

Entwicklung einer aktiven  
 $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Detektor-Kammer  
für Präzisionsexperimente in der  
photoneninduzierten Spaltung am  
S-DALINAC

Vom Fachbereich Physik der  
Technischen Universität Darmstadt  
zur Erlangung des Grades eines  
Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
genehmigte

**Dissertation**

von

**Dipl.-Phys. Christian Eckardt**

aus Dortmund-Hörde

Juli 2013

Darmstadt

D 17

Dissertation eingereicht am 03. Juli 2013  
Mündliche Prüfung am 22. Juli 2013

Prüfer

Professor Dr. rer. nat. Joachim Enders (Referent)  
Professor Dr. rer. nat. Peter von Neumann-Cosel (Korreferent)  
Professor Dr. rer. nat. Robert Roth  
Professor Dr. rer. nat. Thomas Walther

*Faust:*

*„(...)*

*Drum hab ich mich der Magie ergeben  
Ob mir durch Geistes Kraft und Mund  
Nicht manch Geheimniß würde kund;  
Daß ich nicht mehr, mit sauerm Schweiß,  
Zu sagen brauche was ich nicht weiß;  
Daß ich erkenne was die Welt  
Im Innersten zusammenhält,  
Schau' alle Wirkenskraft und Samen,  
Und thu' nicht mehr in Worten kramen.“*

Johann Wolfgang von Goethe, Faust, der Tragödie erster Teil (1808).

*Dr. Ferguson: „Such, gentlemen, is my secret. It is simple, and, like most simple things, it cannot fail to succeed. (...“ (...)*

*„However,“ said the captain, „the thing may prove dangerous.“*

*„What matters that,“ replied the doctor, „provided that it be practicable?“*

Jules-Gabriel Verne, Five Weeks in a Balloon (1863),

Übersetzung William Lackland (1869).

*D'Artagnan: „Trust me, don't let us try to do things cheaply. Great undertakings come poorly off with paltry means.“*

Alexandre Dumas père, Twenty Years After (1845), Übersetzung N.N. (1889-94).



# Zusammenfassung

Der am S-DALINAC installierte Injektor spinpolarisierter Elektronen SPIN ermöglicht den Einsatz zirkular polarisierter Bremsstrahlung mit einem hohen Polarisationsgrad in der Nähe der Endpunktsenergie für die Suche nach paritätsverletzenden Effekten in der Vorwärts-Rückwärts-Asymmetrie des leichten und schweren Spaltfragmentes der photoneninduzierten Spaltung an  $^{238}\text{U}$ .

Zur Steigerung der Luminosität wurde im Rahmen dieser Arbeit eine aktive  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Detektor-Kammer nach dem Prinzip einer einfachen Frisch-Gitter-Ionisationskammer entwickelt, um die Eigenschaften eines  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid/Argon-Gemisches zu untersuchen und höhere  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichten zu ermöglichen.

Die aktive  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Detektor-Kammer wurde unter Verwendung von Massenflussreglern mit Argon und  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid befüllt. Bei verschiedensten Einstellungen wurden Daten aufgenommen und interpretiert. Im Anschluss an die Befüllung mit  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid brechen Anoden- und Kathodensignal ein und erholen sich nur langsam. Vermutlich agiert das  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid ob seiner Komplexität und des hohen Fluoranteiles und dessen Elektronegativität als sehr effizienter Elektronenkollektor. Im Verlauf der Zeit reduziert sich der Anteil gasförmigen  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorides, mehrere Prozesse sind zur Erklärung dieses Effektes denkbar.

In der derzeitigen Konfiguration der aktiven  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Detektor-Kammer können quantitative Aussagen über die Eigenschaften eines  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid/Argon-Gemisches nicht getroffen werden. Die Steigerung der Luminosität für Präzisionsexperimente in der photoneninduzierten Spaltung am S-DALINAC durch eine aktive  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Detektor-Kammer erscheint zum jetzigen Zeitpunkt als nicht möglich.



# Abstract

The polarized injector SPIN at the S-DALINAC provides spin polarized electrons for circularly polarized bremsstrahlung with a high degree of polarization near the endpoint energy of the spectrum, enabling the search for forward-backward asymmetries of the light and heavy fission fragment originating from parity non-conservation in the photon-induced fission process of  $^{238}\text{U}$ .

An active  $^{238}\text{uranium(VI)-fluoride}$  gas target has been developed along the lines of a simple Frisch grid ionization chamber to raise the luminosity and to study the properties of an  $^{238}\text{uranium(VI)-fluoride/argon}$  gas mixture.

The active  $^{238}\text{uranium(VI)-fluoride}$  gas target has been filled with argon and  $^{238}\text{uranium(VI)-fluoride}$  using mass flow controllers. At different settings data has been acquired and interpreted. Instantly after filling the chamber with some  $^{238}\text{uranium(VI)-fluoride}$  the anode and cathode signal are severely lowered and gain only slowly. Apparently the  $^{238}\text{uranium(VI)-fluoride}$  acts as a very efficient electron collector because of its complexity and the high amount of fluorine and its electronegativity. Over time, the amount of gaseous  $^{238}\text{uranium(VI)-fluoride}$  is reduced and different processes are possible to explain this effect.

In the present configuration of the active  $^{238}\text{uranium(VI)-fluoride}$  gas target no sound quantitative information on the properties of an  $^{238}\text{uranium(VI)-fluoride/argon}$  gas mixture can be given. Raising the luminosity for precision experiments in photon-induced fission at the S-DALINAC with an active  $^{238}\text{uranium(VI)-fluoride}$  gas target appears to be impossible.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1	Motivation . . . . .	1
1.2	S-DALINAC . . . . .	5
1.3	SPIN . . . . .	8
1.4	DHIPS . . . . .	12
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>14</b>
2.1	Polarisierte Elektronen . . . . .	14
2.2	Bremsstrahlung . . . . .	33
2.3	Kernspaltung . . . . .	40
2.4	Uran(VI)-fluorid . . . . .	46
<b>3</b>	<b>Messapparat</b>	<b>53</b>
3.1	Detektor-Kammer . . . . .	54
3.2	Datenaufnahme . . . . .	65
<b>4</b>	<b>Urananteil</b>	<b>69</b>
4.1	Argonstoffmenge . . . . .	71
4.2	Uranstoffmenge . . . . .	72
4.3	<sup>238</sup> Uran-Massenbelegung . . . . .	77
<b>5</b>	<b>Messungen &amp; Ergebnisse</b>	<b>78</b>
5.1	Messdaten . . . . .	78
5.2	Zeitliche Änderung . . . . .	105
5.3	Fazit . . . . .	108
<b>6</b>	<b>Ausblick</b>	<b>110</b>



# 1 Einleitung

## 1.1 Motivation

Der Prozess der Kernspaltung stellt bis zum heutigen Tag ein in seinen Details unverstandenes Problem dar. Auf der Grundlage der Erkenntnisse von Rutherford [1] deuteten Cockcroft und Walton die ersten Messergebnisse einer protoneninduzierten Kernspaltung an  ${}^7\text{Li}$  noch als ungewöhnlichen, doppelten  $\alpha$ -Zerfall [2]. Inspiriert durch Chadwicks experimentellen Nachweis des Neutrons [3] in der  ${}^9\text{Be}(\alpha, n){}^{12}\text{C}$ -Reaktion und der Forschung von Curie und Joliot auf dem Gebiet der künstlichen Radioaktivität [4] untersuchte Fermi die neutroneninduzierten Reaktionsprodukte des Urans, vermutete jedoch ein Element der Ordnungszahl 93 [5]. In einer Kritik dieser Interpretation postulierte Noddack zuerst die Idee des Zerfalls in mehrere größere Bruchstücke [6], verfolgte diese aber, dem Geist der Zeit entsprechend, nicht weiter. Erst in der Nachverfolgung der Beobachtung von Curie-Joliot und Savitch [7, 8] erkannten Hahn und Strassmann, wenn auch zögerlich, in den Ergebnissen ihrer Radium-Barium-Mesothorium-Fraktionierung der neutroneninduzierten Reaktionsprodukte des Urans die vorliegende Kernspaltung [9]. Folgend lieferten Meitner und Frisch eine erste theoretische Deutung des Kernspaltungsprozesses [10] und Frisch gelang der experimentelle Nachweis der emittierten Spaltfragmente und ihres Energieverlustes in einer Ionisationskammer [11]. Bohr deutete die vorliegenden Resultate als eine neutroneninduzierte Kernspaltung an dem selteneren  ${}^{235}\text{U}$  [12] und erarbeitete zusammen mit Wheeler eine detaillierte Erklärung der Kernspaltung [13]. Nur kurze Zeit später gelang die photoneninduzierte Kernspaltung von Uran und Thorium [14].

Seit den ersten Tagen der Kernspaltung sind fast 75 Jahre vergangen, dennoch stellt die Kernspaltung eines schweren Kerns noch immer ein sehr komplexes Problem dar (siehe Ref. [15] für einen Überblick). Ein detailliertes theoretisch-mikroskopisches Verständnis der Spaltdynamik steht derzeit noch nicht zur Verfügung. Präzise Daten über Spalt-Isomere, die Wirkungsquerschnitte von Spaltreaktionen sowie die Massen- und Winkelverteilung der Spaltfragmente und die Verteilung der totalen kinetischen Energie (TKE) sind in diesem Zusammenhang

wichtige Informationen sowohl für angewandte als auch für grundlegende Fragestellungen der Kernphysik. Die erzielbaren Erkenntnisse können zu einem tieferen Verständnis der Struktur der Zwischenzustände als auch der multidimensionalen Topologie der Spaltbarriere führen und theoretische Studien für eine bessere mikroskopische Beschreibung der Spaltdynamik anleiten.

Experimente zu diesen Observablen liegen in der Regel nicht mit hoher Genauigkeit vor, da die (differentiellen) Wirkungsquerschnitte entsprechend klein ausfallen. Der Steigerung der Luminosität durch eine Erhöhung der verwendeten Flächendichte einer konventionellen Materialfolie steht die zur Flächendichte inverse Auflösung der Massen- und Winkelverteilung entgegen [16, 17]. Daher müssen spezielle Techniken entwickelt werden, um besonders hohe Luminositäten in den Experimenten zu erzielen. Die Lösung dieses Dilemmas findet sich in einer aktiven  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Detektor-Kammer, welche höhere  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichten und damit größere Luminositäten ermöglichen soll, ohne die Auflösung der Massen- und Winkelverteilung einzuschränken. Eine solche aktive  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Detektor-Kammer mit geeigneter  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichte ermöglicht folglich präzisere Daten in der energie- und winkelaufgelösten Massen- und TKE-Verteilung der photoneninduzierten Spaltung von  $^{238}\text{U}$  [18, 19] sowie die erstmalige Untersuchung der Spaltfragmenteigenschaften in der Spontanspaltung von  $^{238}\text{U}$ . Desweiteren können photoneninduzierte Spaltexperimente bei Energien unterhalb der Spaltbarriere und Experimente zur Bevölkerung und dem Zerfall von Spalt-Isomeren durchgeführt werden.

Ein Beispiel von besonderem Interesse ist die Suche nach paritätsverletzenden Eigenschaften in der photoneninduzierten Spaltung. Wird das Verhältnis der Kopplungskonstanten der starken und schwachen Wechselwirkung betrachtet, kann ein paritätsverletzender Effekt in der Größenordnung von  $10^{-7}$  erwartet werden. Vorangegangene Experimente mit neutroneninduzierter Spaltung zeigen jedoch eine Verstärkung des paritätsverletzenden Effekts zu einer Größenordnung von  $10^{-4}$  [20–25] auf. In Anlehnung an Untersuchungen der helizitätsabhängigen Transmission von polarisierten Neutronen in verschiedenen Materialien (siehe auch Ref. [26] für einen Überblick) wird die hohe Niveaudichte und die selektive Anregung von Zuständen durch niedrige Impulsüberträge [27] als Erklärung

herangezogen. Um zuverlässig den Mechanismus der Verstärkung zu verstehen, ist eine erneute Betrachtung der induzierten Spaltung mit einer grundverschiedenen Sonde angebracht. Sogar im Fall eines breiten Anregungsspektrums, z.B., eines Bremsstrahlungsspektrums, könnten messbare Effekte in Erscheinung treten, wie sowohl Flambaum und Gribakin [28] als auch Wettig und Weidenmüller [29] deutlich machen. Der an der Technischen Universität Darmstadt am S-DALINAC (**S**uperconducting **D**armstadt **L**INear **A**Ccelerator, siehe Kap. 1.2) installierte Injektor für spinpolarisierte Elektronen SPIN (**S**-DALINAC **P**olarized **I**Njektor, siehe Kap. 1.3) ermöglicht den Einsatz zirkular polarisierter Bremsstrahlung mit einem hohen Polarisationsgrad in der Nähe der Endpunktsenergie für die Suche nach paritätsverletzenden Effekten in der Vorwärts-Rückwärts-Asymmetrie des leichten und schweren Spaltfragments der photoneninduzierten Spaltung an  $^{238}\text{U}$ . Erste Experimente mit einem unpolarisierten Elektronenstrahl wurden als Machbarkeitsstudie am Niederenergie-Messplatz DHIPS (**D**armstadt **H**igh **I**ntensity **P**hoton **S**etup, siehe Kap. 1.4) des S-DALINAC mit einer doppelten Frisch-Gitter-Ionisationskammer [30] und einer festen  $^{238}\text{Uran(IV)-fluorid}$ -Folie auf der gemeinsamen Kathode durchgeführt [19,31,32]. Hierbei wurde die Eignung einer Ionisationskammer für photoneninduzierte Spaltexperimente am Niederenergie-Messplatz DHIPS sowie die erfolgreiche Analyse der Verteilung der Massen und der kinetischen Gesamtenergie (TKE) der Spaltfragmente im Spaltmodenkonzept nach Brosa et al. [33] demonstriert. Der Emissionswinkel der Spaltfragmente bestimmt sich anhand der Driftgeschwindigkeit der durch die Spaltfragmente freigesetzten Elektronen zur Anode [16]. Die Beschaffenheit der aufgenommenen Daten ist in Abb. 1.1 zu sehen. Gegeneinander aufgetragen sind die koinzidenten Anodensignale, ausgelöst durch die beiden Spaltfragmente, welche die Kathode in entgegengesetzter Richtung verlassen.

Wie jedoch an den erzielten Spaltraten zu erkennen war, würden die benötigten Zählraten für einen Nachweis paritätsverletzender Effekte in der zur Verfügung stehenden Strahlzeit nicht erreicht werden, eine erfolgreiche Messkampagne wäre auf einen Zeitraum länger als ein Jahr ausgelegt. Aufgrund der Limitierung des Beschleunigers im Bezug auf den maximal verfügbaren Strahlstrom und den resultierenden Photonenfluss am Niederenergie-Messplatz DHIPS ist es dringend

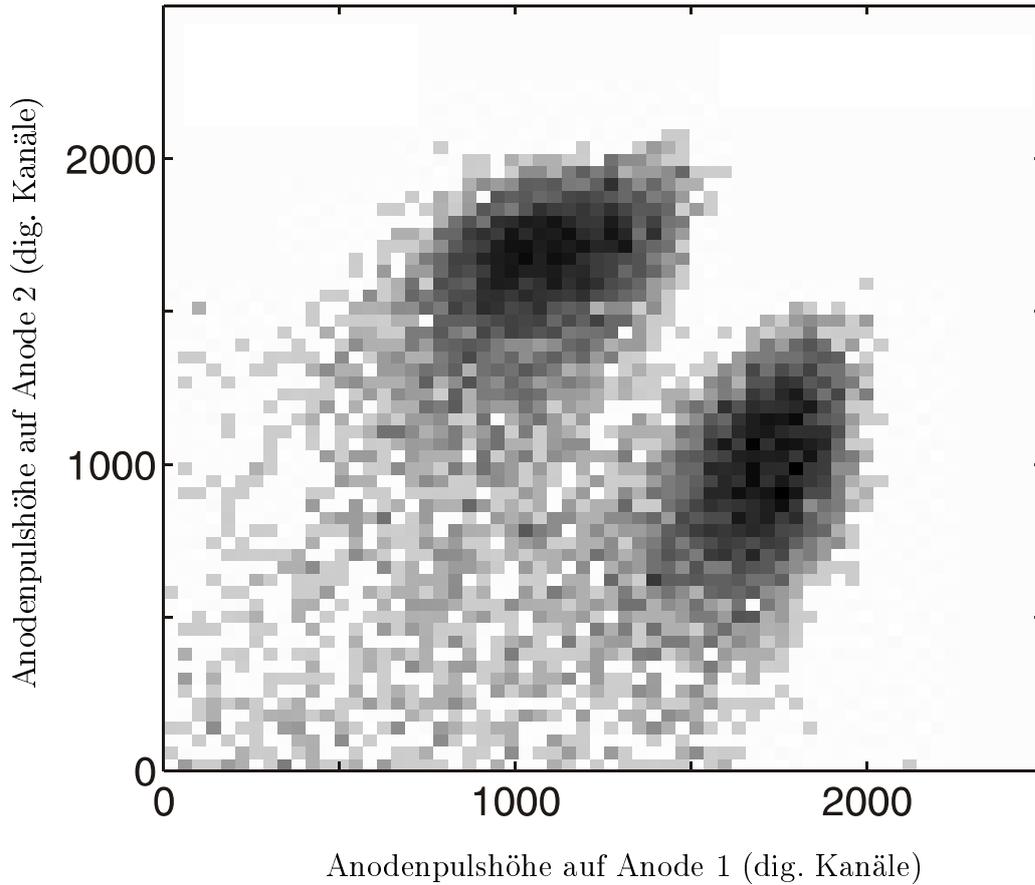


Abbildung 1.1: Ereignisverteilung (Anodenpulshöhen) der Spaltfragmente in der photoneninduzierten Spaltung  $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ , aufgenommen mit einer doppelten Frisch-Gitter-Ionisationskammer mit unpolarisierter Bremsstrahlung bei einer Endpunktsenergie von 7 MeV [31].

notwendig, durch eine Steigerung der  $^{238}\text{U}$ -Flächendichte die Luminosität anzuheben, da selbst der zukünftige Einbau eines verbesserten Kryostatmoduls [34] im supraleitenden Injektorbeschleuniger, welches Strahlströme von bis zu  $150 \mu\text{A}$  ermöglichen soll, nicht den erforderlichen Photonenfluss generiert um eine zeitlich adäquate Spaltrate zu erzielen. Mit einem adäquat hohen Urananteil in der aktiven  $^{238}\text{U}$ -fluorid-Detektor-Kammer könnte sich die Spaltrate derart steigern lassen, dass die benötigten Zählraten für einen statistisch signifikanten Nachweis paritätsverletzender Effekte im Zeitraum einer üblichen Strahlzeit erzielt werden können.

## 1.2 S-DALINAC

Der S-DALINAC (**S**uperconducting **D**Armstadt **L**INear **A**Ccelerator) [35–39] ist ein zweifach rezirkulierender supraleitender Elektronen-Linearbeschleuniger mit einem Energiebereich von 2,5 - 130 MeV und einer Energieauflösung von  $\frac{\Delta E}{E} = 10^{-4}$ , das Forschungsgroßgerät des Instituts für Kernphysik der Technischen Universität Darmstadt. Als weltweit dritter Teilchenbeschleuniger und als erster in Europa verwendet der S-DALINAC hochfrequente Wechselfelder in supraleitenden Kavitäten zur Erzeugung eines quasi-kontinuierlichen Elektronenstrahls. Die Entwicklung und die kontinuierliche Verbesserung des Beschleunigers war und ist Bestandteil zahlreicher Abschlussarbeiten und Dissertationen. Der S-DALINAC bildet den Schwerpunkt eines facettenreichen kernphysikalischen Forschungsprogramms und das Zentrum des aktuellen Sonderforschungsbereich 634 [40] der Deutschen Forschungsgesellschaft an der Technischen Universität Darmstadt. Fundamentale Aspekte sind die Kernstrukturphysik, die nukleare Astrophysik und die Eigenschaften von Atomkernen bei sehr kleinen Impulsüberträgen in Elektronen- und Photonenstreuexperimenten.

Der Aufbau des S-DALINAC ist in Abb. 1.2 schematisch dargestellt. Eine thermionische Elektronenquelle erzeugt am S-DALINAC die zu beschleunigenden unpolarisierten Elektronen. Diese verlassen den elektrostatischen Vorbeschleuniger [41, 42] mit einer kinetischen Energie von 250 keV, entsprechend  $\beta = 0,74$ . Eine normalleitende Kupferkavität mit einem inhomogenen Feld [43, 44] zwingt den Elektronenstrahl auf eine elliptische Bahn und gemeinsam mit einer Strahlblende wird die zur Beschleunigung nötige Zeitstruktur von 3 GHz aufmoduliert. Hinter der Kupferkavität beträgt die Pulslänge des Elektronenpakets ca. 30 ps. Aufgrund der Passage im Nulldurchgang der hochfrequenten Wechselfelder mit 3 und 6 GHz in zwei normalleitenden Kupferkavitäten wird das Elektronenpaket weiter komprimiert, die Pulslänge des Elektronenpakets reduziert sich auf ca. 5 ps mit einem Pulsabstand von 333 ps bei quasi-kontinuierlichem Strahl. Die genannte Elektronenpaketlänge wird am longitudinalen Fokus am Ort der ersten supraleitenden Einfangkavität am Anfang des Injektorbeschleunigers erreicht. Die Beschleunigungskavitäten befinden sich in Kryostatmodulen in einem flüssigen Heliumbad.

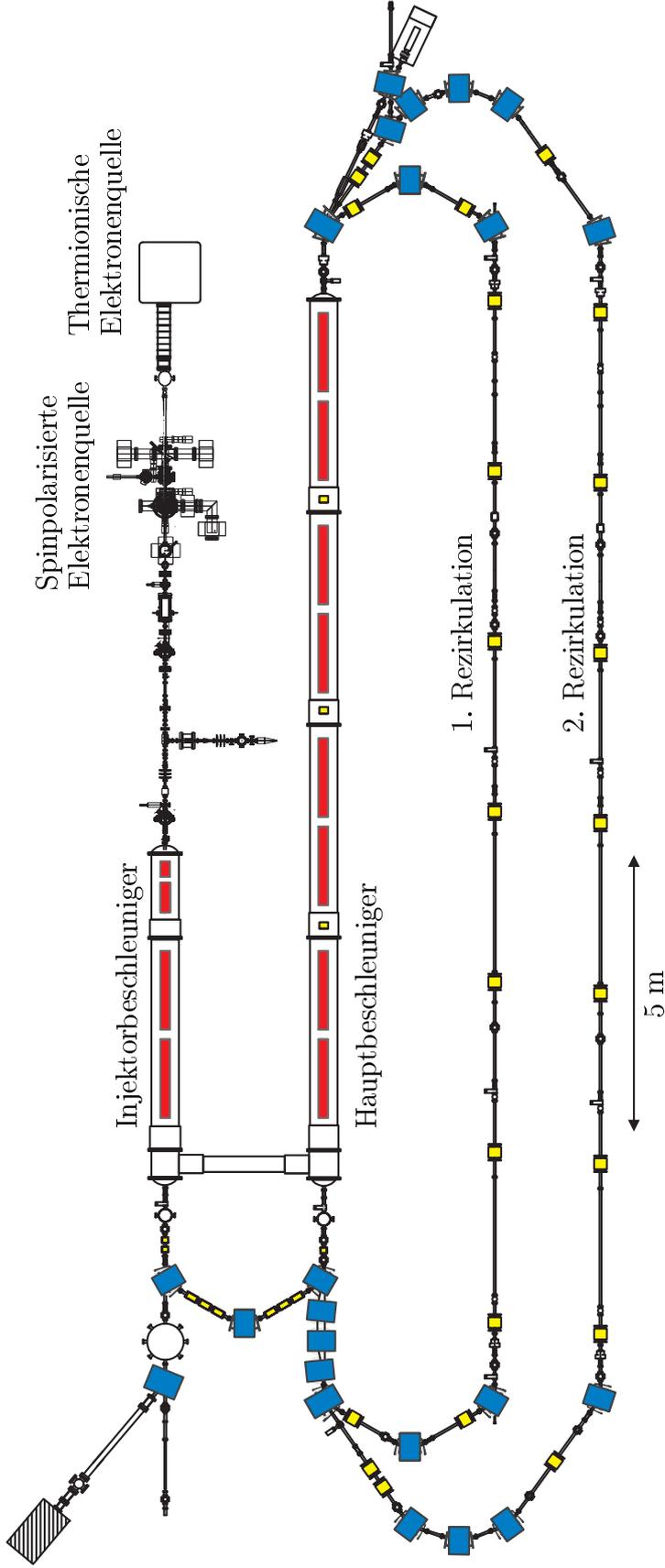


Abbildung 1.2: Schematische Zeichnung des S-DALINAC. Die supraleitenden Beschleunigungsstrukturen in den Kryostatmodulen im Injektorbeschleuniger und Hauptbeschleuniger sind rot, die Dipolmagnete blau und die Quadrupolmagnete gelb gekennzeichnet.

Um die Temperatur für die Supraleitung der hochreinen Niobkavitäten [36, 37] auf 2 K zu senken und das Helium in einen suprafluiden Zustand zu überführen, wird der Dampfdruck des flüssigen Heliums mittels eines Pumpstands auf 35 mbar reduziert. Der Injektorbeschleuniger besteht aus einer zweizelligen und einer fünfzelligen Einfangkavität, um den Phasenschlupf des Elektronenpakets für eine weitere Beschleunigung in den nachfolgenden Strukturen anzupassen, sowie aus zwei zwanzigzelligen Beschleunigungsstrukturen. Wird die Designfeldstärke des 3 GHz-Wechselfeldes von 5 MV/m zugrundegelegt, so sind Energien von maximal 11 MeV und Strahlströme bis zu 60  $\mu\text{A}$  am Niederenergie-Messplatz DHIPS [45] möglich.

Wahlweise lässt sich der Elektronenstrahl nach der Beschleunigung im Injektorbeschleuniger durch eine geeignete Dipolmagnetanordnung um  $180^\circ$  in den Hauptbeschleuniger umlenken. Durch acht weitere zwanzigzellige Hohlraumresonatoren ergibt sich ein maximal möglicher Energiegewinn bei der Passage des Hauptbeschleunigers von 40 MeV. Im Anschluss an den Hauptbeschleuniger besteht die Möglichkeit der Extraktion des Elektronenstrahls in die Experimentierhalle oder alternativ die zweifache Verwendung der Rezirkulationsstrahlführung [36] um den möglichen Energiegewinn des Hauptbeschleunigers mehrfach zu nutzen. Werden beide Rezirkulationen zum Einsatz gebracht, so passiert der Elektronenstrahl den Hauptbeschleuniger dreimal und die maximal mögliche Energie ergibt sich zu 130 MeV bei Strahlströmen von bis zu 20  $\mu\text{A}$ .

