.

Es ist möglich, für alle Parameter Fensterbedingungen zu fordern. Als *filt data* bleiben dann nur noch diejenigen Ereignisse übrig, bei denen alle Parameter ihres *cooked-data*-Satzes innerhalb dieser Softwarefenster liegen. Sie werden mit **e1w**, **tofw** usw. bezeichnet.

Das Master Gate wird über das E_{tot} -Signal abgenommen. Zusätzlich wird die Flugzeit noch als Singlespektrum **stof** mitgeschrieben. Das Verhältnis **tof/stof** liefert dann die Transmission durch den gasgefüllten Magneten in den Detektor.

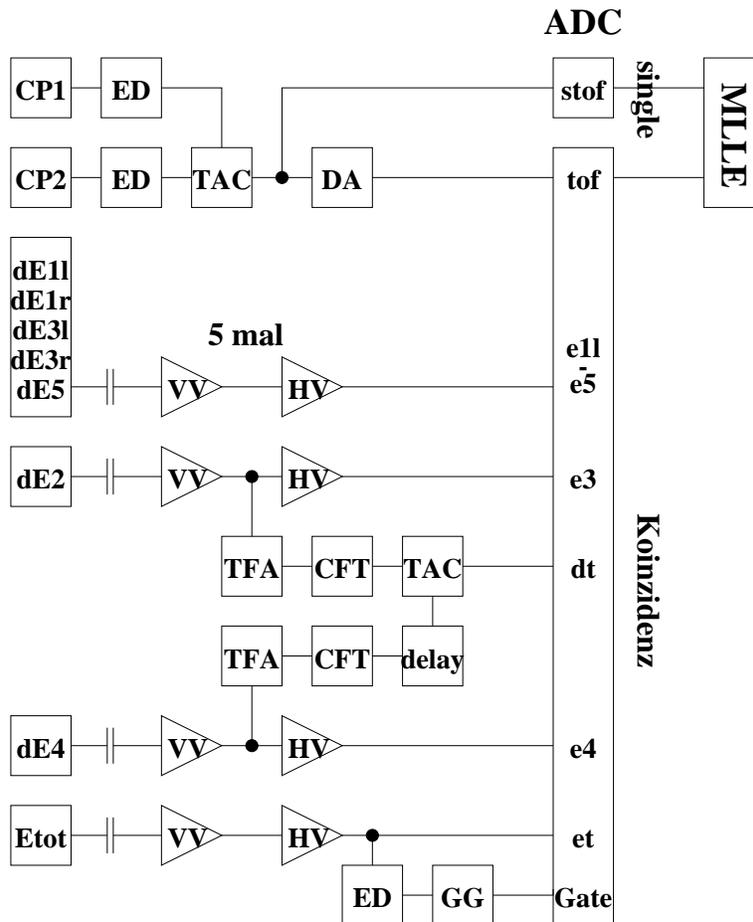


Abbildung 4.10: Verschaltung der Datenaufnahmeelektronik.

- ADC: Analog-Digital-Konverter (Sigle: Silena 7421,
Koinzidenz: Silena 4418/V)
- MLE: Datenaufnahmerechner
- CP1, CP2: μ -Channelplatedetektor
- ED: Einkanaldiskriminator (TOF: Philips 704 mit 300 MHz,
Gate: ED 1100)
- TAC: Time to Amplitude Converter (Ortec 437A)
- DA: Delay Amplifier (Ortec 427A)
- dE11–dE5: Anodensegmente
- Etot: Frischgitter
- VV: Vorverstärker (Micro-CATSA)
- HV: Hauptverstärker (Canberra 2022)
- TFA: Timing Filter Amplifier (Ortec 474)
- CFT: Constant Fraction Diskriminator (CFT 1100)
- GG: Gate Generator (GG 1200)

Kapitel 5

Testmessungen mit stabilen Isotopen

5.1 Detektorauflösung und Breite der Energieverlustsignale

5.1.1 Energieauflösung

Die elektronische Auflösung des Detektors wurde bestimmt, indem ein Pulsersignal auf die Testeingänge der Vorverstärker gegeben wurde. Es ergab sich:

$$\left(\frac{\delta E_{\text{FWHM}}}{E} \right)_{\text{elektr.}} \leq 0.5\%. \quad (5.1)$$

Mit Vakuum in der Magnetkammer beträgt die Auflösung von E_{tot} und ΔE_1 1–2%; bei ΔE_2 – ΔE_5 ist die Auflösung wegen der bereits zurückgelegten Strecke im Detektorgas entsprechend schlechter. In Tabelle 5.1 sind die Breiten der einzelnen Energiespektren für einen abgeschwächten makroskopischen ^{58}Ni -Strahl mit Gas in der Magnetkammer aufgeführt.

E_{tot}	ΔE_1	ΔE_2	ΔE_3	ΔE_4	ΔE_5
4.3%	3.7%	3.2%	7.4%	16%	80%

Tabelle 5.1: Breite $\delta E/E$ der Energiespektren für 185-MeV- ^{58}Ni -Ionen. In der Magnetkammer war bei dieser Messung Stickstoff mit $p=8.6$ mbar (2.3 mg cm^{-2}), im Detektor Isobutan mit $p=46$ mbar. Der Druck ist so eingestellt, daß die Ionen über ΔE_5 gestoppt werden. Die Auflösungen von ΔE_1 und ΔE_3 sind etwas schlechter, weil sie aus zwei Signalen ΔE_{1l} und ΔE_{1r} , bzw. ΔE_{3l} und ΔE_{3r} zusammengesetzt sind (siehe Abbildung 4.6).

5.1.2 Orts- und x-Winkelauflösung

Für die horizontale Winkelverteilung eines 185-MeV- ^{58}Ni -Strahls konnte eine Halbwertsbreite von 3° gemessen werden. In der Magnetkammer waren dabei 8.6 mbar Stickstoff, so daß die Winkelauflösung des Detektors kleiner sein muß:

$$\delta\phi_x < 3^\circ. \quad (5.2)$$

Der Winkel wird aus den beiden Ortsmessungen mit den diagonal geteilten Anodenstreifen ΔE_1 und ΔE_3 bestimmt. Aus der Breite der gemessenen Winkelverteilung läßt sich somit eine obere Grenze für die Ortsauflösung angeben:

$$(\delta p)_{det} < 2.5 \text{ mm}. \quad (5.3)$$

Die Strahlbreite ohne Gas in der Magnetkammer wurde direkt zu 6 mm gemessen¹. Die Auflösung muß deutlich besser sein, denn in der Detektorebene ist kein Strahlfokus². Die Breiten der Ortsverteilungen nach dem gasgefüllten Magneten liegen mit 1.5–2 cm deutlich über der Auflösung des Detektors, so daß sie vernachlässigt werden kann.

5.1.3 y-Winkelauflösung

Der y-Winkel wird bestimmt durch den Zeitunterschied zwischen ΔE_2 - und ΔE_4 -Signal³. Bei einem 185-MeV- ^{58}Ni -Strahl konnte eine Halbwertsbreite der Verteilung von 80 ns gemessen werden. Nimmt man die Driftgeschwindigkeit der Elektronen in Isobutan zu $4 \text{ cm}/\mu\text{s}$ [Kle87] an, entspricht dies einem Winkel von 2.2° . Die Breite der Winkelverteilung des Strahls durch Kleinwinkelstreuung läßt sich zu kleiner 1° abschätzen, so daß:

$$\delta\phi_y \approx 2^\circ. \quad (5.4)$$

¹Vor der Montage des Detektors wurde auf eine Leuchtscheibe am Magnetausgang geschossen. Die Breite des Strahls entsprach etwa den später gemessenen 6 mm.

²Bei einem gasgefüllten Magneten ist es nicht notwendig, daß der Detektor in einer Vakuumfokalebene liegt. Es wird auf den Stoppdetektor der Flugzeitstrecke, der ca. 50 cm vor dem Magneten liegt, fokussiert. Damit liegt die Fokalebene des Magneten hinter der Detektorebene.

³Der Winkel wird nicht über die am weitesten auseinanderliegenden Anodensegmente ΔE_1 und ΔE_5 gemessen, weil ΔE_1 gespalten ist und viele Ionen bereits über ΔE_4 gestoppt werden.

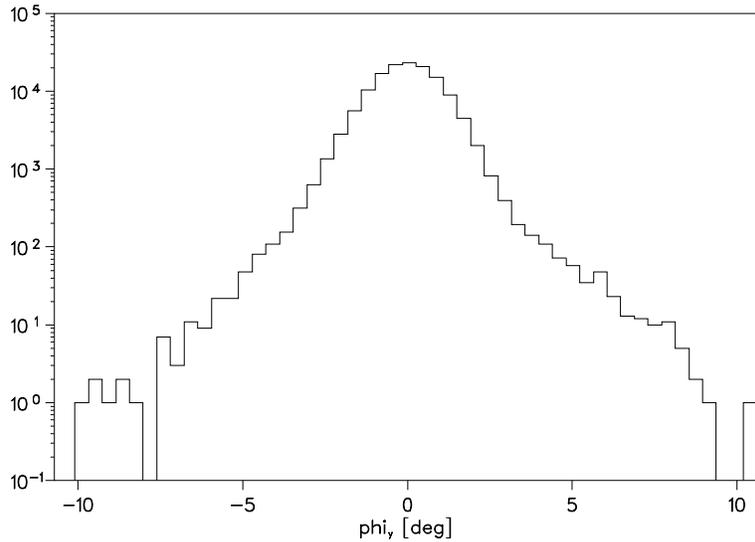


Abbildung 5.1: y -Winkelverteilung eines abgeschwächten makroskopischen ^{58}Ni -Strahls mit 185 MeV. Die Halbwertsbreite beträgt 2.2° . Die nicht-gauß'schen Ausläufer der Verteilung können als Coulombstreuungen um große Winkel interpretiert werden.

5.1.4 Zeitauflösung der Flugzeitstrecke

Die Auflösung, die mit der Flugzeitstrecke erreicht werden konnte, beträgt $S_{tot}=270\text{ ps}^4$ (siehe Abbildung 5.2).

In dieser Auflösung S_{tot} sind bereits enthalten:

1. die Auflösung des Time to Amplitude Converters $S_{TAC} \approx 100\text{ ps}$,
2. die Verschlechterung der Auflösung durch Dickeninhomogenitäten der Startfolie $S_{\delta d} \approx 30\text{ ps}$ ($\delta d = 2\text{ }\mu\text{g cm}^{-2}$),
3. die Verschlechterung der Auflösung durch Energieschwankungen $S_{\delta E} \approx 30\text{ ps}$ ($\delta E/E = 4 \cdot 10^{-4}$).
4. Wegen der unterschiedlichen Geschwindigkeiten von Elektronen und Ionen führt eine Welligkeit der Folie von 1 mm zu $S_{foil} \approx 60\text{ ps}$.
5. Da die Elektronen durch Gitter beschleunigt und abgelenkt werden, können ihre Trajektorien unterschiedliche Längen haben. 2 mm Längenunterschied entspricht einer Auflösung $S_{grid} \approx 100\text{ ps}$.
6. Die logischen Start- und Stoppsignale werden über Leading-Edge-Diskriminatoren erzeugt. Sie haben gegenüber Constant-Fraction-Diskriminatoren bei hohen Signalen den Vorteil höherer Effizienz

⁴Die Flugzeit von ^{58}Ni -Ionen mit 185 MeV Energie liegt bei 140 ns für die 3.52 m lange Flugzeitstrecke.

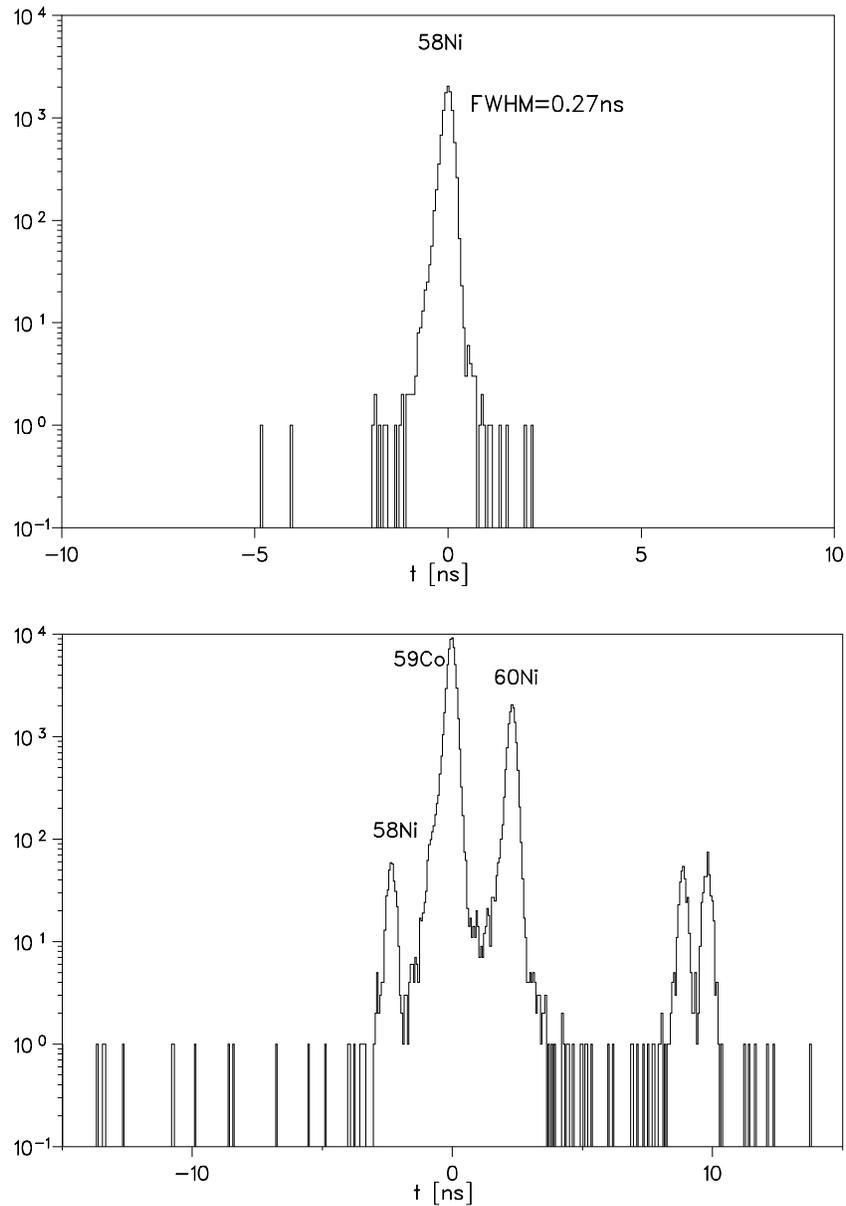


Abbildung 5.2: Oben: Flugzeitspektrum eines abgeschwächten makroskopischen ^{58}Ni -Strahls mit 185 MeV . Die Zeitauflösung beträgt 270 ps .

Unten: Flugzeitspektrum einer Nickelprobe. Das Strahlführungssystem war auf $A=59$ eingestellt. Neben den Peak bei Masse 59 (^{59}Co -Verunreinigungen im Probenmaterial) sind die beiden benachbarten stabilen Nickelisotope ^{58}Ni und ^{60}Ni zu erkennen. Die beiden kleinen Peaks bei höherer Flugzeit sind schwerere Nickelisotope mit anderem Ladungszustand, deren magnetische Steifigkeit zufällig in der Nähe liegt. Die Effizienz der Flugzeitmessung lag bei etwa 60% .

Aus dem Inhalt der Peaks für ^{58}Ni und ^{60}Ni läßt sich deren Unterdrückung durch das Strahlführungssystem gegen ^{59}Ni zu $4 \cdot 10^{-10}$ und $8 \cdot 10^{-9}$ bestimmen.

der Messung bei geringerem Untergrund. Die Verschlechterung der Auflösung läßt sich aus dem Oszillographenbild grob abschätzen zu $S_{ED} \approx 100$ ps.

Allein die quadratische Summe dieser Auflösungen ergibt $\sum_i S_i = 190$ ps. Für Ionen mit gleicher magnetischer Steifigkeit und gleichem Ladungszustand entsprechen 270 ps Zeitauflösung einer Massenauflösung von:

$$\left(\frac{\delta M}{M}\right)_{TOF} \approx \frac{1}{500}. \quad (5.5)$$

Bei längerem Betrieb mit hohen Zählraten (>10 kHz) sinken die Signalhöhen ab, und die Schwellen der Diskriminatoren müssen erniedrigt werden. Dadurch kann sich ein Untergrundpeak mit einer Breite von ca. 5 ns links (bei kürzeren Zeiten) neben dem eigentlichen Flugzeitpeak ergeben⁵. Er ist um etwa drei Größenordnungen reduziert. Dieser Untergrund ist auch sonst zu beobachten, wenn die Diskriminatorschwellen zu niedrig eingestellt sind, so daß immer ein Kompromiß zwischen Untergrund und Effizienz zu finden ist. Sind die Channelplates einige Zeit außer Betrieb, erreichen sie danach wieder ihre ursprüngliche Signalhöhe.

5.2 Trennung von Isobaren im Ort

5.2.1 Abhängigkeit der Breite \mathcal{W} vom Gasdruck

Die Breite \mathcal{W} ist, wie in Abschnitt 3.2 dargestellt, abhängig vom Gasdruck in der Magnetkammer. In Abbildung 5.3 sind Meßwerte von \mathcal{W} für ^{37}Cl -, ^{58}Ni - und ^{107}Ag -Ionen in Argon zu dargestellt.

5.2.2 Abhängigkeit der Breite \mathcal{W} vom Gas

Die Umladungsquerschnitte $\sigma_{qq'}$ sind abhängig vom Target. D.h. die Anzahl der Umladungsstöße (und somit \mathcal{W}_{stat}) ist abhängig vom Gas in der Magnetkammer. Die Kleinwinkelstreuung (und somit \mathcal{W}_{kws}) steigt mit der Kernladungszahl des Gases (siehe Abbildung 1.4 und Tabelle 3.2).

In Tabelle 5.2 sind Meßwerte für die Breite der Ortsverteilung von ^{58}Ni -Ionen für verschiedene Gase angegeben. Der beste Wert konnte mit Stickstoff erreicht werden. Hier sind die Umladungsquerschnitte bereits groß genug, um eine gute Statistik der Ladungsfluktuationen zu erhalten. Bei sehr leichten

⁵Die Meßwerte werden dadurch nicht verfälscht, weil der gleiche Untergrund in den Flugzeitspektren von Eichprobe, Blankprobe und Meßprobe auftritt. Die Empfindlichkeit wird allerdings, je nachdem wie stark der Untergrund von Isotopen bestimmt ist, schlechter.

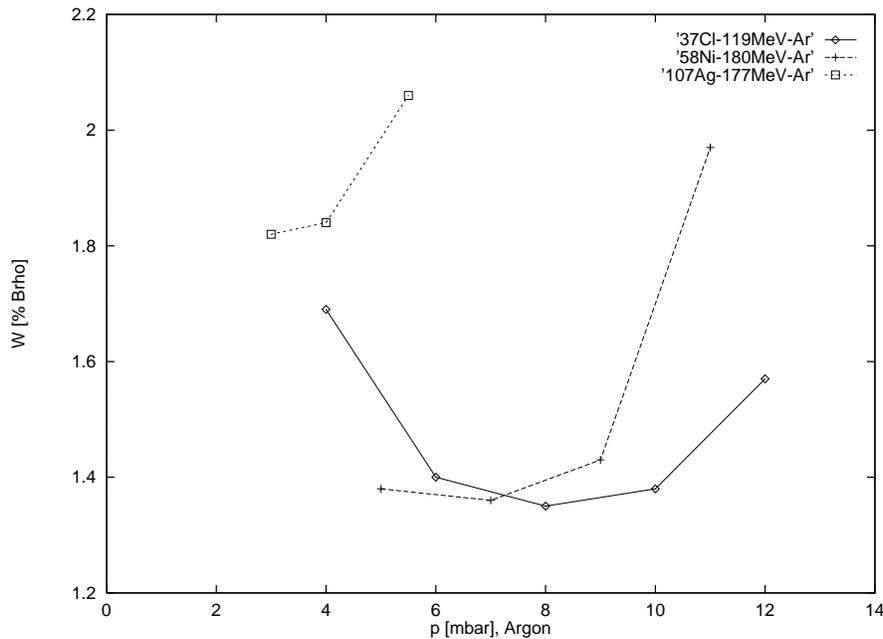


Abbildung 5.3: Breite der Ortsverteilung von ^{37}Cl ($E_0=119\text{ MeV}$), ^{58}Ni ($E_0=180\text{ MeV}$) und ^{107}Ag ($E_0=177\text{ MeV}$) in Argon.