Im Fall der Extraktion in die Experimentierhalle stehen derzeit vier Meßplätze für Experimente zur Verfügung, die im folgenden kurz vorgestellt werden. Zum einen der hochauflösende Niederenergie-Photonen-Tagger NEPTUN [46–48] für astrophysikalisch relevante Photodisintegrations- und Photonenstreuexperimente zwischen 5 und 20 MeV in Untersuchungen mit hoher Energieauflösung nahe der Teilchen-Separationsenergie sowie ein Messaufbau zur Bestimmung der Polarisierbarkeit des Protons an einer aktiven  $\text{H}_2$ -Hochdruckkammer mittels Bremsstrahlung im Energiebereich von 50 - 100 MeV [49, 50], desweiteren ein Q-CLAM-Spektrometer [51–53] mit großer Akzeptanz und ein hochauflösendes Energieverlust-Spektrometer [54]. Am erstgenannten werden Koinzidenz-Experimente, wie die longitudinal-transversale Interferenz in der Aufbruchreaktion des Deute-

rons [55] oder Streuexperimente unter  $180^\circ$  durchgeführt, z.B., die präzise Analyse der magnetischen Dipolstärke gerade oberhalb der Disintegrationsschwelle des Deuterons im astrophysikalisch relevanten Energiefenster [56], während letzteres vor allem für Formfaktor-Messungen [57] verwendet wird.

Aktuelle Weiterentwicklungen des S-DALINAC sind die Integration eines verbesserten Kryostatmoduls [34] im supraleitenden Injektorbeschleuniger für Energien bis zu 14 MeV und Strahlströme bis zu  $150 \mu\text{A}$  am Niederenergie-Messplatz DHIPS, die Reduktion von Transmissionsverlusten und die Verbesserung der Energieschärfe durch die Beschleunigung der Elektronen auf der ansteigenden Flanke des hochfrequenten Wechselfelds und die Anpassung der Dispersion in der Rezirkulationsstrahlführung [58], sowie die neu entworfene digitale Hochfrequenzregelung [59] zur Ansteuerung der normalleitenden Kupferkavitäten und der supraleitenden Beschleunigungsstrukturen und der Einbau neuer Stromversorgungen für eine hohe Ausfallsicherheit und den stabilen Betrieb des Beschleunigers.

Der Ausbau des S-DALINAC mit einer spinpolarisierten Elektronenquelle erweitert das Spektrum möglicher Forschung am Beschleuniger um Experimente mit spinpolarisierten Elektronen und polarisierten Photonen am Niederenergie-Messplatz DHIPS, am Photonentagger NEPTUN und am Q-CLAM-Spektrometer. Der Einbau der spinpolarisierten Elektronenquelle erfolgte oberhalb der Strahlführungsebene zwischen der thermionischen Elektronenquelle und dem supraleitenden Injektor um einen substituierenden Betrieb zu ermöglichen. Abhängig von den Anforderungen des Experimentes kommt die jeweils geeignete Elektronenquelle für den Strahlbetrieb zum Einsatz.

### 1.3 SPIN

Bislang wurden spinpolarisierte Elektronen und zirkular polarisierte Photonen eher selten für Kernstrukturexperimente bei Strahlenergien unter 100 MeV eingesetzt. Mit dem **S-DALINAC Polarized INjector SPIN** liefert der S-DALINAC,

als weltweit einziger kernphysikalisch genutzter Beschleuniger in diesem Energiebereich, in einem Messprogramm mit spinpolarisierten Elektronen bei niedrigen Impulsübertragen und zirkular polarisierten Photonen Daten für die Kartierung einer wissenschaftlichen terra incognita. Es eröffnen sich umfangreiche Möglichkeiten im Bereich der Kernstrukturphysik und der nuklearen Astrophysik und der Zugang zu neuen Observablen, die zu einem besseren Detailverständnis der Kernstruktur führen. Ferner lassen sich fundamentale Symmetrien untersuchen, wie die Parität oder die Zeitumkehrinvarianz. Ein Überblick über erste geplante Experimente ist in den Refn. [31,60] enthalten. Die Erweiterung des S-DALINAC um eine zur thermionischen Elektronenquelle komplementären lasergetriebenen GaAs-Elektronenquelle [61] mit einem hohen Polarisationsgrad des Elektronenspins stellt eine langfristige Perspektive für Experimente am S-DALINAC, im Sonderforschungsbereich 634 [40] und darüber hinaus dar. Durch die enge Anlehnung an das Design der spinpolarisierten Elektronenquelle des Mainzer Mikrotrons wurde der technische Entwicklungsaufwand drastisch reduziert [62, 63]. Eine Darstellung der spinpolarisierten Elektronenquelle und der sich anschließenden normalleitenden Strahlführung findet sich in Abb. 1.3.

Die eigentliche Elektronenquelle basiert auf der photonenstimulierten Emission spinpolarisierter Elektronen durch zirkular polarisierte Laserstrahlung an der Oberfläche eines speziellen GaAs-Kristalls, der Photokathode. Der auf eine Fläche von ca.  $1 \text{ cm}^2$  zugeschnittene GaAs-Kristall befindet sich in einer Halterung im Zentrum einer auf Hochglanz polierten Kathode, deren Geometrie zur Vermeidung von Feldemissionen und für eine erste elektrostatische Fokussierung des Elektronenstrahls optimiert wurde [64]. Die Vakuumkammer rings um die Kathode fungiert als Anode auf Erdpotential, während die Kathode durch ein Hochspannungsnetzteil auf ein Potential von  $-100 \text{ kV}$  gebracht wird. Neben der Kathodenkammer befindet sich eine Präparationskammer. Hier werden die GaAs-Kristalle mittels eines Caesium-Dispensers und eines Sauerstoff-Reservoirs mit einer Monolage  $\text{Cs}_2\text{O}$  versehen, um eine negative Elektronenaffinität (NEA) zu erzielen. Diese ist wesentlich für den Übergang der Elektronen aus dem Kristall ins Vakuum. Zudem können durch ein spezielles Transportsystem neue GaAs-Kristalle in die Präparationskammer einbracht werden, ohne diese oder die Kathodenkammer

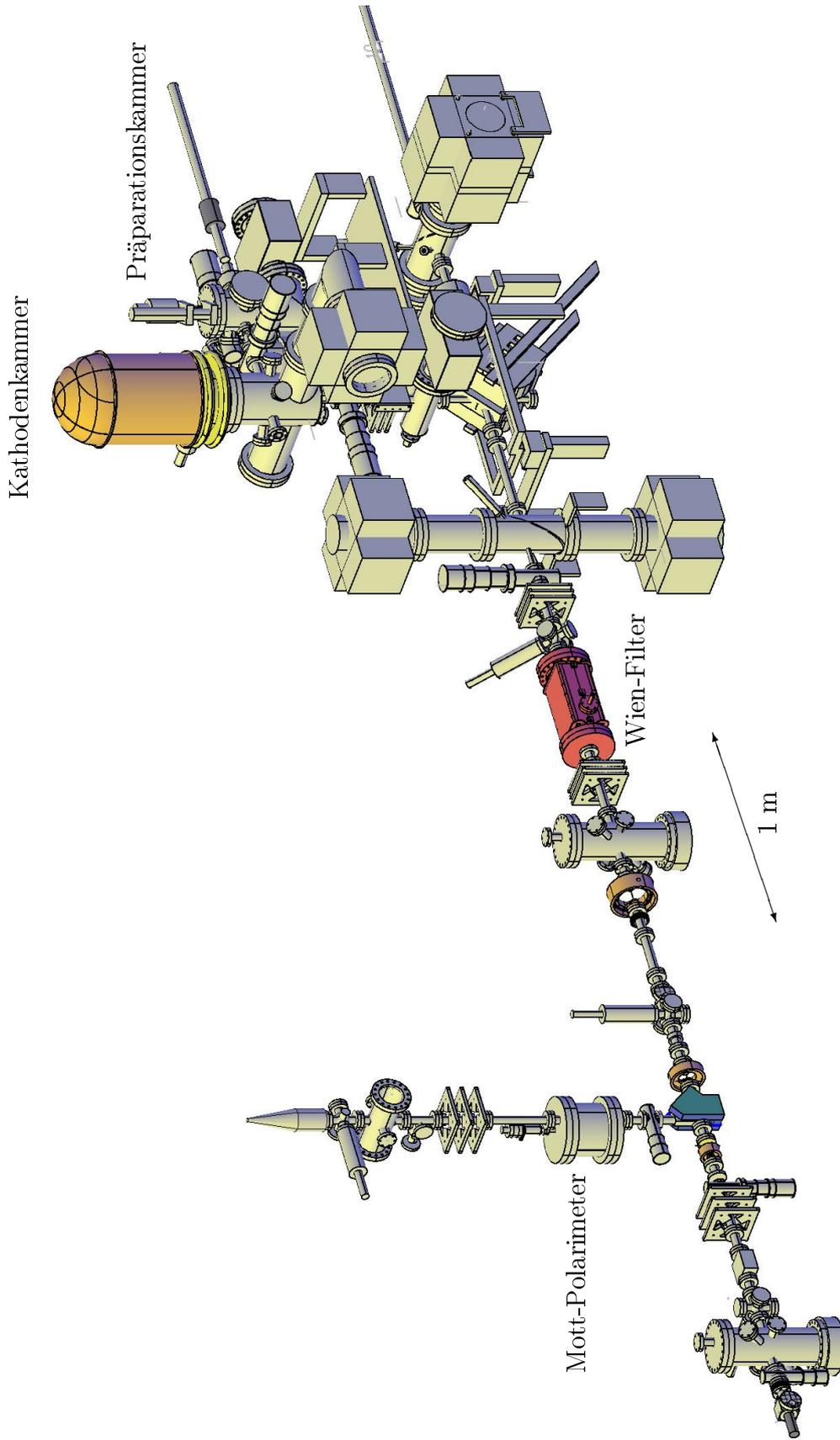


Abbildung 1.3: Schematische Zeichnung des Injektors für spinpolarisierte Elektronen.

zu belüften. Insbesondere in der Kathodenkammer sind Ultrahochvakuumbedingungen notwendig, um den Einfluss des Restgases auf die Lebensdauer der Photokathode durch ein Ionen-Bombardement der NEA-Oberfläche zu reduzieren. Ein Laserstrahl geeigneter Wellenlänge erreicht durch ein Vakuumfenster unterhalb der Kathodenkammer die Photokathode. Der Laserstrahl wird auf die Mitte des GaAs-Kristalls fokussiert und regt spinpolarisierte Elektronen zur Emission ins Vakuum an. Durch die anliegende Hochspannung [65] von -100 kV werden die Elektronen zur Anode hin beschleunigt und es erfolgt der Eintritt in die vertikale Strahlführung. Aufgrund der beschränkten Lebensdauer der Photokathode ist die Verwendung eines gepulsten Laserstrahls zur Erzeugung eines gleichermaßen gepulsten Elektronenstrahls [66] sinnvoll.

Eine erste elektromagnetische Fokussierung erfolgt durch ein Quadrupol-Triplett. Der Elektronenstrahl gelangt infolge einer dispersionsfreien Ablenkung um  $270^\circ$  durch einen Alphamagneten [67] in die horizontale Strahlführung, welche alternativ auch von der thermionischen Elektronenquelle genutzt wird. Eine differentielle Pumpstufe trennt das Hochvakuum der thermionischen Elektronenquelle und der normalleitenden horizontalen Strahlführung vom Ultrahochvakuum ( $p \approx 10^{-11}$  mbar) der Kathodenkammer und der vertikalen Strahlführung. Im normalleitenden Teil der Strahlführung vor dem Eintritt des Elektronenstrahls in den supraleitenden Injektorbeschleuniger sind folgende Elemente installiert: Ein Wien-Filter [43, 68] zur Manipulation des Elektronenspins, ein auf 100 keV Elektronenenergie ausgelegtes Mott-Polarimeter [43, 69] zur Messung der Spinpolarisation der Elektronen, eine Kupferkavität zur Modulation der Zeitstruktur des thermionischen Elektronenstrahls auf 3 GHz [44], zwei Kupferkavitäten zur longitudinalen Verdichtung der Elektronenpakete [43, 70] sowie Strahldiagnoseinstrumente zur Messung des Strahlstroms, der Strahlposition [71], der Emittanz [72, 73] und der Zeitstruktur des Elektronenstrahls [74].

In Kollaboration mit dem Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung Darmstadt (GSI), der Universität Heidelberg und der KTH Stockholm wurden am Teststand [66] des Injektors für spinpolarisierte Elektronen SPIN bereits erste Experimente zur Untersuchung der Bremsstrahlungspolarisation von spinpolarisierten Elektronen durchgeführt [75–78].

## 1.4 DHIPS

Bei Energien von 2,5 MeV bis 10 MeV und Strahlströmen von bis zu  $60 \mu\text{A}$  werden am Niederenergie-Messplatz DHIPS (**D**armstadt **H**igh **I**ntensity **P**hoton **S**etup) [45] des S-DALINAC verschiedenste kernphysikalische Experimente durchgeführt. In Kernresonanzfluoreszenz-Experimenten [79] werden stabile Kerne in einem kontinuierlichen Bremsstrahlungsspektrum angeregt, aus der Charakteristik der emittierten  $\gamma$ -Strahlung werden Daten bezüglich der Übergangsstärke und der Multipolarität der Zustände gewonnen [80]. In Photoaktivierungsmessungen werden  $(\gamma, n)$ -Photodisintegrationen nahe der Neutronenseparationsenergie betrachtet, um relevante Informationen über die Nukleosynthese im astrophysikalischen p- oder  $\gamma$ -Prozess [81] und im s-Prozess [82] zu erhalten. Im Energiebereich von 7 bis 10 MeV können kollektive Phänomene wie z.B. Multi-Phonon-Anregungen an leichten Kernen [83] und elementare Kernanregungen wie z.B. Pygmy-Dipolresonanzen [84] mit hoher Präzision [85] untersucht werden [45]. Die Pygmy-Dipolresonanz beschreibt eine ausgeprägte Häufung der Dipolstärke in elektrischen Dipolanregungen unterhalb der Neutronenseparationsschwelle, ein Überblick findet sich in Ref. [86] für den Energiebereich von 5 - 9 MeV. Untersuchungen tiefliegender magnetischer Dipolanregungen in der  $^{235}\text{U}(\gamma, \gamma')$ -Reaktion [87] bilden einen weiteren Aspekt des experimentellen Spektrums ab. Studien der photoneninduzierten Kernspaltung in der Aktinidenregion [18] komplettieren das experimentelle Programm. Eine detaillierte Beschreibung des Niederenergie-Messplatzes DHIPS findet sich in Ref. [45], die Erweiterung und Verbesserung des Messaufbaus ist in Ref. [88] beschrieben.

Der im Injektorbeschleuniger auf eine Energie von bis zu 11 MeV beschleunigte Elektronenstrahl wird in einem segmentierten Kupfer-Bremsstrahlungsradiator durch die Interaktion mit dem Coloumb-Feld der Atome abgebremst. Um einen möglichst hohen Photonenfluss zu erzielen, wurde eine sehr kompakte Geometrie zwischen dem Bremsstrahlungsradiator und den Experimentierplätzen gewählt. Die Winkelverteilung der bei diesem Vorgang entstehenden Bremsstrahlung ist stark vorwärts gerichtet und wird zudem in einem Kupfer-Kollimator geometrisch definiert. Mittels eines radiographischen Films wurde der Strahldurchmesser am

vorderen Experimentierplatz zu 25 mm und am hinteren Experimentierplatz, dem möglichen Einsatzort der aktiven  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Detektor-Kammer, zu 30 mm bestimmt [88].

Für einen maximalen Strahlstrom von  $60 \mu\text{A}$  ergibt sich hinter dem Bremsstrahlungsradiator ein integrierter Photonenfluss von  $3,6 \cdot 10^{14} \gamma/\text{s}$ , durch den Kollimator erfolgt eine Unterdrückung des Photonenflusses um den Faktor  $10^{10}$ , für niederenergetische  $\gamma$ -Quanten ( $E_\gamma < 1500 \text{ keV}$ ) sogar um mehr als  $10^{15}$  [45]. Aufgrund der Neutronenseparationsenergie der Kupfer-Isotope,  $S_n = 10,9 \text{ MeV}$  für  $^{63}\text{Cu}$  [89] mit einer relativen natürlichen Häufigkeit von 69,2% und  $S_n = 9,9 \text{ MeV}$  für  $^{65}\text{Cu}$  [89] mit einer relativen natürlichen Häufigkeit von 30,8%, ergibt sich eine sehr geringe Neutronenproduktion für Energien bis 10 MeV, folglich ist der Anteil unerwünschter neutroneninduzierter Reaktionen unterdrückt.

Somit steht am Niederenergie-Messplatz DHIPS im Energiebereich von 2,5 - 10 MeV ein kontinuierliches  $\gamma$ -Spektrum mit scharf kollimiertem Photonenstrahl, sehr guter Untergrundunterdrückung und sehr geringem Neutronenuntergrund für photoneninduzierte Experimente zur Verfügung.

## 2 Grundlagen

### 2.1 Polarisierte Elektronen

Neben seiner Ladung verfügt das Elektron über ein magnetisches Moment aufgrund eines inneren Eigendrehimpulses, des Spins. Der Drehsinn des Spins kann im Bezug auf eine ausgezeichnete Richtung zwei verschiedene Erwartungswerte annehmen,  $+(\frac{1}{2})\hbar$  und  $-(\frac{1}{2})\hbar$ . Ein Ensemble von Elektronen wird als polarisiert bezeichnet, wenn der Spin der einzelnen Elektronen in seiner Orientierung eine Vorzugsrichtung aufweist, es existiert folglich eine Präferenz für einen der beiden Spinzustände.

Bei einer Ausrichtung des Spins parallel zum Elektronenimpuls liegt eine longitudinale Spinpolarisation vor, ist sie orthogonal, spricht man von einer transversalen Spinpolarisation. Der Polarisationsgrad  $P$  eines polarisierten Ensembles ergibt sich zu

$$P = \frac{N \uparrow - N \downarrow}{N \uparrow + N \downarrow}. \quad (2.1)$$

### Galliumarsenid

GaAs wird der Kategorie der III-V-Halbleiter zugeordnet und ist besonders geeignet zur Erzeugung spinpolarisierter Elektronen durch optisches Pumpen mit zirkular polarisiertem Licht [61, 90–92].

Das Kristallgitter mit der Gitterkonstanten  $a = 5,65325 \text{ \AA}$  liegt in einer Zinkblendenstruktur aus zwei um  $[\frac{1}{4}\frac{1}{4}\frac{1}{4}]$  gegeneinander verschobenen, kubisch-flächenzentrierten Gittern vor. Die einzelnen Gitter bestehen ausschließlich aus Atomen jeweils einer Hauptgruppe. Im reziproken Gitter liegt als erste Brillouin-Zone eine kubisch-raumzentrierte Gitterstruktur vor [93, 94]. Der  $\Gamma$ -Punkt mit dem Wellenvektor  $\vec{k} = (0, 0, 0)$  stellt das Symmetriezentrum dieses Gitters dar. In einem Bandschema sind die Energien von Elektronen (im Leitungsband,  $E > 0$ ) und Löchern (im Valenzband,  $E < 0$ ), abhängig vom reduzierten Wellenvektor  $\vec{q} = \vec{k} \frac{a}{2\pi}$ , dargestellt.

Für die Bestimmung des Polarisationsgrades sind im Bandschema des GaAs, berechnet mit der nichtlokalen empirischen Pseudopotentialmethode [94], das Minimum des Leitungsbandes L und die Maxima der drei obersten Valenzbänder  $V_{1-3}$  im zentralen Symmetriepunkt  $\Gamma$  relevant. Das Maximum der beiden obersten Valenzbänder  $V_1$  und  $V_2$  liegt im reziproken Raum exakt unter dem Minimum des Leitungsbandes L. Die Bandlückenenergie  $E_g$  zwischen der Oberkante der Valenzbänder und dem Minimum des Leitungsbandes am  $\Gamma$ -Punkt berechnet sich zu  $E_g = 1,424$  eV. Die Energiedifferenz der Valenzbänder  $V_1$  und  $V_2$  bezüglich des nächsten darunter liegenden Valenzbandes  $V_3$  beläuft sich aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung auf  $\Delta E = 0,34$  eV. Die Valenzbänder  $V_1$  und  $V_2$  weisen eine P-Wellen-Symmetrie auf und spalten im Maximum in ein vierfach entartetes  $p_{3/2}$ -Niveau auf, das Valenzband  $V_3$  in ein zweifach entartetes  $p_{1/2}$ -Niveau. Das Minimum des Leitungsbandes im  $\Gamma$ -Punkt zeigt eine S-Wellen-Symmetrie und ist zweifach entartet.

Das Niveauschema des GaAs mit den entarteten Energieniveaus der Valenzbänder und des Leitungsbandes ist Inhalt der Abb. 2.1. Durch rechtszirkular ( $\sigma^+$ ) oder linkszirkular ( $\sigma^-$ ) polarisierte Photonen der Energie  $\hbar\omega$ , welche folgender Bedingung genügen,

$$E_g \leq \hbar\omega \leq E_g + \Delta E \quad (2.2)$$

werden Elektronen aus dem  $p_{3/2}$ -Niveau zum Übergang in das  $s_{1/2}$ -Niveau des Leitungsbandes angeregt. Die maximal einsetzbare Wellenlänge der Photonen beträgt 872 nm. Bedingt durch die Auswahlregeln ändert sich die magnetische Quantenzahl  $m_j$  um  $\Delta m_j = +1$  für rechtszirkular polarisierte Photonen und um  $\Delta m_j = -1$  für linkszirkular polarisierte Photonen. Daher sind für rechtszirkular polarisierte Photonen nur die Übergänge von  $p_{3/2}m_{j=-3/2}$  nach  $s_{1/2}m_{j=-1/2}$  und  $p_{3/2}m_{j=-1/2}$  nach  $s_{1/2}m_{j=+1/2}$  erlaubt. Die relativen Übergangswahrscheinlichkeiten ergeben sich aus den jeweiligen Clebsch-Gordan-Koeffizienten, wiedergegeben in Abb 2.1 in durchgezogenen Kreisen. Die angeregten Elektronen sind longitudinal spinpolarisiert.

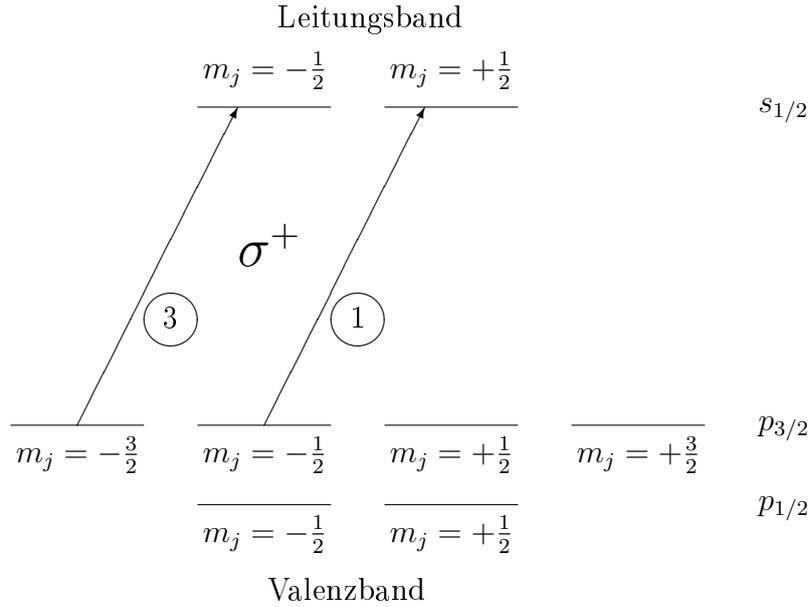


Abbildung 2.1: Niveauschema des GaAs mit Übergängen durch rechtszirkular polarisiertes Licht geeigneter Energie.

Der theoretisch erreichbare maximale Polarisationsgrad ergibt sich nach Gl. (2.1) zu

$$P = \frac{1 - 3}{1 + 3} = -0,5 \quad (2.3)$$

für rechtszirkular polarisiertes Licht und zu

$$P = \frac{3 - 1}{3 + 1} = 0,5 \quad (2.4)$$

für linkszirkular polarisiertes Licht. Aufgrund depolarisierender Effekte beträgt die experimentell erreichbare maximale Polarisation ca. 35 %.

Übersteigt die Energie der Photonen den Wert  $E_g + \Delta E \geq 1,76$  eV, entsprechend einer Wellenlänge von  $703,54$  nm oder weniger, werden zudem Übergänge aus dem  $p_{1/2}$ -Niveau des Valenzbandes  $V_3$  in das  $s_{1/2}$ -Niveau des Leitungsbandes L angeregt. Aufgrund der relativen Übergangswahrscheinlichkeit dieses Übergangs von 2 reduziert sich der Zähler von Gl. (2.1) mit zunehmender Energie, bis hin zum völligen Verschwinden der Polarisation.

Für Experimente mit hohem Wirkungsgrad sind höhere Polarisationsgrade erstrebenswert. Wie in Abb. 2.1 deutlich wird, ist bei einer Aufhebung der Entartung des  $p_{3/2}$ -Niveaus und der Verwendung rechtszirkular polarisierten Lichts geeigneter Photonenenergie nur der Übergang  $p_{3/2}m_{j=-3/2}$  nach  $s_{1/2}m_{j=-1/2}$  möglich. Nach Gl. (2.1) ist dann theoretisch eine maximale Polarisation von 100 % erzielbar. Die vierfache Entartung der Valenzbänder  $V_1$  und  $V_2$  lässt sich z.B. durch einen Symmetriebruch des Kristallgitters aufheben.

Wächst eine aktive GaAs-Schicht (z.B.  $\text{GaAs}_{0,95}\text{P}_{0,05}$ ) epitaktisch auf einem Substrat mit abweichender Gitterkonstante (z.B.  $\text{GaAs}_{0,7}\text{P}_{0,3}$ ), so formt sich das Kristallgitter der aktiven GaAs-Schicht in der Ebene des Substrats und den darauf folgenden Kristallebenen der Gitterkonstante des Substrats entsprechend. Orthogonal zur Substratebene vergrößert sich die Gitterkonstante des GaAs zur Volumenerhaltung der Einheitszelle. Es entsteht eine uniaxiale Deformation der Kristallstruktur, die Symmetrie der Kristallstruktur wird aufgehoben und die Energieniveaus der Valenzbänder  $V_1$  und  $V_2$  spalten auf. Die Zustände  $p_{3/2}m_{j=-1/2}$  und  $p_{3/2}m_{j=+1/2}$  weisen eine Absenkung ihres Energieniveaus abhängig von der Verzerrung der Einheitszelle auf, die Entartung des  $p_{3/2}$ -Niveaus wird somit teilweise aufgehoben. Der theoretisch erreichbare maximale Polarisationsgrad ergibt sich nach Gl. (2.1) zu 100 %, die experimentell erreichbare maximale Polarisation lag bei ca. 70 % [95].

GaAs-Photokathoden mit alternierenden Kristallschichten unterschiedlicher Dotierung (z.B. AlGaAs und GaAs), sog. Übergitter, bewirken bei identischen Gitterkonstanten aufgrund unterschiedlicher Bandlückenenergien eine Reduktion der Symmetrie der Zinkblendenstruktur. Erste experimentell erzielte Polarisationen lagen bei ca. 60 % [96], aktuell sind Polarisationen bis zu 86 % erzielbar [43].

Die Kombination beider Methoden, die Stapelung von Kristallstrukturen mit abweichenden Gitterkonstanten und unterschiedlichen Bandlückenenergien, ermöglicht eine Elektronenpolarisation von über 90 % [97].

## Negative Elektronenaffinität

Der Austritt der ins Leitungsband angehobenen und zur Kristalloberfläche diffundierten Elektronen aus der Kristallstruktur in das Vakuum der Kathodenkammer wird durch eine Potentialbarriere mit einer Energie von ca. 4 eV unterbunden. Diese Energiedifferenz zwischen der Unterkante des Leitungsbandes und dem Vakuumniveau wird als Elektronenaffinität bezeichnet. Für eine erfolgreiche Photoemission muss das Vakuumniveau auf ein Niveau unterhalb des Leitungsbandes abgesenkt werden, somit wird eine negative Elektronenaffinität (NEA) benötigt [98]. Die Kombination zweier verschiedener Prozesse wird genutzt um eine negative Elektronenaffinität zu erzielen:

In einem ersten Schritt wird durch eine p-Dotierung mittels Zn (z.B. mit einer Lochkonzentration von  $5,5 \cdot 10^{16} \cdot \text{cm}^{-3}$  bei 300 K [99]) das Fermi-Niveau nahezu bis zur Oberkante der Valenzbänder  $V_1$  und  $V_2$  abgesenkt [100]. Dadurch senkt sich das Vakuumniveau und die Elektronenaffinität verringert sich entsprechend. An der Grenzfläche Halbleiter-Oberfläche füllen besetzte Oberflächenzustände in der Bandlücke Lochstellen im Valenzband auf. Es entsteht eine negative Raumladungszone an der Kristalloberfläche, die zu einer Bandverbiegung der Energiebänder um 0,63 eV [99] führt. Elektronen aus dem Leitungsband werden in der Zone der Bandverbiegung lokalisiert, eine mögliche Photoemission wird verstärkt [101]. Das Fermi-Niveau an der Grenzfläche wird durch verschiedene Mechanismen [102] festgehalten.

Ferner wird ein Metall mit geringerer Austrittsarbeit (z.B. Caesium, mit einer Austrittsarbeit  $W_A = 1,79 \text{ eV}$  [103]) an der GaAs-Kristalloberfläche ( $W_A = 5,27 \text{ eV}$  bei einer p-Dotierung von  $10^{16} \cdot \text{cm}^{-3}$  [103]) physikalisch adsorbiert. Auf der Kristalloberfläche bildet sich eine Dipolschicht [104]. Diese verstärkt die aufgrund der p-Dotierung bereits vorhandene negative Raumladungszone an der Kristalloberfläche, das Fermi-Niveau an der Grenzfläche wird ebenso festgehalten [105]. Die Bandverbiegung der Energiebänder wird derart vergrößert, dass die Unterkante des Leitungsbandes auf gleicher Höhe mit dem Fermi-Niveau liegt [98]. Im thermischen Gleichgewicht passt sich das Fermi-Niveau der Metall-Schicht an das bereits abgesenkte Fermi-Niveau des p-dotierten Halbleiters an. Das Vaku-

umniveau an der Grenzfläche Metall-Oberfläche wird um die Differenz der Austrittsarbeiten  $\Delta W_A = 3,48$  eV abgesenkt. Nahezu unabhängig vom Material des Substrats beträgt die Energiedifferenz zwischen Fermi-Niveau und Vakuumniveau an der Kristalloberfläche ca. 1,4 eV [98]. Die Unterkante des Leitungsbandes im Kristall entspricht folglich dem Vakuumniveau an der Oberfläche, die Elektronenaffinität ist demnach Null. Die Elektronen im Leitungsband benötigen keine zusätzliche Energie für den Austritt ins Vakuum, die Potentialbarriere an der Grenzfläche Halbleiter-Metall kann aufgrund des Tunneleffektes überwunden werden.

Durch zusätzlich hinzugefügten Sauerstoff bildet sich auf der Caesium-Schicht eine Caesiumoxid-Schicht.  $\text{Cs}_2\text{O}$  ist ein Halbleiter mit einer Bandlücke von 2 eV bei Raumtemperatur. Die Austrittsarbeit beträgt nur  $W_A = 0,6$  eV und die Bandverbiegung der Energiebänder wird noch weiter verstärkt. Die Unterkante des Leitungsbandes im Kristall liegt nun oberhalb des Vakuumniveaus an der Oberfläche, es bildet sich eine negative Elektronenaffinität und die Wahrscheinlichkeit für einen Austritt der Elektronen ins Vakuum steigt an.

## Kennzahlen polarisierter Elektronenquellen

Zur Quantifizierung der Effizienz der Photoemission ist die Anzahl der pro Photon emittierten Elektronen relevant. Die zugeordnete Größe ist die Quanteneffizienz

$$QE = \frac{N_e}{N_{Ph}} = \frac{I}{e} \frac{\hbar\omega}{P_{Ph}}, \quad (2.5)$$

mit dem Elektronenstrom  $I$ , der Elementarladung des Elektrons  $e$ , der Photonenenergie  $\hbar\omega$  und der eingestrahlten Lichtleistung  $P_{Ph}$ . Der Strahlstrom einer spinpolarisierten Elektronenquelle ergibt sich aus der Quanteneffizienz in Verbindung mit der verfügbaren Lichtleistung.

In Abb. 2.2 ist der Verlauf der Quanteneffizienz und des Polarisationsgrades in Abhängigkeit von der Laserwellenlänge für eine B-702 Übergitterkathode dargestellt. Während die Quanteneffizienz mit steigender Wellenlänge abnimmt und bei 780 nm drastisch einbricht (man beachte die logarithmische Skala), findet sich gerade dort ein Maximum des Polarisationsgrades von nahezu 90 %.

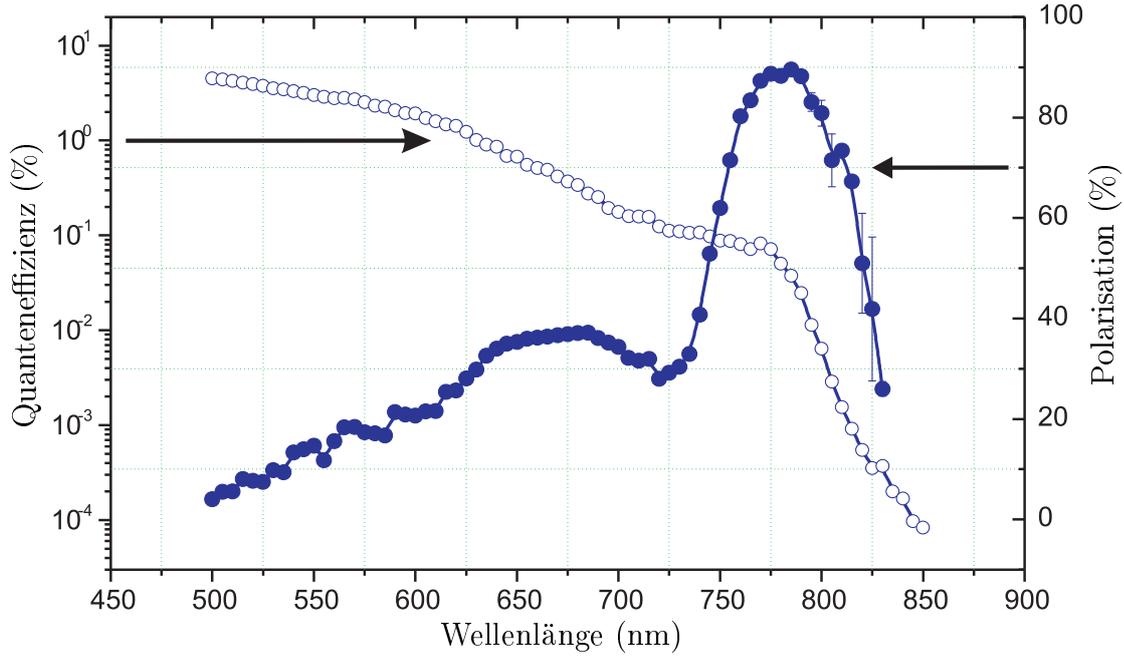


Abbildung 2.2: Quanteneffizienz (offene Kreise) und Polarisationsgrad (ausgefüllte Kreise) einer B-702 Übergitterkathode in Abhängigkeit von der Laserwellenlänge.

Der relative Fehler eines polarisationsabhängigen Effekts (z.B. einer Asymmetrie) ist invers proportional zum Polarisationsgrad  $P$  und zur Wurzel der Experimentalstatistik, welche wiederum linear mit dem Strahlstrom verknüpft ist [106]. Daher gilt

$$\frac{\Delta A}{A} \propto \frac{1}{P\sqrt{I}}. \quad (2.6)$$

Der Polarisationsgrad  $P$  und der Strahlstrom  $I$  konstituieren somit den Qualitätsfaktor  $QF$  einer spinpolarisierten Elektronenquelle

$$QF = P^2 I. \quad (2.7)$$

Durch eine geeignete Wahl der Laserwellenlänge ergibt sich ein Maximum des Qualitätsfaktors  $QF$  in Abhängigkeit von Quanteneffizienz und Polarisationsgrad zur Erzeugung spinpolarisierter Elektronen.

Ohne Bestrahlung mit Licht und ohne Änderung der apparativen Bedingungen ist die zeitliche Änderung der Quanteneffizienz einer NEA-beschichteten Photo-

kathode konstant und ergibt sich durch die reziproke Vakuumlebensdauer  $\tau_v$

$$\frac{dQE}{dt} = \frac{1}{\tau_v} QE. \quad (2.8)$$

Innerhalb der Vakuumlebensdauer reduziert sich die Quanteneffizienz durch den Einfluss der Restgas-Moleküle in der näheren Umgebung der Kathode um den Faktor  $e$ . Die Restgas-Moleküle stoßen gegen die Kathodenoberfläche und zerstören mit der Zeit die zum Austritt der Elektronen ins Vakuum notwendige NEA-Schicht. Die Vakuumlebensdauer liegt im Bereich von einigen Minuten bis zu mehreren hundert Stunden am Injektor spinpolarisierter Elektronen.

Bei einer Bestrahlung mit Licht geeigneter Wellenlänge werden aus einer NEA-beschichteten Photokathode Elektronen extrahiert. Die beschleunigten Elektronen ionisieren die Restgas-Moleküle, aufgrund des anliegenden elektrischen Feldes werden die produzierten Ionen beschleunigt und bombardieren die NEA-Beschichtung der Photokathode. Die Änderung der Quanteneffizienz ist proportional zum erzeugten Strahlstrom  $I$  und ergibt sich zu

$$\frac{dQE}{dt} = \left( \frac{1}{\tau_v} + kI \right) QE = \left( \frac{1}{\tau_v} + \frac{1}{\tau_I} \right) QE. \quad (2.9)$$

Der Proportionalitätsfaktor  $k$  hat die Dimension einer inversen Ladung. Zur Erzeugung eines konstanten Strahlstroms muss die Laserleistung kontinuierlich erhöht werden. Ist die Leistungsgrenze des Lasersystems erreicht, muss die Photokathode mit einer neuen NEA-Schicht versehen werden.

Effektive, möglichst unterbrechungsfreie Strahlzeiten zur Messung polarisations-sensitiver Observablen mit geringen relativen Fehlern erfordern demnach nicht nur hohe Polarisationsgrade, sondern auch einen durchgehend hohen Qualitätsfaktor im Zeitraum der Messung. Bis zu einem gewissen Grad kann eine sinkende Quanteneffizienz durch eine höhere Laserleistung auf der Kathode kompensiert werden, um einen gleichbleibenden Strahlstrom zu gewährleisten.

## Lasersysteme

Am spinpolarisierten Injektor SPIN existieren zwei Lasersysteme zur Erzeugung gepulster polarisierter Elektronenstrahlen [107], ein Diodenlaser sowie ein Titan-Saphir-Laser. Der Diodenlaser [66, 108, 109] erzeugt durch die elektrische Modulation einer Laserdiode mit scharfer Frequenzbeschränkung Laserpulse mit einer Repetitionsrate von 3 GHz, synchronisiert mit der Taktung und Phase der Hochfrequenz des S-DALINAC oder einen kontinuierlichen Laserstrahl.

Der Ti:Saphir-Laser besteht aus einem Nd:YVO<sub>4</sub>-Pumplaser (Verdi<sup>TM</sup> G18) [110] und einem Ti:Saphir-Oszillator (Mira HP-D<sup>TM</sup>) [111]. In einem Wellenlängenbereich von 680 bis 1000 nm werden ein kontinuierlicher Laserstrahl oder kurze Laserpulse mit Pulslängen von 220 fs bis zu einigen ps und einer Repetitionsrate von 75 MHz erzeugt. Diese Repetitionsrate entspricht der 40. subharmonischen der Hochfrequenz des S-DALINAC und wird mit deren Taktung und Phase synchronisiert [112]. Dieses System kann für kernphysikalische Flugzeitmessungen, z.B. zur Untergrundunterdrückung verwendet werden.

Der Betrieb des Diodenlasers und des Titan-Saphir-Lasers erfolgt aus einem separaten Labor. Auf dem optischen Tisch sind verschiedene Instrumente zur Laserstrahldiagnostik aufgebaut, ein Pulsverlängerer [113], ein Spektrometer [114] zur Bestimmung der Laserwellenlänge, ein Autokorrelator [115] für Pulslängenmessungen sowie ein Stokes-Polarimeter [116] zur Messung der Polarisation des Laserstrahls. Der Strahltransport erfolgt über eine polarisationserhaltende Glasfaser und im Fall des Titan-Saphir-Lasers über eine 40 m lange, evakuierte Freistrahlstrecke mit aktiver Strahllagenstabilisierung [117].

Ein elektro-optischer Modulator zur Intensitätsstabilisierung [118] und eine Pockelszelle zur schnellen Polarisationsumkehr komplettieren das Lasersystem in der Beschleunigerhalle unterhalb der Kathodenkammer. Von dort wird der Laserstrahl auf die Photokathode im Zentrum der Kathodenkammer fokussiert.

## Polarimetrie

Der Einfluss spinpolarisierter Elektronen im Ausgangskanal kernphysikalischer Experimente, z.B. der Suche nach paritätsverletzenden Eigenschaften in der pho-

toneninduzierten  $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ -Reaktion, ergibt sich aus dem Polarisationsgrad des Elektronenstrahls. Zur Quantifizierung eines paritätsverletzenden Effekts ist die präzise Kenntnis dieser Observablen erforderlich. Der Polarisationsgrad des Elektronenstrahls wird daher an bestimmten Positionen in der Strahlführung durch verschiedene Polarimeter mit unterschiedlichen Funktionsprinzipien gemessen. Der absolute Wert der Polarisation wird durch Mott- und Møller-Polarimetrie gemessen. Zur Überwachung der Polarisation während der Experimente wird eine relative Polarisationsmessung zerstörungsfrei mittels Compton-Transmissions-Polarimetern durchgeführt. Der Einsatz eines Wien-Filters ermöglicht die Drehung der Polarisations Ebene des Elektronenspins in die transversale Ebene und kompensiert, falls erforderlich, den Einfluss der magnetischen Felder der Rezirkulationen des S-DALINAC auf die Spinorientierung.

## Wien-Filter

Messungen der Polarisation mittels Mott-Polarimetrie sind nur sensitiv auf die transversale Polarisationskomponente des Elektronenstrahls. Der Spin der Elektronen aus der spinpolarisierten Elektronenquelle ist longitudinal orientiert, daher ist eine Drehung um  $90^\circ$  in die transversale Ebene erforderlich. Polarisationsmessungen mittels Møller-Polarimetrie andererseits sind besonders sensitiv auf die longitudinale Polarisationskomponente des Elektronenstrahls. Ebenso erfordern polarisationsabhängige kernphysikalische Experimente mehrheitlich eine longitudinale Orientierung der Polarisationskomponente. In den transversalen magnetischen Feldern der Dipolmagnete der Strahlführung des S-DALINAC präzediert der Spin der Elektronen jedoch entsprechend der Thomas-Bargmann-Michel-Telegdi-Gleichung [119,120]. Abhängig von den zu passierenden Dipolmagneten der Strahlführung, der Rezirkulationen oder der Extraktionsstrahlführung wird der Spin der Elektronen noch vor der Beschleunigung im supraleitenden Injektorbeschleuniger um einen Winkel  $\theta$  gedreht um den Einfluss der magnetischen Felder zu kompensieren [43]. Die Drehung der Polarisation erfolgt an der spinpolarisierten Elektronenquelle des S-DALINAC mittels eines Wien-Filters [121,122]. Ein elektrisches und ein magnetisches Feld stehen senkrecht zueinander und zur Propagationsrichtung des Elektronenstrahls. Das Verhältnis der jeweiligen Feld-

stärken ist für eine ablenkfreie Passage des Elektronenstrahls bei einer Energie von 100 keV ausgelegt. Das an einem Wien-Filter gleicher Bauart gemessene Emissionzwachstum [123] wurde zwar postuliert [124], jedoch bislang noch nicht am S-DALINAC verifiziert.

## 100 keV Mott-Polarimeter

Die Polarisation der Elektronen wird im Anschluss an die spinpolarisierte Elektronenquelle in der normalleitenden Strahlführung mit einem auf 100 keV ausgelegten Mott-Polarimeter gemessen. Da die Messung der Polarisation mittels Mott-Polarimetrie einzig auf die transversale Komponente des Polarisationsvektors empfindlich ist, wird der Polarisationsvektor durch einen Wien-Filter (s.o.) von der longitudinalen in die transversale Ebene gedreht.

Mott-Streuung bezeichnet die elastische Streuung eines punktförmigen Fermions an einer statischen punktförmigen Ladung. Das Streupotential der Elektron-Kern-Wechselwirkung setzt sich zusammen aus dem elektrostatischen Coloumb-Potential  $V_C$  und dem Potential der Spin-Bahn-Wechselwirkung  $V_{LS}$

$$V = V_C + V_{LS}, \quad (2.10)$$

mit dem Coloumb-Potential

$$V_C = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{eZ}{r}, \quad (2.11)$$

mit der elektrischen Feldkonstanten  $\epsilon_0$ , der Elementarladung  $e$ , der Kernladungszahl  $Z$  des Atomkerns und dem Abstand  $r$  der Ladungsschwerpunkte des Elektrons und des Atomkerns und dem Potential der Spin-Bahn-Wechselwirkung

$$V_{LS} = \frac{e^2 Z}{mc^2 r^3} \mathbf{S} \cdot \mathbf{L}, \quad (2.12)$$

mit der Elementarladung  $e$ , der Kernladungszahl  $Z$ , dem Abstand  $r$  der Ladungsschwerpunkte des Elektrons und des Atomkerns, der Masse  $m$  des Elektrons, der Lichtgeschwindigkeit  $c$  sowie dem Spinvektor  $\mathbf{S}$  und dem Drehimpulsvektor  $\mathbf{L}$ .

Aufgrund des Skalarproduktes von Spin und Bahndrehimpuls ergibt sich eine Asymmetrie im Wirkungsquerschnitt, die dann maximal ist, wenn der Spin transversal zur Propagationsrichtung des Elektronenstrahls steht.

Der differentielle Wirkungsquerschnitt des Streuprozesses wird durch den Mott-Wirkungsquerschnitt [106, 125]

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{Mott} = \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Ze^2}{4E}\right)^2 \frac{1}{\sin^4\left(\frac{\theta}{2}\right)} \left(1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2 \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right)\right) \quad (2.13)$$

beschrieben, mit der Kernladungszahl  $Z$ , der Elementarladung  $e$ , der elektrischen Feldkonstanten  $\epsilon_0$ , der Elektronenenergie  $E$ , dem Streuwinkel  $\theta$ , der Geschwindigkeit  $v$  der Elektronen und der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , erweitert um einen polarisationsabhängigen Term

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{Mott} [1 - S(\theta, E, Z) \mathbf{P} \cdot \mathbf{n}], \quad (2.14)$$

mit der Sherman-Funktion  $S$  (oder auch Analysierstärke), dem Polarisationsvektor  $\mathbf{P}$  und dem Normalenvektor  $\mathbf{n}$  der Streuebene. Die Sherman-Funktion  $S$  definiert für einen gegebenen Streuwinkel  $\theta$ , die Elektronenenergie  $E$  und die Kernladungszahl  $Z$  den Wert der Asymmetrie für einen punktförmigen Kern [126]. Verschiedene Ansätze berücksichtigen die Abschirmung des Coloumb-Feldes des Kerns durch die Valenzelektronen [127–129] sowie den Einfluss der Kerngröße und des magnetischen Momentes bei Energien im MeV-Bereich [130, 131], ebenso ist ein experimenteller Nachweis der Korrekturen durch die Kerngröße möglich [132, 133]. Die Sherman-Funktion ist in Abhängigkeit des Streuwinkels  $\theta$  in Abb. 2.3 für unterschiedliche Elektronenenergien dargestellt. Bei einer Energie von 100 keV zeigt die Sherman-Funktion ein breites Minimum bei  $\theta = 120^\circ$ . Für höhere Energien verschiebt sich das Minimum zu größeren Streuwinkeln.

Aufgrund unterschiedlicher Wirkungsquerschnitte für Elektronen mit Spin  $+(\frac{1}{2})\hbar$  und  $-(\frac{1}{2})\hbar$  ergibt sich eine messbare Zählratenasymmetrie in Abhängigkeit von der Sherman-Funktion und der transversalen Polarisationskomponente

$$A = S(\theta, E, Z) \cdot \mathbf{P} \cdot \mathbf{n}. \quad (2.15)$$

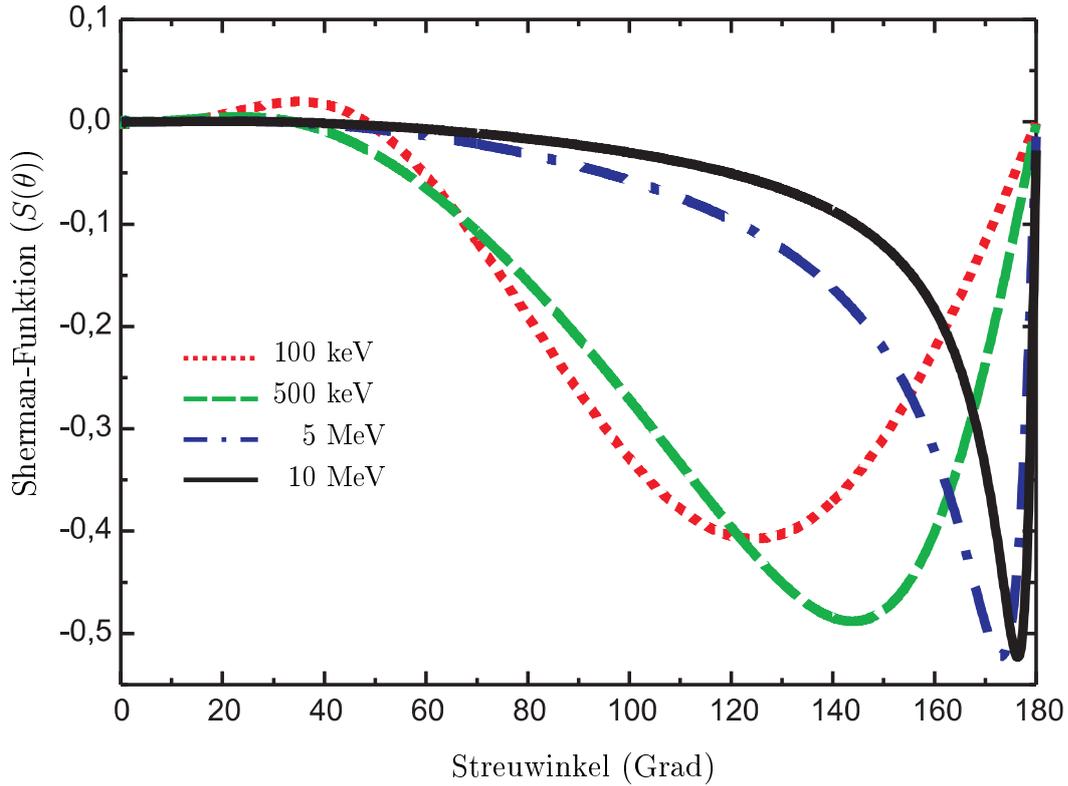


Abbildung 2.3: Sherman-Funktion in Abhängigkeit des Streuwinkels für unterschiedliche Elektronenenergien bei der Streuung an einer Goldfolie ( $Z = 79$ ) nach Ref. [134].

Die Sherman-Funktion  $S$  definiert die Asymmetrie für Einfachstreuung an einem punktförmigen Kern. Der unerwünschte Effekt der Mehrfachstreuung an Streufolien endlicher Dicke wird durch eine Foliendickenextrapolation zu einer Monolage des Streumaterials eliminiert. Der Mittelwert verschiedener Ansätze für die Foliendickenextrapolation [135] bildet die Basis zur Bestimmung der Polarisation, da in der theoretischen Betrachtung keiner der Ansätze hervorsteicht.