Gasen wie Wasserstoff und Helium wurden trotz des hohen Druckes wegen der sehr kleinen Querschnitte deutlich größere Breiten gemessen.

Die Meßwerte für Methan waren etwas schlechter als für Stickstoff und der Energieverlust beim Druck mit der kleinsten Breite ist deutlich höher. Der Grund dafür ist, daß bei Methan die Breite \mathcal{W} mehr durch \mathcal{W}_{stat} als durch \mathcal{W}_{kws} bestimmt wird als bei Stickstoff (vergleiche Abbildung 3.9, oben). Dies hat den Nachteil, daß die Untergrundunterdrückung im Detektor schlechter wird.

Bei Argon wird wegen dem höherem Z die Umladungsstatistik gegenüber Stickstoff zwar besser (siehe auch Abbildung 1.1), jedoch nimmt die Kleinwinkelstreuung ebenfalls zu (siehe Abbildung 1.4), so daß die Breite letztendlich schlechter ist als bei Stickstoff.

Für 200-MeV- ^{58}Ni -Ionen wurde aufgrund der Split-Pole-Meßwerte (siehe Abschnitt 3.3.2) \mathcal{W} für einen 135° -Dipolmagneten zu 1.12 % bei 2.1 mg cm^{-2} Stickstoff abgeschätzt. Der gemessene Wert für 180 MeV ist mit 1.22 % damit in sehr guter Übereinstimmung, da für eine niedrigere Einschußenergie ein leicht höheres \mathcal{W} erwartet werden muß.

Gas	p [mbar]	d [mg cm ⁻²]	E_{rest} [MeV]	\mathcal{W} [% $B\rho$]
N ₂	8	2.16	99	1.22
H ₂	44	0.85	90	5.9
He	36	2.78	120	2.78
	44	3.40	105	2.64
CH ₄	8	1.24	115	1.58
	10	1.54	99	1.49
	12	1.85	83	1.42
	14	2.16	64	1.28
C ₄ H ₁₀	≈ 2	1.1	126	1.42
	≈ 3	1.7	97	1.49
Ar	5	1.93	129	1.38
	7	2.70	108	1.36
	9	3.47	88	1.43
	11	4.25	67	1.97

Tabelle 5.2: Breite \mathcal{W} der Ortsverteilungen von 180-MeV-⁵⁸Ni-Ionen bei verschiedenen Gasen in der Magnetkammer. Die Restenergie E_{rest} ist mit ENE-LOSS berechnet.

5.2.3 Test der Isobarentrennung durch gleichzeitigen Einschub von ⁵⁸Ni- und ⁵⁸Fe-Ionen

Die Isobarenseparation \mathcal{S} wurde zuerst mit stabilen Isotopen getestet. Hierzu wurde als Sputtertarget für die Ionenquelle eine Mischung aus Eisen- und Nickelpulver hergestellt und $A = 58$ analysiert⁶, um die beiden Isobare ⁵⁸Fe und ⁵⁸Ni gleichzeitig messen zu können.

Meßwerte für Argon und Stickstoff bei verschiedenen Drücken sind in Tabelle 5.4 aufgeführt. Die beste räumliche Trennung wurde mit Stickstoff bei 9.5 mbar erreicht. Hier ist der Energieverlust und die Energieverluststreuung jedoch schon so hoch, daß die Isobarentrennung im Detektor nicht mehr so effizient ist, wie bei einem leicht niedrigeren Druck. Die beste Gesamttrennung war bei einem Druck von 7.5 mbar. Die Spektren dieser Messung sind in Abbildung 5.4, gezeigt, für die Trennung im Ort und Energieverlust siehe auch Tabelle 5.3 und 5.4.

⁶Es wurden Oxidionen in den Tandem eingeschossen, da Eisen nur sehr schlecht negative atomare Ionen bildet.

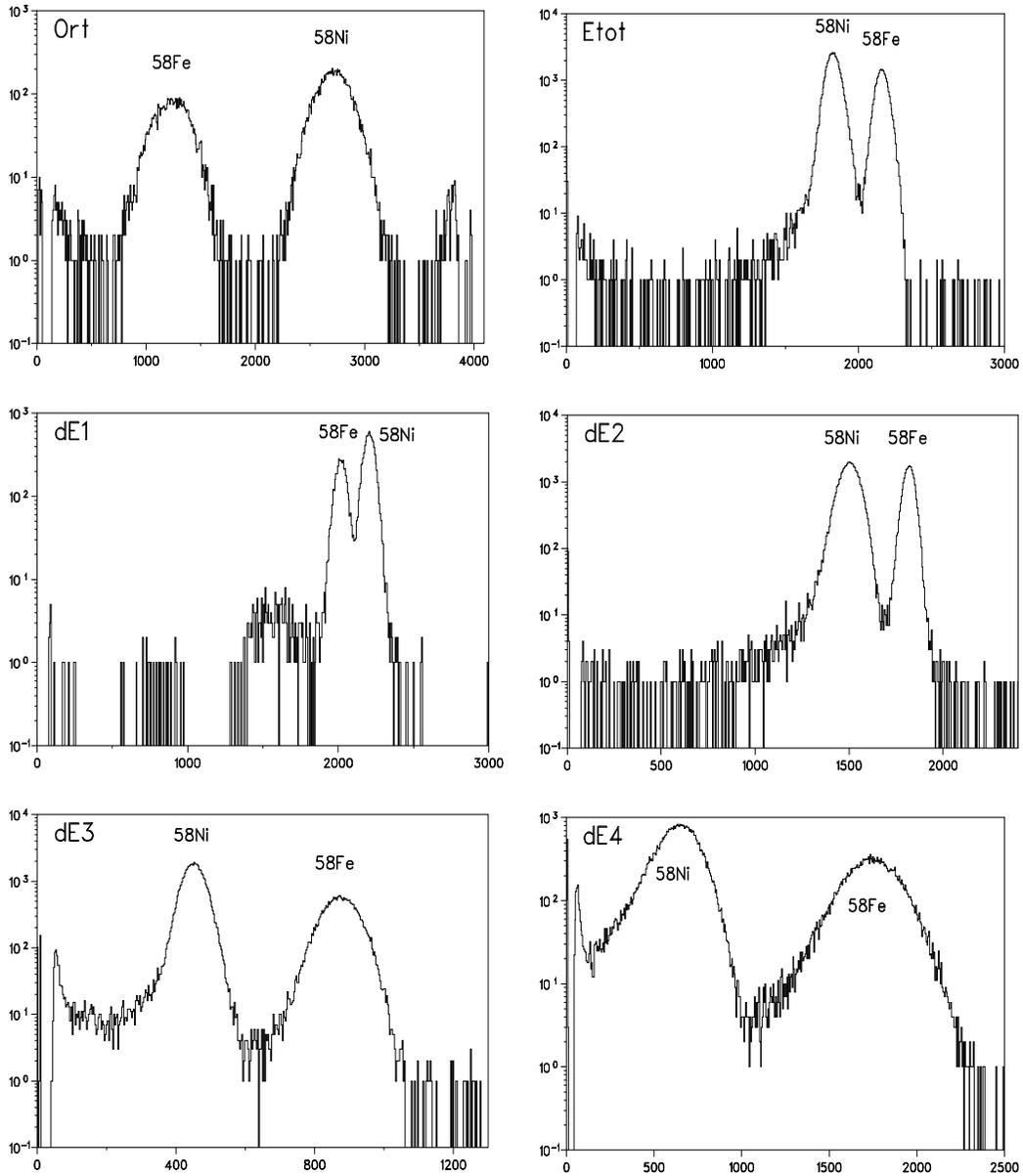


Abbildung 5.4: Isobarentrennung von ^{58}Ni und ^{58}Fe ($E_0=169\text{ MeV}$) in Ort, E_{tot} und ΔE . Der Druck in der Magnetkammer war 7.5 mbar (N_2), d.h. etwa 2 mbar unter dem Druck mit der höchsten Separation im Ort. Dadurch konnte die Breite der Peaks in den Energiespektren leicht reduziert werden. Ein ΔE_5 -Spektrum existiert nicht, da bei diesen Messungen eine andere Anode mit nur vier Energieverluststreifen verwendet wurde.

	^{58}Fe -Peak	^{58}Fe -FWHM	^{58}Ni -Peak	^{58}Ni -FWHM	\mathcal{S}
Ort	1250	395	2723	332	4.1
E_{tot}	2162	89	1827	101	3.5
ΔE_1	2019	80	2208	80	2.4
ΔE_2	1821	64	1504	116	3.5
ΔE_3	875	116	452	71	4.5
ΔE_4	1748	339	652	259	3.7

Tabelle 5.3: *Isobarentrennung von ^{58}Ni und ^{58}Fe in Ort, E_{tot} und ΔE (Spektren siehe Abbildung 5.4). Die angegebenen Werte sind in Kanälen. Die Separation \mathcal{S} ist das Verhältnis vom Abstand der beiden Verteilungen zu der mittleren Halbwertsbreite.*

Gas	p [mbar]	d mg cm^{-2}	\mathcal{W}_{Fe} [% $B\rho$]	\mathcal{W}_{Ni} [% $B\rho$]	\mathcal{D} [% $B\rho$]	\mathcal{S}
Ar	5.0	1.92	1.59	1.39	4.01	2.7
	6.5	2.49	1.50	1.50	5.23	3.5
	8.5	3.26	1.60	1.39	5.68	3.8
	10.5	4.02	2.45	1.50	6.88	3.5
N_2	2.5	0.67	2.02	1.83	5.58	2.9
	3.5	0.94	1.39	1.40	5.10	3.7
	5.5	1.48	1.47	1.42	5.68	3.9
	7.5	2.01	1.48	1.36	5.90	4.1
	9.5	2.55	1.67	1.24	7.10	4.9
	11.5	3.10	2.49	2.38	7.06	2.9

Tabelle 5.4: *Separation von ^{58}Ni und ^{58}Fe in Argon und Stickstoff mit verschiedenen Drücken (siehe auch Abbildung 5.5).*

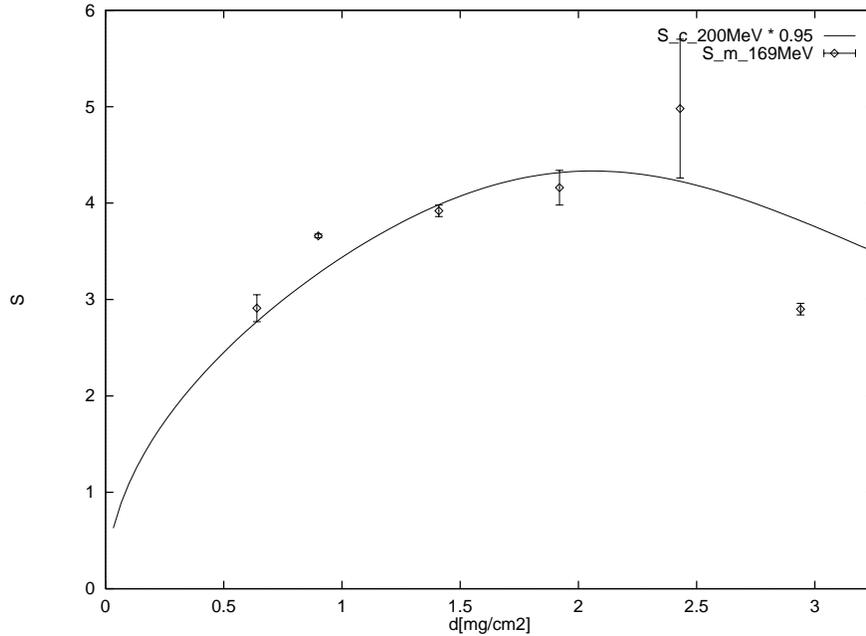


Abbildung 5.5: Separation \mathcal{S} von ^{58}Fe und ^{58}Ni gegen den Gasdruck. Die durchgezogene Linie stammt aus der Abschätzung von \mathcal{W} aufgrund der Split-Pole-Daten (siehe Abbildung 3.9). Für $\Delta(B\rho)/(B\rho)$ wurden nach Sayer [Say77] 5.1 % verwendet. Die Punkte sind Meßwerte. Die Fehlerbalken kommen dadurch zustande, daß für $\mathcal{S} = \mathcal{D}/\mathcal{W}$ die teils unterschiedlichen Breiten für ^{58}Ni und ^{58}Fe eingesetzt wurden (siehe Tabelle 5.4).

Da die Abschätzung auf Daten von 200-MeV-Ionen basiert, die Messungen aber mit 169-MeV-Ionen durchgeführt wurden, ist \mathcal{S} um 5 % erniedrigt worden.

Kapitel 6

AMS-Messungen von langlebigen Radionukliden

6.1 AMS-Messungen mit ^{36}Cl

Das Radioisotop ^{36}Cl ($T_{1/2} = 3.0 \cdot 10^5 \text{ a}$) ist mit AMS noch relativ einfach zu messen. Dies hat verschiedene Gründe: zum einen hat das störende stabile Isobar ^{36}S eine natürliche Isotopenhäufigkeit von nur 0.02 %, d.h. auch bei relativ hoher Schwefelkontamination der Probe ist der Untergrund durch ^{36}S um fast vier Größenordnungen reduziert. Der relative Unterschied in der Kernladungszahl von Chlor und Schwefel ist im Vergleich zu den anderen gemessenen Radioisotopen höher, der Unterschied in der magnetischen Steifigkeit in Gas beträgt ca. 5 % (vergleiche Abbildung 3.3). Das Magnetfeld kann so eingestellt werden, daß die ^{36}S -Zählrate im Detektor sehr stark unterdrückt wird. Bei ersten Testmessungen, die bei Abbildung 6.1 beschrieben sind, wurde eine Reduktion der Detektorzählrate von ca. 3 kHz auf 10 Hz erreicht.

Als Halogen hat Chlor eine sehr hohe Elektronenaffinität, wodurch problemlos Cl^- -Ströme über $10 \mu\text{A}$ erzeugt werden können. Zusammen mit der sehr guten Zählratenreduktion, sind sehr kurze Meßzeiten möglich.

Die stabilen Nachbarisotope ^{35}Cl und ^{36}Cl werden wegen dem großen relativen Massenunterschied durch das Strahlführungssystem und die ΔE -Messungen so gut unterdrückt, daß für ^{36}Cl keine Flugzeit notwendig ist.

Die erreichten Transmissionen lagen bei 1-2 % (einschließlich Softwarefenster). Da auch die Ausbeute an negative Ionen wegen der hohen Elektronenaffinität mit über 10 % [Kor96] sehr hoch ist (vergleiche Gleichung 2.1) läßt sich ^{36}Cl auch noch in sehr kleinen Probenmengen nachweisen¹.

¹Bei einem Chlorstrom von $10 \mu\text{A}$, einer Probenkonzentration von $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}=10^{-14}$ und einer Transmission von 2 % erwartet man 45 ^{36}Cl -Ereignisse pro Stunde. Die durch das Sputtern verlorene Probenmenge beträgt, bei 10 % Bildungswahrscheinlichkeit für negative Ionen, ca. $13 \mu\text{g}$ pro Stunde.

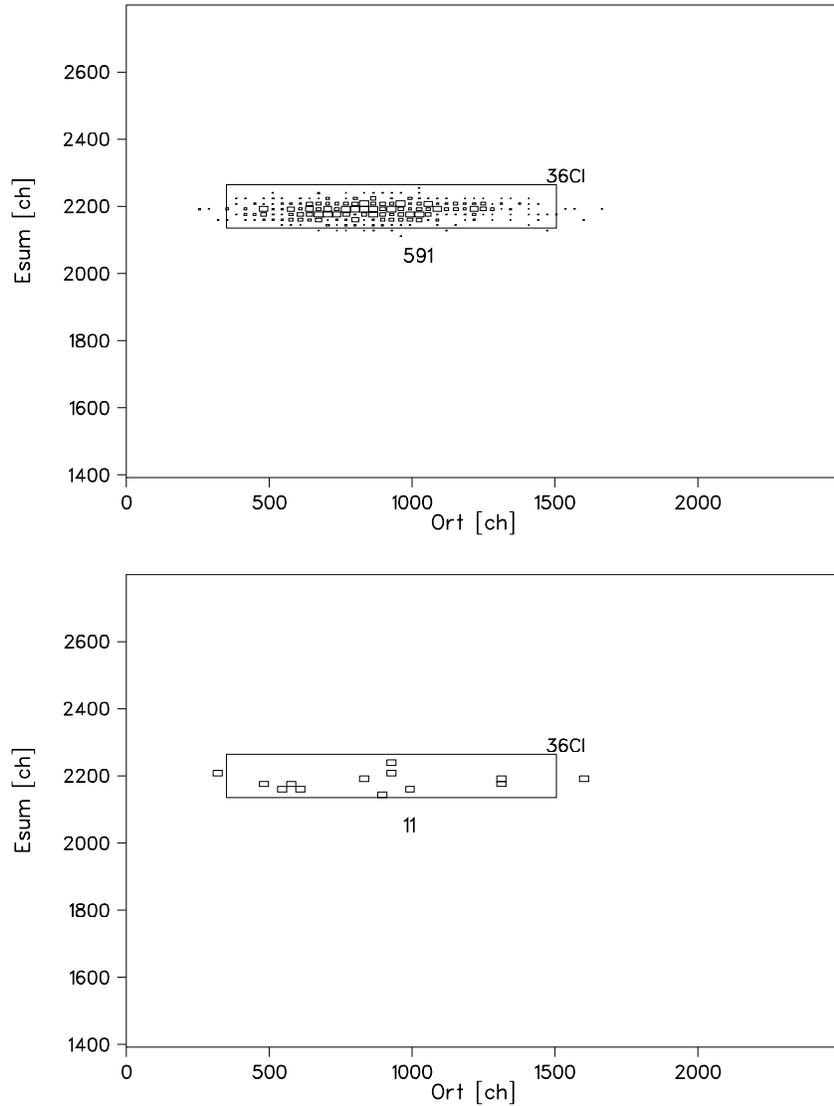


Abbildung 6.1: Oben: $E_{sum} = \sum \Delta E_i$ gegen Ort einer Regenwasserprobe ($TV=13.54\text{ MV}$, 9^+). Softwarefenster sind gesetzt auf E_{tot} , $\Delta E_1 - \Delta E_5$, x - und y -Winkel, auf Flugzeitfenster konnte verzichtet werden. Bei einer Meßzeit von 11 min und einem ^{35}Cl -Strom von nur 800 nA wurden 591 Ereignisse gemessen. Dies entspricht einer Konzentration $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}=(2.0\pm 0.4)\cdot 10^{-12}$. In einer Blankprobe (Bad Reichenhaller Speisesalz + 50 Vol.% Silberpulver) wurde mit den gleichen Fenstern kein Ereignis registriert ($t=16\text{ min}$, $I_{35}=540\text{ nA}$), was einem Untergrund von $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}<4\cdot 10^{-15}$ entspricht. Unten: Nach der Messung der Eichprobe mit $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}=1.2\cdot 10^{-11}$ wurde das selbe Blank nochmals gemessen ($t=1\text{ h}$, $I_{35}=500\text{ nA}$). Die nun registrierten 11 Ereignisse, entsprechend $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}=1.1\cdot 10^{-14}$, sind ^{36}Cl -Übersprecher des sehr flüchtigen Chlors in der verwendeten, kleinen Hochstromionenquelle.