Das in der normalleitenden Elektronenstrahlführung installierte 100 keV Mott-Polarimeter enthält ein Rad mit selbsttragenden Gold-Streufolien verschiedenster Dicke (42,5-500 nm) für die Foliendickenextrapolation, einem BeO-Leuchtschirm zur Bestimmung der Position und der Fokussierung des Elektronenstrahls und einer Aussparung zum Durchlass des Elektronenstrahls sowie vier unter einem  $120^\circ$ -Rückstreuwinkel verbaute Silizium-Oberflächensperrschichtdetektoren. Je zwei Detektoren in orthogonal zueinander stehenden Ebenen messen paarweise die

Zählratenasymmetrie der entsprechenden Ebene um die Polarisation in  $x$ - und  $y$ -Richtung und somit den transversalen Polarisationsvektor zu bestimmen

$$|\mathbf{P}| = \sqrt{P_x^2 + P_y^2}. \quad (2.16)$$

Durch den Wechsel der Polarisation des Laserstrahls von links- auf rechtszirkular polarisiertes Licht mittels einer Pockelszelle wird eine mögliche instrumentelle Asymmetrie aufgrund fertigungsbedingter Abweichungen, einer Detektorineffizienz oder eines nicht auf der Sollbahn einfallenden Teilchenstrahls ausgeschlossen. In Abb. 2.4 sind die Spektren der  $y$ -Ebene im oberen und unteren Detektor für an einer Photokathode mit deformiertem Kristallgitter erzeugte Elektronen zu sehen. Unter der Verwendung von links- oder rechtszirkular polarisiertem Laserlicht ergeben sich zwei unterschiedliche Zählratenasymmetrien in der jeweiligen Ebene. Die unter Berücksichtigung des Polarisationswechsels resultierende Asymmetrie der jeweiligen Ebene  $A_x$  und  $A_y$  berechnet sich in diesem Fall nach Ref. [69] zu

$$A_x = \frac{1 - \sqrt{\frac{N_L^+ \cdot N_R^-}{N_L^- \cdot N_R^+}}}{1 + \sqrt{\frac{N_L^+ \cdot N_R^-}{N_L^- \cdot N_R^+}}} \quad \text{und} \quad A_y = \frac{1 - \sqrt{\frac{N_O^+ \cdot N_U^-}{N_O^- \cdot N_U^+}}}{1 + \sqrt{\frac{N_O^+ \cdot N_U^-}{N_O^- \cdot N_U^+}}}, \quad (2.17)$$

wobei in der  $x$ -Ebene  $N_L^+$  die Zählrate bei rechtszirkular polarisiertem Licht ( $\sigma^+$ ) im linksseitigen Detektor,  $N_R^-$  die Zählrate bei linkszirkular polarisiertem Licht ( $\sigma^-$ ) im rechtsseitigen Detektor bezeichnet, bei umgedrehtem Vorzeichen ist der Drehsinn des Lichtes in die andere Richtung orientiert. In der  $y$ -Ebene stehen  $N_O$  für die Zählrate im oberen und  $N_U$  im unteren Detektor.

Für eine GaAs-Photokathode mit Übergitter-Struktur wurde mit diesem Polarimeter eine Polarisation von  $86,1 \% \pm 1,4 \%$  [43] bei einer Wellenlänge des Laserlichts von 780 nm gemessen.

## 5-10 MeV Mott-Polarimeter

Zur Messung der Polarisation des Elektronenstrahls nach der Beschleunigung im supraleitenden Injektorbeschleuniger wird ein 5-10 MeV Mott-Polarimeter [75]

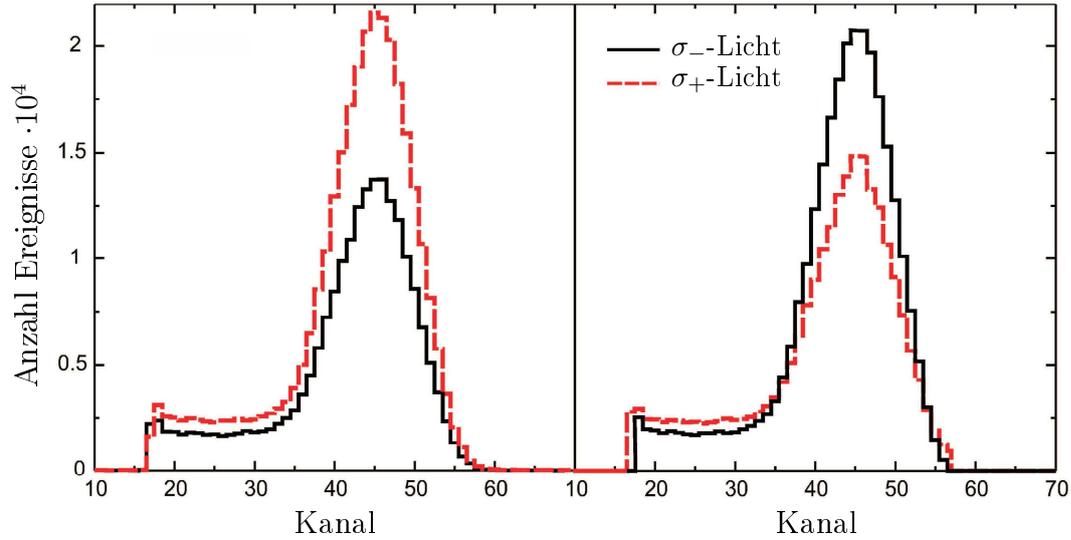


Abbildung 2.4: Spektren des oberen und unteren Detektors in der y-Ebene aufgrund von Streuprozessen an einer 60 nm dicken, selbsttragenden Goldfolie bei einem Elektronenstrom in der Größenordnung einiger pA. Die Zählrate für mit linkszirkular polarisiertem Laserlicht an einer Photokathode mit deformiertem Kristallgitter erzeugte Elektronen ist schwarz, für mit rechtszirkular polarisiertem Laserlicht erzeugte Elektronen rot gestrichelt dargestellt. Die Polarisation beträgt  $86,1 \% \pm 1,4 \%$  [43] bei einer Laser-Wellenlänge von 780 nm.

verwendet. Die Ausführungen bezüglich des 100 keV Mott-Polarimeters gelten gleichermaßen für das 5-10 MeV Mott-Polarimeter. Im Energiebereich von 5-10 MeV ist der Einfluss der Abschirmung des Coulomb-Feldes des Kerns durch die Valenzelektronen [127–129] auf die Sherman-Funktion geringer, die Abhängigkeit von der Kerngröße und magnetischen Kernmomenten [130] nimmt langsam zu.

Das 5-10 MeV Mott-Polarimeter ist hinter der  $180^\circ$ -Dipolmagnetanordnung zur Umlenkung des Elektronenstrahls vom Injektorbeschleuniger in den Hauptbeschleuniger direkt vor dem Niederenergie-Messplatz DHIPS installiert. Das 5-10 MeV Mott-Polarimeter enthält eine fahrbare Leiter für Gold-Streufolien verschiedenster Dicke für die Foliendickenextrapolation und einen BeO-Leuchtschirm zur Bestimmung der Position und der Fokussierung des Elektronenstrahls sowie zwei unter einem  $165^\circ$ -Rückstreuwinkel verbaute Szintillatoren mit Photoelektro-

nenvervielfachern. Der optimale Rückstreuwinkelbereich von  $173^\circ$ - $176,5^\circ$  für die Detektoren, vorgegeben durch die Minima der Sherman-Funktion für 5-10 MeV (siehe Abb. 2.3), kann aufgrund der vorhandenen Geometrie der Strahlführung nicht gewählt werden. Eine mögliche instrumentelle Asymmetrie aufgrund fertigungsbedingter Abweichungen, einer Detektorineffizienz oder eines nicht auf der Sollbahn einfallenden Teilchenstrahls wird durch den Wechsel der Polarisation des Laserstrahls von links- auf rechtszirkular polarisiertes Licht mittels einer Pockelszelle minimiert. Aufgrund der Geometrie des Detektoraufbaus ist das 5-10 MeV Mott-Polarimeter nur sensitiv auf die horizontale Transversalkomponente des Polarisationsvektors. Dieses Polarimeter würde zur Messung der absoluten Polarisation bei einem Paritätsverletzungsexperiment am Niederenergie-Messplatz DHIPS verwendet.

### **50-130 MeV Møller-Polarimeter**

Das 50-130 MeV Møller-Polarimeter [75, 136] ist hier der Vollständigkeit halber kurz erwähnt. In der Extraktionsstrahlführung ist ein 50-130 MeV Møller-Polarimeter zur Messung der Polarisation nach der Beschleunigung im supraleitenden Hauptbeschleuniger für polarisationsabhängige kernphysikalische Untersuchungen in der Experimentierhalle vorgesehen. Møller-Streuung bezeichnet die elastische Streuung eines punktförmigen Fermions an einem anderen punktförmigen Fermion gleicher Art. Der Wirkungsquerschnitt im Streuwinkelbereich um  $90^\circ$  im Schwerpunktsystem ist für eine antiparallele Spinstellung der Elektronen im Vergleich zu einer parallelen Spinstellung vergrößert [137].

### **Compton-Transmissions-Polarimeter**

Die unterbrechungs- und zerstörungsfreie Überwachung der Polarisation im zeitlichen Verlauf der Experimente am Niederenergie-Messplatz DHIPS, am Niederenergie-Photonen-Tagger NEPTUN oder am Q-CLAM-Spektrometer erfolgt durch eine relative Polarisationsmessung mittels eines Compton-Transmissions-Polarimeters [138, 139]. Vor dem Beginn der Experimente und im Anschluss daran wird das Compton-Transmissions-Polarimeter durch eine Messung der absoluten

Polarisation kalibriert. Da der Polarisationsgrad nicht konstant, sondern anscheinend von der Quanteneffizienz und darüber eventuell auch von der Temperatur abhängig ist [138,140], jedoch direkt mit dem Nachweis eines paritätsverletzenden Effektes verknüpft ist, ist der zeitliche Verlauf des Polarisationsgrades essentiell zur Quantifizierung des paritätsverletzenden Effektes.

Der longitudinal polarisierte Elektronenstrahl wechselwirkt mit dem Coulombfeld der Kerne und der Elektronen beim Durchgang durch Materie und gibt Energie in Form elektromagnetischer Strahlung, im Emissionswinkelbereich um  $0^\circ$  als zirkular polarisierte Bremsstrahlung, ab. Die Interaktion der resultierenden Bremsstrahlung mit Materie wird durch den Photoeffekt, den Compton-Effekt und den Prozess der Paarbildung beschrieben, die einzelnen Wirkungsquerschnitte lassen sich analytisch berechnen [141]. Dies sind die wichtigsten Prozesse, weitere, teilweise auch polarisationssensitive Effekte (z.B. Rayleigh-Streuung) sind in der Regel vernachlässigbar. Der Wirkungsquerschnitt des Compton-Effekts enthält einen polarisationsabhängigen Anteil, ebenso wie die messbare Transmission der Bremsstrahlung durch ein polarisiertes Medium.

Der Polarisationsgrad der Bremsstrahlung  $P$  ist abhängig von der Energie der  $\gamma$ -Quanten  $E_\gamma$  [142]

$$P = P_e \frac{E_\gamma}{E_0} \frac{1 + \frac{1}{3} \left(1 - \frac{E_\gamma}{E_0}\right)}{1 - \frac{2}{3} \left(1 - \frac{E_\gamma}{E_0}\right) + \left(1 - \frac{E_\gamma}{E_0}\right)^2}, \quad (2.18)$$

mit dem longitudinalen Polarisationsgrad  $P_e$  des Elektronenstrahls, der Energie  $E_\gamma$  der Bremsstrahlung und der Energie  $E_0$  des Elektronenstrahls. Für  $E_\gamma = E_0$  ist der Polarisationsübertrag maximal, der Polarisationsgrad der Bremsstrahlung gleich dem longitudinalen Polarisationsgrad des Elektronenstrahls.

Der differentielle Wirkungsquerschnitt des Compton-Effekts [143] bestimmt sich zu

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{Compton}} = \frac{r_0^2 k^2}{2 k_0^2} \times [\Phi_0 + \Phi_l P_l + \Phi_z P_z P_e], \quad (2.19)$$

mit dem klassischen Elektronenradius  $r_0$ , dem Photonenimpuls nach der Streuung

$$k = \frac{k_0 mc^2}{mc^2 + k_0(1 - \cos(\theta))}, \quad (2.20)$$

dem Photonenimpuls vor der Streuung  $k_0$ , dem polarisationsunabhängigen Koeffizienten  $\phi_0$ , dem linearpolarisationssensitiven Koeffizienten  $\phi_l$ , dem linearen Polarisationsgrad des Photons  $P_l$ , dem zirkularpolarisationssensitiven Koeffizienten  $\phi_z$ , dem zirkularen Polarisationsgrad des Photons  $P_z$ , dem Polarisationsgrad des gestreuten Elektrons  $P_e$  im Transmissions-Medium, der Elektronenmasse  $m$ , der Lichtgeschwindigkeit  $c$  und dem Streuwinkel  $\theta$ .

Die Koeffizienten  $\phi_i$  berechnen sich zu

$$\Phi_0 = 1 + \cos^2(\theta) + (k_0 - k)(1 - \cos(\theta)), \quad (2.21)$$

$$\Phi_l = \sin^2(\theta), \quad (2.22)$$

$$\Phi_z = -(1 - \cos(\theta)) \times [(k_0 + k)\cos(\theta)\cos(\psi) + k\sin(\theta)\sin(\psi)\cos(\phi)], \quad (2.23)$$

mit dem Winkel  $\psi$  zwischen  $\mathbf{k}_0$  und dem Elektronenspin  $\mathbf{S}$  und dem Winkel  $\phi$  zwischen der  $\mathbf{kS}$ -Ebene und der  $\mathbf{k}_0\mathbf{k}$ -Ebene.

Der Polarisationsgrad der gestreuten Elektronen  $P_e$  im Transmissions-Medium ist durch

$$P_e = \frac{M_S}{N_e \mu_B} \quad (2.24)$$

gegeben, mit der Magnetisierung des Transmissions-Mediums  $M_S$ , der Elektrodendichte  $N_e$  und dem Bohrschen Magneton  $\mu_B$ .

Integration über den gesamten Raumwinkel unter ausschließlicher Betrachtung des zirkular polarisierten Anteils liefert einen Wirkungsquerschnitt  $\sigma^\pm$  für parallele oder antiparallele Spinstellung

$$\sigma_{\text{Compton}}^\pm = \sigma_0 \pm \sigma_P P_z P_e \quad (2.25)$$

mit dem unpolarisierten Klein-Nishina-Wirkungsquerschnitt [144]

$$\sigma_0 = \frac{mc^2}{E_\gamma} \pi r_0^2 \left( \frac{1}{2} + \ln \left( \frac{2E_\gamma}{mc^2} \right) + \mathcal{O} \left( \frac{mc^2}{E_\gamma} \right) \right), \quad (2.26)$$

erweitert um einen polarisationsabhängigen Term

$$\sigma_P(E_\gamma) = 2\pi r_0^2 \left[ \frac{1 + 4 \left( \frac{E_\gamma}{mc^2} \right) + 5 \left( \frac{E_\gamma}{mc^2} \right)^2}{\left( \frac{E_\gamma}{mc^2} \right) \left( 1 + 2 \left( \frac{E_\gamma}{mc^2} \right) \right)^2} - \frac{1 + \left( \frac{E_\gamma}{mc^2} \right)}{2 \left( \frac{E_\gamma}{mc^2} \right)^2} \ln \left( 1 + 2 \left( \frac{E_\gamma}{mc^2} \right) \right) \right]. \quad (2.27)$$

Die Transmission durch ein Medium wird durch

$$T^\pm(E_\gamma) = e^{-nd[\sigma_{Photo}(E_\gamma + Z\sigma_{Compton}^\pm(E_\gamma) + \sigma_{Paar}(E_\gamma)]} \quad (2.28)$$

beschrieben, mit der atomaren Dichte  $n$ , der Dicke des Transmissions-Mediums  $d$ , der Kernladungszahl  $Z$  und den Wirkungsquerschnitten des Photo-, Compton- und Paarbildungseffektes.

Die Intensität der Bremsstrahlung vor dem Durchgang durch das Transmissions-Medium ist  $I_0$ , die Intensität der Bremsstrahlung nach der Transmission durch das Medium ergibt sich zu

$$I(E_\gamma) = I_0 e^{-nd\sigma_{Gesamt}(E_\gamma)}. \quad (2.29)$$

Die messbare Asymmetrie des transmittierten Signals bei wechselnder Spinorientierung ist dann nach Gl. (2.1)

$$A(E_\gamma) = \tanh(-ndZ\sigma_P P_z P_e). \quad (2.30)$$

Die Länge des Transmissions-Mediums beeinflusst sowohl die Transmission nach Gl. (2.28) als auch die messbare Asymmetrie nach Gl. (2.30). Es ergibt sich ein optimales Verhältnis zwischen der messbaren Intensität hinter dem Transmissions-Medium und der Asymmetrie für einen minimalen relativen Fehler der Asymmetrie. Für den Energiebereich von 4-10 MeV am Niederenergie-Messplatz DHIPS wurde eine Länge des Transmissions-Mediums von 8,5 cm [139] vorgeschlagen.

Der kompakt ausgeführte Aufbau des Compton-Transmissions-Polarimeters besteht aus zwei  $\gamma$ -Detektoren und einem Elektromagneten [139]. Als  $\gamma$ -Detektoren werden CsI(Tl)-Szintillatoren mit optisch gekoppelten Si-pin-Dioden verwendet. Der erste Detektor vor dem Transmissions-Medium dient der Normierung des Signals, der zweite Detektor wird zur Messung der Asymmetrie nach der Transmission durch das Medium verwendet. Der Elektromagnet fungiert als Transmissions-Medium mit einem 9 cm langen Spulenkern aus Vacoflux und einer geschlossenen Weicheiseneinhausung zur Rückführung der magnetischen Feldlinien für eine homogene, hohe Magnetisierung des Spulenkerns.

Der Polarisationsgrad des longitudinal polarisierten Elektronenstrahls während der Experimente wird mittels einer relativen Messung der Polarisation durch die kontinuierliche Überwachung der messbaren Asymmetrie überwacht.

Aufgrund der Anforderungen an die Präzision eines Experiments zur Bestimmung paritätsverletzender Effekte ist ein leicht kürzeres Transmissions-Medium von ca. 8,2 cm, entsprechend den Überlegungen in Ref. [139], sinnvoll zur Reduktion des relativen Fehlers in der Bestimmung der relativen Polarisation während einer Messung.

## 2.2 Bremsstrahlung

Der Prozess der Bremsstrahlung [145] beschreibt eine der möglichen fundamentalen Wechselwirkungen geladener Teilchen mit Materie. Ein Photon wird bei der Streuung eines geladenen Teilchens im Coulombfeld eines anderen Teilchens emittiert. Im Allgemeinen bezeichnet Bremsstrahlung die Streuung eines Elektrons im (abgeschirmten) Potential des Atomkerns [146–148], die Streuung eines Elektrons an den Elektronen der Elektronenhülle des Atoms [149–152] ist um das Inverse der Kernladungszahl  $Z$ , den Faktor  $\frac{1}{Z}$  unterdrückt und kann in der Regel vernachlässigt werden [153, 154].

Die Abschirmung des Kernpotentials durch die Ladungsverteilung der Elektronenhülle resultiert in einer reduzierten effektiven Ladung. Die Beschreibung des

Abschirmungseffektes erfolgt vereinfacht durch die Annahme eines exponentiell abfallenden Potentials, aktuell werden Hartree-Fock-Wellenfunktionen verwendet [155].

Der elementare Bremsstrahlungsprozess unter Berücksichtigung aller involvierten Teilchen wird durch den dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitt für Photonenenergie, Photonenstreuwinkel und Elektronenstreuwinkel beschrieben. Im Rahmen der Dirac-Theorie erfolgte eine erste relativistische Berechnung des dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitts der Bremsstrahlung in Bornscher Näherung in Ref. [156]. Ein alternativer Ansatz für den relativistischen Wirkungsquerschnitt unter Verwendung von Sommerfeld-Maue-Eigenfunktionen findet sich in Ref. [154]. Eine exakte Beschreibung des doppelt differentiellen Wirkungsquerschnitts der relativistischen Bremsstrahlung ohne Beobachtung des auslaufenden Elektrons anhand direkter numerischer Berechnungen mit dem Atomkern als statische, symmetrische Ladung unendlicher Masse, der Beschreibung des einfallenden und auslaufenden Elektrons in Partialwellenentwicklung und einer Multipolentwicklung des emittierten Photons wird in Ref. [157] vorgestellt. Die exakte Beschreibung des komplizierteren dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitts wird in den Ref. [158–160] behandelt.

## Bremsstrahlungsspektrum

Eine erste analytische Beschreibung des Bremsstrahlungsspektrums für dünne Bremsfolien durch Integration des differentiellen Bethe-Heitler-Wirkungsquerschnitts [156] der Bremsstrahlung findet sich in Ref. [161].

$$\begin{aligned} \sigma(k)dk &= \frac{2Z^2}{137} \left( \frac{e^2}{mc^2} \right) \frac{dk}{k} \left[ \left( \frac{E_0^2 + E^2}{E_0^2} - \frac{2E}{3E_0} \right) \right. \\ &\quad \times \left( \ln(M(0)) + 1 - \frac{2}{b} \arctan(b)^{-1} \right) \\ &\quad \left. + \frac{E}{E_0} \left( \frac{2}{b^2} \ln(1+b^2) + \frac{4(2-b^2)}{3b^3} \arctan(b)^{-1} - \frac{8}{3b^2} + \frac{2}{9} \right) \right] \end{aligned} \quad (2.31)$$

mit der Energie des emittierten Photons  $k = E_0 - E$ , der Kernladungszahl  $Z$ , der Elektronenladung  $e$ , der Elektronenmasse  $m$ , der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , der

Energie  $E_0$  des einfallenden Elektrons, der Energie  $E$  des gestreuten Elektrons,  $M(0) = ((\frac{mc^2k}{2E_0E})^2 + (\frac{Z^{\frac{1}{3}}}{C})^2)^{-1}$ ,  $b = \frac{2E_0EZ^{\frac{1}{3}}}{Cmc^2k}$  und  $C = \frac{183}{\sqrt{e}} = 111$ , hier ist  $e$  die Eulersche Zahl.

Numerische Monte-Carlo-Simulationsprogramme wie Geant 4.9.0 [162,163] liefern experimentell gut bestätigte Datensätze am Niederenergie-Messplatz DHIPS [88] und sind daher sehr gut zur Bestimmung eines Bremsstrahlungsspektrums geeignet.

Die Endpunktsenergie des Bremsstrahlungsspektrums korrespondiert direkt mit der kinetischen Energie des Elektronenstrahls. Die Energiebestimmung des Elektronenstrahls am Niederenergie-Messplatz DHIPS erfolgt durch eine Impulsanalyse im magnetischen Feld eines kalibrierten Ablenkmagneten. Nach einer Ablenkung um  $40^\circ$  wird der Elektronenstrahl auf einem BeO-Leuchtschirm deponiert. Durch die Messung der für die Ablenkung benötigten magnetischen Flussdichte bestimmt sich die Elektronenenergie  $E_0$  zu

$$E_0 = mc^2 \left( \sqrt{\frac{e^2 \rho^2}{m^2 c^2} B^2 + 1} - 1 \right), \quad (2.32)$$

mit der Elektronenmasse  $m$ , der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , der Elektronenladung  $e$ , dem effektiven Ablenkradius  $\rho$  des Dipolmagneten und der magnetischen Flussdichte  $B$  mit einer Genauigkeit von 50-100 keV [88].

Durch eine Messung der Spektralverteilung des Photonenstrahls mit einem hochreinen Germanium-Halbleiterdetektor am vorderen Experimentierplatz des Niederenergie-Messplatzes DHIPS unter einem Winkel von  $0^\circ$  bei sehr geringen Strömen und einer kinetischen Energie des Elektronenstrahls  $E_0$  von 7,6 MeV nach Gl. (2.32) wurde die Endpunktsenergie zu  $E_0 + 40$  keV bestimmt. [88]. Eine Wiederholung dieser Messung bei verschiedenen Energien ermöglicht eine präzise Kalibrierung des Ablenkmagneten anhand experimentell bestimmter Endpunktsenergien des Bremsstrahlungsspektrums zur Verbesserung der Genauigkeit der Energiebestimmung.

Die Kalibrierung des Ablenkmagneten ist allerdings nur für auf der Sollbahn des Ablenkmagneten einfallende Elektronen gültig. Ein eventueller transversaler Versatz oder eine Winkelverkipfung, die am S-DALINAC derzeit nicht ausge-

geschlossen werden können, beeinträchtigen die Impulsanalyse und führen zu einer Verfälschung der Kalibrierung.

Die ständige Überwachung der Endpunktsenergie des Bremsstrahlungsspektrums während eines Experiments erfolgt durch eine Messung der in den einzelnen Kupfer-Platten des segmentierten Bremsstrahlungsradiators abhängig von der Energie des Elektronenstrahls deponierten Ladung. Aus dem Verhältnis der im zweiten und ersten Segment deponierten Ladung und der Dicke der Kupfer-Platten errechnet sich die energieabhängige mittlere Eindringtiefe. Relative Änderungen der Endpunktsenergie kleiner als 25 keV sind feststellbar [88]. Die Bestimmung der absoluten Endpunktsenergie des Bremsstrahlungsspektrum unter Verwendung des segmentierten Cu-Bremsstrahlungsradiators wird durch die Kalibration des Verhältnisses der deponierten Ladungen des zweiten und ersten Segmentes anhand der experimentell ermittelten Endpunktsenergien ermöglicht.

Die präzise Bestimmung der Endpunktsenergie spielt eine wichtige Rolle in der Quantifizierung eines paritätsverletzenden Effektes. Zwar sollten messbare Effekte auch in einem breiten Anregungsspektrum auftreten können [28,29], unklar ist jedoch, inwieweit Schwankungen in der Anregungsenergie aufgrund der hohen Niveaudichte [164–166] und den daraus folgenden kleinen Niveauabständen Einfluss nehmen auf die Nachweisbarkeit eines paritätsverletzenden Effektes.

## Polarisation der Bremsstrahlung

### Lineare Polarisation

Elektronen aus der thermionischen Elektronenquelle des S-DALINAC erzeugen nach der Beschleunigung im Injektorbeschleuniger im Bremsstrahlungsradiator inkohärente Bremsstrahlung. Diese ist im Allgemeinen partiell linear polarisiert. Der Grad der linearen Polarisation bemisst sich zu

$$P = \frac{I_{\perp} - I_{\parallel}}{I_{\perp} + I_{\parallel}} \quad (2.33)$$

mit den Intensitäten der Bremsstrahlung mit elektrischem Vektor senkrecht ( $I_{\perp}$ ) respektive parallel ( $I_{\parallel}$ ) zur Reaktionsebene.