6.2 AMS-Messungen mit ^{53}Mn

Bei ^{53}Mn -Messungen ($T_{1/2} = 3.7 \cdot 10^6 \text{ a}$) ist das Hauptproblem der sehr hohe Untergrund von ^{53}Cr . Im Gegensatz zu ^{59}Co , dem störenden Isobar von ^{59}Ni , läßt sich Chrom chemisch nicht so gut unterdrücken. Beispielsweise bei der Messung des Meteoriten Sikhote Alin (siehe 6.2) erreichten, wie mit den Flugzeitdetektoren gemessen werden konnte, etwa $3 \cdot 10^6$ ^{53}Cr -Ionen den gasgefüllten Magneten², d.h. die ^{53}Cr -Verunreinigung im Strahl war ca. 30 ppm. Für diese Proben erfolgte die Aufbereitung am Institut für Biochemie, Abteilung Nuklearchemie, der Universität zu Köln mit einer der Methode, die auf der in [Vog88] beschriebenen Radionuklidextraktion auf Meteoriten basiert. Der Untergrund durch das stabile Manganisotop ^{55}Mn kann bei ^{53}Mn -Konzentrationen $> 10^{-11}$ vernachlässigt werden. Wegen einem Massenunterschied $\Delta A=2$ wird es vom Strahlführungssystem so gut unterdrückt, daß, wie bei ^{36}Cl und ^{60}Fe , sogar auf die Flugzeitmessung verzichtet werden konnte.

6.2.1 Erzeugung von negativen Manganmolekülonen

Mangan bildet wegen seiner negativen Elektronenaffinität keine stabilen negativen Ionen, d.h. es muß als Molekülon in den Tandem eingeschossen werden. Am einfachsten und mit mehr als ausreichenden Strömen zu erzeugen ist MnO_2^- . Da bei Mangan die Detektorzählrate durch das Chrom der limitierende Faktor ist, konnte die Ionenquelle bei kleiner Leistung betrieben werden, obwohl der ausgewählte Ladungszustand 13^+ nur eine Stripprawrscheinlichkeit von 4.2 % hat. Der Einschub von Oxidionen hat allerdings den Nachteil, daß die Bildung von CrO^- gegenüber MnO^- kaum unterdrückt ist (siehe auch [Mid82]). Der Einschub von MnF^- -Ionen ist problematisch, da Manganfluorid als Sputtertarget nicht hitzebeständig genug ist.

Die Verwendung von MnH^- -Ionen hätte gegenüber Oxidionen mehrere Vorteile. Durch die geringere Masse des Moleküls ist bei gleicher Terminalspannung die Geschwindigkeit im Terminal höher, so daß höhere Ladungszustände analysiert werden können und damit mehr Energie im Detektor zur Verfügung steht. Wegen der geringen Masse des Wasserstoffs ist die Emmitanzverschlechterung durch Coulombexplosion des Moleküls im Terminal geringer. In [Mid82] wurden mit MnH^- -Ionen vergleichbare Ströme erzielt, als mit MnO^- , CrH^- hingegen ist gegenüber CrH_2^- und CrH_3^- unterdrückt. Quantitative Werte konnten hier allerdings nicht angegeben werden, weil es im Massenspektrum nach der Ionenquelle wegen den vier verschiedenen stabilen Chromisotopen Überlagerungen gibt. Die Ausbeute an

²Die Zählrate in der Ionisationskammer läßt sich hierfür nicht verwenden, weil das Magnetfeld so eingestellt ist, daß ein Großteil der ^{53}Cr -Ionen den Detektor nicht erreicht.

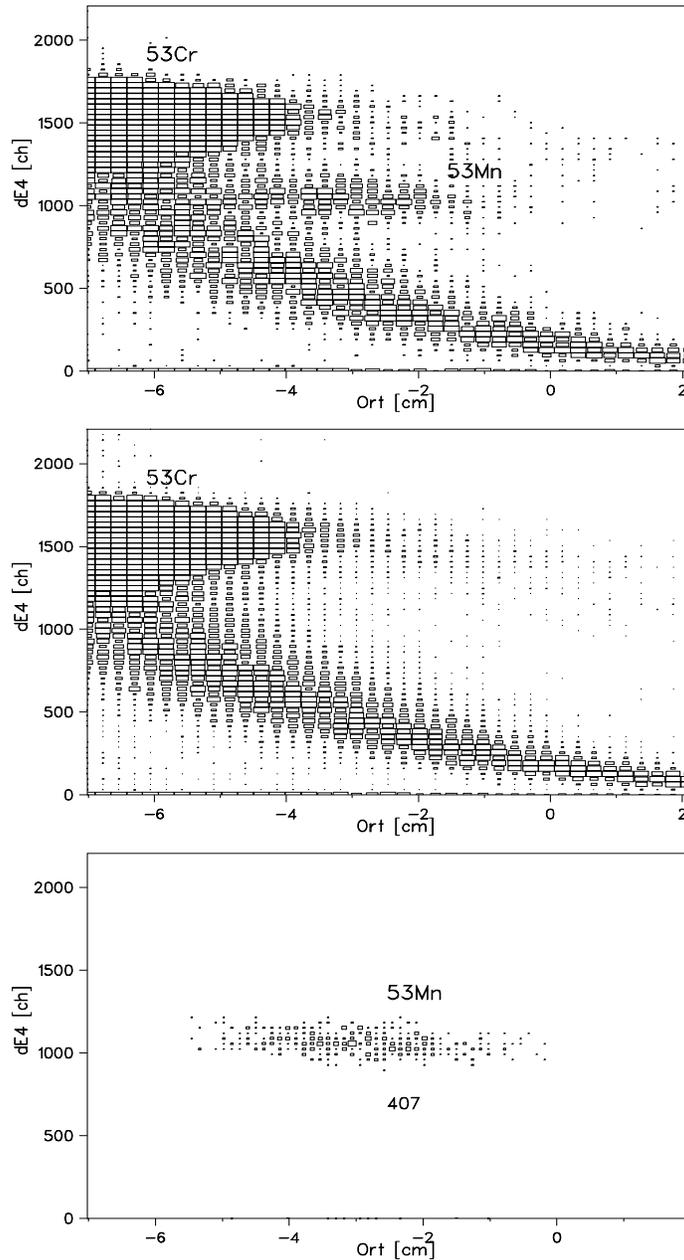


Abbildung 6.2: Oben: ΔE_4 gegen Ort einer Probe des Eisenmeteoriten Sikhote Allin mit einem bekannten Verhältnis $^{53}\text{Mn}/\text{Mn}=4.4 \cdot 10^{-9}$ ohne Softwarefenster ($TV=13\text{ MV}$, 13^+ , $t=21\text{ min}$, $I_{55}=6.5\text{ nA}$). Der Ausläufer nach rechts unten sind gestreute ^{53}Cr -Ionen. Wegen der z-Skalierung des Spektrums erscheint ihre Zahl deutlich höher, als sie tatsächlich ist.

Mitte: Messung eines Blanks ($t=60\text{ min}$, $I_{55}=12.7\text{ nA}$) ohne Softwarefenster. Unten: Selbe Messung wie oben mit Softwarefenstern auf E_{tot} , ΔE_1 , ΔE_2 , ΔE_3 , ΔE_5 , x- und y-Winkel. Es verbleiben 407 Ereignisse im ^{53}Mn -Bereich. Das Spektrum des Blanks ist nach dem Fenstersetzen leer. Dies entspricht einer ^{53}Mn -Konzentration $< 3 \cdot 10^{-12}$.

CrH_i^- wurde deshalb nach dem Tandemebschleuniger gemessen. Eine signifikante Chromunterdrückung gegenüber Oxidionen konnte hierbei aber nicht festgestellt werden. Da zur Erzeugung von MnH^- ein Sputtertarget aus metallischem Mangan notwendig ist [Sch96a], die Proben nach der chemischen Aufbereitung aber als Oxid vorliegen und die Reduktion sehr aufwendig ist, wurden bei allen Messungen Manganoxidionen verwendet.

6.3 AMS-Messungen mit ^{59}Ni

Im Gegensatz zu Mangan und Chrom ist es bei ^{59}Ni ($T_{1/2}=1.08 \cdot 10^5$ a [RSK⁺94]) möglich, mittels Ionentauscherchromatographie und anschließender nickelspezifischer Fällung Nickelproben mit einer Verunreinigung des störenden Isobars ^{59}Co von unter 100 ppb zu erhalten [Kni92]. Um die beiden stabilen Nachbarisotope ^{58}Ni und ^{60}Ni zu unterdrücken, ist bei Proben mit geringer Konzentration eine Flugzeitmessung erforderlich (siehe auch Abbildung 5.2). Wegen der hohen Ni^- -Ströme kann ein hoher Ladungszustand mit geringerer Ausbeute analysiert werden, so daß mehr Energie für die Detektion vorhanden ist.

Um Kobalt bereits in der Ionenquelle zu unterdrücken, wurde für verschiedene Nickel- bzw. Kobaltmoleküle die Sputterausbeute an negative Ionen bestimmt. Für Fluorid-, Oxid- und Chloridionen war kein signifikanter Unterschied zwischen Nickel und Kobalt feststellbar. Der Einschub von $^{59}\text{NiH}_i^-$ -Ionen in den Tandem ist ungünstig, weil dann die stabilen Nickelisotope als $^{60}\text{Ni}^-$, $^{61}\text{Ni}^-$ bzw. $^{62}\text{Ni}^-$ makroskopisch injiziert würden.

6.4 AMS-Messungen mit ^{60}Fe

Trotz Probenaufbereitung mit Ionentauscherchromatographie und eisenspezifischer Fällung [Sch96b], ähnlich wie bei ^{59}Ni , lag bei ^{60}Fe -Messungen ($T_{1/2}=1.5 \cdot 10^6$ a [KBF⁺84]) der ^{60}Ni -Untergrund aus der Ionenquelle in der Größenordnung von 10 ppm. Dennoch sind ^{60}Fe -Messungen praktisch untergrundfrei möglich (siehe Abbildung 6.4), da das störende stabile Isobar ^{60}Ni eine um zwei verschiedene Kernladungszahl hat. Somit ist die Trennung im Ort und im Energieverlust etwa doppelt so hoch wie bei ^{59}Ni - ^{59}Co oder ^{53}Mn - ^{53}Cr . Für das nächste stabile Eisenisotop ^{58}Fe ist $\Delta A=2$, und die natürliche Isotopenhäufigkeit beträgt nur 0.28 %. Wegen des hohen Nickeluntergrundes ist aber ein gasgefüllter Magnet für empfindliche Messungen zur Zählratenreduktion im Detektor essentiell.

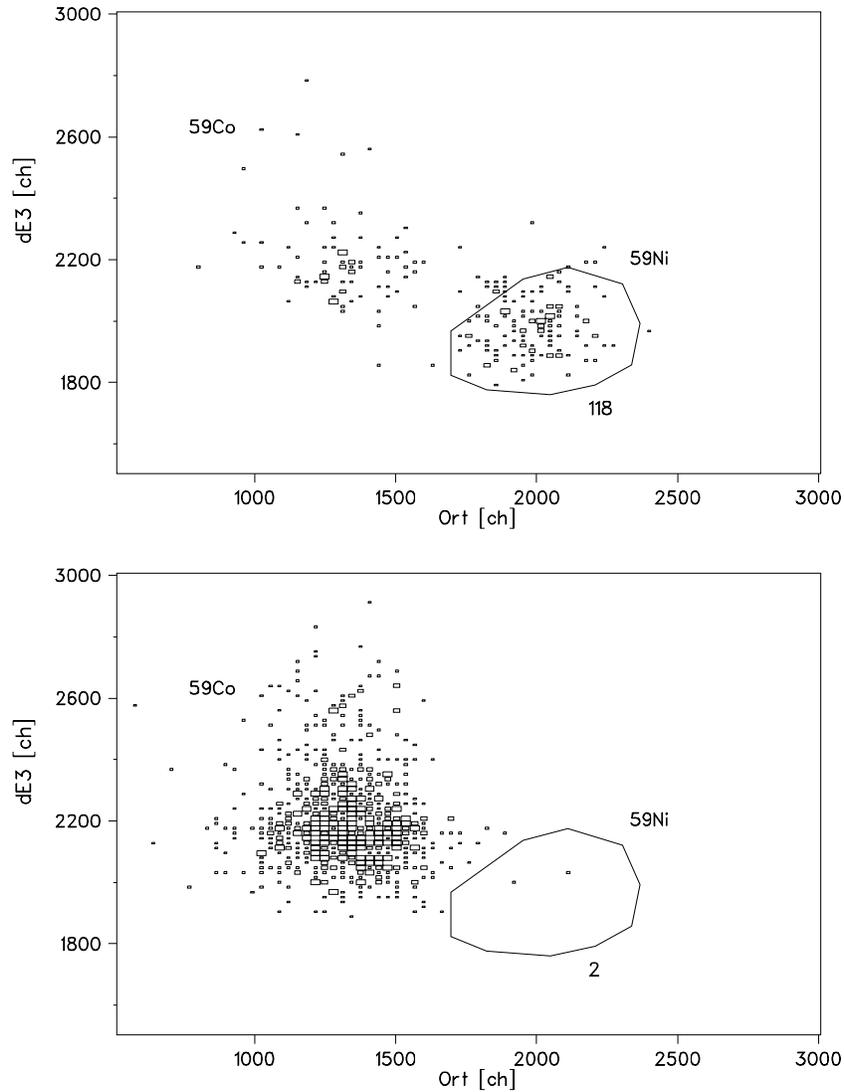


Abbildung 6.3: Oben: ΔE_3 gegen Ort einer Probe des Meteoriten *Admiral* ($TV=13.24\text{ MV}$, $q=14^+$). Softwarefenster sind gesetzt auf E_{tot} , ΔE_1 , ΔE_2 , ΔE_4 , ΔE_5 und Flugzeit. Bei einer Meßzeit von 29 min und einem Nickelstrom von 410 nA wurden 118 Ereignisse gemessen, was einer Konzentration $^{59}\text{Ni}/\text{Ni}=(3.6\pm 0.6)\cdot 10^{-9}$ entspricht.

Unten: Messung eines Chemieblanks ($t=96\text{ min}$, $I_{\text{Ni}}=362\text{ nA}$). Die beiden Untergrundereignisse im ^{59}Ni -Bereich entsprechen einer Konzentration $^{59}\text{Ni}/\text{Ni}=1.2\cdot 10^{-13}$. Bei diesen Messungen war allerdings die Winkelmessung noch nicht installiert. Spätere Messungen haben gezeigt, daß durch die Winkelinformation eine zusätzliche Untergrundunterdrückung um einen Faktor drei bis vier ermöglicht wird.

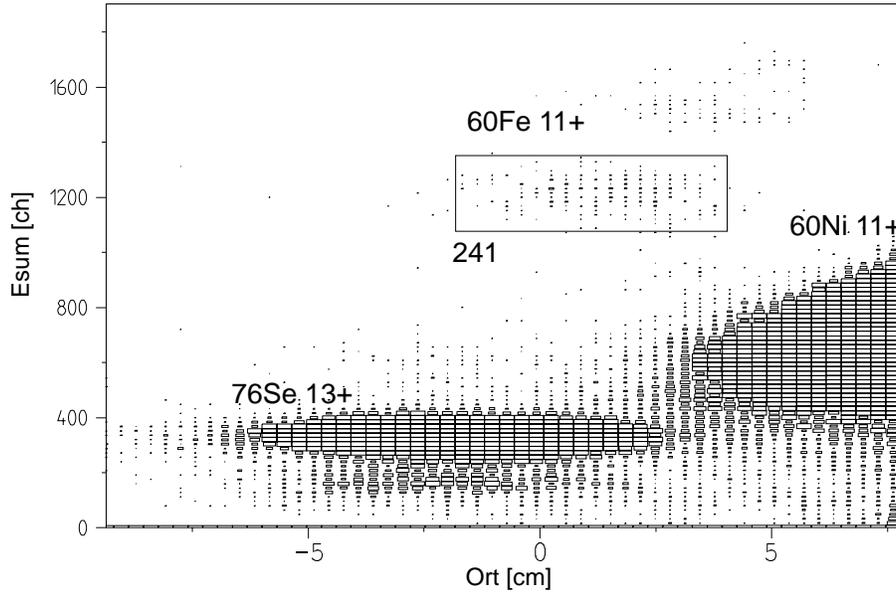


Abbildung 6.4: Spektrum $E_{sum} = \sum_i \Delta E_i$ gegen Ort der ^{60}Fe -Eichprobe mit $^{60}\text{Fe}/\text{Fe} = 1 \cdot 10^{-11}$ ohne Fenster. Die Meßzeit betrug 31.5 min bei einem mittleren Eisenstrom von 305 nA, die Energie der ^{60}Fe -Ionen war 160 MeV. Nach setzen von Softwarefenstern auf E_{tot} , $\Delta E_1 - \Delta E_5$ und x - und y -Winkel verbleiben von den ursprünglich 241 Ereignissen im Integrationsbereich 193, alle Ereignisse außerhalb des Integrationsbereiches wurden unterdrückt.

Da wegen der geringen Elektronenaffinität von 0.16 eV [Smi82] nur sehr geringe negative Eisenströme erzielbar sind, wurden FeO^- ($EA=1.49$ eV) eingeschossen. Die erreichten FeO^- -Ströme waren im Bereich von $1 \mu\text{A}$, was vergleichbar mit NiO^- -Strömen ist³.

6.4.1 Erzeugung der ^{60}Fe -Eichquelle

Eine ^{60}Fe -Eichprobe kann, im Gegensatz zu ^{36}Cl , ^{41}Ca oder ^{59}Ni , nicht über eine (n, γ) -Reaktion hergestellt werden, da ^{58}Fe das schwerste stabile Eisenisotop ist. Für Kernreaktion, die zu ^{60}Fe führen, sind keine Wirkungsquerschnitte bekannt, so daß die Anzahl der erzeugten Kerne gemessen werden muß.

Die ^{60}Fe -Kerne wurden über die Reaktion $^{48}\text{Ca}(^{18}\text{O}, \alpha 2n)^{60}\text{Fe}$ erzeugt [Sch96b]. Die Energie der ^{18}O -Projektile betrug 55 MeV. Durch inbeam-Messung der 824- und 1291-keV- γ -Quanten von der Abregung der ^{60}Fe -Kerne ($2+ \rightarrow 0+$, $4+ \rightarrow 2+$) [WON⁺77] konnte die Anzahl der erzeugten ^{60}Fe -Kerne

³Eine stärkere Reduktion des Nickelstroms ist bei Verwendung von Hydridionen zu erreichen [GSSS96], jedoch sind dann auch die erreichbaren Eisenströme deutlich geringer und als Target muß, anstatt Eisenoxid oder Eisenhydroxid, metallisches Eisen verwendet werden.

zu $1.64 \cdot 10^9$ bestimmt werden. Bei einer Bestrahlungsdauer von 24 h und einem mittleren Strom von 14 pA ergibt sich für den Wirkungsquerschnitt der Reaktion im Energiebereich von 50-55 MeV:

$$\sigma = (18.6 \pm 2.0) \text{mb.} \quad (6.1)$$

Hinter dem 1.39 mg cm^{-2} dicken ^{48}Ca -Target (zu 70 % angereichert) war eine 19.5 mg cm^{-2} dicke Eisenfolie angebracht, in welche die erzeugten ^{60}Fe -Kerne implantiert wurden. Mit der durch die γ -Messung bekannten Anzahl der ^{60}Fe -Kerne und der bekannten Masse der Eisenfolie ist auch das Verhältnis $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$ bekannt. Es ergibt sich für die Konzentration der Eichprobe

$$\frac{^{60}\text{Fe}}{\text{Fe}} = (1.04 \pm 0.12) \cdot 10^{-11}. \quad (6.2)$$

Um die Folie als Sputtertarget verwenden zu können, ist eine homogene Verteilung der ^{60}Fe -Kerne notwendig. Um dies zu erreichen, wurde die Folie in Salzsäure gelöst und das Eisen mit Ammoniak zu Eisenhydroxid gefällt, welches mit Silberpulver vermischt in einen Probenhalter gepresst wurde. Ein Spektrum dieser Probe ist in Abbildung 6.4 gezeigt.

6.5 AMS-Messungen mit ^{129}I

Im Gegensatz zu den anderen hier behandelten Isotopen bildet ^{129}Xe keine stabilen negativen Ionen⁴, so daß ^{129}I -Messungen ($T_{1/2} = 1.57 \cdot 10^7 \text{ a}$) frei von isobarischen Untergrund sind. Um das stabile Isotop ^{127}I zu unterdrücken, ist jedoch die Flugzeitstrecke notwendig. Der gasgefüllter Magnet ist für ^{129}I -Messungen nicht notwendig, hat aber den Vorteil, das Untergrund mit gleicher magnetischer Steifigkeit und gleicher Flugzeit (d.h. gleichem A/q) unterdrückt wird, so daß man bei der Wahl des Ladungszustandes weniger eingeschränkt ist (siehe Abbildung 6.5).

Das Problem bei ^{129}I ist die Probenaufbereitung, da Iod sehr volatil ist und wegen den Bombentests und vor allem der nuklearen Wiederaufbereitung sehr große Mengen von des Spaltprodukts ^{129}I in der Umwelt vorhanden sind, so daß die Gefahr der Kontamination wesentlich höher ist, als bei anderen Radionukliden [RYZK95, WDHS⁺96].

⁴Xenon hat wie alle Edelgase negative Elektronenaffinität

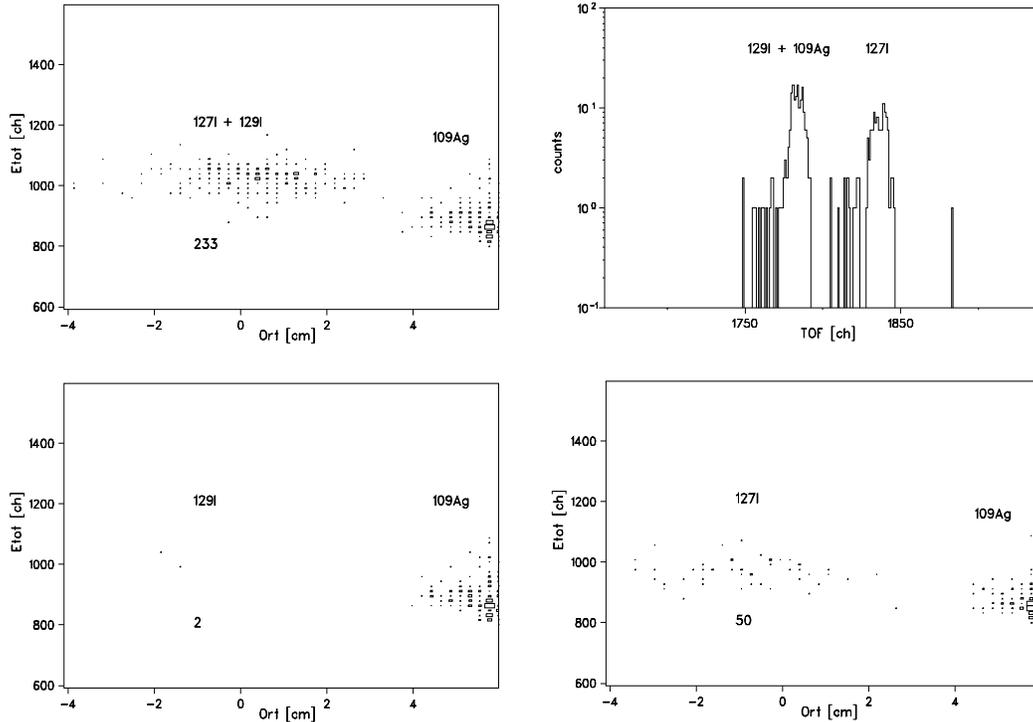


Abbildung 6.5: *Oben links: Spektrum E_{tot} gegen Ort einer Blankprobe ohne Fensterbedingungen ($t=15$ min, $I_{127}=245$ nA). Im ^{129}I -Bereich sind Untergrundereignisse von ^{127}I -Ionen. Im Ort deutlich getrennt sind Ereignisse von $^{109}\text{Ag}^{11+}$ -Ionen, die eine ähnliche magnetische Steifigkeit haben wie $^{129}\text{I}^{13+}$, und deshalb durch das Strahlführungssystem nicht genügend stark unterdrückt werden.*

Oben rechts: Flugzeitspektrum der selben Messung. ^{127}I und ^{129}I sind deutlich getrennt.

Unten links: E_{tot} gegen Ort mit einer Fensterbedingung auf die Flugzeit. Die verbleibenden zwei Ereignisse sind mit großer Wahrscheinlichkeit kein Untergrund, sondern ^{129}I -Verunreinigungen in der Probe. Die beiden Ereignisse entsprechen einer Konzentration $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 2 \cdot 10^{-14}$.

Unten rechts: Spektrum E_{tot} gegen Ort mit einer Fensterbedingung auf die Flugzeit einer Erdprobe aus der Ukraine. Es ergibt sich eine ^{129}I -Konzentration von $(5.0 \pm 1.0) \cdot 10^{-13}$ ($t=20$ min, $I_{127}=150$ nA).

6.6 Vergleich mit anderen hochempfindlichen Nachweismethoden

6.6.1 Andere AMS-Methoden

AMS mit nacktgestrippten Ionen

Wie bereits in Abschnitt 2.2 besprochen, sind, vor allem für schwerere Nuklide, die Nacktstrippausbeuten sehr gering, so daß für eine effiziente Messung eine sehr hohe Strahlenergie erforderlich ist. Der große Vorteil dieser Methode liegt aber darin, daß wegen der äußerst effektiven Z -Trennung es nicht notwendig ist, vor der Messung das Isobar chemisch zu unterdrücken. Jedoch kann sie nur angewendet werden, wenn das Radionuklid eine höhere Kernladungszahl hat, als das Isobar (z.B. ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{53}Mn , ^{59}Ni), Messungen von z.B. ^{10}Be , ^{14}C , ^{60}Fe , ^{63}Ni oder ^{90}Sr sind prinzipiell nicht möglich.

Die empfindlichsten ^{59}Ni -Messungen mit nacktgestrippten Ionen wurden am Argonne National Laboratory bei einer Energie von 641 MeV durchgeführt [KAG⁺93]. Die Nachweisgrenze hierbei lag mit bei $7 \cdot 10^{-14}$ in der Größenordnung der Empfindlichkeit des GAMS. ^{53}Mn wurde mit diesem Aufbau nicht gemessen, die Empfindlichkeit sollte aber im Bereich von ^{59}Ni liegen.

Die Nachweisgrenzen für ^{36}Cl , ^{53}Mn und ^{59}Ni , die am Garching Tandem mit den beiden Nachbeschleunigern bisher erreicht wurden, liegen bei $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}=2 \cdot 10^{-15}$, $^{53}\text{Mn}/\text{Mn}=3 \cdot 10^{-11}$ und $^{59}\text{Ni}/\text{Ni}=4 \cdot 10^{-10}$ bei Energien von 155, 292 bzw. 339 MeV [KMN⁺87, FKK⁺90, Sch91]. Bei optimierter Driftröhrenstruktur der Nachbeschleuniger kann man für ^{53}Mn eine Steigerung der Empfindlichkeit bis zu einer Größenordnung erwarten [Nol]. Damit wäre für ^{53}Mn die Empfindlichkeit gleich der, die beim bisherigen Stand der chemischen Chromunterdrückung mit dem GAMS erreicht werden kann.

AMS mit Isobarenunterdrückung im Detektor

Als höchste Empfindlichkeit für ^{59}Ni , die mit einem AMS-Aufbau erreicht wurde, bei dem die Isobarenunterdrückung ausschließlich durch eine Ionisationskammer geschieht, wurde $5 \cdot 10^{-13}$ erreicht [FASO93]. Es wurden 14UD-Tandem der Australian National University 206-MeV- ^{59}Ni -Ionen aus einer hochreinen Probe nachgestrippt, um Untergrund mit gleichem A/q zu eliminieren, und in einer winkelauflösenden Ionisationskammer mit vier Energieverluststreifen nachgewiesen. An kleineren Beschleunigern ist die Nachweisgrenze von ^{59}Ni um Größenordnungen schlechter.

Für ^{53}Mn und ^{60}Fe lassen sich wegen der hohen Untergrundzählrate ohne gasgefüllten Magneten oder, im Fall von ^{53}Mn ohne die Ionen nacktzustrippen, nur um Größenordnungen schlechtere Empfindlichkeiten erreichen.

Wegen der geringen Isotopenhäufigkeit von ^{36}S (0.02 %) können ^{36}Cl -Konzentrationen in der Größenordnung von 10^{-15} auch mit einem konventionellen Aufbau nachgewiesen werden, allerdings ist dann bei der Probenaufbereitung ein spezielles Verfahren zur Unterdrückung von Schwefel nötig [SBB⁺94].

6.6.2 Alternative Methoden

Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA)

Mit Ausnahme von ^{53}Mn ist eine Neutronenaktivierungsanalyse zur Bestimmung kleinster Konzentration der typischen AMS-Radionuklide nicht geeignet. Entweder ist das Nachbarisotop stabil (z.B. ^{37}Cl , ^{42}Ca , ^{60}Ni) bzw. sehr kurzlebig (z.B. ^{61}Fe), oder der Neutroneneinfangsquerschnitt ist zu klein (z.B. ^{90}Sr). Die Reaktion $^{53}\text{Mn}(n,\gamma)^{54}\text{Mn}$ hat jedoch einen Wirkungsquerschnitt von 70 barn, die Halbwertszeit von ^{54}Mn liegt bei 312.2 Tagen, und beim Zerfall von ^{54}Mn wird zu 100 % ein γ -Quant mit einer Energie von 835 keV emittiert.

Das Problem bei diesen ^{53}Mn -Bestimmungen ist der ^{54}Mn -Untergrund über die Reaktionen $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$ und $^{54}\text{Fe}(n,pn)^{54}\text{Mn}$, der Comptonuntergrund durch Störaktivitäten wie ^{59}Fe oder ^{60}Co mit höherer Energie und Totzeit durch sehr starke Störaktivitäten wie ^{51}Cr .

Bei der radiochemischen Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) von ^{53}Mn [HHW67, VH88] werden deshalb nach der Bestrahlung die Störaktivitäten chemisch abgetrennt. Wegen der Bestrahlungsdauer im Bereich von Monaten und den ^{54}Mn -Untergrund sind sehr stabile Reaktoren mit sehr niedrigem schnellen Fluß notwendig. Bei optimalen Bedingungen läßt sich mit dieser Methode eine Empfindlichkeit von $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn} = 10^{-11}$, bedingt durch $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$, erreichen [Arn87]. Aus Messungen von Chemieblanks für Meteoritenproben mit dem GAMS ergibt sich eine Empfindlichkeit von $3 \cdot 10^{-12}$, bisher nur beschränkt durch den Untergrund an ^{53}Cr .

Resonanzionisationsmassenspektrometrie (RIMS)

Bei der Resonanzionisationsmassenspektrometrie (RIMS) werden neutrale Atome der Probe mit Lasern ein- oder mehrstufig resonant angeregt und schließlich mit einem weiteren Laser ionisiert. Die Ionen können dann über elektrisch abgesaugt und nachgewiesen werden. Die Methode ist aber im Gegensatz zu AMS nicht universell anwendbar; bisher sind nur ^{41}Ca - [BdHO⁺96], ^{90}Sr - [BHK⁺94] und Plutoniummessungen [EFH⁺94] möglich. Die für RIMS erforderlichen Probenmengen liegen mit nur einigen μg zwei Größenordnungen unter denen für AMS, wobei zu erwähnen ist, daß nach Optimierung AMS-Messungen mit Probenmengen unter $100 \mu\text{g}$ möglich sein sollten.

Für ^{41}Ca wurde mit nur einstufiger Anregung hierbei eine Empfindlichkeit von $^{41}\text{Ca}/\text{Ca}=10^{-8}$ erreicht, eine mehrstufige Anregung läßt jedoch noch eine deutliche Verbesserung erwarten [BdHO⁺96]. Dies liegt deutlich über den mit AMS erreichbaren Nachweisgrenzen, da das störende Isobar ^{41}K durch Injektion von negativen 3-Hydridionen äußerst effektiv unterdrückt werden kann. Am GAMS wurden zwar noch keine ^{41}Ca -Messungen durchgeführt, es läßt sich aber eine mindestens so hohe Empfindlichkeit wie bei am gasgefüllten Q3D-Magnetspektrographen ($^{41}\text{Ca}/\text{Ca}=3 \cdot 10^{-15}$ [KFK⁺94]) erwarten.

^{90}Sr wurde mit Resonanzionisations-Massenspektrometrie in kollinearere Geometrie (RISIKO) gemessen. Im Gegensatz zur konventionellen RIMS werden die Probenatome hier zuvor ionisiert, auf ca. 60 keV beschleunigt, massensepariert und wieder neutralisiert. Durch die für verschiedene Massen unterschiedliche Dopplerverschiebung kann die Isotopenselektivität deutlich verbessert werden. Für ^{90}Sr wurde so eine Empfindlichkeit von $^{90}\text{Sr}/\text{Sr}=10^{-11}$ erreicht. Am gasgefüllten Q3D-Magnetspektrographen betrug die Empfindlichkeit $3 \cdot 10^{-12}$ [KFK⁺94], so daß man am GAMS einige 10^{-13} erwartet, bei Optimierung der Probenaufbereitung⁵ [Kas93] ist eine noch höhere Empfindlichkeit möglich.

Direkte Aktivitätsmessung

Wegen der niedrigen spezifischen Aktivitäten ist AMS in den meisten Fällen weitaus empfindlicher als eine direkte Aktivitätsmessung.

Beispielsweise hat eine (am GAMS meßbare) 5-mg- ^{59}Ni -Probe mit einer Konzentration $^{59}\text{Ni}/\text{Ni}=10^{-12}$ eine Aktivität von nur 10^{-5} Bq.

Die Aktivitätsmessung wird zusätzlich dadurch erschwert, daß viele der AMS-Nuklide (z.B. ^{32}Si , ^{36}Cl , ^{53}Mn , ^{59}Ni) bei ihrem Zerfall keine γ -Quanten emittieren.

Nur ^{90}Sr ($T_{1/2} = 28.5$ a) kann durch Messung der β^- -Strahlung der Tochter ^{90}Y mit Cherenkovzählern vergleichbar empfindlich wie mit AMS nachgewiesen werden⁶ [Kas93].

⁵Da Strontium keine negativen Ionen bildet, wurde es als Fluoridion eingeschossen. Die hierfür nötige Fluoridfällung hat aber sehr wahrscheinlich eine Zirkonkontamination zur Folge, so daß man bei SrO^- -Ionen aus einem Strontiumcarbonatsputtertarget weniger isobaren Untergrund erwartet. Eine sehr effektive Möglichkeit zur Zirkonunterdrückung ist der Einschuß von negativen Hydridionen, jedoch ist die Herstellung von Sputtertargets aus Strontiumhydrid äußerst aufwendig [PBF⁺96].

⁶Wegen des bei nahezu allen Anwendungen vorkommenden Untergrunds durch ^{89}Sr , das mit 1.5 MeV eine höhere β^- -Endpunktenergie besitzt als ^{90}Sr , wird üblicherweise die Aktivität des Tochternuklids ^{90}Y , dessen β^- -Endpunktenergie bei 2.3 MeV liegt, nachgewiesen. Hierzu muß allerdings das Yttrium, das sich bereits in der Probe befindet, radiochemisch abgetrennt werden. Danach muß bis zur Messung mehrere Tage gewartet werden, bis sich die Aktivität wieder aufgebaut hat, so daß AMS-Messungen, z.B. im Falle eines Reaktorunglücks, schneller möglich sind.

Kapitel 7

Messung kosmogener Radionuklide in extraterrestrischer Materie

Dieses Kapitel beschäftigt mit den ersten Anwendungen am GAMS, der Messung der von kosmogen produziertem ^{53}Mn , ^{59}Ni und ^{60}Fe in Meteoritenproben.

7.1 Die kosmische Strahlung

Die kosmische Teilchentrahlung besteht aus zwei Komponenten, der solaren (SCR = solar cosmic rays) und der galaktischen (GCR = galactic cosmic rays). Etwa 87 % der GCR sind Protonen, 12 % α -Teilchen und weniger als 1 % schwerere Kerne [ASBC72]. Die Energie liegt im Bereich von 100 MeV bis zu vielen GeV pro Nukleon. Durch das Magnetfeld der Sonnenwinde werden die GCR bis zu einem Abstand von ca. 50 AE¹ moduliert, d.h. abhängig von der Sonnenaktivität werden vor allem die niederenergetische GCR aus dem Sonnensystem abgelenkt, wie auch in den GCR-Spektren in Abbildung ?? zu sehen ist. Die Herkunft und die Beschleunigungsmechanismen sind noch nicht eindeutig geklärt (für zusammenfassende Artikel und weitere Referenzen siehe [Sha82]).

Die solare Komponente wird bei Sonnenflares emittiert und ist somit korreliert mit der Sonnenfleckenzahl [RM91]. Intensität, elementare Zusammensetzung und Energieverteilung der einzelnen Flares unterliegen starken Schwankungen. Im Mittel besteht die SCR zu 98 % aus Protonen und 2 % α -Teilchen[GMR⁺88]. Die Energie der SCR in der Größenordnung von 1–100 MeV/u ist weit niedriger als die der GCR, jedoch ist ihr Fluß bei Energien unter einigen 100 MeV bei 1 AE (d.h. am Ort der Erde) deutlich höher (siehe

¹Astronomische Einheit: mittlerer Abstand Erde-Sonne = $1.5 \cdot 10^8$ km

Abbildung ??).

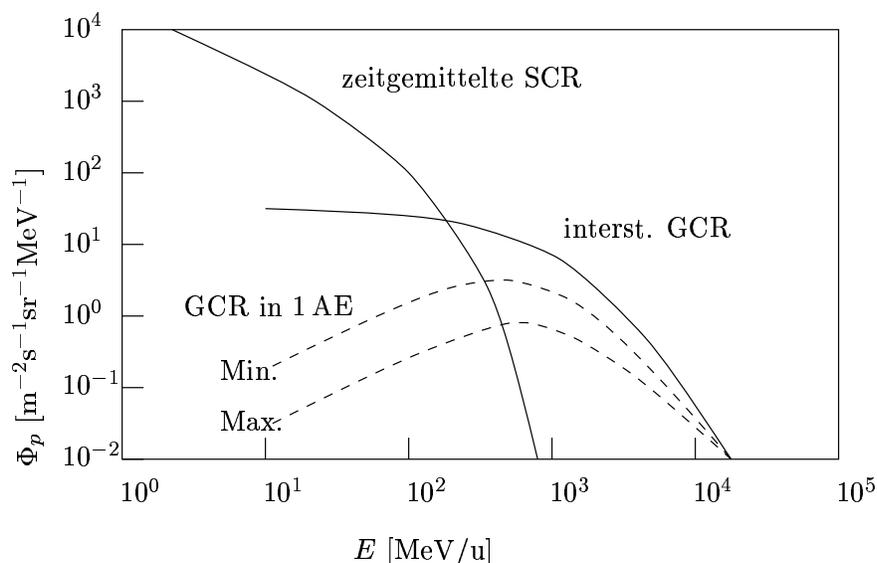


Abbildung 7.1: Zeitgemittelter SCR-Fluß, GCR-Fluß bei bei solarem Minimum bzw. Maximum bei einem Abstand von einer Astronomischen Einheit von der Sonne und interstellarer GCR-Fluß [RAL83].