Anhand Sommerfelds nichtrelativistischer wellenmechanischer Methode der Beschreibung des Bremsstrahlungsprozesses [167] wird die Polarisation mit der Methode der Matrixelemente berechnet. Für nichtrelativistische Elektronenenergien liegt eine Polarisation des elektrischen Feldvektors parallel zur Reaktionsebene Elektron-Photon vor, in der Nähe der Endpunktsenergie ist die Polarisation maximal  $P = -1$ .

$$\begin{aligned} P &= -(1 - D)\sin(\theta)^2 \\ D &= \frac{|n|^2}{3} \frac{1 + \frac{8}{5}|n|^2}{1 + \frac{8}{3}|n|^2} \end{aligned} \quad (2.34)$$

mit  $n = \frac{Z}{ka}$ , der Kernladungszahl  $Z$ , der Wellenzahl des einfallenden Elektrons  $k = \frac{mv}{\hbar}$ , dem Wasserstoffradius  $a = \frac{\hbar^2}{me^2}$ , der Elektronenmasse  $m$  und der Geschwindigkeit des einfallenden Elektrons  $v$  im Gaußschen CGS-System. Dieser Ansatz ist gültig für  $n \lesssim 0,5$ , für den niederenergetischen Teil nähert sich  $D$  nach numerischen Rechnungen von Maue [167] asymptotisch von unten an den Wert  $1/4$ . Bemerkenswert ist die Winkelabhängigkeit  $\sin(\theta)^2$ , demnach verschwindet der Anteil der linearen Polarisation unter  $0^\circ$ . Daten zur linearen Polarisation der Bremsstrahlung finden sich in Ref. [168].

Für relativistische Elektronenenergien im Bremsstrahlungsprozess ist die Polarisation des elektrischen Feldvektors dominant orthogonal zur Reaktionsebene Elektron-Photon [169] ausgerichtet. Die Wirkungsquerschnitte  $\sigma_{\parallel}$  und  $\sigma_{\perp}$  für parallel,  $P = -1$ , respektive orthogonal,  $P = +1$ , zur Reaktionsebene polarisierte Bremsstrahlung mit exponentiellem abfallendem Potential für die Abschirmung wurden in den Ref. [170, 171] berechnet. Die lineare Polarisation der Bremsstrahlung am hochenergetischen Ende des Spektrums ergibt sich nach Ref. [171] für kleine Streuwinkel zu

$$P = \frac{mk\Delta_0 - 2m^3}{k^2\Delta_0 - mk\Delta_0 + 2m^3}, \quad (2.35)$$

mit der Elektronenmasse  $m$ , der Photonenenergie  $k$ ,  $\Delta_0 = E_0 - p_0 \cos(\theta_0)$ , der Energie  $E_0$  des einfallenden Elektrons, dem Impuls  $p_0$  des einfallenden Elektrons und dem Winkel  $\theta_0$  zwischen  $\mathbf{p}_0$  und  $\mathbf{k}$ . Mit steigender Energie  $E_0$  des einfallenden

Elektrons reduziert sich der Anteil paralleler Polarisation am hochenergetischen Ende des Spektrums [171].

Unter exakter Berücksichtigung der Coloumb- und Abschirmungseffekte bestimmt sich die lineare Polarisation für hochrelativistische Elektronen, folglich vollständig orthogonal zur Reaktionsebene polarisierter Bremsstrahlung, nach Ref. [142] zu

$$P = \frac{8\epsilon_1\epsilon_2u^2\xi^2\Gamma}{(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)(3 + 2\Gamma) - 2\epsilon_1\epsilon_2(1 + 4u^2\xi^2\Gamma)}, \quad (2.36)$$

mit der Energie  $\epsilon = \frac{E}{mc^2}$  des einfallenden (1) und auslaufenden (2) Elektrons,  $u = p_1\theta_1$ ,  $\xi = (1 + u^2)^{-1}$ ,  $\Gamma = \ln(111Z^{-\frac{1}{3}}/\xi) - 2 - f(Z)$  bei kompletter Abschirmung,  $f(Z) = a^2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n(n^2+a^2)}$ ,  $a = \frac{Ze^2}{\hbar c}$ , der Elektronenmasse  $m$ , der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , dem Elektronenimpuls  $p_1$  des einfallenden Elektrons, dem Winkel  $\theta_1$  zwischen  $\mathbf{p}_1$  und  $\mathbf{k}$ , der Kernladungszahl  $Z$ , der Elementarladung  $e$  und dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum  $\hbar$ .

Aufgrund der unvollständigen Polarisation der Elektronen (s. Kap. 2.1) aus der spinpolarisierten Elektronenquelle entsteht ein gewisser Anteil des Bremsstrahlungsspektrums quasi aus unpolarisierten Elektronen. Somit liegt abseits der durch die einfallenden Elektronen definierten Achse linear polarisierte Bremsstrahlung vor. Diese kann sich eventuell störend auf Experimente mit zirkular polarisierter Bremsstrahlung auswirken, beispielsweise durch eine azimutale Anisotropie in der Winkelverteilung der Spaltfragmente [172–175].

## Zirkulare Polarisation

Spinpolarisierte Elektronen aus der Photoelektronenquelle des spinpolarisierten Injektors SPIN erzeugen im Bremsstrahlungsprozess zirkular polarisierte Photonen aufgrund des Übertrags der Helizität der spinpolarisierten Elektronen auf die emittierten Photonen. Coloumb- und Abschirmungseffekte zeigen jedoch keinen nennenswerten Einfluss auf die zirkulare Polarisation [142].

Die Polarisation des Bremsstrahlungsspektrums für longitudinal polarisierte Elektronen wächst mit steigender Photonenenergie  $k$ , ist bei  $k \approx \epsilon_1$  maximal und ergibt sich nach Ref. [142] zu

$$P = \pm \frac{k[(\epsilon_1 + \epsilon_2)(3 + 2\Gamma) - 2\epsilon_2(1 + 4u^2\xi^2\Gamma)]}{(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)(3 + 2\Gamma) - 2\epsilon_1\epsilon_2(1 + 4u^2\xi^2\Gamma)}, \quad (2.37)$$

mit der Energie  $\epsilon = \frac{E}{mc^2}$  des einfallenden (1) und auslaufenden (2) Elektrons,  $\Gamma = \ln(111Z^{-\frac{1}{3}}/\xi) - 2 - f(Z)$  bei kompletter Abschirmung,  $\xi = (1 + u^2)^{-1}$ ,  $u = p_1\theta_1$ ,  $f(Z) = a^2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n(n^2+a^2)}$ ,  $a = \frac{Ze^2}{\hbar c}$ , der Elektronenmasse  $m$ , der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , dem Elektronenimpuls  $p_1$  des einfallenden Elektrons, dem Winkel  $\theta_1$  zwischen  $\mathbf{p}_1$  und  $\mathbf{k}$ , der Kernladungszahl  $Z$ , der Elementarladung  $e$  und dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum  $\hbar$ .

Der maximale Polarisationsgrad der Bremsstrahlung longitudinal spinpolarisierter Elektronen ist deutlich größer als der maximale Polarisationsgrad der Bremsstrahlung transversal spinpolarisierter Elektronen. Der Grad der zirkularen Polarisation bei transversal spinpolarisierten Elektronen ist maximal für  $k \approx \frac{1}{2}\epsilon_1$  und verschwindet für  $k = 0$  und  $k = \epsilon_1$ . Ebenso wird die Polarisation maximal für den Fall eines in der Reaktionsebene Elektron-Photon orientierten Einheitsspinvektors  $\zeta_1$  des einfallenden Elektrons. Die Polarisation des Bremsstrahlungsspektrums für transversal polarisierte Elektronen ergibt sich nach Ref. [142] zu

$$P = \pm \frac{(\zeta_1 \cdot \mathbf{u})4k\epsilon_2\xi(1 - 2\xi)\Gamma}{(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)(3 + 2\Gamma) - 2\epsilon_1\epsilon_2(1 + 4u^2\xi^2\Gamma)}, \quad (2.38)$$

mit dem Einheitsvektor in Spinrichtung  $\zeta_1$  des einfallenden Elektrons,  $\mathbf{u}$ , dem zu  $\mathbf{k}$  senkrecht stehenden Anteil von  $\mathbf{p}_1$ , der Photonenenergie  $k$ , der Energie  $\epsilon = \frac{E}{mc^2}$  des auslaufenden (2) und einfallenden (1) Elektrons,  $\xi = (1 + u^2)^{-1}$ ,  $u = p_1\theta_1$ ,  $\Gamma = \ln(111Z^{-\frac{1}{3}}/\xi) - 2 - f(Z)$  bei kompletter Abschirmung,  $f(Z) = a^2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n(n^2+a^2)}$ ,  $a = \frac{Ze^2}{\hbar c}$ , der Elektronenmasse  $m$ , der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , dem Elektronenimpuls  $p_1$  des einfallenden Elektrons, dem Winkel  $\theta_1$  zwischen  $\mathbf{p}_1$  und  $\mathbf{k}$ , der Kernladungszahl  $Z$ , der Elementarladung  $e$  und dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum  $\hbar$ .

Der Grad der zirkularen Polarisation im Bremsstrahlungsprozess longitudinal polarisierter Elektronen integriert über die Winkelverteilung der Bremsstrahlungspotonen und alle Spinzustände des auslaufenden Elektrons lässt sich nach Ref. [142] angeben als

$$P = \frac{k(\epsilon_1 + \frac{1}{3}\epsilon_2)\zeta_{1z}}{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2 - \frac{2}{3}\epsilon_1\epsilon_2}, \quad (2.39)$$

mit der Photonenenergie  $k$ , der Energie  $\epsilon = \frac{E}{mc^2}$  des einfallenden (1) und auslaufenden (2) Elektrons und der longitudinalen Komponente des Einheitsvektors in Spinrichtung  $\zeta_{1z}$  des einfallenden Elektrons und ist nach Ref. [142] gültig für alle  $\epsilon_1$  und laut Ref. [138] numerisch verifiziert für den gesamten Energiebereich des supraleitenden Injektorbeschleunigers des S-DALINAC. Der Polarisationsübertrag ist maximal für Photonenenergien  $k = \epsilon_1$ , der Grad der zirkularen Polarisation des Bremsstrahlungsspektrums ist dann gleich dem longitudinalen Polarisationsgrad des Elektronenstrahls.

Seit der Entwicklung spinpolarisierter Elektronenquellen sind spinpolarisationsabhängige Observablen im Bremsstrahlungsprozess experimentell zugänglich, wie z.B. die Messung der Asymmetrie der Bremsstrahlung für transversal polarisierte Elektronen [176].

## 2.3 Kernspaltung

Kernspaltung bezeichnet den Prozess der Aufspaltung eines angeregten Kerns in zwei oder mehr Bruchstücke, eventuell unter Freisetzung von schnellen Neutronen. Typischerweise entstehen zwei Spaltfragmente, meist ein leichtes und ein schweres, jedoch abhängig von der Massenregion (und im Detail von Projektil, Anregungsenergie, etc.). Bei Uran ist die Massenzahl des leichten Spaltfragments verteilt um  $A=90$  und die Massenzahl des schweren Spaltfragments verteilt um  $A=140$ .

Aufgrund der hohen Dichte und des intensiven Energieaustausches der Nukleonen eines schweren Kerns postulierten Meitner und Frisch eine kollektive Bewegung der Nukleonen ähnlich einem Flüssigkeitstropfen [10]. Die Gesamtenergie des Kerns kann demzufolge durch

$$E = E_V + E_O + E_C + E_A + E_P, \quad (2.40)$$

mit der Volumenenergie  $E_V$ , der Oberflächenenergie  $E_O$ , der Coloumbenergie  $E_C$ , der Asymmetrieenergie  $E_A$  und der Paarenergie  $E_P$  beschrieben werden.

Im angeregten Zustand des Kerns sollte sich die Anregung durch Bewegungsmodi äußern, analog der Oszillation einer Flüssigkeitskugel unter dem Einfluss einer erhöhten Oberflächenspannung [177]. Kerne hoher Ordnungszahl weisen aufgrund der Coloumbwechselwirkung eine dem rückstellenden Einfluss der starken Kernkraft entgegengesetzte Wirkung auf.

Unter der Annahme einer inkompressiblen Kernflüssigkeit wird die Deformationsenergie des Kerns beschrieben durch

$$E_{Def}(\epsilon) = E_O(\epsilon) + E_C(\epsilon) - E_O(0) - E_C(0), \quad (2.41)$$

mit dem Deformationsparameter  $\epsilon$ . Dieser wird durch die Koeffizienten  $a_{lm}$  der Kugelflächenfunktionen  $Y_{lm}(\theta, \phi)$  in der winkelabhängigen Formulierung des deformierten Kernradius

$$R(\theta, \phi) = R_0 \left[ 1 + \sum_{l,m} a_{lm} Y_{lm}(\theta, \phi) \right] \quad (2.42)$$

beschrieben. Im einfachsten Fall einer Quadrupoldeformation ( $a_{20} \neq 0$ ) ist  $E_O(\epsilon) = E_O(0)(1 + \frac{2}{5}a_{20}^2)$  und  $E_C(\epsilon) = E_C(0)(1 - \frac{1}{5}a_{20}^2)$ . Einsetzen in Gl. (2.41) liefert für den Fall  $E_C < 2E_O$  eine negative Deformationsenergie, folglich Stabilität. Davon ausgehend definierten Bohr und Wheeler [13] den Spaltparameter

$$x = \frac{E_C(0)}{2E_S(0)}. \quad (2.43)$$

Ist  $x < 1$ , findet sich ein lokales Minimum im Multipolraum für sphärische Kerne. Für die Gruppe der Aktiniden gilt  $0,68 < x < 0,76$ , die Deformationsenergie in Abhängigkeit von Quadrupol- und Sextupoldeformationen im positiven Quadranten entlang des wahrscheinlichsten Weges für eine Kernspaltung zeigt einen gegenüber der Grundzustandsenergie positiven Sattelpunkt und repräsentiert die

Spaltbarriere. Numerische Berechnungen des Kernflüssigkeitstropfens unter Berücksichtigung von Multipolen bis  $l=16$  [178] liefern eine Höhe der Spaltbarriere relativ zur Energie des Grundzustands von

$$E \approx 0,83E_S(0)(1-x)^3. \quad (2.44)$$

Erweiterungen des Modells eines Kernflüssigkeitstropfens berücksichtigen die diffuse Kernoberfläche, eine krümmungsabhängige Oberflächenspannung, die spezielle Ladungsverteilung im Bereich der Oberfläche und die Kompressibilität der Kernflüssigkeit [179]. Trotz der Erweiterung versagt das Modell des Kernflüssigkeitstropfens in der Erklärung der Form eines Kerns mit  $x < 1$  im Grundzustand, insbesondere der Aktiniden, da aufgrund des lokalen Minimums der Kern eine sphärische Form haben sollte. Zudem vermag es keine Begründung für die asymmetrische Massenverteilung der Spaltfragmente in der Spaltung der Aktiniden zu liefern.

Im Rahmen des Schalenmodells auftretende mikroskopische Einteilcheneffekte erklären jedoch die sphärische oder deformierte Struktur der Kerne im Grundzustand sowie die asymmetrische Massenverteilung der Spaltfragmente. Das Schalenmodell berücksichtigt die Wechselwirkung der einzelnen Nukleonen untereinander in einem gemittelten Potential bestehend aus einem sphärischen Zentralpotential und einem Spin-Bahn-Term. Die Lösungen der Schrödinger-Gleichung ergeben Einteilchen-Energieniveaus und Wellenfunktionen für die einzelnen Nukleonen. Die Erweiterung für den Fall deformierter Kerne mit entsprechend deformiertem Potential wurde in Ref. [180] postuliert, die Lösungen der Schrödinger-Gleichung werden abhängig vom Deformationsparameter  $\epsilon$  ausgedrückt. Eine rein mikroskopische Betrachtung als Summe über alle Einteilchenzustände versagt jedoch in der Beschreibung der Kernspaltung aufgrund des nur näherungsweise korrekten Potentials des Schalenmodells und der Vernachlässigung der Restwechselwirkung der einzelnen Nukleonen untereinander.

Die Beschreibung der Kernspaltung erfolgt in Ref. [178] als Kombination des Kernflüssigkeitsmodells mit Berücksichtigung einer Schalenmodellkorrektur. Die Gesamtenergie des Kerns ergibt sich aus der Summe aus Volumen-, Oberflächen-

und Coloumbenergie, einem Renormalisierungsterm, in dem die einzelnen Einteilchenenergien des Schalenmodells durch eine gleichmäßige Verteilung der Zustände ersetzt wird, welche die Zustandsdichte widerspiegelt, aber nicht die tatsächliche Schalenstruktur, sowie einer Paarungskorrektur. Der Korrekturfaktor aufgrund der Renormalisierung des Schalenmodells in deformierten Kernen wird für niedrige Zustandsdichten negativ, für hohe Zustandsdichten positiv. Die Paarungskorrektur verhält sich dem entgegengesetzt, kompensiert jedoch nur partiell die deutlich stärkere Schalenkorrektur. Besonders große negative Schalenkorrekturen finden sich für Deformationen mit einem Achsenverhältnis von 2:1 des deformierten Kerns, dies entspricht ungefähr dem Maximum der Spaltbarriere im Modell des Kernflüssigkeitstropfens. Werden zudem nicht spiegelsymmetrische Formen eines Kerns berücksichtigt, ergibt sich daraus ein weiterer Einfluss auf die äußere Barriere [181], welcher eine weitere, einfache Erklärung für die asymmetrische Massenverteilung der Spaltfragmente in der Spaltung der Aktiniden liefert.

Aufgrund des Verhaltens der Schalenkorrektur ergibt sich eine doppelhöckrige Spaltbarriere. Für die Gruppe der Aktiniden entspricht das erste Minimum der Quadrupoldeformation im Grundzustand des Kerns und es existieren zwei separate Maxima in der Spaltbarriere, getrennt durch ein zweites Minimum, welches sich an der Position des Maximums der Spaltbarriere im Modell des Kernflüssigkeitstropfens befindet. Ausgehend von der Energie des Grundzustands im ersten Minimum der doppelhöckrigen Spaltbarriere für  $^{238}\text{Uran}$  ist die Energie des ersten Maximums 5,7 MeV, die Energie des zweiten Minimums 2,6 MeV und die Energie des zweiten Maximums 5,7 MeV [182].

## Photoneninduzierte Kernspaltung

Elektromagnetische Strahlung, wie in einem Bremsstrahlungsspektrum, bietet einen großen Vorteil in Untersuchungen der Kernspaltung, da die Wechselwirkung genauestens bekannt ist und festgelegten Auswahlregeln folgt. Im Gegensatz dazu stehen die aufgrund des Spin- und Drehimpulstransfers deutlich komplexeren Anregungsspektren der durch Teilchenanregung ausgelösten Kernspaltung. In niederenergetischen Anregungsspektren dominieren aufgrund des Anregungsmechanismus die elektrischen Dipolanregungen (E1), partiell liegen auch magneti-

sche Dipol- (M1) und elektrische Quadrupolanregungen (E2) vor, für angeregte gerade-gerade Kerne sind Gesamtdrehimpulse von  $1^-$ ,  $1^+$  und  $2^+$  möglich, der Anteil der E2-Anregung bei 6 MeV liegt bei etwa 2 % [183]. Anregungsenergien unterhalb der Spaltbarriere ermöglichen die Kernspaltung durch eine Durchdringung der Spaltbarriere, die Energieabhängigkeit des Spaltwirkungsquerschnitts bildet dann die Form der Spaltbarriere ab.

Die Spaltrate für eine bestimmte Endpunktsenergie des Bremsstrahlungsspektrums eines Elektronenstrahls der kinetischen Energie  $E_0$  ergibt sich zu

$$Y(E_0) = n \int_0^{E_0} N(E_0, E) \sigma(E) dE, \quad (2.45)$$

mit dem Normalisierungsfaktor  $n$ , dem Photonenfluss  $N(E_0, E)$  und dem Wirkungsquerschnitt der photoneninduzierten Kernspaltung  $\sigma(E)$ . Der Photonenfluss  $N(E, E_0)$  ergibt sich anhand von Monte-Carlo-Simulationen mit Geant 4.9.0 [162, 163], der Wirkungsquerschnitt der photoneninduzierten Kernspaltung  $\sigma(E)$  findet sich in Ref. [184].

Dem einfachen Anregungsspektrum photoneninduzierter Reaktionen steht jedoch die begrenzte Auflösung der Anregungsenergie im Bremsstrahlungsspektrum entgegen. Die mittlere Anregungsenergie  $\langle E \rangle$  im Bremsstrahlungsspektrum eines Elektronenstrahls der kinetischen Energie  $E_0$  berechnet sich zu

$$\langle E \rangle = \frac{\int_0^{E_0} N(E, E_0) \sigma(E) E dE}{\int_0^{E_0} N(E, E_0) \sigma(E) dE}. \quad (2.46)$$

## Paritätsverletzung in photoneninduzierter Kernspaltung

In Spaltexperimenten mit polarisierten thermischen Neutronen [20–26] zeigt sich eine bevorzugte Emission des leichten Spaltfragments parallel oder antiparallel zur Helizität der Neutronen. Obwohl anhand des Verhältnisses der Kopplungskonstanten der starken und schwachen Wechselwirkung ein paritätsverletzender Effekt in der Größenordnung von  $10^{-7}$  zu erwarten wäre, finden sich Hinweise auf eine signifikante Verstärkung des paritätsverletzenden Effektes bis zu einer Größenordnung von  $10^{-4}$  [20].

In der statistischen Theorie der Kernreaktionen [185] erfolgt eine Analyse dieser Symmetriebrechung in Kernzwischenzuständen [177], wobei die hohe Niveaudichte und die selektive Anregung von Zuständen durch niedrige Impulsüberträge [27] zur Erklärung herangezogen wird. Offene Fragen [26, 186, 187] bezüglich der detaillierten Beschreibung der Verstärkung könnten durch die Messung des paritätsverletzenden Effekts in der Kernspaltung mit einer anderen Sonde geklärt werden.

In der photoneninduzierten Spaltung  $^{238}\text{U}(\gamma, f)$  kann ein paritätsverletzender Effekt in der Vorwärts-Rückwärts-Asymmetrie des leichten und schweren Spaltfragments mit zirkular polarisierter Bremsstrahlung mit einem hohen Polarisationsgrad in der Nähe der Endpunktsenergie untersucht werden. Messbare Effekte sollten auch im Fall eines breiten Anregungsspektrums in Erscheinung treten [28, 29].

Für jedes der angeregten Niveaus lässt sich eine Vorwärts-Rückwärts-Asymmetrie des leichten und schweren Spaltfragments mit zufällig verteiltem Vorzeichen definieren, je nachdem, ob das leichte Spaltfragment vorwärts oder rückwärts gerichtet emittiert wird. Jedes dieser Niveaus ist unterschiedlich stark und wird unterschiedlich angeregt. Die Wahrscheinlichkeit für eine Emission in Vorwärts- oder Rückwärtsrichtung ergibt sich dann aus dem quadratischen Mittelwert über alle angeregten Niveaus und ist stark abhängig von der präzisen Wahl der Endpunktsenergie. Schwankungen in der Anregungsenergie können aufgrund der hohen Niveaudichte den paritätsverletzenden Effekt gegenüber  $10^{-4}$  weiter verdünnen.

Die Größe des messbaren Effektes wird zudem beeinflusst von der longitudinalen Polarisation der Elektronen und dem Polarisationsgrad der zirkular polarisierten Bremsstrahlung, dem Qualitätsfaktor der spinpolarisierten Elektronenquelle, der Kenntniss der Polarisation mittels präziser absoluter und relativer Polarimetrie, sowie möglicherweise von azimuthaler Anisotropie aufgrund abseits der Strahlachse einfallender linear polarisierter Bremsstrahlung.

Für einen statistisch signifikanten Nachweis des paritätsverletzenden Effektes ist trotz der eventuellen Verstärkung eine hohe Luminosität erforderlich. Höhere Zählraten lassen sich zum einen durch eine Intensivierung des Photonенflusses erreichen. Die Verwendung eines Tantal-Bremsstrahlungsradiators verdoppelt in

etwa den Photonenfluss [45], der zu erwartende Einbau eines verbesserten Kryostatmoduls [34] im supraleitenden Injektorbeschleuniger soll Strahlströme von bis zu  $150 \mu\text{A}$  ermöglichen, der maximale Photonenfluss steigt um den Faktor 2,5. Andererseits kann die Massenbelegung einer  $^{238}\text{Uran(IV)}$ -fluorid-Folie erhöht werden, jedoch ist, wie in den Refn. [16, 17] dargelegt, die Auflösung der Massen- und Winkelverteilung bei konventionellen Materialfolien invers zur verwendeten Massenbelegung.

Die Entwicklung einer aktiven  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Detektor-Kammer für Präzisionsexperimente in der photoneninduzierten Spaltung soll höhere  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichten ermöglichen, ohne die Auflösung der Massen- und Winkelverteilung zu limitieren. Hierzu muss insbesondere das Verhalten von gasförmigem  $\text{Uran(VI)}$ -fluorid als Beimischung zu dem Zählgas einer Ionisationskammer untersucht werden.

## 2.4 Uran(VI)-fluorid

### Uran

Uran ist ein chemisches Element metallischer Natur mit der Ordnungszahl 92 und wird im Periodensystem der Gruppe der Aktiniden zugeordnet. Die Isotopenzusammensetzung von natürlich vorkommendem Uran ist in Tab. 2.1 aufgeführt. Ebenso sind die Massen der Isotope, deren Halbwertszeiten und der Anteil der Zerfallskanäle durch  $\alpha$ -Zerfall und spontane Spaltung angegeben.

Industriell verarbeitetes Uran liegt üblicherweise in einer an- oder abgereicherten Form vor. In angereichertem Uran ist der Isotopenanteil des  $^{235}\text{Uran}$  von 0,72 % auf Werte von mindestens 3 % und aufwärts angehoben. In abgereichertem Uran ist der Isotopenanteil des  $^{235}\text{Uran}$  von 0,72 % auf einen Wert von 0,2 % abgesenkt, der Isotopenanteil des  $^{238}\text{Uran}$  ist von 99,27 % auf einen Wert von 99,8 % angehoben und die spezifische Aktivität ist im Vergleich zu natürlichem Uran um ca. 40 % verringert.

Isotop	Masse [u]	Massenanteil	Halbwertszeit	$\alpha$ -Zerfall	Spontane Spaltung
$^{234}\text{U}$	234,0409521(20)	0.0054(5) %	$2,455(6) \cdot 10^5$ a	100 %	$1,64(22) \cdot 10^{-9}$ %
$^{235}\text{U}$	235,0439299(20)	0.7204(6) %	$7,038(5) \cdot 10^8$ a	100 %	$7,0(2) \cdot 10^{-9}$ %
$^{236}\text{U}$	236,0455680(20)	$<10^{-10}$ %	$2,342(4) \cdot 10^7$ a	100 %	$9,4(4) \cdot 10^{-8}$ %
$^{238}\text{U}$	238,0507882(20)	99.2742(10) %	$4,468(3) \cdot 10^9$ a	100 %	$5,45(7) \cdot 10^{-5}$ %

Tabelle 2.1: Auflistung der natürlich vorkommenden Uranisotope und ihrer Massen [188], dem jeweiligen Massenanteil [189–193] an der Isotopenzusammensetzung von natürlich vorkommendem Uran, deren Halbwertszeiten und der Anteil der Zerfallskanäle durch  $\alpha$ -Zerfall und spontane Spaltung [189–193].