7.2 Kosmogene Nuklide

Während auf der Erde die kosmische Teilchenstrahlung durch die Atmosphäre und das Erdmagnetfeld weitgehend abgeschirmt ist, kann sie im interplanetaren Raum mit extraterrestrischer Materie (z.B. Meteoroiden², interstellarer Staub, Mondoberfläche) wechselwirken. Über Kernreaktionen werden dann sogenannte kosmogene Nuklide erzeugt³. Die Messung dieser Nuklide kann Aufschluß geben, sowohl über die Bestrahlungsgeschichte der extraterrestrischen Materie, als auch über Intensität, Energieverteilung, Zusammensetzung und Zeitverhalten der kosmische Strahlung [LRA73, KMRA78, Ree80, Zoo80]. Isotopenanomalien stabiler kosmogener Nuklide wie ²¹Ne geben integrale Informationen, kosmogene Radionuklide (siehe Tabelle 7.1) Informationen über einen Zeitraum von der Größenordnung ihrer Halbwertszeit.

²Meteoroid: vor dem Durchgang durch die Erdatmosphäre, Meteorit: nach dem Durchgang durch die Erdatmosphäre.

³In der Erdatmosphäre oder auf der Erdoberfläche werden ebenso kosmogene Nuklide produziert, wegen der oben erwähnten Abschirmung allerdings nur mit deutlich geringeren Produktionsraten.

Radionuklid	$T_{\frac{1}{2}}$ [a]	Wichtigste Targetelemente
^{14}C	$5.73 \cdot 10^3$	N, O, Mg, Si
^{41}Ca	$1.03 \cdot 10^5$	Ca, Ti, Fe, Ni
^{59}Ni	$1.08 \cdot 10^5$	Fe ($^{56}\text{Fe}(\alpha, n)^{59}\text{Ni}$), Ni
^{81}Kr	$2.1 \cdot 10^5$	Sr, Y, Zr
^{26}Al	$7.16 \cdot 10^5$	Mg, Al, Si, Fe, Ni
^{60}Fe	$1.5 \cdot 10^5$	Ni
^{10}Be	$1.51 \cdot 10^6$	C, N, O, Mg, Si
^{53}Mn	$3.7 \cdot 10^6$	Fe, Ni
^{129}I	$1.57 \cdot 10^7$	Te, Ba, La, seltene Erden
^{40}K	$1.28 \cdot 10^9$	Ca, Fe, Ni

Tabelle 7.1: *Komogene Radionuklide mit $T_{\frac{1}{2}} > 1000$ a, geordnet nach der Halbwertszeit [RAL83].*

In Meteoriten- oder Mondoberflächenproben können die Isotope ^{10}Be , ^{14}C und ^{26}Al bereits, teilweise mit kleinen Beschleunigern und hoher Präzision, routinemäßig mit AMS gemessen werden [HVB⁺90], ebenso werden ^{36}Cl -Messungen in den meisten größeren AMS-Labors durchgeführt.

Für ^{41}Ca existieren bisher nur wenige AMS-Messungen [KEC⁺86, FKM90, VFK⁺91] von Meteoriten, hauptsächlich wegen der meist notwendigen, sehr aufwendigen Probenaufbereitung zum Kalziumhydrid. ^{59}Ni in extraterrestrischer Materie konnte mit AMS erst 1992 zum ersten Mal gemessen werden [KKN⁺92, KAG⁺93], ^{53}Mn wurde, außer in dieser Arbeit, mit AMS in nur zwei Proben des Meteoriten Jilin nachgewiesen⁴ [KMN⁺87, FKK⁺92b], kosmogener ^{60}Fe konnte bisher noch nicht eindeutig nachgewiesen werden.

Aus diesen Gründen wurden, als erste Anwendung für das gasgefüllte Magnetsystem, Messungen, vor allem von ^{53}Mn , aber auch von ^{59}Ni und ^{60}Fe in Meteoritenproben durchgeführt⁵.

^{53}Mn Aufgrund der langen Halbwertszeit von $3.7 \cdot 10^6$ a [HI71] kann man aus der ^{53}Mn -Konzentration Rückschlüsse über eine Zeitspanne von vielen Millionen Jahren ziehen. Wegen des sehr hohen antropogenen Untergrundes

⁴siehe aber Abschnitt 6.6.2.

⁵Im Rahmen dieser Arbeit wurden noch keine ^{41}Ca -Konzentrationen gemessen. Durch die räumliche Trennung vom Isobar ^{41}K , die nur unwesentlich schwächer ist als für ^{36}Cl - ^{36}S , sollten auch mit injizierten CaF^- -Ionen Verhältnisse bis zu $^{41}\text{Ca}/\text{Ca}=10^{-14}$ meßbar sein, da isotopischer Untergrund bereits am gasgefüllten Q3D durch Flugzeit- und Energieverlustmessungen unter dieses Niveau reduziert werden konnte [KFK⁺94] und KF^- gegenüber CaF^- in der Ionenquelle deutlich unterdrückt wird [Kor96]. Dadurch wären wesentlich einfachere Messungen von ^{41}Ca in Meteoritenproben möglich, deren Konzentration typischerweise bei $^{41}\text{Ca}/\text{Ca}=10^{-12}$ liegt.

von ^{129}I ($T_{1/2}=1.57 \cdot 10^7$ a) aus der Kernspaltung und der geringen Konzentration der Targetelemente sind quantitative ^{129}I -Messungen [NEAG83] äußerst problematisch. Bei ^{40}K ($T_{1/2}=1.28 \cdot 10^9$ a) ist die Halbwertszeit bereits so hoch, daß es innerhalb der relevanten Zeiträume als stabiles Isotop betrachtet werden kann. Zudem wird durch primordiales ^{40}K (0.0117 %) der Nachweis von geringen Konzentrationen behindert. Dadurch ist ^{53}Mn als das Radioisotop mit der größten Halbwertszeit, das quantitative Aussagen erlaubt, von besonderer Bedeutung.

^{59}Ni Dieses Isotop ist aus zweierlei Gründen von Interesse. In Meteoroiden wird es dominant über Neutroneneinfang von ^{58}Ni produziert, wodurch es sich sehr gut als Sonde für den thermischen Neutronenfluß eignet [SRL⁺86]. Das im Prinzip einfacher nachzuweisende ^{41}Ca wird in Eisenmeteoroiden, im Gegensatz zu Steinmeteoroiden, überwiegend durch Spallation an Eisen oder Nickel erzeugt, so daß es nicht mehr als reine Neutronenflußsonde verwendet werden kann. Zudem ist die Probenaufbereitung für AMS-Messungen von ^{41}Ca [RYP⁺81, Zer95] mit wesentlich mehr Aufwand verbunden als für ^{59}Ni [FKK⁺92b].

In den obersten Millimetern ist, bei Materie mit kleinem Nickelgehalt, die Produktion durch solare α -Teilchen über $^{56}\text{Fe}(\alpha, n)^{59}\text{Ni}$ dominant. Dadurch ist ^{59}Ni als einziges Nuklid als Sonde für solare α -Teilchen geeignet [LRA73, FKK⁺92a, KAG⁺93].

^{60}Fe Erzeugt durch Spallation von galaktischer kosmischer Strahlung an Nickel, konnte ^{60}Fe bis heute nicht signifikant in extraterrestrischer Materie nachgewiesen werden. Die vor dieser Arbeit einzige AMS-Messung lieferte nur ein Ereignis im ^{60}Fe -Bereich [PGH⁺89], entsprechend einer Konzentration von $3 \cdot 10^{-14}$ $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$.

7.2.1 Produktion kosmogener Radionuklide

Die Produktionsrate P_X eines kosmogener Nuklids X , z.B. in einem Meteoriten, ist wegen Abschirmungseffekten von der Tiefe d abhängig:

$$P_X(d) = \sum_i N_i \sum_j \int \sigma_{ij}(E) \left(\frac{d\Phi(E, d)}{dE} \right)_j dE, \quad (7.1)$$

mit N_i als der Anzahl der Targetkerne des Elements i , $\sigma_{ij}(E)$ als den Wirkungsquerschnitt für die Bildung des Nuklids X aus dem Targetkern i und einem Projektil j der Energie E und $(d\Phi(E, d)/dE)_j$ als den differentiellen Fluß des Projektils j (primär und sekundär) der Energie E in der Tiefe d .

Zur Lösung von Gleichung ?? ist es notwendig, daß sowohl die Produktionsquerschnitte über einen weiten Energiebereich, als auch der Sekundärteilchenfluß in der Tiefe bekannt sind. Hierzu wurden dünne (keine Sekundärteilchen) und dicke Targets (künstliche Meteoroiden, Sekundärteilchen) mit einem repräsentativen Spektrum hochenergetischer Protonen bestrahlt und die produzierten Nuklide gemessen [MLB96, Sch95]. Anhand der dieser Meßergebnisse und Ergebnissen von Meteoritenmessungen können Monte-Carlo-Rechnungen normiert werden, so daß inzwischen verlässliche Werte für die tiefenabhängige Produktion von vielen kosmogenen Nukliden verfügbar sind.

Bestrahlungsgeschichte von Meteoriten

Fast alle Meteoriten stammen von Mutterkörpern ($R = 100 - 1000$ km) aus den Asteroidengürtel zwischen Mars und Jupiter ab. Einschläge auf den Mutterkörpern können dazu führen, daß Material aus der bisherigen Umlaufbahn abgelenkt und von der Erde eingefangen wird. Ab dem Zeitpunkt t_0 des Einschlags ist der eben entstandene Meteoroid nicht mehr durch höhergelegene Gesteinsschichten von der kosmischen Strahlung abgeschirmt und bleibt dies, bis er schließlich wieder von der Erdatmosphäre abgeschirmt wird. Diese Zeitspanne der Wechselwirkung mit der kosmischen Strahlung wird als Bestrahlungsalter bezeichnet⁶; es liegt typischerweise im Bereich von einigen Millionen Jahren (Steinmeteorite) bis zu mehreren hundert Millionen Jahren (Eisenmeteorite).

Eine Möglichkeit, das Bestrahlungsalter eines Meteoriten zu bestimmen, besteht in der Analyse stabiler Edelgasisotope wie ^3He , ^{21}Ne , ^{22}Ne oder ^{38}Ar in der Meteoritenmatrix [EEGM66]. Da die Edelgase bei der Gesteinsbildung entwichen sind, besteht nur wenig Untergrund (z.B. durch solare Gase). Der Großteil der Edelgase ist in Kernreaktionen mit der kosmischen Strahlung erzeugt worden. Die Messung dieser Edelgase erfolgt i.a. mit konventioneller Massenspektrometrie.

Für die Aktivität A_X des kosmogenen Radionuklids X ergibt sich mit P_X aus Gleichung ??:

$$A_X(t) = P_X(1 - e^{-\lambda_X(t-t_0)}). \quad (7.2)$$

Nach etwa fünf Halbwertszeiten ist man (bei konstantem P_X) nahe der Sättigungsaktivität, so daß $A_X = P_X$ gilt.

Bestrahlungsalter bis zu etwa 10 Ma lassen sich auch bestimmen, wenn man von langlebigen kosmogenen Nukliden wie ^{10}Be , ^{26}Al oder ^{53}Mn die Abweichung von der Sättigungsaktivität bestimmt. Allgemein läßt sich sagen, daß kosmogene Radionuklide Auskunft über einen Zeitbereich in der

⁶Terrestrisches Alter meint die Zeit seit dem Fall des Meteoriten, Entstehungsalter die Zeit der Gesteinsbildung.

Größenordnung ihrer Halbwertszeit geben. Eine Abweichung von den erwarteten Werten kann ein Hinweis auf eine komplexe Bestrahlungsgeschichte des Meteoriten sein; stößt der Meteoroid mit einem anderen Körper zusammen und wird aufgebrochen, so kann eine vorher abgeschirmte Stelle an die Oberfläche gelangen, wo sie anderen Bestrahlungsbedingungen ausgesetzt ist. Ein Radionuklid, dessen Halbwertszeit klein gegen die Zeit seit dem Aufbruch ist, hat dann eine Aktivität, wie sie einer Bestrahlung mit der neuen Geometrie entspricht, während die Aktivität eines Radionuklid mit einer deutlich größeren Halbwertszeit noch entsprechend der alten Bestrahlungsgeometrie vorliegt.

Die Produktionsquerschnitte $\sigma_{ij}(E)$ in Gleichung ?? haben für unterschiedliche kosmogene Nuklide eine unterschiedliche Energieabhängigkeit. Wegen der Tiefenabhängigkeit der differentiellen Flüsse $(d\Phi(E, d)/dE)_j$ ergeben sich für unterschiedliche Nuklide verschiedene Tiefenprofile. Da $(d\Phi(E, d)/dE)_j$ auch von der Größe der Meteoroiden abhängt⁷, ist es mit Hilfe von Modellrechnungen möglich, über die Konzentrationen von mehreren kosmogenen Nuklide in einer einzelnen Probe die präatmosphärische Größe des gesamten Meteoroiden und die präatmosphärische Tiefe der Probe zu bestimmen, was i.a. nicht bekannt ist, da die Oberfläche des Meteoroiden durch Ablation in der Atmosphäre verloren geht. Zudem kann der Meteoroid in der Erdatmosphäre aufgebrochen sein, was vor allem bei größeren Meteoroiden häufig der Fall ist, so daß nur vereinzelte Bruchstücke gefunden wurden.

⁵³Mn-Messungen von Meteoritenproben

In Tabelle 7.1 sind die Ergebnisse weiterer ⁵³Mn-Messungen in Meteoritenproben aufgeführt, und, falls vorhanden, ebenfalls Meßwerte für ¹⁰Be und ²⁶Al. Die Proben stammen alle aus einer Zusammenarbeit mit dem Institut für Biochemie, Abteilung Nuklearchemie, der Universität zu Köln, wo auch die chemische Probenaufbereitung [VH88] erfolgt. ¹⁰Be und ²⁶Al wird mit AMS am EN-Tandem der ETH Zürich, ⁵³Mn, ⁵⁹Ni und ⁶⁰Fe am GAMS gemessen. Die Berechnungen der Produktionsraten erfolgt am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Universität Hannover.

Am Beispiel des Enstatit-Chondriten Acfer 287 und des L6-Chondriten Rincon soll die Bestimmung der präatmosphärischen Probentiefe, der Größe des Meteoroiden und, im Falle von Acfer 287, des Bestrahlungsalters gezeigt wer-

⁷Selbst an der Oberfläche des Meteoroiden sind die Flüsse abhängig von seiner Größe. Bei kleinen Meteoroiden ($R \approx 10$ cm) erreichen zwar auch Teilchen, die schräg oder von der gegenüberliegenden Seite eingedrungen sind die Oberfläche, jedoch ist der Sekundärteilchenfluß wegen der geringen Wechselwirkungstiefe noch nicht ganz aufgebaut. Die Produktion kosmogener Nuklide an der Oberfläche ist deshalb kleiner (bei Vernachlässigung der SCR-Produktion in den obersten mm), als bei Meteoroiden mit $R \approx 50$ cm. Mit weiter steigendem Radius wird die lokale Bestrahlungsgeometrie immer ähnlicher einer 2π -Bestrahlung und die Produktion nimmt wieder ab.

Meteorit	$^{53}\text{Mn}/\text{Mn}\cdot 10^{-10}$	^{53}Mn [$\frac{\text{dpm}}{\text{kgFe}}$]	^{10}Be [$\frac{\text{dpm}}{\text{kg}}$]	^{26}Al [$\frac{\text{dpm}}{\text{kg}}$]
Acfer 217	16.7 ± 3.2	328 ± 63	21.3 ± 0.3	56.3 ± 1.9
Acfer 287	4.8 ± 1.1	82 ± 20	11.5 ± 0.2	$34.4 \pm 1.2^*$
Allende	14.3 ± 2.8	531 ± 104	15.9 ± 0.2	53.2 ± 2.0
Dar al Gani 13	7.8 ± 1.8	264 ± 61	16.2 ± 0.6	-
Dar al Gani 55	2.7 ± 1.0	90 ± 33	5.0 ± 0.1	-
Dar al Gani 84	2.5 ± 0.8	148 ± 47	25.0 ± 0.6	-
Emery	10.9 ± 2.0	371 ± 68	7.3 ± 0.2	-
Dhurmsala	9.8 ± 2.1	575 ± 137	22.0 ± 0.3	75.9 ± 3.3
Illafegh 009	7.4 ± 2.1	132 ± 37	14.6 ± 0.2	39.1 ± 2.0
Mbale 3	5.4 ± 1.1	282 ± 57	26.4 ± 0.6	-
Mbale 15	8.2 ± 1.5	422 ± 77	21.9 ± 0.6	-
Mbale 50	8.7 ± 2.3	355 ± 94	21.9 ± 0.4	-
Murchison	7.4 ± 2.1	166 ± 47	10.0 ± 0.2	31.3 ± 2.7
Rincon	6.8 ± 1.8	220 ± 60	14.1 ± 0.3	$47.4 \pm 2.4^*$

Tabelle 7.2: *Ergebnisse der in dieser Arbeit durchgeführten ^{53}Mn -Messungen in Meteoriten. Angegeben sind die gemessenen ^{53}Mn -Konzentrationen (typischerweise wurden auf 200 mg Meteoritenmaterial 2-4 mg ^{55}Mn -Träger zugegeben) und die daraus resultierenden ^{53}Mn -Aktivitäten. Falls vorhanden, sind auch die ^{10}Be - und ^{26}Al -Aktivitäten der selben Proben angegeben. Diese Messungen wurden mit AMS an der ETH Zürich durchgeführt.*

Die angegebenen Fehler sind nur die Fehler der AMS-Messungen, Fehler bei der chemischen Probenaufbereitung und durch das terrestrische Alter sind nicht enthalten.

Bis auf den Stein-Eisen-Meteoriten Emery handelt es sich bei allen Proben um Steinmeteoriten. Die Proben Mbale 3, 15 und 50 stammen aus denselben Meteoriten. Sie sind die ersten drei von insgesamt neun Proben aus verschiedenen Tiefen. Die Messung dieses Tiefenprofils soll auch zur weiteren Kalibrierung der Produktionsratenrechnungen dienen.

den. Bei beiden Meteoriten wurden die kosmogenen Radionuklide ^{10}Be , ^{26}Al und ^{53}Mn gemessen und tiefen- und größenabhängig mit einem Monte-Carlo-Code berechnet, für Rincon existieren zusätzliche Edelgasmessungen.

Rincon Im oberen Teil von Abbildung ?? sind die Ergebnisse von Modellrechnungen [Neu96] für die tiefenabhängige ^{10}Be - und ^{26}Al -Aktivität in Meteoriten der mit ICP-AES-Analyse bestimmten chemischen Zusammensetzung von Rincon [Mer96], korrigiert auf ein Bestrahlungsalter von 5.545 Ma [Sch], für unterschiedlichen Radien gegeneinander aufgetragen. Die ^{10}Be - und ^{26}Al -Werte, gemessen mit AMS an der ETH-Zürich [Mer96], lassen auf einen präatmosphärischen Radius von 50-60 cm und eine oberflächennahe Probe schließen. Der in dieser Arbeit gemessene Wert von $(220 \pm 60) \frac{\text{dpm}}{\text{kgFe}}$ für ^{53}Mn ist mit diesem Ergebnis in guter Übereinstimmung, wie in der unteren Abbildung gezeigt ist.

Acfer287 Die gemessenen ^{10}Be - und ^{26}Al -Aktivitäten von Acfer 287 liegen deutlich unter den für diese Meteoritenklasse typischen Werten. Sie lassen sich nur dann mit den Rechnungen erklären, wenn man von einem sehr kurzen Bestrahlungsalter im Bereich von 3 Ma ausgeht. Edelgasdaten liegen für diesen Meteoriten nicht vor.

In diesem Fall ergibt sich für den präatmosphärischen Radius 10-15 cm und eine Probentiefe von wenigen cm. Für längere Bestrahlungsalter würde der Meßpunkt in Abbildung ?? in einem Bereich liegen, der nicht durch die Kurvenschar abgedeckt ist. Der ^{53}Mn -Wert, der wegen der langen Halbwertszeit besonders empfindlich auf das Bestrahlungsalter der Probe ist, zeigt sehr gute Übereinstimmung mit den ^{10}Be - und ^{26}Al -Werten, und bestärkt die Annahme des kurzen Bestrahlungsalters.

^{59}Ni -Messungen einer Meteoritenproben

^{59}Ni aus Meteoritenproben wurde in München bereits mit dem gasgefüllten Q3D-Magnetspektrograph gemessen [FKK⁺92b, Kni92]. Der Nickelgehalt in Eisenmeteoriten oder in der Metallphase von Stein-Eisen-Meteoriten beträgt einigen %⁸, so daß mit sehr kleinen Probenmengen und ohne Träger gearbeitet werden kann. Wegen des hohen Nickelgehalts ist der dominante Produktionszweig $^{58}\text{Ni}(n_{th}, \gamma)^{59}\text{Ni}$, die typischen ^{59}Ni -Konzentrationen liegen im Bereich von 10^{-11} – 10^{-10} $^{59}\text{Ni}/\text{Ni}$. Das $^{59}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnis in der Metallphase des Pallasiten (Stein-Eisen-Meteoriten) Admire wurde bereits mit dem Q3D zu $(3.7 \pm 1.1) \cdot 10^{-11}$ [RSK⁺94] bestimmt, eine Messung der gleichen Probe mit nacktgestrippten Ionen am Argonne National Laboratory ergab

⁸Der Mangangehalt in Steinmeteoriten liegt typischerweise im Promille-, bei Eisenmeteoriten im ppm-Bereich

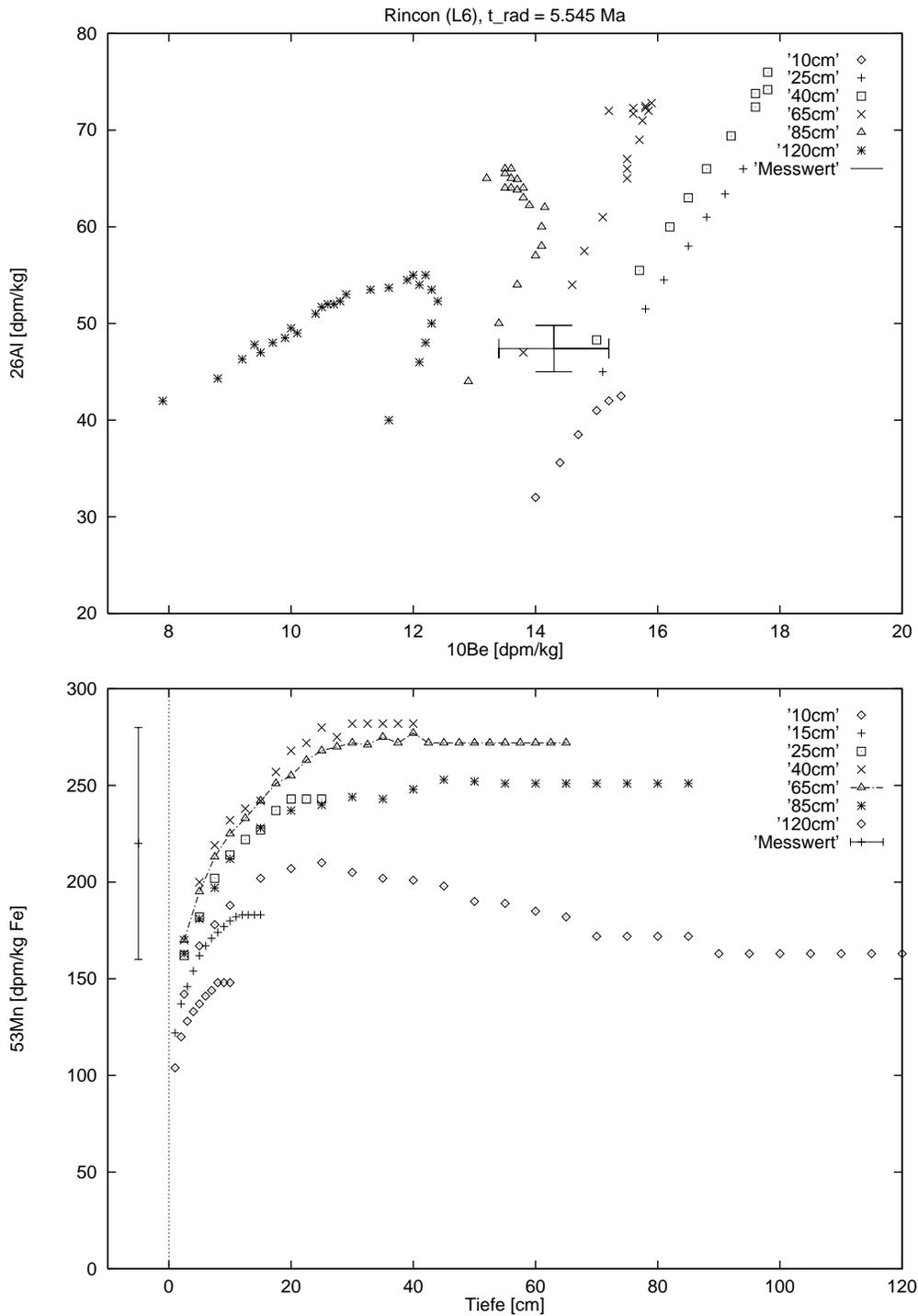


Abbildung 7.2: ^{10}Be - und ^{26}Al - ^{53}Mn -Aktivitäten in den Meteoriten Rincon und dazugehörige Modellrechnungen für verschiedene Radien mit gegebener Elementzusammensetzung und einem Bestrahlungsalter von 5.545 Ma [Sch]. In der oberen Abbildung entspricht der jeweils untere linke Punkt der Oberfläche eines Meteoriten, der letzte Punkt der Kurve dem Mittelpunkt.

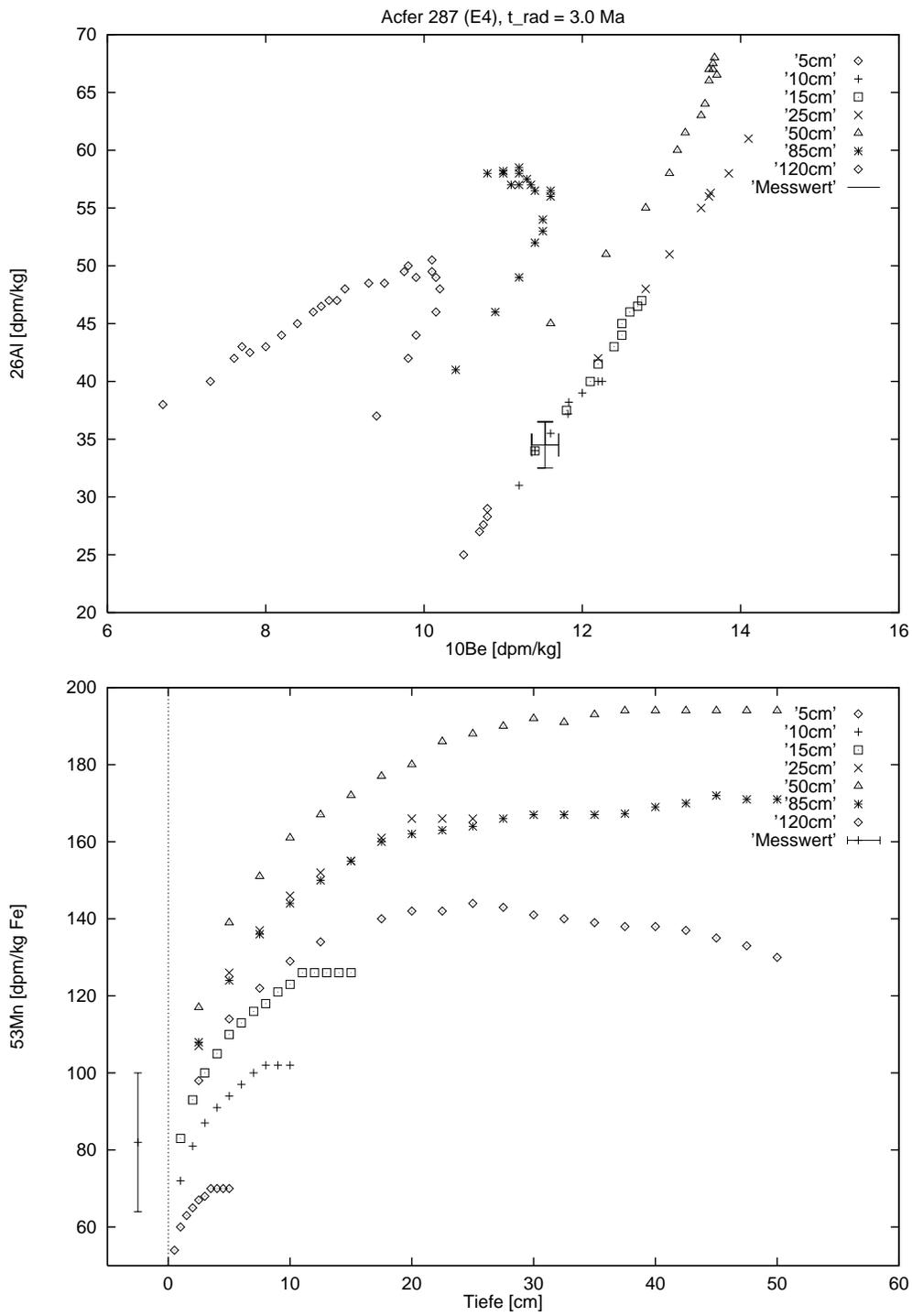


Abbildung 7.3: ^{10}Be - und ^{26}Al - ^{53}Mn -Aktivitäten in den Meteoriten Acfer 287 und dazugehörige Modellrechnungen für ein Bestrahlungsalter von 3 Ma und verschiedene Radien.

$(2.3 \pm 0.4) \cdot 10^{-11}$ [KAG⁺93]. In ersten ^{59}Ni -Messungen mit dem neuen Aufbau ergab sich für diese Probe $(3.6 \pm 0.6) \cdot 10^{-11}$.

^{60}Fe -Messungen von Meteoritenproben

Im Gegensatz zu den bereits etablierten Isotopen ^{10}Be , ^{26}Al oder ^{36}Cl sind Messungen von kosmogen erzeugtem ^{60}Fe bisher nicht gelungen, da wegen des hohen Eisengehalts von Meteoriten, der den des hauptsächlichen Targets Nickel meist um über eine Größenordnung übersteigt, nur sehr kleine Konzentrationen $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$ zu erwarten sind. Es ist anzunehmen, daß wegen der relativ hohen Neutronenzahl von ^{60}Fe die überwiegende Produktion über das schwerste stabile Nickelisotop, ^{64}Ni , geschieht⁹, das eine Isotopenhäufigkeit von lediglich 0.91 % hat. In der einzigen bisher existierenden AMS-Messung [Pau90] wurde in einer Probe des Eisenmeteoriten Treysa in drei Stunden Meßzeit ein Ereignis nachgewiesen, was, wenn es kein Untergrundereignis ist, einem Verhältnis $^{60}\text{Fe}/\text{Fe} = 3 \cdot 10^{-14}$ entspricht. In dieser Arbeit wurde versucht, in einer Probe des Eisenmeteoriten Tlacotepec ^{60}Fe zu bestimmen. Aus Messungen anderer langlebiger kosmogener Radionuklide folgt (siehe auch oben), daß ^{60}Fe seine Sättigungsaktivität bereits erreicht haben muß. Der Nickelgehalt liegt mit 16.5% [RMBW84] höher als bei Treysa (9.5% [MWW84]), so daß auch ein höheres ^{60}Fe -Signal zu erwarten ist.

In 112 min Meßzeit konnte kein ^{60}Fe -Ereignis nachgewiesen werden, was einer Konzentration $^{60}\text{Fe}/\text{Fe} < 1.4 \cdot 10^{-14}$ entspricht.

Aus diesem Meßwert und der bekannten ^{53}Mn -Aktivität folgt, daß die Produktionsraten (normiert auf gleiche Targetkonzentrationen) von ^{60}Fe aus ^{64}Ni um mehr als einen Faktor zehn gegenüber den Produktionsraten von ^{53}Mn aus Eisen unterdrückt sind. Weitere ^{60}Fe -Messungen in einem Meteoriten mit noch höherem Nickelgehalt sind geplant.

⁹Es ist zu erwarten, daß die Wirkungsquerschnitte der Reaktionen $^{62}\text{Ni}(p,3p)^{60}\text{Fe}$ oder $^{62}\text{Ni}(n,2pn)^{60}\text{Fe}$ wegen der wenigen freigesetzten Neutronen deutlich kleiner sind als die für $^{64}\text{Ni}(p,3p2n)^{60}\text{Fe}$ und $^{62}\text{Ni}(n,2p3n)^{60}\text{Fe}$.

Kapitel 8

Ausblick

In diesem Abschnitt werden beispielhaft zwei weitere AMS-Anwendungen, die wegen der hohen Empfindlichkeit jetzt möglich sind, diskutiert.

8.1 Nachweis supernovaproduzierter Radionuklide

Von dem COMPTEL-Detektor auf dem Compton Gamma-Ray Observatory Satelliten (CGRO) der NASA wurde eine Karte unserer Galaxis im Licht der 1809-keV-Linie von ^{26}Al aufgenommen [PD96]. Als dominanter Produktionskanal gilt die Reaktion $^{25}\text{Mg}(p,\gamma)^{26}\text{Al}$ in Supernovae Typ II. In [WTH+96] wurde die Masse des ^{26}Al in der Galaxis zu 2.2 ± 1.1 Sonnenmassen berechnet. Eine Masse von 1.7 ± 0.9 Sonnenmassen wurde für ^{60}Fe berechnet, welches ebenfalls in Supernovae Typ II produziert wird, entweder durch Neutroneneinfänge während des Heliumbrennens oder durch explosive Nukleosynthese in den inneren Schichten. Das erwartete Signal von ca. 15% des ^{26}Al -Signals lag knapp unter der Nachweisgrenze des CGRO. Geht man von einer homogenen und genügend schnellen Verteilung des ^{60}Fe in der Galaxis aus und berücksichtigt die Abschirmung der Erde durch den Sonnenwind [Hil], läßt sich auf der Erde eine Sedimentationsrate in der Größenordnung von $10^6 \text{ }^{60}\text{Fe m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ erwarten¹. Wenn diese ^{60}Fe , z.B. in arktischen Oberflächeneisproben, gemessen werden kann, wäre dies der erste Nachweis von supernovaproduzierten Radionukliden in terrestrischen Proben, da vor allem bei ^{60}Fe der Untergrund vernachlässigt werden kann.

Eine spezielle Situation ergibt sich, wenn eine Supernovaexplosion in der Nähe unseres Sonnensystems stattgefunden hat. In diesem Fall wäre bis zu einem Abstand von 50 pc der Druck der Supernovastößfront größer als

¹In einer 1-mg-AMS-Probe entspräche das einer Konzentration $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}=1\cdot 10^{-13}$, wäre also mit dem GAMS nachweisbar. Bei Verwendung größerer Probenmengen vergrößert sich die Konzentration entsprechend.

der des Sonnenwinds, und Abschirmeffekte wären deshalb nicht zu erwarten. Die Anzahl der supernovaproduzierten Radionuklide in terrestrischen Proben wurde in [EFS96] für eine Supernovaexplosion im Abstand von 20 pc abgeschätzt. Es ergeben sich für eine Eisbohrkernprobe aus der Zeit, in der sich das Sonnensystem durch die Supernovastößfront bewegt hat, folgende Konzentrationen [Atome/kg Eis]: ^{26}Al : $8.4 \cdot 10^9$, ^{36}Cl : $4.9 \cdot 10^9$, ^{41}Ca : $1.5 \cdot 10^9$, ^{53}Mn : $2.4 \cdot 10^{10}$, ^{59}Ni : $1.0 \cdot 10^{10}$, ^{60}Fe : $1.2 \cdot 10^9$. Für alle diese Radionuklide wird erwartet, daß das Signal den kosmogenen Untergrund um mehrere Größenordnungen übersteigt. In datierten Eisbohrkernen (bis einige 100 ka) oder auch in Tiefseesedimenten (bis einige 100 Ma) wäre demnach, im Falle einer Supernovaexplosion innerhalb der letzten Millionen Jahre in der Nähe unseres Sonnensystems, ein Puls bei mehreren Radionukliden am GAMS meßbar.

8.2 Rekonstruktion des Neutronenspektrums der Hiroshimabombe

Um statistisch signifikante Aussagen über die biologische Wirkung von Strahlendosen machen zu können, ist es notwendig, ein großes Kollektiv von Personen mit genau bekannter Strahlenexposition zu untersuchen. Das Dosimetriesystem DS86 bezieht sich hierfür auf die Überlebenden der Atombombenabwürfe von Hiroshima und Nagasaki. Das im DS86 verwendete Neutronenspektrum ist aber mit Meßwerten von neutronenproduzierten Radionukliden nicht im Einklang [SEW⁺92, Rüh93, RKK⁺95]. D.h. entweder wurden für das Bombenspektrum und die Fluenz falsche Werte angenommen, oder die Neutronentransportrechnungen sind fehlerhaft.

Wichtige Informationen über den hochenergetischen Fluß kann man durch Messung von ^{63}Ni ($T_{1/2}=100$ a) erhalten, das in Kupferproben dominant von Neutronen mit einer Energie über ca. 1 MeV über die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ erzeugt wurde [SMM96].

Durch die Möglichkeit der chemischen Reduktion des störenden Isobars ^{63}Cu auf <20 ppb [MHM⁺96] kann für ^{63}Ni -Messungen am GAMS von der gleichen Empfindlichkeit wie für ^{59}Ni ausgegangen werden.

^{63}Ni könnte damit in einen Abstand von bis zu ≈ 1500 m vom Epizentrum der Bombe nachgewiesen werden [SMM96]. Da bereits sehr viele Messungen von thermisch produzierten Radionukliden vorliegen, jedoch nur sehr wenige von Radionukliden, die in Reaktionen mit einer Schwelle im MeV-Bereich produziert wurden, würde die Messung von ^{63}Ni in verschiedenen Abständen vom Epizentrum sowohl eine Überprüfung der Transportrechnungen als auch des angenommenen Bombenspektrums erlauben.