Isotop	Masse [u]	Massenanteil
$^{234}\text{U}$	234,0409521(20)	0.00070(01) %
$^{235}\text{U}$	235,0439299(20)	0.16713(28) %
$^{236}\text{U}$	236,0455680(20)	0.00373(01) %
$^{238}\text{U}$	238,0507882(20)	99.82844(29) %

Tabelle 2.2: Auflistung der Uranisotope und ihrer Massen [188] sowie dem jeweiligen Massenanteil an der Isotopenzusammensetzung der verwendeten Uran(VI)-fluoridprobe IRMM-019 [194].

Für die aktive  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Detektor-Kammer wurde eine Materialprobe mit möglichst hohem  $^{238}\text{Uran}$ anteil verwendet. Die spezielle Isotopenzusammensetzung der verwendeten Uran(VI)-fluoridprobe IRMM-019 [194] ist in Tab. 2.2 aufgeführt.

## Gesundheitsrisiken

Uran ist ein sehr giftiger Stoff und zudem reproduktionstoxisch, sämtliche Isotope, ob natürlich oder synthetisch, sind radioaktiv.

Im menschlichen Körper existieren ca.  $90\ \mu\text{g}$  Uran, die über Wasser, Nahrung und Luft eingenommen werden. Hiervon lagern sich 66 % im Skelett ab, 16 % in der Leber, 8 % in den Nieren und 10 % im übrigen Gewebe. Mehr als 95 % des in den Körper eindringenden Urans wird nicht absorbiert, sondern auf natürlichem Wege wieder ausgeschieden. Zwischen 0,2 % und 2 % des Urans aus Wasser und Nahrung wird im Verdauungstrack absorbiert, lösliche Uranverbindungen eher als unlösliche. Das im Blut gelöste Uran wird zu ca. 67 % in den Nieren ausgefiltert und innerhalb von 24 h ausgeschieden. Die hauptsächlich betroffenen Organe sind Lunge und Nieren, in diesen liegt sowohl eine chemische als auch eine radiologische Toxizität vor. In der Lunge verbleibende Partikel unlöslicher Uranverbindungen in der Größenordnung von  $1\text{-}10\ \mu\text{m}$  können zu Strahlungsschäden und bei entsprechend hoher Dosis auch zu Lungenkrebs führen [195].

Die Grenzwerte für abgereichertes Uran beruhen auf der Annahme einer Langzeitbelastung über die gesamte Lebensdauer eines Menschen, ohne das wahrnehmbare Gesundheitseinbußen auftreten. Der Grenzwert für die allgemeine Bevölkerung liegt bei der Aufnahme durch Wasser und Nahrung für lösliche Uranverbindungen bei  $0,5\ \mu\text{g}$  pro kg Körpergewicht und Tag, die Toxizität unlöslicher Uranverbindungen ist für die Nieren geringer, der Grenzwert liegt hier bei  $5\ \mu\text{g}$  pro kg Körpergewicht und Tag. Bei der Aufnahme durch Luft liegt der Grenzwert für lösliche und unlösliche Uranverbindungen bei  $1\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Bei einer beruflich bedingten Exposition durch Einatmen liegt der Grenzwert für lösliche und unlösliche Uranverbindungen bei  $50\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  [195].

Kurzzeitige Belastungen können höhere Toleranzlevel aufweisen, ohne das gesundheitliche Schäden zum Vorschein kommen, allerdings liegen keine quantitativen Daten vor, inwieweit die Langzeitbelastungen risikolos überschritten werden können. Bei einer erhöhten Uranbelastung existiert derzeit keine medizinische Behandlung, welche in der Lage ist den angestiegenen Urananteil zu vermindern, sofern seit der Exposition bereits ein Zeitraum von einigen Stunden überschritten wurde. Betroffene Personen können daher ausschließlich anhand der Symptome behandelt werden [195].

Die gesundheitlichen Risiken der Exposition mit Uran bilden einen wesentlichen Faktor in der Beurteilung der gesundheitlichen Risiken einer Exposition mit Uran(VI)-fluorid.

## **Uran(VI)-fluorid**

Uran(VI)-fluorid ist ein chemisches Molekül aus einem Teil Uran und sechs Teilen Fluor. Eine erste Erwähnung der Synthetisierung von Uran(VI)-fluorid als weißer Rauch bei der Reaktion von Uran mit elementarem Fluor findet sich 1900 durch Moissan in Ref. [196], aufgrund der sehr geringen Menge war eine chemische Analyse jedoch zu diesem Zeitpunkt nicht möglich. Erst 1909, als Ruff im Rahmen seiner Forschung über die Chemie des Fluors und der Fluoride eine Reaktion von Uranpentachlorid mit elementarem Fluor durchführte, gelang eine Darstellung des Uran(VI)-fluorids in ausreichender Menge für chemische und physikalische Analysen [197]. Eine erste detaillierte Beschreibung der chemischen und physikalischen Eigenschaften erfolgte in Ref. [198]. Die Experimente mit Uran(VI)-fluorid werden als sehr herausfordernd beschrieben, die extreme Reaktionsfähigkeit des Uran(VI)-fluorids ähnlich der des elementaren Fluors erfordert Erfahrung, spezielle Gerätschaften und besondere Methoden [199].

Bei Raumtemperatur und Normaldruck liegt Uran(VI)-fluorid als farbloser, kristalliner Feststoff in einem orthorhombischen Gitter [200] als Anordnung isolierter Uran(VI)-fluoridmoleküle mit deformierter Oktaederstruktur [201] vor. Es ist leichtflüchtig mit einem Dampfdruck von 153 mbar bei 25°C, aufgrund des Urans radioaktiv und aggressiv im Kontakt zu fast allen Stoffen. Es ist beständig in trockener Luft, reagiert jedoch sehr heftig mit Wasser unter Bildung von Ura-

nylfluorid  $\text{UO}_2\text{F}_2$  und Fluorwasserstoff. Der Sublimationspunkt für Uran(VI)-fluorid liegt für einen Druck von 1013,25 mbar bei  $56,54^\circ\text{C}$  [202]. Im gasförmigen Zustand existiert Uran(VI)-fluorid als regulärer Oktaeder mit einer Bindungslänge von  $1,996 \text{ \AA}$  [203]. Die Aggressivität des Uran(VI)-fluorides gegenüber fast allen Stoffen, insbesondere Wasserdampf, bedingt besondere Vorkehrungen im Umgang mit Uran(VI)-fluorid [204]. Zur Verwendung kommen insbesondere Ganzmetallapparaturen in Betracht. Als Material eignen sich austenitische Edelmehle bis zu Temperaturen von  $90^\circ\text{C}$ , die relativ beste Beständigkeit weisen Edelmehle mit mindestens 17 % Chrom- und 8 % Nickelgehalt auf. Verbindungen innerhalb der Apparaturen müssen geschweißt oder vakuumgelötet werden, es dürfen keine Lote verwendet werden, deren Bestandteile flüchtige Fluoride bilden. An Stellen, an denen eine Schweißverbindung nicht möglich ist, kommen ganzmetallische Flanschsysteme nach dem CF-Standard [205] mit Kupferdichtungen bis zu einer Temperatur von  $100^\circ\text{C}$  in Frage. Falls der Einsatz von Elastomeren notwendig ist, sollten diese fluoriert sein, wie z. B. Polytetrafluorethylen (PTFE, Teflon<sup>®</sup>) oder ein Perfluorkautschuk wie Kalrez<sup>®</sup>. Absperrventile sollten demzufolge idealerweise ganzmetallisch dichtend ausgeführt sein.

Die fertig konzipierte Apparatur zur Untersuchung von Uran(VI)-fluorid und seiner Eigenschaften muss vollständig dicht sein, um ein Eindringen atmosphärenseitiger Feuchtigkeit zu vermeiden. Sämtliche mit Uran(VI)-fluorid in Berührung kommenden Oberflächen müssen durch Elektropolieren oder Glasperlenstrahlen von Metalloxiden gereinigt werden sowie sorgfältig entfettet werden. Die abschließende Dichtigkeitskontrolle erfolgt mittels eines Helium-Lecksuchers.

## Gaseigenschaften

Die Dichte des gasförmigen Uran(VI)-fluorides  $D$  ( $\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ ) bestimmt sich nach Ref. [206] zu

$$D = \frac{4,348 \cdot p}{T \left(1 + \left(-1,395 \cdot 10^6 \cdot \frac{p}{T^3}\right)\right)}, \quad (2.47)$$

mit dem Druck  $p$  in bar und der Temperatur  $T$  in K.

Der Dampfdruck über festem Uran(VI)-fluorid beträgt nach Ref. [202]

$$\lg p = 6,38353 + 0,0075377 \cdot t - \frac{942,76}{t + 183,416} + \lg 1,3322, \quad (2.48)$$

mit dem Druck  $p$  in bar und der Temperatur  $t$  in °C, gültig im Temperaturbereich von 0°C bis 64°C. Bei der Temperatur flüssigen Stickstoffs beträgt der Dampfdruck über festem Uran(VI)-fluorid  $1,33 \cdot 10^{-18}$  mbar -  $1,33 \cdot 10^{-19}$  mbar [207].

## Gesundheitsrisiken

Uran(VI)-fluorid ist ebenfalls ein sehr giftiger Stoff, reproduktionstoxisch und zudem umweltgefährdend.

Die Aufnahme von Uran(VI)-fluorid geschieht hauptsächlich über die Atemwege, eine Exposition schließt auch die Reaktionsprodukte der Hydrolyse, Uranylfluorid  $\text{UO}_2\text{F}_2$  und Fluorwasserstoff, mit ein. Die Uranverbindungen werden zu ca. 50 %, der Fluorwasserstoff zu fast 100 % ins menschliche Blut resorbiert [208].

Uran(VI)-fluorid ist extrem toxisch und zeigt zwei verschiedene Giftwirkungen, zum einen die rein chemische Wirkung des Fluorwasserstoffs sowie die chemische und, je nach Isotopenzusammensetzung, die radiotoxische Wirkung durch das Uran und Uranverbindungen. Akute Expositionen wie ein Kontakt mit den Augen oder der Haut führen zu schwersten Verätzungen, ähnlich einer direkten Flusssäureexposition. Selbst feinste Aerosoltröpfchen vermögen bereits die Hornhaut des Auges zu trüben. Aufgrund der akuten Toxizität ist eine chronische Belastung nur bei geringsten Uran(VI)-fluoridmengen zulässig. Die chronische Toxizität leitet sich maßgeblich aus der chronischen Toxizität des Urans ab [208].

Zur Beurteilung der Toxizität im regelmäßigen Umgang dienen im Allgemeinen die maximalen Arbeitsplatz-Konzentrationen (MAK). Diese sind für eine tägliche Exposition von 8 h und eine Wochenarbeitszeit von 40 h angegeben. Tabelliert ist jedoch nur der MAK-Wert für Uran und seine schwer löslichen anorganischen Verbindungen von  $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$  sowie für die löslichen anorganischen Verbindungen von  $250 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , bestimmt anhand der Grenzwerte der Strahlenschutzkommission von 20 mSv/a [209]. Der MAK-Wert für Fluorwasserstoff ist mit  $0,83 \text{ mg}/\text{m}^3$  angegeben [209].

Alle Arbeiten mit erhöhtem Kontaminationsrisiko an der mit Uran(VI)-fluorid gefüllten Detektor-Kammer wurden unter Verwendung geeigneter persönlicher Schutzausrüstung in speziellen Abzugssystemen für den Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen durchgeführt. Ein Einsatz am Niederenergie-Messplatz DHIPS ohne die ständige Verwendung persönlicher Schutzausrüstung sowie eines geeigneten Abzugssystems erfordert zusätzliche Sicherheitsmaßnahmen, wie z.B. eine Niederdruck-Einhausung mit eigenem, gefiltertem Abluftsystem.

Da während einer Strahlzeit nur selten Arbeiten direkt an der mit Uran(VI)-fluorid gefüllten Detektor-Kammer durchgeführt werden, ist eine Beurteilung der Toxizität bei einer einmaligen oder seltenen Exposition sinnvoller. Hierzu werden international sog. Acute Exposure Guideline Levels (AEGL) für die Toleranzgrenze gegenüber einem in der Luft vorhandenen gasförmigen Stoff entwickelt, unterteilt in drei Kategorien. AEGL-1 bezeichnet die Schwelle für ein spürbares Unwohlsein, AEGL-2 die Schwelle für irreversible oder andere schwerwiegende, lang andauernde Gesundheitseffekte und AEGL-3 die Schwelle zur tödlichen Wirkung. Für eine kurze Exposition von 10 min Dauer liegen die Schwellwerte für AEGL-1 bei  $3,6 \text{ mg/m}^3$ , für AEGL-2 bei  $28 \text{ mg/m}^3$  und für AEGL-3 bei  $216 \text{ mg/m}^3$  [210].

### 3 Messapparat

Zur Untersuchung der Eigenschaften von gasförmigem  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$  in Argon und einer geeigneten Beimischung wurde unter Berücksichtigung der für Uran(VI)-fluorid aufgeführten Besonderheiten eine einfache Frisch-Gitter-Ionisationskammer, bestehend aus Anode, Gitter und Kathode, konstruiert.

Andere, in Ionisationskammern übliche Gasgemische, wie z.B. P10-Gas (Argon mit einer Beimischung von 10 % Methan), wurden nicht untersucht, da sämtliche Kohlenwasserstoffe von Uran(VI)-fluorid angegriffen werden. Unter Kohlung bilden sich Fluorwasserstoff und Uran(IV)-fluorid.

#### Frisch-Gitter-Ionisationskammer

Eine Ionisationskammer dient dem Nachweis der ionisierenden Wirkung geladener Teilchen in einem Medium. Kern der Ionisationskammer ist ein Plattenkondensator mit einem gasförmigen Dielektrikum zur Erzeugung eines elektrischen Feldes. Die aufgrund der Ionisation entstehenden Elektronen und Ionen bewegen sich aufgrund der angelegten Hochspannung im elektrischen Feld auf die entgegengesetzt geladenen Elektroden zu, aufgrund der unterschiedlichen Massen mit unterschiedlichen Driftgeschwindigkeiten. Infolge ihrer höheren Masse bewegen sich die Ionen ca. um den Faktor 1000 langsamer. Die Driftgeschwindigkeit  $v$  der Elektronen bestimmt sich zu

$$v = \mu \frac{E}{p}, \quad (3.1)$$

mit der Teilchenmobilität  $\mu$ , der elektrischen Feldstärke  $E$  und dem Gasdruck  $p$ . Die Driftgeschwindigkeit, z.B. in Argon, wächst mit steigendem  $\frac{E}{p}$  bis zu einem Punkt maximaler Sättigung, um sich anschließend auf einem Plateau zu stabilisieren. Elektronenverluste aufgrund einer Rekombination von Elektronen und Ionen lassen sich durch eine Erhöhung der elektrischen Feldstärke bis zum Maximum der Sättigungskurve reduzieren. Schwere geladene Teilchen im Gas (Uran(VI)-fluoridionen), die ebenfalls mit den Elektronen rekombinieren können, erhöhen die für eine elektrische Feldstärke auf dem Punkt maximaler Sättigung

benötigte Hochspannung. Eine hohe Dichte positiv geladener Ionen ( $\alpha$ -Teilchen) erhöht ebenso die Wahrscheinlichkeit einer Rekombination. Die angelegte Hochspannung ist so zu wählen, dass die mittlere Zeit bis zu einer Rekombination größer als die Driftzeit bis zur Kollektorelektrode ist. Zur Erzeugung eines schnellen elektrischen Pulses werden die Elektronen als gesammelte Ladung auf der Anode über einen Widerstand als Strompuls abgeführt. Die Pulshöhe ist abhängig vom Entstehungsort der Ionisation. Als Grundlage des Detektorgases wird Argon verwendet, da dieses keine negativen Ionen bildet und daher vorteilhaft für die Erzeugung möglichst kurzer Pulse ist. Ein zusätzliches Detektorgas kann durch inelastische Stöße mit den Elektronen deren Temperatur reduzieren und bewirkt somit ebenfalls eine Verkürzung des Strompulses.

Ein zusätzliches, sog. Frisch-Gitter [211] auf Erdpotential trennt das sensitive Volumen zwischen Kathode und Gitter von dem Kollektorraum zwischen Anode und Gitter. Die aufgrund der Ionisation entstehenden Elektronen driften in Richtung des Gitters, erst nachdem die Elektronen das Gitter passiert haben entsteht ein detektierbares Signal auf der Anode. Der Einsatz des Gitters reduziert die Abhängigkeit der Pulshöhe vom Entstehungsort der Ionisation. Ebenso verbessert sich die Zeitauflösung und die Pulshöhe steigt an, da sich der messbare Strompuls erst nach der Passage des Gitters auf der Anode ausbildet.

### 3.1 Detektor-Kammer

Nach dem Prinzip einer Frisch-Gitter-Ionisationskammer wurde eine Detektor-Kammer entworfen, um die Eigenschaften eines Argon/Uran(VI)-fluorid-Gasgemisches als Detektor-Gas experimentell zu bestimmen. Insbesondere die spezielle Beschaffenheit des Uran(VI)-fluorides wurde bei der Ausarbeitung des Designs berücksichtigt. Auf der Kathode ist eine  $\alpha$ -Quelle mit drei Referenzenergien positioniert, um anhand der Referenzsignale die Eigenschaften des Gasgemisches zu charakterisieren. Diese besteht aus den Elementen  $^{239}\text{Plutonium}$ ,  $^{241}\text{Americium}$  und  $^{244}\text{Curium}$  und liefert entsprechend den vorgenannten Elementen  $\alpha$ -Teilchen mit Energien von 5155 keV, 5480 keV und 5795 keV mit einer Aktivität von je-

weils 1 kBq. Der Abstand zwischen Kathode und Gitter wurde so gewählt, dass die emittierten  $\alpha$ -Teilchen ihre gesamte Energie im sensitiven Volumen zwischen Kathode und Gitter deponieren.

Zur Verwendung kommen aufgrund der Anforderung an die erforderliche niedrige Leckrate und eine hohe Ausheizbarkeit Vakuumkomponenten nach dem CF-Standard [205], welche vakuumseitig eine Vertiefung zur Aufnahme einer Dichtung sowie eine Schneidkante als Dichtfläche aufweisen. Die Abdichtung erfolgt durch eine sauerstofffreie (OFHC) Kupferflachdichtung, der notwendige Anpressdruck wird durch gleichmäßiges Anziehen der Schraubverbindungen erzielt. Die Leckrate liegt nach Herstellerangaben bei Werten  $< 1,0 \cdot 10^{-11}$  mbar l/s pro Verbindung, temperaturbeständig bis 450°C. Die äußeren CF-Vakuumkomponenten der Detektor-Kammer wurden als Auftragsarbeit bei der Firma Vacom aus Edelstahl 1.4404 (X2CrNiMo17-12-2, 316L), einem austenitischen, rostfreien Stahl für erhöhte Anforderungen an die Korrosionsbeständigkeit gefertigt, gereinigt und ausgeheizt.

Die Gasverrohrung besteht aus Swagelok<sup>®</sup> VCR<sup>®</sup>-Komponenten aus Edelstahl 1.4404. Hier wird eine Kupferdichtscheibe zwischen zwei Dichtlippen komprimiert, indem durch die Verschraubung einer Außengewindemutter in einer Innengewindemutter der notwendige Anpressdruck hergestellt wird. Die Leckrate liegt nach Herstellerangaben bei Werten  $< 4,05 \cdot 10^{-11}$  mbar l/s pro Verbindung, temperaturbeständig bis 204°C.

Die im Inneren der Detektor-Kammer verbauten Komponenten sowie die MHV-Spannungsdurchführungen (Miniatur High Voltage) wurden aus Edelstahl 1.4301 (X5CrNi18-10, 304), einem austenitischen, rostfreien und säurebeständigen Stahl, gefertigt. Isolierende Komponenten wurden aus Polytetrafluorethylen (PTFE), einem hochinerten Fluor-Kohlenstoff-Polymer gefertigt, welches erstmals während des Manhattan-Projekts als Korrosionsschutz bei der Urananreicherung technisch genutzt wurde. Ein Einsatz ist möglich bis zu Temperaturen von 260°C. Zur internen Verkabelung dienen Verbindungselemente aus Kupfer in einer PTFE-Hülle sowie PTFE-beschichtete Kupferkabel.

Sämtliche Komponenten wurden mehrfach in einem Ultraschallbad gereinigt, um Fette auf der Oberfläche zu entfernen und anschließend in einem Reinraum für

3 Tage bei einer Temperatur von 200°C zur Trocknung und Reduktion des gebundenen Wasser- und Wasserstoffanteils [212] ausgeheizt. Die Fertigungstoleranzen belaufen sich auf 0,05 mm.

Die im Rahmen dieser Arbeit entworfene Detektor-Kammer ist wie folgt aufgebaut:

Den äußeren Rahmen bildet ein in seinem Volumen auf die Erfordernisse der geplanten Messungen angepasster invertierter Hohlzylinder mit einem Innendurchmesser von 150 mm, einer freien Tiefe von 86 mm, einer Wandstärke von 2 mm, einer Bodenstärke von 5 mm und einem offenen, drehbaren CF-150-Flansch an der Oberseite. Die offene Oberseite des Hohlzylinders wird durch einen CF-150-Blindflansch mit einer Materialstärke von 22 mm vakuumdicht verschlossen. Dieser ist speziell angefertigt, mit zwei VCR-Flanschen für den Gasein- und auslass sowie drei MHV-Spannungsdurchführungen. Auf der innenliegenden Seite sind Gewindelöcher angebracht, zum einen drei 5 mm tiefe M3-Gewinde mit einer Winkeldifferenz von 120° zueinander auf einem Lochkreis von 135 mm Durchmesser zur Installation der Elemente des Frisch-Gitters sowie zwei sich gegenüberliegende 5 mm tiefe M8-Gewinde auf einem Lochkreis von 142 mm Durchmesser positionsgleich mit dem Gasein- und auslass für die interne Gasverrohrung.

An den Gaseinlass sind über ein T-Stück zwei Massenflussregler angeschlossen, welche jeweils über ein Absperrventil vollständig vom Gassystem der Detektor-Kammer getrennt werden können. Ein Massenflussregler [213] mit einem maximalen Durchfluss von 1 mln/min ist über ein Absperrventil und einen Druckminderer an eine Gasflasche mit hochreinem Argon 6.0 angeschlossen. Der an der Einlassseite des Massenflussreglers anliegende absolute Argondruck beträgt 2,2 bar. Der andere Massenflussregler [214] mit einem maximalen Durchfluss von 10 mln/min ist über ein zweites Absperrventil an das Uran(VI)-fluoridreservoir [194] mit hochreinem  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$  angeschlossen.

An den Gasauslass ist über einen Wellbalg ein Vakuumsystem angeschlossen, welches über ein Absperrventil vollständig vom Gassystem der Detektor-Kammer getrennt werden kann. Das Vakuumsystem besteht aus einer Kryofalle mit vor- und nachgeschaltetem Absperrventil und nachgeschalteter Vakuumpumpe mit einer Saugleistung von 1390 l/min der Firma Leybold-Heraeus, Typ ADEB 71N4R3,

einem Dosierventil zur Regulierung der Saugleistung und einem Druckmessfühler der Firma balzers, Typ TPR 010 an einer Ausleseinheit, Typ TPG 300. Der gemessene Enddruck lag bei  $1,3 \cdot 10^{-2}$  mbar.

Zwei MHV-Spannungsdurchführungen liegen mit einer Winkeldifferenz von  $60^\circ$  zueinander auf einem Lochkreis von 120 mm Durchmesser, die dritte MHV-Spannungsdurchführung liegt mit einer Winkeldifferenz von  $150^\circ$  zu den beiden anderen auf einem Lochkreis von 80 mm Durchmesser. Die drei MHV-Spannungsdurchführungen stellen auf der Außenseite über Vorverstärker den elektrischen Kontakt zwischen der Hochspannungsversorgung der Anode und der Kathode sowie zur Erdung des Gitters her und leiten die gemessenen Anoden- und Kathodensignale an das Datenaufnahmesystem weiter.

Auf der Innenseite weisen die MHV-Spannungsdurchführungen einen Stift mit einem Durchmesser von 2,4 mm und abgerundeter Spitze auf. Dieser Stift ragt 9,8 mm über die Oberfläche des CF-150-Blindflansch hinaus. In die innenliegende Vertiefung der MHV-Spannungsdurchführung ist ein PTFE-Hohlzylinder mit einem Durchmesser von 10,8 mm, einer Wandstärke von 0,9 mm, einer Tiefe von 14 mm und einer kreisförmigen Verbreiterung mit einem Durchmesser von 36 mm und einer Materialstärke von 1 mm an der Oberfläche des CF-150-Blindflansches eingesetzt, um die isolierende Wirkung der MHV-Spannungsdurchführung auf der Innenseite zu verstärken.

Auf den Stift der MHV-Spannungsdurchführung ist ein Verbindungsstück aus Kupfer gesteckt. Dieses hat eine L-Form, die Breite beträgt 4 mm, die Länge des Stift-Schenkels 7 mm, mit einer Bohrung von 7 mm Tiefe mit einem Durchmesser von 2,4 mm, geschlitzt über die gesamte Länge, die Länge des Kabel-Schenkels beträgt 13 mm, mit einer Bohrung von 8 mm Tiefe mit einem Durchmesser von 1,4 mm, geschlitzt über eine Länge von 8 mm. Nach der Aufnahme des abisolierten Teils des Kupferkabels wurden die beiden durch einen Schlitz getrennten Teile für einen optimalen Halt des Kupferkabels mit einer Zange zusammengepresst.

Die elektrische Verbindung zu Anode, Kathode und Gitter wird über PTFE-isolierte Kupferkabel hergestellt. Diese sind ca. 18 cm lang, hiervon sind ca. 3 cm abisoliert.

Das Kupfer-Verbindungsstück ist vollständig von einem aus PTFE gefertigtem Kabelschuh umschlossen. Dieser ist in Richtung des Stiftes und in Richtung des Kupferkabels offen, die Materialstärke der isolierenden PTFE-Schicht beträgt an den Seiten 2 mm, nach oben in Richtung des CF-150-Blindflansches 5 mm, nach unten in Richtung des PTFE-Schildes 1 mm.

In die mit dem Gasein- und auslass positionsgleichen M8-Gewinde im CF-150-Blindflansch sind spezielle PTFE-Gasrohre eingeschraubt. Diese haben eine Länge von 33 mm, einen Durchmesser von 6 mm, am oberen Ende ein 5 mm langes M8-Gewinde, eine 31 mm tiefe Bohrung mit einem Durchmesser von 4 mm, 2 mm Bodenstärke und am unteren Ende eine seitlich gerichtete 5 mm hohe und 3,5 mm breite Öffnung im Abstand von 2 mm vom unteren Ende.

Die im Inneren verbauten Komponenten werden von drei 81 mm langen Gewindestangen mit 5 mm M3-Gewinde am oberen Ende, einem Durchmesser von 2 mm und 5 mm M2-Gewinde am unteren Ende in Position gehalten. Diese sind in die Gewindelöcher des CF-150-Blindflansch eingeschraubt, die inneren Komponenten hängen in der Detektor-Kammer frei nach unten.

Ein Abstandshalter aus PTFE mit einer Länge von 13 mm, einem Durchmesser von 5 mm und einer durchgängigen Bohrung mit einem Durchmesser von 2,1 mm zur Aufnahme der Gewindestangen platziert die Kathode an der vorgesehenen Position. Ein 9 mm langer Stift mit einem Durchmesser von 3,1 mm stellt über eine Nut im nächsten Abstandshalter eine durchgängige isolierende Verbindung her.

Auf dem Abstandshalter ist ein nach unten gerichteter PTFE-Schild zur elektrischen Isolierung der Kathode positioniert. Der PTFE-Schild hat einen Außendurchmesser von 146 mm, eine Randstärke von 2 mm, eine Randhöhe von 8 mm, eine Bodenstärke von 2 mm, drei Löcher zur Aufnahme der Gewindestangen mit einem Durchmesser von 3,2 mm mit einer Winkeldifferenz von 120° zueinander auf einem Lochkreis von 135 mm Durchmesser und zwei sich gegenüberliegende, halbkreisförmige Aussparungen für die interne Gasverrohrung am Rand mit einem Durchmesser von 8 mm auf einem Lochkreis von 142 mm Durchmesser.

Ein PTFE-Distanzring mit einem Durchmesser von 5 mm, einer Höhe von 2 mm und einer durchgängigen Bohrung mit einem Durchmesser von 2,1 mm zur Auf-

nahme der Gewindestangen schafft den nötigen Raum für das elektrische Anschlusskabel der Kathode.

Die Kathode hat einen Durchmesser von 135 mm, eine Materialstärke von 1 mm, eine zentrale Vertiefung mit einem Durchmesser von 25,4 mm und einer Tiefe von 0,5 mm zur Aufnahme der verwendeten  $\alpha$ -Quelle, drei halbkreisförmige Aussparungen am Rand zur Aufnahme der Gewindestangen mit einem Durchmesser von 3,2 mm mit einer Winkeldifferenz von  $120^\circ$  zueinander auf einem Lochkreis von 135 mm Durchmesser und zwei sich gegenüberliegende halbkreisförmige Aussparungen für die interne Gasverrohrung am Rand mit einem Durchmesser von 8 mm auf einem Lochkreis von 142 mm Durchmesser. Das PTFE-isolierte elektrische Anschlusskabel ist ohne die Verwendung eines Fließmittels an die Oberseite der Kathode geschweißt.

Ein Stahlblech mit einem Durchmesser von 135 mm, einer Materialstärke von 0,5 mm, einem zentralen Loch mit einem Durchmesser von 20 mm, drei halbkreisförmigen Aussparungen zur Aufnahme der Gewindestangen am Rand mit einem Durchmesser von 3,2 mm mit einer Winkeldifferenz von  $120^\circ$  zueinander auf einem Lochkreis von 135 mm Durchmesser und zwei sich gegenüberliegenden halbkreisförmigen Aussparungen für die interne Gasverrohrung am Rand mit einem Durchmesser von 8 mm auf einem Lochkreis von 142 mm Durchmesser hält die verwendete  $\alpha$ -Quelle an ihrer Position.

Aufgrund der Geometrie des Abstandshalters und der PTFE-Gasrohre liegt die Öffnung der PTFE-Gasrohre 2,5 mm unterhalb der Kathode und des Stahlbleches und ist auf den Mittelpunkt der Detektor-Kammer gerichtet. Somit wird einströmendes Uran(VI)-fluorid direkt in den relevanten Bereich zwischen der Kathode und der Anode geführt. Ein eventueller Gasstrom muss quer durch die Detektor-Kammer gelangen, bevor dieser wieder ausströmen kann.

Der PTFE-Schild isoliert die Kathode sowie das in elektrischem Kontakt zur Kathode stehende Stahlblech gegenüber dem Erdpotential der Wände der Detektor-Kammer. Die Oberseite der Kathode wird gegenüber dem CF-150-Blindflansch vollständig abgeschirmt, der Rand der Kathode und des Stahlbleches wird von dem PTFE-Schild um 5 mm überragt.

Ein Abstandshalter aus PTFE mit einer Länge von 41 mm, einem Durchmesser von 5 mm und einer durchgängigen Bohrung mit einem Durchmesser von 2,1 mm zur Aufnahme der Gewindestangen platziert das Gitter an der vorgesehenen Position. Eine 5 mm tiefe Nut mit einem Durchmesser von 3,2 mm sorgt für die isolierende Verbindung mit dem vorherigen Abstandshalter. Eine halbkreisförmige Aussparung mit einer Höhe von 1,6 mm befindet sich an der Kathodenseite, um die Kathode und das Stahlblech aufzunehmen. Ein 7 mm langer Stift mit einem Durchmesser von 3,1 mm stellt über eine Nut im nächsten Abstandshalter eine durchgängige isolierende Verbindung her.

Das Drahtgitter ist anodenseitig auf einem Gitterring mit einem Durchmesser von 140 mm, einem Innendurchmesser von 120 mm, einer Materialstärke von 2 mm und drei Löchern zur Aufnahme der Gewindestangen mit einem Durchmesser von 3,2 mm mit einer Winkeldifferenz von  $120^\circ$  zueinander auf einem Lochkreis von 135 mm Durchmesser angebracht. Die Gitterkonstante des eindimensionalen Gitters beträgt 1 mm, der Durchmesser des Drahtes  $25 \mu\text{m}$ . Das Gitter wurde in gespanntem Zustand in Kontakt mit dem Gitterring gebracht und mit einem Keramikkleber mit einer Schichtdicke von ca. 1 mm fixiert. Das PTFE-isolierte elektrische Anschlusskabel ist ohne die Verwendung eines Fließmittels an den Rand des Gitterrings geschweißt.

Ein Abstandshalter aus PTFE mit einer Länge von 6 mm, einem Durchmesser von 5 mm und einer durchgängigen Bohrung mit einem Durchmesser von 2,1 mm zur Aufnahme der Gewindestangen platziert die Anode an der vorgesehenen Position. Eine 3 mm tiefe Nut mit einem Durchmesser von 3,2 mm sorgt für die isolierende Verbindung mit dem vorherigen Abstandshalter. Ein 5 mm langer Stift mit einem Durchmesser von 3,1 mm stellt eine durchgängige isolierende Verbindung bis zum die Anode abschirmenden PTFE-Schild her.

Die Anode hat einen Durchmesser von 135 mm, eine Materialstärke von 1 mm und drei halbkreisförmige Aussparungen am Rand zur Aufnahme der Gewindestangen mit einem Durchmesser von 3,2 mm mit einer Winkeldifferenz von  $120^\circ$  zueinander auf einem Lochkreis von 135 mm Durchmesser. Das PTFE-isolierte elektrische Anschlusskabel ist ohne die Verwendung eines Fließmittels an die Unterseite der Anode geschweißt.

Ein PTFE-Distanzring mit einem Durchmesser von 5 mm, einer Höhe von 3 mm und einer durchgängigen Bohrung mit einem Durchmesser von 2,1 mm zur Aufnahme der Gewindestangen schafft den nötigen Raum für das elektrische Anschlusskabel der Anode. Eine halbkreisförmige Aussparung mit einer Höhe von 1,1 mm befindet sich an der Anodenseite, um die Anode aufzunehmen.

Auf dem PTFE-Distanzring ist ein nach oben gerichteter PTFE-Schild zur elektrischen Isolierung der Anode positioniert. Der PTFE-Schild hat einen Außendurchmesser von 146 mm, eine Randstärke von 2 mm, eine Randhöhe von 8 mm, eine Bodenstärke von 2 mm und drei Löcher zur Aufnahme der Gewindestangen mit einem Durchmesser von 3,2 mm mit einer Winkeldifferenz von  $120^\circ$  zueinander auf einem Lochkreis von 135 mm Durchmesser.

Der PTFE-Schild isoliert die Anode gegenüber dem Erdpotential der Wände der Detektor-Kammer. Die Unterseite der Anode wird gegenüber der Bodenplatte des Hohlzylinders vollständig abgeschirmt, der Rand der Anode wird von dem PTFE-Schild um 5 mm überragt.

Der Stift des PTFE-Abstandshalters schließt plan mit der Unterseite des PTFE-Schildes ab. Eine M2-Gewindemutter sichert alle Elemente an ihrer Position gegen ein Verrutschen nach unten. Ein PTFE-Deckel mit einem Durchmesser von 8 mm, einer Höhe von 5 mm, einer Bohrung mit einem Durchmesser von 5 mm und einer Tiefe von 1,8 mm zur Aufnahme der M2-Gewindemutter und einem 2 mm tiefen M2-Gewinde zur Aufnahme der Gewindestange umhüllt die über den PTFE-Schild hervorstehenden metallischen Teile mit einer PTFE-Schicht.

Das freie Volumen der Detektor-Kammer bestimmt sich aus dem Gesamtvolumen einschließlich der Gaskomponenten bis zu den Absperrventilen abzüglich des Volumens aller installierten Komponenten, eine Aufstellung ist in Tabelle 3.1 zu finden. Das freie Volumen der Detektor-Kammer geht in die Berechnung der  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichte ein.

Die dem aggressiven Uran(VI)-fluorid ausgesetzte Oberfläche der Detektor-Kammer bestimmt sich aus der Summe der Oberflächen der Detektor-Kammer einschließlich der Gaskomponenten bis zu den Absperrventilen, zuzüglich der Oberfläche aller installierten Komponenten, aufgelistet in Tabelle 3.2.

	Komponente	Volumen [cm <sup>3</sup> ]	Material
1.a	Hohlzylinder	1526,2	Edelstahl 1.4404
1.b	CF-150-Blindflansch	31,2	Edelstahl 1.4404
1.c	VCR-Gaskomponenten	3,6	Edelstahl 1.4404
2	CF-Kupferdichtung	6,8	Kupfer
3	MHV-Isolierung x 3	4,0	PTFE
4	Kabelschuh x 3	0,8	Kupfer
5	Stromkabel x 3	1,7	PTFE/Kupfer
6	Kabelschuh-Isolierung x 3	3,5	PTFE
7	Gasverrohrung x 2	1,3	PTFE
8	Gewindestangen x 3	0,9	Edelstahl 1.4301
9	Abstandshalter Kathode x 3	0,8	PTFE
10	Elektrodenisolierung x 2	80,9	PTFE
11	Unterlegscheibe Kathode x 3	0,07	PTFE
12	Kathode	14,3	Edelstahl 1.4301
13	Präparathalterung	7,0	Edelstahl 1.4301
14	Präparat	0,3	Edelstahl 1.4301
15	Abstandshalter Kathode-Gitter x 3	2,0	PTFE
16	Gitterring	8,1	Edelstahl 1.4301
17	Gitter	0,006	Edelstahl 1.4301
18	Keramikleber	4,1	Keramik
19	Abstandshalter Gitter-Anode x 3	0,4	PTFE
20	Anode	14,3	Edelstahl 1.4301
21	Unterlegscheibe Anode x 3	0,09	PTFE
22	M2-Mutter x 3	0,05	Edelstahl 1.4301
23	PTFE-Deckel x 3	0,7	PTFE
	Freies Volumen	1409,0	Gasgemisch

Tabelle 3.1: Freies Volumen der Detektor-Kammer, bestimmt aus dem Gesamtvolumen (1.a, 1.b) einschließlich der Gaskomponenten (1.c) bis zu den Absperrventilen, abzüglich des Volumens aller installierten Komponenten (2-22).

	Komponente	Oberfläche [cm <sup>2</sup> ]	Material
1	Hohlzylinder	616,7	Edelstahl 1.4404
2	CF-Kupferdichtung	77,8	Kupfer
3	CF-150-Blindflansch	250,5	Edelstahl 1.4404
4	MHV-Isolator x 3	2,7	Aluminiumoxid
5	VCR-Gaskomponenten	32,8	Edelstahl 1.4404
6	VCR-Kupferdichtung x 4	0,5	Kupfer
7	MHV-Isolierung x 3	88,6	PTFE
8	Kabelschuh x 3	15,2	Kupfer
9	Stromkabel, isoliert x 3	30,3	PTFE
10	Stromkabel, nicht isoliert x 3	3,3	Kupfer
11	Kabelschuh-Isolierung x 3	42,0	PTFE
12	Gasverrohrung x 2	22,0	PTFE
13	Gewindestangen x 3	16,0	Edelstahl 1.4301
14	Abstandshalter Kathode x 3	14,1	PTFE
15	Elektrodenisolierung x 2	834,4	PTFE
16	Unterlegscheibe Kathode x 3	2,3	PTFE
17	Kathode	291,0	Edelstahl 1.4301
18	Präparathalterung	282,2	Edelstahl 1.4301
19	Präparat	10,3	Edelstahl 1.4301
20	Abstandshalter Kathode-Gitter x 3	31,9	PTFE
21	Gitterring	57,8	Edelstahl 1.4301
22	Gitter	8,9	Edelstahl 1.4301
23	Keramikleber	49,1	Keramik
24	Abstandshalter Gitter-Anode x 3	7,8	PTFE
25	Anode	290,4	Edelstahl 1.4301
26	Unterlegscheibe Anode x 3	2,7	PTFE
27	M2-Mutter x 3	1,5	Edelstahl 1.4301
28	PTFE-Deckel x 3	8,0	PTFE
	Gesamte Oberfläche	3090,8	

Tabelle 3.2: Gesamte Oberfläche der Detektor-Kammer.

Die Summen der dem aggressiven Uran(VI)-fluorid ausgesetzten Oberflächen der Detektor-Kammer, geordnet nach den verschiedenen verwendeten Materialien, sind in Tabelle 3.3 aufgeführt. Diese Angaben sind für spätere, qualitative Überlegungen wichtig.

Material	Oberfläche [cm <sup>2</sup> ]
Edelstahl 1.4404	900,0
Edelstahl 1.4301	958,1
PTFE	1084,1
Kupfer	96,8
Aluminiumoxidkeramik	2,7
Keramik	49,1

Tabelle 3.3: Summen der Oberflächen der Detektor-Kammer, geordnet nach den verschiedenen verwendeten Materialien.

Im Anschluss an die Konstruktion und den Zusammenbau der Detektor-Kammer erfolgte ein integraler Helium-Lecktest mit einem Helium-Leckdetektor der Firma Pfeiffer Vacuum, Typ QualyTest<sup>TM</sup> HLT 260 [215] zur Sicherstellung der Integrität der Detektor-Kammer. Die gemessene integrale Helium-Leckrate beträgt  $9,1 \cdot 10^{-10}$  mbar l/s, eventuell eindringender Wasserdampf oder andere Kontaminationen werden somit auf ein Minimum reduziert.

Da Uran(VI)-fluorid bei einem Druck von 1013,25 mbar und 56,54°C [202] sublimiert und in den gasförmigen Zustand übergeht, wird die Detektor-Kammer, die Swagelok<sup>®</sup> VCR<sup>®</sup>-Gasverrohrung, der Uran(VI)-fluorid-Massenflussregler [214] sowie das Uran(VI)-fluoridreservoir [194] mit Heizgeräten der Firma Isoheat, Typ MIL-RD1011 erwärmt.

## 3.2 Datenaufnahme

Ein positiv geladenes  $\alpha$ -Teilchen, emittiert ausgehend von der Kathode, ionisiert auf seinem Weg im Detektorgas die Atome und Moleküle des Detektorgases und hinterlässt eine Spur von Elektronen und positiven Ionen. Die Anzahl der erzeugten Elektronen-Ionen-Paare pro Ereignis ist in etwa proportional zur im Detektorgas deponierten Energie des  $\alpha$ -Teilchens.

Eine an die Kathode angelegte negative Hochspannung erzeugt ein elektrisches Feld im sensitiven Volumen zwischen Kathode und Gitter, die Elektronen beginnen aufgrund des elektrischen Feldes auf das geerdete Gitter zuzudriften und induzieren zudem ein Signal entgegengesetzter Ladung auf der Kathode. Wegen der um den Faktor 1000 kleineren Mobilität der positiven Ionen können diese während der Driftzeit der Elektronen als stationär angesehen werden [216]. Das Gitter trennt das sensitive Volumen zwischen Kathode und Gitter von dem Kollektorraum zwischen Gitter und Anode und schirmt die Anode von den Elektronen ab. Erst wenn die Elektronen das Gitter passiert haben, entsteht ein detektierbares Signal auf der Anode. Nachdem die Elektronen auf der Anode aufgesammelt wurden, verbleibt durch die hohe Elektronenmobilität eine Spur positiver Ionen im sensitiven Volumen. Ohne das geerdete Gitter würde sich aufgrund von Influenz eine negative Ladung auf der Oberfläche der Anode ausbilden und ein positives Signal in der Datenaufnahme erzeugen. Somit wäre die Detektorkammer nicht mehr für Spektroskopie brauchbar. Das Gitter schirmt die Anode jedoch nicht perfekt von den im sensitiven Volumen erzeugten Ladungsträgern ab. Die mangelnde Abschirmung wird als Gitterineffizienz bezeichnet. Insofern wird die Abhängigkeit der Pulshöhe vom Entstehungsort der Ionisation nicht vollständig reduziert.

Eine an die Anode angelegte positive Hochspannung erzeugt ein elektrisches Feld im sensitiven Volumen zwischen Gitter und Anode. Nachdem die Elektronen das geerdete Gitter passiert haben, influenzieren sie eine positive Ladung auf der Oberfläche der Anode und erzeugen ein negatives Signal in der Datenaufnahme. Da das messbare Signal sich erst auf der Anode ausbildet, wenn die Elektronen das Gitter passiert haben, verbessert sich die Zeitauflösung des Signals und zudem steigt die Pulshöhe an.

An die drei MHV-Spannungsdurchführungen der Detektor-Kammer sind ladungsintegrierende Verstärker der Firma mesytec, Typ MPR-1 für Signale bis 40 MeV angeschlossen. Diese verfügen über Eingänge für einen Pulsgenerator, das Detektor-Signal und die Hochspannungsversorgung für maximal 3 kV sowie zwei invertierbare Ausgänge, von denen einer gefiltert werden kann, in der verwendeten Konfiguration jedoch nur das invertierte Signal überträgt.

Der über den Detektor-Eingang an das Gitter angeschlossene Vorverstärker ist nur an eine Spannungsversorgung angeschlossen und erdet somit das Gitter.

Über die Eingänge für die Hochspannungsversorgung und das Detektor-Signal wird die Hochspannung für die Kathode und die Anode eingespeist, welche in dedizierten Hochspannungsquellen bis 5 kV erzeugt wird.

Die Signale der Datenaufnahme wurden mit einem Oszilloskop der Firma Tektronix, Typ TDS 2024B gemessen, die angegebenen Werte dienen der Reproduktion.

An die Impulseingänge des Kathoden- und Anodenvorverstärkers sind Pulsgeneratoren der Firma BNC, Typ PB-4 zur Kontrolle der Qualität der Datenaufnahme angeschlossen. Diese erzeugen Pulse mit einer Anstiegszeit von  $0,05 \mu\text{s}$  und einer Abklingzeit von  $50 \mu\text{s}$ . Der Anodenpulsgenerator ist an den Triggerausgang des Kathodenpulsgenerators angeschlossen, beide Signale werden synchron mit einer Frequenz von 44,6 Hz getaktet. Die mittlere Pulshöhe des Kathodenpulses liegt bei 515 mV, die mittlere Pulshöhe des Anodenpulses bei -552 mV.

Die auf der Anode und der Kathode gemessenen Signale werden über den Detektoreingang an den Vorverstärker geleitet. Die ausgehenden Signale werden über Lemo<sup>®</sup>-Kabel an die Datenaufnahmeelektronik in einem NIM- und einem VME-Einschubrahmen geleitet.

Das Start- und Stoppsignal für die Datenaufnahme mit -54,4 mV mittlerer Pulshöhe wird dem invertierten Ausgang des Kathodenvorverstärkers entnommen und in einem Verstärkereigenbau des Instituts für Kernphysik, Typ TFA IKDA 99 gefiltert, um ein klares Signal mit kurzer Anstiegsflanke zu formen. Es wurde die maximale Verstärkung gewählt, die Zeitkonstante für Differentiation beträgt 300 ns, für Integration 150 ns, das geformte Signal weist eine mittlere Pulshöhe von -0,24 V auf, mit einer Anstiegszeit von  $1 \mu\text{s}$  und einer Abklingzeit von 650 ns.

Das gefilterte, geformte Signal wird anschließend in einen Proportionaldiskriminator eingespeist. Das Signal wird einmal direkt, einmal invertiert und reduziert verarbeitet und mit einer kurzen Verzögerung übereinandergelegt. Der erste Nulldurchgang mit positiver Steigung definiert den Auslösezeitpunkt. Sofern ein wählbarer Schwellenwert überschritten wird, löst der Proportionaldiskriminator unabhängig von der Pulshöhe bei einem wählbaren Bruchteil der maximalen Pulshöhe aus und generiert bei breiten Pulsen mit wechselnder Signalamplitude aber gleichen Anstiegszeiten reproduzierbare, exakte Zeitmarker.

Die Zeitmarke wird als elektrisches Zeitfenster in Form zweier Rechtecksignale ausgegeben. Ein Zeitfenster hat eine Pulshöhe von  $-800\text{ mV}$  über eine Breite von  $13,3\text{ }\mu\text{s}$  und wird an einen Pulshöhenkonverter weitergegeben. Das zweite Zeitfenster hat eine Pulshöhe von  $-780\text{ mV}$  über eine Breite von  $400\text{ ns}$  und wird an einen CAEN NIM/ECL-Übersetzer, Typ N638 weitergegeben. Der NIM/ECL-Übersetzer liefert ein Zeitfenster mit einer Pulshöhe von  $-1,1\text{ V}$  und einer Breite von  $400\text{ ns}$  an das TRIVA-Modul [217] des MBS (Multi-Branch System) [218].

Die Signale der Anode und der Kathode liegen an einem Spektroskopieverstärker der Firma CAEN, Typ N568B an. Nach einer zum Eingangssignal proportionalen Verstärkung, identisch gewählt für Anoden- und Kathodensignal, werden die Signale über ein Flachbandkabel an den Pulshöhenkonverter weitergegeben. Das Anodensignal wird zudem invertiert.

Der Pulshöhenkonverter der Firma CAEN, Typ V785 konvertiert die analogen Signale des Spektroskopieverstärkers mit einer Auflösung von 4096 Kanälen in digitale Daten. Der positive Eingangspegel reicht von  $0\text{ V}$  bis  $4\text{ V}$ , entsprechend ist der Abstand zweier digitaler Kanäle etwa  $1\text{ mV}$ . Der Verstärkungsfaktor des Spektroskopieverstärkers ist derart gewählt, dass die Pulshöhe des Kathodensignals etwa bei  $3,5\text{ V}$  liegt. Das Zeitfenster für den Pulshöhenkonverter ist derart verzögert, dass die Pulsmaxima der Anoden- und Kathodensignale am Ausgang des Spektroskopieverstärkers mittig im Zeitfenster liegen, die Breite des Zeitfensters korrespondiert zu etwa  $2/3$  der Pulsbreite. Pulse innerhalb des Zeitfensters werden entsprechend ihrer Signalhöhe den digitalen Kanälen zugeordnet.

Die konvertierten Daten werden, ausgelöst durch das zweite Zeitfenster im ECL-Format am TRIVA-Modul [217], über den VME-Bus in den internen Speicher des

MBS [218] mit Echtzeitbetriebssystem, Version 5.0 geschrieben. Über die Netzwerkinfrastruktur werden während einer Datenaufnahmesitzung die intern gespeicherten Daten regelmäßig auf der Festplatte des Analyserechners im sequentiell gelisteten Dateiformat .lmd gespeichert.

Über die graphische Benutzerschnittstelle Go4 [219] werden die aufgenommenen Daten noch während einer laufenden Datenaufnahmesitzung oder im Anschluss daran visualisiert und analysiert.

## 4 Urananteil

Zur Messung paritätsverletzender Effekte in der Vorwärts-Rückwärts-Asymmetrie der Spaltfragmente der photoneninduzierten Spaltung  $^{238}\text{U}(\gamma, f)$  ist eine hohe  $^{238}\text{U}$ -Flächendichte in der aktiven Uran(VI)-fluorid-Detektor-Kammer erforderlich.

Die  $^{238}\text{U}$ -Flächendichte in der Detektor-Kammer bestimmt sich aus dem Anteil des Uran(VI)-fluorides am Argon/Uran(VI)-fluorid-Gasgemisch, dem Massenanteil des Urans an der Gesamtmasse des Uran(VI)-fluoridatoms, der spezifischen Isotopenzusammensetzung des Urans in der verwendeten Uran(VI)-fluoridprobe IRMM-019 [194] sowie dem Volumen der Detektor-Kammer (s. Tab. 3.1). Ebenso ist die  $^{238}\text{U}$ -Flächendichte eine wichtige Messgröße in der Charakterisierung einer Beimischung von gasförmigem  $^{238}\text{U}$ -fluorid in Argon.

Die Zusammensetzung des Gasgemisches im Inneren der Detektor-Kammer wird über Massenflussregler gesteuert. Ein Massenflussregler [213] mit einem maximalen Durchfluss von 1 mln/min ist über einen Druckminderer an eine 200 bar Gasflasche mit hochreinem Argon 6.0 angeschlossen, der an der Einlassseite anliegende absolute Argondruck beträgt 2,2 bar. Der andere Massenflussregler [214] mit einem maximalen Durchfluss von 10 mln/min ist an das Uran(VI)-fluoridreservoir [194] mit hochreinem  $^{238}\text{U}$ -fluorid angeschlossen.