Verzeichnis der häufig verwendeten Symbole

- α Durch Kleinwinkelstreuung erzeugter Winkel [rad] eines Ions zur Strahlachse.
- $\tilde{\alpha}$ Reduzierter Winkel α [rad].
- $\alpha_{\frac{1}{2}}$ Halbwertsbreite einer durch Kleinwinkelstreuung erzeugten Winkelverteilung eines Ionenstrahls.
- $\tilde{\alpha}_{\frac{1}{2}}$ Reduzierte Halbwertsbreite $\alpha_{\frac{1}{2}}$.
- A_P Massenzahl eines Projektilions.
- A_T Massenzahl eines Targetatoms.
- AE Astronomische Einheit: mittlerer Abstand Erde-Sonne = $1.5 \cdot 10^8$ km
- $B\rho$ magnetische Steifigkeit eines geladenen Teilchens [Tm].
- \mathcal{D} Abstand der Schwerpunkte zweier Ortsverteilungen.
- d Massenbelegung, i.a. angegeben in $\frac{\text{mg}}{\text{cm}^2}$.
- d_q Breite einer Ladungsverteilung.
- dpm Zerfälle pro Minute (decays per minute).
- e Elementarladung, $e = 1.602 \cdot 10^{19}$ As.
- \mathcal{E} Differentieller Energieverlust ([erg] pro reduzierter Massenbelegung τ).
- $\Delta E_1 - \Delta E_1$ Signale der einzelnen Anodensegmente.
- EA Elektronenaffinität eines neutralen Teilchens.
- E_{tot} Gesamtenergiesignal vom Frischgitter.
- F_q Besetzungshäufigkeit des Ladungszustandes q in einer Gleichgewichtsladungsverteilung.
- ϕ Elektronenaustrittsarbeit aus einer Oberfläche.
- m_e Elektronenmasse.
- n^* effektive Quantenzahl eines Elektrons, $n^* \sim Z_P^{\frac{1}{3}}$ für $v_0 < v_{e-} < Z_P^{\frac{2}{3}} v_0$.
- P_X Produktionsrate des kosmogenen Nuklids X .
- $\left(\frac{d\Phi(E)}{dE}\right)_j$ Differentieller Fluß der Teilchensorte j [$m^{-2} s^{-1} sr^{-1} \left(\frac{MeV}{u}\right)^{-1}$].
- q Ladungszustand eines Projektilions [e].
- \bar{q} mittlerer Ladungszustand einer Gleichgewichtsladungsverteilung.

- q_m mittlerer Ladungszustands *eines* Projektilions während seiner Wechselwirkungszeit mit dem Targetmaterial.
- \mathcal{S} relative Trennung zweier Ortsverteilungen, $\mathcal{S} = \mathcal{D}/\mathcal{W}$.
- $\sigma_{qq'}$ Wirkungsquerschnitt für die Umladung eines Projektilions der Ladung q auf die Ladung q' .
- σ_l Wirkungsquerschnitt für den Einfang eines oder mehrerer Elektronen durch das Projektilion.
- σ_c Wirkungsquerschnitt für den Verlust eines oder mehrerer Elektronen.
- τ Reduzierte Massenbelegung.
- u atomare Masseneinheit.
- v_0 Bohrgeschwindigkeit, $v_0 = \frac{e^2}{\hbar} = \frac{c}{137} = 2.188 \cdot 10^6 \frac{\text{m}}{\text{s}}$.
- v_e Orbitalgeschwindigkeit eines Elektrons.
- v_P Geschwindigkeit eines Projektilions.
- \mathcal{W} Breite einer Ortsverteilung (FWHM).
- \mathcal{W}_{kws} Breite einer Ortsverteilung (FWHM), bedingt durch die Statistik der Umladungsprozesse .
- \mathcal{W}_{stat} Breite einer Ortsverteilung (FWHM), bedingt durch multiple Kleinwinkelstreuung.
- Y_q Besetzungshäufigkeit des Ladungszustandes q in einer Ladungsverteilung.
- Z_P Kernladungszahl eines Projektilions.
- Z_P^* effektive Kernladungszahl eines Projektilions.
- Z_T Kernladungszahl eines Targetatoms.

Abbildungsverzeichnis

0.1	Prinzipieller Aufbau einer AMS-Anlage.	7
1.1	Umladungsquerschnitte für ^{28}Si -Ionen	13
1.2	Mittlerer Ladungszustand von ^{59}Ni gegen Energie	16
1.3	Kleinwinkelstreuung von ^{59}Ni -Ionen in Stickstoff	21
1.4	Kleinwinkelstreuung von ^{59}Ni -Ionen in Helium, Stickstoff und Argon	21
2.1	Schematischer Aufbau einer Hochstromionenquelle.	23
2.2	Nacktstrippwahrscheinlichkeit P_{strip} gegen die Ionengeschwindigkeit v_P	25
2.3	Relativer Unterschied zweier Isobare mit $\Delta Z=1$ im differentiellen Energieverlust bei 2 MeV/u	27
2.4	dE/dx , bzw. vorgetäushtes dE/dx eines gestreuten ^{59}Co -Ions, eines ungestreuten ^{59}Co -Ions und eines ungestreuten ^{59}Ni -Ions gegen den Weg senkrecht zur Detektorebene	28
3.1	Schematische Darstellung der Trennung von Isobaren in einem gasgefüllten Magnetfeld	31
3.2	Mittlerer Ladungszustand und mittlere magnetische Steifigkeit von ^{59}Ni und ^{59}Co	31
3.3	Unterschied in der magnetischen Steifigkeit von einigen AMS-Isotopen und deren stabilen Isobaren	32
3.4	Definition der Breite \mathcal{W} und des Abstandes \mathcal{D} der Ortsverteilungen zweier Isobare.	33
3.5	Absoluter Abstand zweier Ortsverteilungen und absolute Breiten der Ortsverteilungen für Magnetsysteme mit niedriger und hoher Dispersion	34
3.6	Experimenteller Aufbau für AMS-Messungen mit dem gasgefüllten Enge-Split-Pole	37
3.7	Experimenteller Aufbau für AMS-Messungen mit dem gasgefüllten Q3D-Magnetspektrographen	38
3.8	Abhängigkeit der Isobarensparation vom Ablenkwinkel	39

3.9	Strahlbreite von ^{58}Ni -Ionen mit 200 MeV gegen den Druck in einem gasgefüllten Enge-Split-Pole	41
3.10	Reduktion des Untergrundes durch Verringerung der Breite der Ortsverteilungen	42
3.11	Monte-Carlo-Rechnung der Ortsverteilung von ^{59}Ni - und ^{59}Co -Ionen in einem gasgefüllten Q3D-Magnetspektrographen und in einem 135° -Magneteten	44
3.12	Monte-Carlo-Rechnung der Energieverteilung von ^{59}Ni -Ionen nach einem gasgefüllten Q3D-Magnetspektrographen und einem 135° -Magneteten	45
4.1	Experimenteller Aufbau.	47
4.2	Änderung der Polschuhe	49
4.3	Magnetfeld gegen den Strom.	49
4.4	Aufbau der Magnetkammer und Detektorkammer	50
4.5	Prinzipieller Aufbau einer Frischgitterionisationskammer.	51
4.6	Ansicht der Anodenleiterplatte	53
4.7	Vorderansicht der Ionisationskammer	54
4.8	Schaltplan der Detektorelektronik	55
4.9	Aufbau der μ -Channelplate-Flugzeitdetektoren	58
4.10	Verschaltung der Datenaufnahmeelektronik.	60
5.1	y-Winkelverteilung einer Nickelprobe mit $A = 58$	63
5.2	Flugzeitspektrum einer Nickelprobe mit $A = 58$ und $A = 59$	64
5.3	Breite der Ortsverteilung von ^{37}Cl , ^{58}Ni und ^{107}Ag in Argon.	66
5.4	Isobarentrennung von ^{58}Ni und ^{58}Fe	68
5.5	Separation von ^{58}Fe und ^{58}Ni gegen den Gasdruck.	70
6.1	Spektren von ^{36}Cl -Messungen.	72
6.2	Spektren von ^{53}Mn -Messungen.	74
6.3	Spektren von ^{59}Ni -Messungen.	76
6.4	Spektrum einer ^{60}Fe -Messung	77
6.5	Spektren von ^{129}I -Messungen	79
7.1	Kosmischer Protonenfluß	84
7.2	^{10}Be - und ^{26}Al - ^{53}Mn -Aktivitäten in den Meteoriten Rincon und dazugehörige Modellrechnungen	91
7.3	^{10}Be - und ^{26}Al - ^{53}Mn -Aktivitäten in den Meteoriten Acfer 287 und dazugehörige Modellrechnungen	92

Tabellenverzeichnis

3.1	Zusammenfassung der Abhängigkeiten von Strahlbreite, Restenergie und Energiestraggling von Gasdruck, Gasart, Umladungsquerschnitten und Einschußenergie	36
3.2	Ausgangswerte und Ergebnisse der Monte-Carlo-Rechnungen .	43
5.1	Breite $\delta E/E$ der Energiespektren.	61
5.2	Breite \mathcal{W} der Ortsverteilungen von 180-MeV- ^{58}Ni -Ionen bei verschiedenen Gasen in der Magnetkammer.	67
5.3	Isobarentrennung von ^{58}Ni und ^{58}Fe	69
5.4	Separation von ^{58}Ni und ^{58}Fe	69
7.1	Langlebige kosmogene Radionuklide	85
7.2	Ergebnisse der ^{53}Mn -Messungen in Meteoriten	89

Literaturverzeichnis

- [AEG⁺70] P. Armbruster, J. Eidens, J.W. Grüter, H. Lawin, E. Roeckl, and K. Sistemich. Are gas-filled magnetic separators a usefull tool to investigate heavy fast recoils from nuclear reactions? *Nucl. Inst. and Meth.*, 91:499, 1970.
- [Arm61] P. Armbruster. Massenseparator für die Massentrennung von Spaltprodukten. *Nukleonik*, 3:189, 1961.
- [Arn87] J.R. Arnold. Decay counting in the age of AMS. *Nucl. Inst. and Meth.*, B29:424, 1987.
- [ASBC72] R.G. Alsmiller, R.T. Santoro, J. Barish, and H.C. Claiborne. *Oak Ridge National Laboratory*, RSIC 35, 1972.
- [Ban91] B. Bante. Beschleuniger-Massen-Spektrometrie mit Isobaren-Trennung durch einen gasgefüllten Magnetspektrographen. Diplomarbeit, TU München, 1991.
- [BdHO⁺96] B.A. Bushaw, P. Voss de Haan, E.W. Otten, F. Juston, N. Trautmann, and K.D.A. Wendt. Ultraspurenbestimmung von Calcium mit hoher Isotopenselektivität mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS). *Verhandl. DPG*, (VI)31:683, 1996.
- [Bel53] G.I. Bell. The capture and loss of electrons by fission fragments. *Phys. Rev.*, 90:548, 1953.
- [Bet30] H.A. Bethe. Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie. *Annalen der Physik*, 5:325, 1930.
- [Bet72] H.-D. Betz. Charge states and charge-changing cross sections of fast heavy ions penetrating through gaseous and solid media. *Rev. Mod. Phys.*, 44:465–539, 1972.
- [BFG⁺90] B. Bante, T. Faestermann, A. Gillitzer, G. Korschinek, D. Müller, and U. Bittner. Accelerator mass spectrometry with

a gasfilled magnetic spectrograph. *Jahresber. des Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München*, page 103, 1990.

- [BG75] D. Burch and K. Green. Multiple scattering of heavy ions in thick absorbers. *Univ. of Washington, Annual Report*, page 186, 1975.
- [BHK⁺94] B. Bushaw, G. Herrmann, H.-J. Kluge, J. Lantzsch, L. Monz, S. Niess, E.W. Otten, R. Schwalbach, M. Schwarz, J. Stenner, H. Stevens, N. Trautmann, K. Walter, K. Wendt, and K. Zimmer. Quantitativer Spurennachweis von ⁹⁰Sr in Umweltproben mit kollinearer Resonanzionisationsmassenspektrometrie. *Verhandl. DPG*, (VI)29:623, 1994.
- [BHL⁺66] H.D. Betz, G. Hortig, E. Leischner, C. Schmelzer, B. Stadler, and J. Weihrauch. The average charge of stripped heavy ions. *Phys. Letters*, 22:643, 1966.
- [Blo33] F. Bloch. Bremsvermögen von Atomen mit mehereren Elektronen. *Zeitschrift für Physik*, 81:363, 1933.
- [Boh40] N. Bohr. Scattering and stopping of fission fragments. *Phys. Rev.*, 58:654, 1940.
- [Boh41] N. Bohr. Velocity-range relation for fission fragments. *Phys. Rev.*, 59:270, 1941.
- [Boh48] N. Bohr. *Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-Fys. Medd.*, 18(8), 1948.
- [CC69] G. Carter and J.S. Colligan. *Ion Bombardment of Solids*. Heine Educational Books Ltd., London, 1969.
- [CF58] B.L. Cohen and C.B. Fulmer. Fission-fragment mass separator and the nuclear charge distribution of fission fragments of a single mass. *Nucl. Phys.*, 6:547–560, 1958.
- [CMS70] J. Camplan, R. Meunier, and J.L. Sarrouy. Sidonie, the new electromagnetic isotope separator at Orsay, part I. *Nucl. Inst. and Meth.*, 84:37, 1970.
- [CP72] W.K. Chu and D. Powers. Calculation of mean excitation energy for all elements. *Physics Letters*, 40A:23, 1972.
- [DN68] I.S. Dmitriev and V.S. Nikolaev. Semi-empirical method for the calculation of the equilibrium distribution of charges in a fast-ion beam. *Sov. Phys. JETP*, 20(2):277, 1968.

- [EEGM66] P. Eberhardt, O. Eugster, J. Geiss, and K. Marti. Rare gas measurements in 30 stone meteorites. *Z. Naturf.*, 21a:414, 1966.
- [EFH⁺94] K. Erdmann, H. Funk, G. Herrmann, H.-J. Kluge, S. Köhler, G. Passler, N. Trautmann, and F.-J. Urban. Resonanz-Ionisations-Massenspektrometrie (RIMS) zur Spurenanalyse von Plutonium. *Verhandl. DPG*, (VI)29:623, 1994.
- [EFS96] J. Ellis, B.D. Fields, and D.N. Schramm. Geological isotope anomalies as signatures of nearby Supernovae. *Ap. J.*, 1996. wird veröffentlicht.
- [Elm82] D. Elmore. ³⁶Cl Bomb Pulse Measured in a Sallow Ice Core from Dye 3, Greenland. *Nature*, 300:735, 1982.
- [Ern] H. Ernst. Programm ENELOSS.
- [Fae] T. Faestermann. priv. Mitteilung.
- [FASO93] L.K. Fifield, G.L. Allan, J.O.H. Stone, and T.R. Ophel. The ANU AMS system and research program. *Nucl. Inst. and Meth.*, page 85, 1993.
- [FFST93] L.K. Fifield, D. Fink, S.H. Sie, and C. Tuniz, editors. *Proc. 6th International Conf. on Accelerator Mass Spectrometry*. Nucl. Instr. and Meth. B92, 1993.
- [FGK⁺87] T. Faestermann, A. Gillitzer, G. Korschinek, D. Müller, E. Nolte, E. Roeckl, and A. Steinhof. ⁴¹Ca-BMS im gasgefüllten Magnetspektrographen. *Jahresber. des Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München*, page 63, 1987.
- [FKK⁺90] H. Faestermann, K. Kato, G. Korschinek, P. Krauthan, E. Nolte, W. Rühm, and L. Zerle. Accelerator mass spectrometry with fully stripped ²⁶Al, ³⁶Cl, ⁴¹Ca and ⁵⁹Ni ions. *Nucl. Inst. and Meth.*, B50:275, 1990.
- [FKK⁺92a] T. Faestermann, S. Kastel, K. Knie, G. Korschinek, D. Müller, and W. Spiegel. AMS measurement of a simulated lunar ⁵⁹Ni depth profile. *Jahresber. des Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München*, page 105, 1992.
- [FKK⁺92b] T. Faestermann, K. Knie, G. Korschinek, W. Müller, E. Nolte, W. Rühm, and L. Zerle. ⁵³Mn and ⁵⁹Ni AMS measurements of meteorites. *Jahresber. des Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München*, page 104, 1992.

- [FKM90] D. Fink, J. Klein, and R. Middleton. ^{41}Ca : past, present, future. *Nucl. Inst. and Meth.*, B52:572, 1990.
- [Fra] B. Franzke. GSI Darmstadt, private Mitteilung.
- [GEG⁺96] P.M. Grootes, H. Erlenkeuser, A. Gottdang, D.J.W. Mouse, M.-J. Nadeau, J.M. Sarnthein, M. Schleicher, and H. Willkomm. The Leibnitz-Labor AMS facility at the Christian-Albrechts-Universität, Kiel, Germany. *Radiocarbon*, 38(1):44, 1996. abstract.
- [GLE87] H.E. Gove, A.E. Litherland, and D. Elmore, editors. *Proc. 4th International Symp. on Accelerator Mass Spectrometry*. Nucl. Instr. and Meth. B29, 1987.
- [Glu55] R.L. Gluckstern. Electron capture and loss by ions in gases. *Phys. Rev.*, 98:1817, 1955.
- [GMR⁺88] J.N. Goswami, R.E. McGuire, R.C. Reedy, D. Lal, and R. Jha. *J. Geophys. Res.*, A93:7195, 1988.
- [Gov78] H.E. Gove, editor. *Proc. 1st Symp. on Accelerator Mass Spectrometry*. University of Rochester, 1978.
- [GRHP96] J.C. Gosse, R.C. Reedy, C.D. Harrington, and J. Poths. Overview of the workshop on secular variations in production rates of cosmogenic nuclides on earth. *Radiocarbon*, 38:135, 1996.
- [GSSS96] P. Gartenmann, C. Schnabel, M. Suter, and H.-A. Synal. ^{60}Fe Measurements with an EN Tandem Accelerator. *Radiocarbon*, 38(1):39, 1996. abstract, wird veröffentlicht in NIM B.
- [HA64] M. Honda and J.R. Arnold. Effects of cosmic rays on meteorites. *Science*, 143(3603):203–212, 1964.
- [HHW67] U. Herpers, W. Herr, and R. Wölfle. Determination of the cosmic-ray-produced nuclides ^{53}Mn , ^{45}Sc and ^{26}Al in meteorites by neutron activation and γ -coincidence spectroscopy. *Radioactive Dating and Methods of Low-level Counting*, page 199, 1967. IAEA.
- [HI71] M. Honda and M. Imamura. Half-life of ^{53}Mn . *Phys. Rev.*, C4:1182, 1971.
- [Hil] W. Hillebrandt. MPI für Astrophysik, priv. Mitteilung.

- [HKS^Y81] W. Henning, W. Kutschera, R.K. Smither, and J.L. Yntema, editors. *Proc. 2nd Symp. on Accelerator Mass Spectrometry*, ANL, 1981. Argonne, Illinois 60439.
- [HPK⁺85] W. Henning, M. Paul, W. Kutschera, K.E. Rehm, and R.H. Siemssen. Use of an Enge Split-pole spectrograph as a gas-filled magnetic separator. *Bul. Am. Phys. Soc.*, 30:1249, 1985.
- [HVB⁺90] U. Herpers, S. Vogt, K. Bremer, H.J. Hofmann, W. Wölfl, K. Bobe, D. Stöffler, R. Wieler, P. Signer, R. Michel, P. Dragovitsch, and D. Filges. Cosmogenic nuclides in eucrites. *Nucl. Inst. and Meth.*, B52:612, 1990.
- [KAG⁺93] W. Kutschera, I. Ahmad, B.G. Glagola, R.C. Prado, K.E. Rehm, D. Berkovits, M. Paul, J.R. Arnold, and K. Nishiizumi. Accelerator mass spectrometry of ⁵⁹Ni in extraterrestrial matter. *Nucl. Inst. and Meth.*, B73:403, 1993.
- [Kas93] S. Kastel. Nachweis von ⁹⁰Sr mittels Beschleunigermassenspektrometrie. Diplomarbeit, TU München, 1993.
- [KBF⁺84] W. Kutschera, P. Billquist, D. Frekers, L.F. Mausner, W. Henning, K.J. Jensen, M. Xiuzeng, R. Prado, M. Paul, K.E. Rehm, R.K. Smither, and J.L. Yntema. Half-life of ⁶⁰Fe. *Nucl. Inst. and Meth.*, B5:430, 1984.
- [KCF⁺96] W. Kutschera, P. Collon, H. Friedmann, R. Gosler, P. Hille, A. Priller, W. Rom, P. Steier, S. Tagesen, A. Wallner, E. Wild, and G. Winkler. VERA: a new AMS facility in Vienna. *Radio-carbon*, 38(1):74, 1996. abstract.
- [KEC⁺86] P.W. Kubik, D. Elmore, N.J. Conrad, K. Nishiizumi, and J.R. Arnold. Determination of cosmogenic ⁴¹Ca in a meteorite with tandem accelerator mass spectrometry. *Nature*, 319:568, 1986.
- [KFK⁺94] G. Korschinek, T. Faestermann, S. Kastel, K. Knie, H.J. Maier, J. Fernandez-Niello, M. Rothenberger, and L. Zerle. AMS for $M > 36$ with a gas-filled magnetic spectrograph. *Nucl. Inst. and Meth.*, B92:146, 1994.
- [KKN83] P. Kubik, G. Korschinek, and E. Nolte. Accelerator mass spectrometry with completely stripped ³⁶Cl ions at the Munich post-accelerator. *Nucl. Inst. and Meth.*, B1:59, 1983.

- [KKN⁺92] K. Knie, G. Korschinek, E. Nolte, W. Rühm, H. Vonach, D. Wesselka, and L. Zerle. A new half-life determination of ^{59}Ni . *Jahresber. des Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München*, page 106, 1992.
- [Kle87] K. Kleinknecht. *Detektoren für Teilchenstrahlung*. Teubner, Stuttgart, 1987.
- [KMN⁺87] G. Korschinek, H. Morinaga, E. Nolte, E. Preisenberger, U. Ratzinger, A. Urban, P. Dragovitsch, and S. Vogt. Accelerator mass spectrometry with completely stripped ^{41}Ca and ^{53}Mn ions at the Munich tandem accelerator. *Nucl. Inst. and Meth.*, B29:67, 1987.
- [KMRA78] C.P. Kohl, M.T. Murrell, G.P. Russ III, and J.R. Arnold. Evidence for the constancy of cosmic ray fluxes over the past ten million years: ^{53}Mn and ^{26}Al measurements. In *Proc. Lunar Planet. Sci. Conf. 9th*, pages 2299–2310, 1978.
- [Kni92] K. Knie. Messung von ^{59}Ni in extraterrestrischen und künstlichen Proben mit Beschleunigermassenspektrometrie. Diplomarbeit, TU München, 1992.
- [Kor96] G. Korschinek. private Mitteilung, 1996.
- [KSH⁺96] G. Kislinger, Chr. Steinhausen, Chr. Hohl, T.-H. Ittel, and E. Nolte. Investigation of the Human Aluminum Biokinetics with ^{26}Al and AMS. *Radiocarbon*, 38(1):64, 1996. abstract, wird veröffentlicht in NIM B.
- [KSU88] G. Korschinek, J. Sellmair, and A. Urban. A study of different ion sources for the use in the ^{205}Pb experiment. *Nucl. Inst. and Meth.*, A271:328, 1988.
- [LEB⁺76] H. Lawin, J. Eidens, J.W. Borgs, R. Fabbri, J.W. Grüter, G. Joswig, T.A. Khan, W.D. Laupe, G. Sadler, H.A. Selič, M. Shaanan, K. Sistemich, and P. Armbruster. The Jülich on-line separator for fission fragments JOSEF. *Nucl. Inst. and Meth.*, 137:103, 1976.
- [Lib69] W.F. Libby. *Altersbestimmung mit der ^{14}C -Methode*. Bibl. Inst. Mannheim, 1969.
- [LK23] I. Langmuir and K.H. Kingdon. *Science*, 57:58, 1923.

- [LP67] D. Lal and B. Peters. *Cosmic ray produced radioactivity on earth*, volume 46 of *Handbuch der Physik*, chapter Kosmische Strahlung II, page 551. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1967.
- [LRA73] L.J. Lanzerotti, R.C. Reedy, and J.R. Arnold. Alpha particles in solar cosmic rays over the last 80,000 years. *Science*, 179:1232–1234, 1973.
- [LS61] J. Lindhard and M. Scharff. Energy dissipation in the keV region. *Phys. Rev.*, 124:128, 1961.
- [MBF⁺92] D. Müller, B. Bante, T. Faestermann, A. Gillitzer, H.J. Körner, and G. Korschinek. Accelerator mass spectrometry with a gas-filled magnetic spectrograph. *Nucl. Inst. and Meth.*, B68:313, 1992.
- [Mer96] S. Merchel. Universität zu Köln, priv. Mitteilung, 1996.
- [MHM⁺96] J.E. McAninch, L.J. Hainsworth, A.A. Marchetti, M.R. Leivers, P.R. Jones, A.E. Dunlop, R. Mauthe, J.S. Vogel, I.D. Proctor, and T. Straume. Detection of ⁶³Ni and ⁵⁹Ni by accelerator mass spectrometry using characteristic projectile X-rays. *Radiocarbon*, 38(1):82, 1996. abstract.
- [Mid82] R. Middleton. *A Negative Ion Cookbook*. University of Philadelphia, 1982.
- [Mid83] R. Middleton. A versatile high intensity negative ion source. *Nucl. Inst. and Meth.*, A214:139–150, 1983.
- [MLB96] R. Michel, I. Leya, and L. Borges. Production of cosmogenic nuclides in meteorites: accelerator experiments and model calculations to decipher the cosmic ray record in extraterrestrial matter. *Nucl. Inst. and Meth.*, B113:434, 1996.
- [Mok] P.H. Mokler. GSI Darmstadt, private Mitteilung.
- [MSF⁺90] O. Meirav, R.A.L. Sutton, D. Fink, R. Middleton, J. Klein, V.R. Walker, A. Halabe, D. Vetterli, and R.R. Johnson. *Nucl. Inst. and Meth.*, B52:536, 1990.
- [Mül89] D. Müller. Beschleunigermassenspektrometrie mit Flugzeitmessung. Diplomarbeit, TU München, 1989.
- [Mün] H. Münzer. Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München, private Mitteilung.

- [MW75] R. Müller and H.W. Wassmuth. Zur Diskriminierung isobarer Kernreaktionsprodukte mit Hilfe positiver und negativer Oberflächenionisation. *Nucl. Inst. and Meth.*, A127:225, 1975.
- [MWW84] D.J. Malvin, D. Wang, and J.T. Wasson. Chemical classification of iron meteorites: X. Multielement studies of 43 irons, resolution of group III E from group III AB0, and Cu as a taxonomic parameter. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 48:785, 1984.
- [NBBS87] F. Nickel, K.-H. Behr, A. Brünle, and A. Steinhof. The GSI medium current mass separator. *Nucl. Inst. and Meth.*, B26:14, 1987.
- [ND68] V.S. Nikolaev and I.S. Dmitriev. The equilibrium charge distributions in heavy element ion beams. *Phys. Letters*, 28A:277, 1968.
- [NEAG83] K. Nishiizumi, D. Elmore, J.R. Arnold, and H.E. Gove. Measurements of ^{129}I in meteorites and a lunar rock by tandem accelerator mass spectrometry. *Nature*, 305:611, 1983.
- [Neu96] S. Neumann. Universität Hannover, priv. Mitteilung, 1996.
- [Nik58] V.S. Nikolaev. Electron capture cross section. *Sov. Phys. JETP*, 6:417, 1958.
- [Nol] E. Nolte. priv. Mitteilung.
- [NS70] L.C. Northcliff and R.F. Schilling. Range and stopping-power tables for heavy ions. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 7(3-4), 1970.
- [NWK⁺89] K. Nishiizumi, E.L. Winterer, C.P. Kohl, J. Klein, R. Middleton, D. Lal, and J.R. Arnold. Cosmic ray production rates of ^{10}Be and ^{26}Al in quartz from glacially polished rocks. *J. Geophys. Res.*, 94(17):907, 1989.
- [Pau90] M. Paul. Separation of isobars with a gas-filled magnet. *Nucl. Inst. and Meth.*, B52:315, 1990.
- [PBF⁺96] M. Paul, D. Berkovits, H. Feldstein, L. Dewayne Cecil, and S. Vogt. Environmental ^{90}Sr measurements. *Radiocarbon*, 38(1):96, 1996. abstract.
- [PD96] N. Prantzos and R. Diehl. Radioactive ^{26}Al in the galaxy: observations versus theory. *Phys. Rep.*, 267:1, 1996.

- [PGH⁺89] M. Paul, B.G. Glagola, W. Henning, J. Keller, W. Kutschera, Z. Liu, K.E. Rehm, B. Schneck, and R.H. Siemssen. Heavy ion separation with a gas-filled magnetic spectrograph. *Nucl. Inst. and Meth.*, A277:418, 1989.
- [RA72] R.C. Reedy and J.R. Arnold. Interaction of solar and galactic cosmic-ray particles with the moon. *J. Geophys. Res.*, 77:537–555, 1972.
- [RAL83] R.C. Reedy, J.R. Arnold, and D. Lal. Cosmic-ray record in solar system matter. *Science*, 219:127, 1983.
- [Ree80] R.C. Reedy. Solar proton fluxes since 1956. In *Proc. Conf. Ancient Sun*, page 825, 1980.
- [RKK⁺95] W. Rühm, K. Kato, G. Korschinek, H. Morinaga, and E. Nolte. Neutron spectrum and yield of the Hiroshima A-bomb deduced from radionuclide measurements at one location. *Int. J. Radiat. Biol.*, 68(1):97, 1995.
- [RM91] R.C. Reedy and K. Marti. *Sun in Time*, chapter II, page 260. University of Arizona Tucson, 1991.
- [RMBW84] K.L. Rasmussen, D.J. Malvin, V.F. Buchwald, and J.T. Wasson. Compositional trends and cooling rates of group IV iron meteorites. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 48:805, 1984.
- [RSK⁺94] W. Rühm, B. Schneck, K. Knie, G. Korschinek, L. Zerle, E. Nolte, D. Weselka, and H. Vonach. A new half-life determination of ⁵⁹Ni. *Planet. Space Sci.*, 42(3):227, 1994.
- [Rüh88] W. Rühm. Beschleunigermassenspektrometrie mit ⁵⁹Ni. Diplomarbeit, TU München, 1988.
- [Rüh92] W. Rühm. private Mitteilung, 1992.
- [Rüh93] W. Rühm. *Das Neutronenspektrum der Atombombe von Hiroshima und das Dosimetriesystem DS86*. Dissertation, TU München, 1993.
- [RYB⁺94] G.M. Raisbeck, F. Yiou, D. Bourles, E. Brown, D. Deboffe, P. Johanneau, J. Lestringuez, and Z.Q. Zhou. The AMS facility at Gif-sur-Yvette: progress, perturbations and projects. *Nucl. Inst. and Meth.*, B92:43, 1994.

- [RYP⁺81] G.M. Raisbeck, F. Yiou, A. Peghaire, J. Guillot, and J. Uzu-reau. Instability of KH_3^- and potential implications for detection of ^{41}Ca with a tandem electrostatic accelerator. In *Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, Proceedings*, page 426, 1981. ANL/Phy-81-1.
- [RYS79] G.M. Raisbeck, F. Yiou, and C. Stephan. ^{26}Al measurement with a cyclotron. *J. Phys. (Paris)*, 40:L241, 1979.
- [RYZK95] G.M. Raisbeck, F. Yiou, Z.Q. Zhou, and L.R. Kilius. ^{129}I as a Tracer of Reprocessing Discharges in the Arctic Ocean. *CSNSM, Orsay*, 95-34, 1995.
- [Say77] R.O. Sayer. Semi-empirical formulas for heavy-ion stripping data. *Revue de Physique Appliquee*, page 1543, 1977.
- [SBB⁺94] H.-A. Synal, J. Beer, G. Bonani, Ch. Lukasczyk, and M. Suter. ^{36}Cl measurements at the Zürich AMS facility. *Nucl. Inst. and Meth.*, B92:79, 1994.
- [Sch] L. Schultz. Universität Mainz, priv. Mitteilung.
- [Sch91] B. Schneck. Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{59}Ni . Diplomarbeit, TU München, 1991.
- [Sch95] T. Schiekel. *Radiochemische Untersuchungen zur Produktion kosmogener Radionuklide: Wirkungsquerschnitte, Produktionsraten, Modelle und Modellrechnungen*. Dissertation, Universität zu Köln, 1995.
- [Sch96a] T. Schätz. private Mitteilung, 1996.
- [Sch96b] C. Schmidt. Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{60}Fe . Diplomarbeit, TU München, 1996.
- [SE67] J.E. Spencer and H.A. Enge. *Nucl. Inst. and Meth.*, 49:181, 1967.
- [SEW⁺92] T. Straume, S.G. Egbert, W.A. Woolson, R.C. Finkel, P.W. Kubik, H.E. Gove, P. Sharma, and M. Hoshi. Neutron discrepancies in the DS86 Hiroshima dosimetry system. *Health Phys.*, 63(4):421, 1992.
- [SFKK95] C. Schmidt, T. Faestermann, K. Knie, and G. Korschinek. AMS with ^{60}Fe . *Jahresber. des Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München*, 1995.

- [Sha82] M.M. Shapiro. *Composition and Origin of Cosmic Rays*. Number 107 in NATO ASI C. D. Reidel Publishing Company, 1982.
- [Smi82] B.M. Smirnov. *Negative Ions*. McGraw-Hill, 1982.
- [SMM96] T. Straume, A.A. Marchetti, and J.E. McAninch. New analytical capability may provide solution to the neutron dosimetry problem in Hiroshima. *Radiation Protection Dosimetry*, 67(1):5, 1996.
- [SRL⁺86] M.S. Spergel, R.C. Reedy, O.W. Lazareth, P.W. Levy, and L.A. Slate. Cosmogenic neutron-capture-produced nuclides in stony meteorites. *J. Geophys. Res.*, 91:d483, 1986.
- [SSLS82] W. Starzecki, A.M. Stefanini, S. Lunardi, and C. Signorini. A compact time-zero detector for mass identification of heavy ions. *Nucl. Inst. and Meth.*, 193:499, 1982.
- [SW74] P. Sigmund and K.B. Winterbon. Small-angle multiple scattering of ions in the screened Coulomb region. *Nucl. Inst. and Meth.*, 119:541, 1974.
- [SWC90] S.N. Schauer, P. Williams, and R.N. Compton. Production of small doubly charged negative carbon cluster ions by sputtering. *Phys. Rev. Lett.*, 65(5):625, 1990.
- [Urb86] A. Urban. Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{41}Ca . Diplomarbeit, TU München, 1986.
- [VFK⁺91] S. Vogt, D. Fink, J. Klein, R. Middleton, B. Dockhorn, G. Korschinek, E. Nolte, and G.F. Herzog. Exposure history of the lunar meteorites: MAC88104, MAC88105, Y791197, and Y86032. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 55:3157, 1991.
- [VH88] S. Vogt and U. Herpers. *Fresenius Z. Anal. Chem.*, 331:186, 1988.
- [Vog88] S. Vogt. *Untersuchungen zur tiefenabhängigen Produktion langlebiger kosmogener Radionuklide in Meteoriten*. Dissertation, Universität zu Köln, 1988.
- [WDHS⁺96] M.J.M. Wagner, B. Dittrich-Hannen, H.-A. Synal, M. Suter, and U. Schotterer. Increase of ^{129}I in the environment. *Nucl. Inst. and Meth.*, B 113:490, 1996.
- [Wea70] R.C. Weast, editor. *Handbook of Chemistry and Physics*. The Chemical Rubber Co., 51st edition, 1970.

- [WON⁺77] E.K. Warburton, J.W. Olness, A.M. Nathan, J.J. Kolata, and J.B. McGrory. Yrast decay schemes from heavy ion + ⁴⁸Ca fusion-evaporation reactions. *Phys. Rev.*, C16:1027, 1977.
- [WPA84] W. Wölfli, H.A. Polach, and H.H. Andersen, editors. *Proc. 3rd International Symp. on Accelerator Mass Spectrometry*. Nucl. Instr. and Meth. B5, 1984.
- [WTH⁺96] S.E. Woosley, F.X. Timmes, R.D. Hoffmann, D.H. Hartmann, P.A. Pinto, and T.A. Weaver. Radioactivities made in Supernovae. *Ap. J.*, 1996.
- [YR90] F. Yiou and G.M. Raisbeck, editors. *Proc. 5th International Conf. on Accelerator Mass Spectrometry*. Nucl. Instr. and Meth. B52, 1990.
- [ZBL92] J.F. Ziegler, J.B. Biersack, and U. Littmark. TRIM92, 1992.
- [Zer95] L. Zerle. *Der ⁴¹Ca-Bombenpuls in alpinem Gletschereis*. Dissertation, TU München, 1995.
- [ZFK⁺96] L. Zerle, T. Faestermann, G. Korschinek, K. Knie, J. Beer, and E. Nolte. The ⁴¹Ca Bomb Pulse and Atmospheric Transport of Radionuclides. *Radiocarbon*, 38(1):131, 1996. abstract.
- [Zie80] J.F. Ziegler. *Handbook of stopping cross sections of energetic ions in all elements*, volume 1. Pergamon Press, New York, 1980.
- [Zoo80] H.A. Zook. On lunar evidence of a possible large increase in solar flare activity $\sim 2 \times 10^4$ years ago. In *Proc. Conf. Ancient Sun*, page 245, 1980.
- [Zop93] U. Zoppi. *Isobar Suppression in Accelerator Mass Spectrometry*. Dissertation, ETH Zürich, 1993.

Vielen Dank an:

Herrn Prof. Dr. E. Nolte, für die Möglichkeit, diese Arbeit in seiner Gruppe durchführen zu können, sowie für sein Interesse an dieser Arbeit und seine ständige Diskussionsbereitschaft.

Herrn Dr. G. Korschinek, für die hervorragende Betreuung dieser Arbeit, die vielen fruchtbaren Diskussionen, und nicht zuletzt für die Idee, für AMS in Garching einen gasgefüllten Magneten aufzubauen.

Herrn Dr. T. Faestermann dafür, daß ich in ihm einen zweiten, vollwertigen Betreuer hatte, sowie für seine unermüdliche Hilfe in allen experimentellen Belangen.

Herrn Prof. Dr. P. Armbruster und Herrn Dr. R. Kirchner von der GSI, für die Überlassung des Magneten samt Netzgerät und die große Unterstützung bei Abtransport desselbigen.

Unseren (ehemaligen) Diplomanden, Herrn Dipl.-Phys. M. Rothenberger (^{107}Pd), Herrn Dipl.-Phys. C. Schmidt (^{60}Fe) und Herrn T. Schätz (^{53}Mn), für die Mitarbeit beim Aufbau und den Messungen an GAMS und Q3D (auch von anderen Isotopen).

Frau Dipl. Chem. S. Merchel von der Universität zu Köln, für die Meteoritenproben, die Mithilfe bei den ^{53}Mn -Messungen und die Hilfe bei chemischen Problemen.

Herrn Dr. L. Zerle, für die gute Zusammenarbeit, nicht nur bei den ^{41}Ca -Strahlzeiten am Q3D.

Herrn Dipl.-Phys. C. Steinhausen, für die immer frisch gereinigten Ionenquellen.

Den ganzen Rest der AMS-Gruppe, für die sehr angenehme Arbeitsatmosphäre.

Herrn W. Carli und allen Operateuren, die viel zum Gelingen der Strahlzeiten beitrugen, Herrn F. Haftlmaier und der Beschleunigerwerkstatt, für die zahlreichen Arbeiten und für ihre Hilfe beim Aufstellen des Magneten, der Rechnergruppe, für ihre prompte Hilfe bei vielen kleineren und größeren Problemen, und den ganzen Rest der Tandemmannschaft.

Den Herrn Dipl.-Ing. P. Hartung und H. Seeger, für die Konstruktion von Magnettisch, Polschuhen, Magnet- und Detektorkammer.

Der Zentralwerkstätte der TU, für den Bau von Magnettisch, Magnet- und Detektorkammer und den zahlreichen kleineren Teilen.

Herrn Dipl.-Phys. B. Schneck, für die ausführlich Einweisung in RAYTRACE.

Herrn Dr. P. Maier-Komor und Frau K. Nacke, für die vielen Folien für die Flugzeitdetektoren,

und nicht zuletzt meine Familie, für die große Unterstützung während dieser Zeit.