### Massenflussregler

Zum kontrollierten Gaseinlass von Argon und Uran(VI)-fluorid in die Detektor-Kammer werden thermische Massenflussregler eingesetzt. Für Argon wird ein Massenflussregler der Firma Bronkhorst [213] verwendet, für Uran(VI)-fluorid ein Massenflussregler der Firma Brooks [214].

Beiden Massenflussreglern liegt das gleiche Funktionsprinzip zugrunde. Der Gasstrom tritt auf der Einlassseite in den Massenflussregler ein und teilt sich in zwei Teilströme auf. Der eine Teilstrom fließt durch einen geeignet dimensionierten Durchflussbegrenzer, wodurch eine Druckdifferenz induziert wird. Diese Druckdifferenz zwingt den zweiten Teilstrom durch das Sensorelement des Massenfluss-

reglers und ist linear mit dem Gasfluss verknüpft, während der Teilstrom durch das Sensorelement linear von der Druckdifferenz abhängt. Das Verhältnis der beiden Teilströme durch den Durchflussbegrenzer und durch das Sensorelement ist daher über den gesamten Messbereich des Massenflussreglers konstant.

Das Sensorelement besteht aus einer sehr kleinen, dünnwandigen Edelstahlröhre. In der Mitte der Edelstahlröhre ist ein Heizelement verbaut und einlass- und auslassseitig sind Temperaturfühler mit gleichem Abstand zum Heizelement installiert. Das Heizelement wird mit einer konstanten Leistung versorgt. Ohne einen Gasfluss ist die jedem Temperaturfühler zugeführte Wärmemenge gleich gross, daher sind auch die gemessenen Temperaturen  $T_1$  und  $T_2$  gleich. Ein Gasfluss durch das Sensorelement befördert eine Wärmemenge vom Heizelement zum auslassseitig montierten Temperaturfühler und bewirkt eine Temperaturdifferenz  $\Delta T$ . Diese Temperaturdifferenz ist direkt proportional zu dem Massestrom, welcher das Sensorelement durchströmt und lässt sich durch folgende Gleichung beschreiben,

$$\Delta T = APc_p m, \quad (4.1)$$

mit der Proportionalitätskonstante  $A$ , der angelegten Heizleistung  $P$ , der spezifischen Wärmekapazität bei konstantem Druck  $c_p$  und dem Massestrom pro Sekunde  $m$ . Insbesondere gilt  $c_p m = C_p n$  mit der molaren Wärmekapazität  $C_p$  und der Stoffmenge  $n$ . Die gemessene Temperaturdifferenz wird mittels einer Brückenschaltung und einem Operationsverstärker verarbeitet, wodurch ein Signal proportional zum gesamten Massenfluss erzeugt wird. Über das ideale Gasgesetz

$$V = \frac{nRT}{p} \quad (4.2)$$

wird der Massenfluss in einen Volumenstrom  $Q$  in mln/min umgerechnet [220], d.h. ml/min bei Normalbedingungen von 1013,25 mbar und 0°C.

Die tatsächlich transportierte Masse  $m$  bestimmt sich dann nach Gl. (4.3) aus dem Volumenstrom  $Q$  und der Normdichte  $\rho_n$  bei 1013,25 mbar und 0°C [221]

$$m = Q\rho_n. \quad (4.3)$$

Die Normdichte für Stickstoff beträgt 1,251 mg/mln, für Argon 1,784 mg/mln und für Uran(VI)-fluorid 15,700 mg/mln [222] und bestimmt sich aus der idealen Gasgleichung (4.2) und der molaren Masse.

Die Massenflussregler werden werksseitig mit trockenem Stickstoff bei 21,1°C [223] anhand eines Umrechnungsfaktors kalibriert. Die Umrechnung zwischen verschiedenen Gasen erfolgt nach

$$Q_2 = Q_1 \frac{SF_2}{SF_1}, \quad (4.4)$$

mit dem Durchfluss des zu verwendenden Gases  $Q_2$ , dem Durchfluss des Kalibrier-gases Stickstoff  $Q_1$  und dem Verhältnis der Sensorfaktoren  $SF_{1,2}$  der Gase. Der Sensorfaktor für Stickstoff beträgt 1,000, für Argon 1,395 und für Uran(VI)-fluorid 0,220 [222] und bestimmt sich aus dem Verhältnis der molaren Wärmekapazität bei konstantem Druck von Stickstoff im Bezug zu der des jeweiligen Gases

$$SF = \frac{C_p(N_2)}{C_p(Gas)}. \quad (4.5)$$

Die molaren Wärmekapazitäten zur Bestimmung der Sensorfaktoren werden einer thermodynamischen Datenbank [224] entnommen [220], deren Einträge werden nach Ref. [225] aus den Daten des kritischen Druckes, der kritischen Temperatur und des azentrischen Faktors [226] bestimmt [227].

## 4.1 Argonstoffmenge

Der Argon-Massenflussregler [213] ist speziell für den Durchfluss von Argon kalibriert. Anhand der Normdichte für Argon von 1,784 mg/mln bei 1013,25 mbar und 0°C und der molaren Masse von Argon, bestimmt aus der Isotopenzusammensetzung nach Tab. 4.1 zu 39,948 g/mol, ergibt sich ein Umrechnungsfaktor für die Stoffmenge  $n$  von  $4,466 \cdot 10^{-5}$  mol/mln.

Isotop	Masse [u]	Massenanteil
$^{36}\text{A}$	35,967545106 (29)	0.3336 (21) %
$^{38}\text{A}$	37,9627324 (4)	0.0629 (7) %
$^{40}\text{A}$	39,9623831225 (29)	99.6035 (25) %

Tabelle 4.1: Auflistung der natürlich vorkommenden Argonisotope und ihrer Massen [188] sowie dem jeweiligen Massenanteil an der Isotopenzusammensetzung von natürlich vorkommendem Argon.

## 4.2 Uranstoffmenge

Die Berechnung der Stoffmenge an Uran(VI)-fluorid ist deutlich komplexer. Zum einen wurde eine Uran(VI)-fluoridprobe verwendet, deren Isotopenzusammensetzung nicht mit den Referenzwerten von natürlichem Uran(VI)-fluorid übereinstimmt, daher ergibt sich eine Abweichung in der molaren Masse. Der Sensorfaktor bestimmt sich aus der molaren Wärmekapazität des Uran(VI)-fluorides, jedoch treten hier Abweichungen in den zur Kalibrierung genutzten Werten gegenüber in der Literatur aufgeführten Werten auf. Da das Uran(VI)-fluorid durch eine Temperaturerhöhung auf 353,15 K in den gasförmigen Zustand überführt wird, ist zudem die Temperaturabhängigkeit der molaren Wärmekapazität zu berücksichtigen, ebenso wie der Einfluss der Isotopenzusammensetzung auf die molare Wärmekapazität.

### Isotopenzusammensetzung

Im Gegensatz zur natürlichen Isotopenzusammensetzung des Urans, aufgeführt in Tab. 2.1, ist der Anteil des Isotops  $^{238}\text{U}$  in der verwendeten Uran(VI)-fluoridprobe [194] erhöht. Die Isotopenzusammensetzung der verwendeten Uran(VI)-fluoridprobe ist in Tab. 2.2 aufgeführt.

Aus den Massen und Massenanteilen der einzelnen Isotope ergibt sich eine mittlere Masse von 238,029 u für natürliches Uran und von 238,046 u für Uran mit der speziellen Isotopenzusammensetzung der verwendeten Uran(VI)-fluoridprobe.

## Molare Masse von Uran(VI)-fluorid

Die Masse eines Moleküls ist gleich der Summe der Massen der Konstituenten. Im Fall von Uran(VI)-fluorid gilt folglich

$$M_{UF_6} = M_U + 6M_F. \quad (4.6)$$

Da Fluor nur das stabile Isotop  $^{19}\text{F}$  mit einer Masse von 18,998 u aufweist, ist die Masse des Uran(VI)-fluorides einzig von der Isotopenzusammensetzung des Urans abhängig, für Uran(VI)-fluorid mit natürlicher Uran-Isotopenzusammensetzung ergibt sich eine Masse von 352,019 u und für Uran(VI)-fluorid mit der speziellen Isotopenzusammensetzung der verwendeten Uran(VI)-fluoridprobe eine Masse von 352,036 u.

## Temperaturabhängigkeit der molaren Wärmekapazität $C_p$

Die Temperaturabhängigkeit der molaren Wärmekapazität bei konstantem Druck des Uran(VI)-fluorides lässt sich idealerweise [204] durch Gl. (4.7) nach Ref. [228] beschreiben:

$$C_p = 36,10 + 1,3 \cdot 10^{-3} \cdot T - \frac{4,87 \cdot 10^5}{T^2}, \quad (4.7)$$

mit der molaren Wärmekapazität bei konstantem Druck  $C_p$  in  $\frac{\text{cal}}{\text{molK}}$  und der Temperatur  $T$  in K. Mit  $1 \text{ cal} = 4,184 \text{ J}$  erfolgt die Umrechnung in  $\frac{\text{J}}{\text{molK}}$ . Für natürliches Uran(VI)-fluorid bei einer Temperatur von 353,15 K ist  $C_p = 136,6251 \frac{\text{J}}{\text{molK}}$ .

## Isotopie-Abhängigkeit der molaren Wärmekapazität $C_p$

Nach Ref. [229] lässt sich der Einfluss der Isotopenzusammensetzung von gasförmigem Uran(VI)-fluorid auf die thermodynamischen Größen, darunter auch der Einfluss auf die molare Wärmekapazität, aus dem Logarithmus des Verhältnisses der Zustandssummen zweier isotopischer Varianten des Uran(VI)-fluorides ableiten. Die grundlegenden Überlegungen hierzu sind in Ref. [230] zu finden.

Setzt man den Logarithmus des Verhältnisses der Zustandssummen zweier isotopisch verschiedener Moleküle als

$$\Gamma = \ln \left( \frac{q_2}{q_1} \right) \quad (4.8)$$

mit der molekularen Zustandssumme  $q_i$ , der Index 2 bezeichnet das schwerere Isotop, dann ist die Differenz der Wärmekapazitäten in Abhängigkeit von der Temperatur  $T$  gegeben durch

$$\Delta C_p = (C_{p,2}) - (C_{p,1}) = R \left[ T^2 \frac{\partial \Gamma}{\partial T^2} + 2T \frac{\partial \Gamma}{\partial T} \right], \quad (4.9)$$

mit  $\Gamma$  im Rahmen der harmonischen Näherung als

$$\Gamma = \sum_{i=1}^{3N-6} \ln \left[ \frac{\left( \frac{hc}{2kT} \omega_i \right)_1^{-1} \sinh \left( \frac{hc}{2kT} \omega_i \right)_1}{\left( \frac{hc}{2kT} \omega_i \right)_2^{-1} \sinh \left( \frac{hc}{2kT} \omega_i \right)_2} \right] + \frac{3}{2} \sum_{j=1}^N \ln \left( \frac{m_{2j}}{m_{1j}} \right). \quad (4.10)$$

Hier ist  $N$  die Anzahl der Atome des Moleküls,  $h$  das Plancksche Wirkungsquantum,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit,  $k$  die Boltzmann-Konstante,  $\omega_i$  die harmonische Vibrationsfrequenz der  $i$ -ten Mode und  $m_{ij}$  die atomare Masse des  $j$ -ten Atoms des  $i$ -ten Isotops.

Sowohl  $\Gamma$  als auch die Vibrationsfrequenzen  $\omega_i$  wurden in Ref. [229] anhand der **FG**-Matrixmethode nach Ref. [231] unter Berücksichtigung der Kraftfelder und der Geometrie des Uran(VI)-fluorides nach Ref. [232] mit den in Ref. [233] aufgeführten Symmetriekoordinaten berechnet. Bei der gruppentheoretischen Matrixmethode nach Ref. [231] werden aufgrund der orthonormalen Symmetriekoordinaten der Vibrationen die Elemente der Matrizen  $\mathbf{F}(E_{pot})$  und  $\mathbf{G}(E_{kin})$  errechnet. Anhand der Matrizen lassen sich die Vibrationsfrequenzen in Abhängigkeit von den Kraftkonstanten herleiten, sofern sich die Kraftfelder bei isotopischer Ersetzung nicht ändern.

Es finden sich vier Isotopie-unabhängige Vibrationsfrequenzen sowie zwei dreifach entartete Isotopie-abhängige Vibrationsfrequenzen.

Für  $^{236}\text{Uran(VI)-fluorid}$  wurde wegen der äußerst geringen natürlichen Häufigkeit keine Isotopie-abhängige Vibrationsfrequenz in Ref. [229] angegeben.

Vibrationsfrequenz	Wellenlänge [ $\frac{1}{\text{cm}}$ ]
$\omega_1(A_{1g})$	671,70
$\omega_2(E_g)$	539,68
$\omega_5(F_{2g})$	200,06
$\omega_6(F_{2u})$	142,72

Tabelle 4.2: Isotopie-unabhängige Vibrationsfrequenzen des Uran(VI)-fluorides.

Isotop	$\omega_3(F_{1u})$ [ $\frac{1}{\text{cm}}$ ]	$\omega_4(F_{1u})$ [ $\frac{1}{\text{cm}}$ ]
$^{238}\text{UF}_6$	633,850	186,164
$^{235}\text{UF}_6$	634,453	186,369
$^{234}\text{UF}_6$	634,657	186,439

Tabelle 4.3: Isotopie-abhängige Vibrationsfrequenzen des Uran(VI)-fluorides, geordnet nach Uran-Isotopen.

Das Verhältnis  $\Gamma$  kann für verschiedene Temperaturen evaluiert werden, anhand dieser Stützstellen ergibt sich folgende Parametergleichung

$$\Gamma = c_1 \ln \tau + c_2 \tau^{-1} + c_3 + c_4 \tau + c_5 \tau^2, \quad (4.11)$$

mit  $\tau = T/500\text{K}$ . Für die nachfolgende Definition

$$\Gamma = \ln \left[ \frac{q(^{238}\text{UF}_6)}{q(^x\text{UF}_6)} \right] \quad (4.12)$$

wurde  $\Gamma$  im Bereich von 200°K bis 1000°K evaluiert und die Parameter  $c_i$  mit der Methode der kleinsten Quadrate angepasst. Es finden sich folgende Werte [229] für die Koeffizienten  $c_i$  für  $^x\text{Uran(VI)-fluorid}$  mit  $x = 234$  und  $235$ , aufgelistet in Tab. 4.4.

Aus Gl. (4.9) und Gl. (4.11) ergibt sich für die Differenz der molaren Wärmekapazität bei konstantem Druck

$$\Delta C_p = R (c_1 + 2 c_4 \tau + 6 c_5 \tau^2). \quad (4.13)$$

Isotop	$c_1 \cdot 10^3$	$c_2 \cdot 10^3$	$c_3 \cdot 10^2$	$c_4 \cdot 10^3$	$c_5 \cdot 10^4$
$^{234}\text{UF}_6$	5,73954	5,63424	2,34315	-2,71486	2,433328
$^{235}\text{UF}_6$	4,28767	4,20790	1,75368	-2,02868	1,81879

Tabelle 4.4: Koeffizienten der Parametergleichung (4.11) nach Ref. [229].

Das Verhältnis  $\Gamma$  ist zudem proportional zur Differenz der reziproken Massen der Isotope  $\mu_i - \mu_j$  [229]. Diese Proportionalität setzt sich auch in den thermodynamischen Größen fort.

Mit der Definition

$$M_x = \mu_x - \mu_{238} = \frac{m_{238} - m_x}{m_{238} \cdot m_x} \quad (4.14)$$

lässt sich aus der nach Gl. (4.13) mit den Koeffizienten aus Tab. 4.4 bestimmten Differenz der Wärmekapazitäten  $\Delta C_p(238, 235)$  und dem Verhältnis  $\frac{M_{236}}{M_{235}}$  die Differenz der Wärmekapazitäten  $\Delta C_p(238, 236)$  bestimmen.

Die molare Wärmekapazität bei konstantem Druck kann formuliert werden als

$$C_p = C_{p,238} - \sum_{i=236,235,234} \omega_i \Delta C_{p,i}, \quad (4.15)$$

mit den Wichtungsfaktoren  $\omega_i$  der Isotopenzusammensetzung. Die Differenz der molaren Wärmekapazitäten bei konstantem Druck unterschiedlicher Uran(VI)-fluoridproben ist dann

$$\Delta C_p = C_{p,spez} - C_{p,nat} = \sum_{i=236,235,234} (\omega_{i,n} - \omega_{i,s}) \Delta C_{p,i} \quad (4.16)$$

und ergibt für die Differenz der molaren Wärmekapazitäten bei konstantem Druck von natürlichem Uran(VI)-fluorid und der speziellen Isotopenzusammensetzung der verwendeten Uran(VI)-fluoridprobe [194] einen Wert von  $9,1079 \cdot 10^{-05} \frac{\text{J}}{\text{molK}}$ . Die molare Wärmekapazität bei konstantem Druck der speziellen Isotopenzusammensetzung der verwendeten Uran(VI)-fluoridprobe [194] bei einer Temperatur von 353,15 K beträgt dann  $C_{p,s} = 136,6252 \frac{\text{J}}{\text{molK}}$ . Der Wert der molaren Wärmekapazität bei konstantem Druck ändert sich nur geringfügig.

Aus dem Sensorfaktor von 0,220 für natürliches Uran(VI)-fluorid [222], der molaren Wärmekapazität bei konstantem Druck von Stickstoff von  $29,171 \frac{\text{J}}{\text{molK}}$  [221] und Gl. (4.4) bestimmt sich die zur Kalibrierung des Massenflussreglers verwendete molare Wärmekapazität  $C_{p,n}$  zu  $132,5954 \frac{\text{J}}{\text{molK}}$ .

Das Verhältnis der molaren Wärmekapazitäten  $\frac{C_{p,n}}{C_{p,s}}$  bildet einen Umrechnungsfaktor, um den Wert des Massenflussreglers an das spezielle Uran(VI)-fluorid bei 353,15 K anzupassen. Der Wert lässt sich anhand der für die Kalibrierung verwendeten idealen Gasgleichung (4.2) auf die transportierte Stoffmenge zurückrechnen, der Umrechnungsfaktor für die Stoffmenge  $n$  beträgt  $4,330 \cdot 10^{-5} \text{ mol/mln}$ .

### 4.3 $^{238}\text{Uran}$ -Massenbelegung

Die Massenbelegung der Detektor-Kammer mit  $^{238}\text{Uran}$  folgt unter Annahme einer gleichmäßigen Verteilung der Gasmoleküle im Volumen der Detektor-Kammer bei 363,15 K aus der Gesamtmasse an  $^{238}\text{Uran}$  und dem freien Volumen der Detektor-Kammer, siehe Tab. 3.1.

Die Gesamtmasse an  $^{238}\text{Uran}$  in der Detektor-Kammer bestimmt sich aus der transportierten Stoffmenge  $n$  (s.o.), der molaren Masse des speziellen Uran(VI)-fluorides  $M$  und dem Anteil des Urans an der Molekülmasse (siehe Kap. 4.2) sowie der relativen Häufigkeit des  $^{238}\text{Urans}$  entsprechend der speziellen Isotopenzusammensetzung der verwendeten Uran(VI)-fluoridprobe [194]

$$m(^{238}\text{U}) = nM_{(\text{UF}_6)} \frac{M_{(\text{U})}}{M_{(\text{UF}_6)}} \omega_{238}. \quad (4.17)$$

Daraus resultierend ergibt sich mit dem freien Volumen der Detektor-Kammer von  $1409,0 \text{ cm}^3$  eine  $^{238}\text{Urandichte}$  in  $\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ .

Wird die Detektor-Kammer derart im Strahl der Bremsstrahlung positioniert, dass der Impulsvektor der Photonen senkrecht auf der Zylinderoberfläche steht, ergibt sich eine Länge von 13,32 cm für den aktiven Bereich. Einfache Multiplikation mit der  $^{238}\text{Urandichte}$  liefert die gebräuchlichere Flächendichte.

## 5 Messungen & Ergebnisse

Für die Untersuchung eines gasförmigen  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid/Argon-Gemisches}$  in einer Frisch-Gitter-Ionisationskammer wurde eine Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle als Referenzsignalquelle verwendet. Die Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle befindet sich in einer Vertiefung auf der Kathode und besteht aus den Elementen  $^{239}\text{Plutonium}$ ,  $^{241}\text{Americium}$  und  $^{244}\text{Curium}$ . Diese liefert entsprechend den vorgenannten Elementen  $\alpha$ -Teilchen mit Energien von 5155 keV, 5480 keV und 5795 keV mit einer Aktivität von jeweils 1 kBq zur Energiekalibrierung. Die aufgrund der Ionisation im sensitiven Volumen entstehenden Elektronen bewegen sich durch die angelegte Hochspannung im elektrischen Feld auf die entgegengesetzt geladene Elektrode zu und erzeugen nach der Passage des Gitters ein zur im  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid/Argon-Gemisch}$  deponierten Energie proportionales Signal auf der Anode, zudem wird ein Signal entgegengesetzter Ladung auf der Kathode induziert.

### 5.1 Messdaten

#### Erster Aufbau

Die ersten Experimente wurden abweichend zu dem in Kap. 3.1 vorgestellten Aufbau mit einer abweichenden Geometrie und geänderten Konstruktionsdetails durchgeführt. Die wesentlichen Änderungen sind im folgenden kurz zusammengefasst. Die Distanz zwischen Kathode und Gitter betrug 4,2 cm und die Distanz zwischen Gitter und Anode 1 cm. Das Gitter wurde in gespanntem Zustand mit einem Vakuumlot auf dem Gitterring fixiert. Kathode und Anode hatten einen 5 mm größeren Außendurchmesser und waren nicht durch einen PTFE-Schild gegenüber den geerdeten Wänden der Detektor-Kammer isoliert. Der elektrische Kontakt zu Anode, Kathode und Gitter wurde über Kupfer-Kabelschuhe und Edelstahlklemmen an den MHV-Spannungsdurchführungen hergestellt, zudem waren die MHV-Spannungsdurchführungen und die Edelstahlklemmen nicht zusätzlich isoliert.

Das freie Volumen der ursprünglichen Detektor-Kammer bestimmt sich aus dem Gesamtvolumen einschließlich der Gaskomponenten bis zu den Absperrventilen abzüglich des Volumens aller installierten Komponenten, eine Aufstellung ist in Tabelle 5.1 zu finden. Das freie Volumen der Detektor-Kammer betrug in diesem Fall  $1473,5 \text{ cm}^3$ .

Im Anschluss an die Konstruktion und den Zusammenbau der ursprünglichen Detektor-Kammer erfolgte ein integraler Lecktest mit einem Leckdetektor der Firma Pfeiffer Vacuum, Typ QualyTest™ HLT 260 [215] zur Sicherstellung der Integrität der Detektor-Kammer. Die gemessene integrale Helium-Leckrate beträgt  $9,1 \cdot 10^{-10} \text{ mbar l/s}$ , eventuell eindringender Wasserdampf oder andere Kontaminationen werden somit auf ein Minimum reduziert.

Danach wurde die Detektor-Kammer mehrfach für längere Zeiträume mit hochreinem Argon 6.0 durchspült um störende Verunreinigungen zu entfernen. Bei einem Argonfluss von  $60 \text{ mln/min}$ , gemessen mit einem Durchflussmessgerät der Firma red-y, Typ GCS-A9SS-FN00 [234], einer Temperatur von  $343,15 \text{ K}$  und einem Druck von  $1013,25 \text{ mbar}$  wurde ein erster Datensatz aufgenommen. Mit einer angelegten Hochspannung von  $-800 \text{ V}$  an der Kathode und  $500 \text{ V}$  an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.1.

Die ausschliesslich mit reinem Argon aufgenommenen Daten dienen als Referenz zur Beurteilung der Qualität der Daten für verschiedene  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid/Argon-Gemische}$ . Klar separierte Signale für die Energien von  $5155 \text{ keV}$ ,  $5480 \text{ keV}$  und  $5795 \text{ keV}$  der  $^{239}\text{Plutonium-}$ ,  $^{241}\text{Americium-}$  und  $^{244}\text{Curiumlinien}$  der Dreilinien- $\alpha$ -Quelle sind deutlich zu erkennen.

Der Pfad eines  $\alpha$ -Teilchens im Gas hinterlässt eine Ionisationsspur, deren Ladungsschwerpunkt mit  $\bar{X}$  gekennzeichnet wird. Je mehr sich der Ladungsschwerpunkt von der Kathode entfernt, desto kleiner wird das auf der Kathode induzierte Signal. Das Verhältnis von  $\bar{X}$  zum Abstand  $d$  zwischen Kathode und Gitter definiert die Signalunterdrückung des Kathodensignals relativ zum Anodensignal und damit den Emissionswinkel des geladenen Teilchens gegenüber dem Normalenvektor der Kathode. Große Kathodensignale entsprechen großen Emissionswinkeln, sehr kleine Signale einer Emission nahezu senkrecht zur Kathode.

	Komponente	Volumen [cm <sup>3</sup> ]	Material
1.a	Hohlzylinder	1526,2	Edelstahl 1.4404
1.b	CF-150-Blindflansch	31,2	Edelstahl 1.4404
1.c	VCR-Gaskomponenten	3,6	Edelstahl 1.4404
2	CF-Kupferdichtung	6,8	Kupfer
3	Edelstahlklemme x 3	0,8	Edelstahl 1.4301
4	Stromkabel x 3	0,8	PTFE/Kupfer
5	Kabelschuh x 3	0,3	Kupfer
6	Gasverrohrung x 2	1,3	PTFE
7	Gewindestangen x 3	0,9	Edelstahl 1.4301
8	Abstandshalter Kathode x 3	0,8	PTFE
9	Kathode	30,4	Edelstahl 1.4301
10	Präparathalterung	2,7	PTFE
11	Präparat	0,3	Edelstahl 1.4301
12	Abstandshalter Kathode-Gitter x 3	2,0	PTFE
13	Gitter	0,006	Edelstahl 1.4301
14	Vakuumlöt	0,8	Vakuumlöt
15	Gitterring	8,2	Edelstahl 1.4301
16	Abstandshalter Gitter-Anode x 3	0,5	PTFE
17	Anode	30,8	Edelstahl 1.4301
18	Unterlegscheibe x 3	0,07	PTFE
19	M2-Mutter x 3	0,05	Edelstahl 1.4301
	Freies Volumen	1473,5	Gasgemisch

Tabelle 5.1: Freies Volumen der ursprünglichen Detektor-Kammer, bestimmt aus dem Gesamtvolumen (1.a, 1.b) einschließlich der Gaskomponenten (1.c) bis zu den Absperrventilen, abzüglich des Volumens aller installierten Komponenten (2-19).

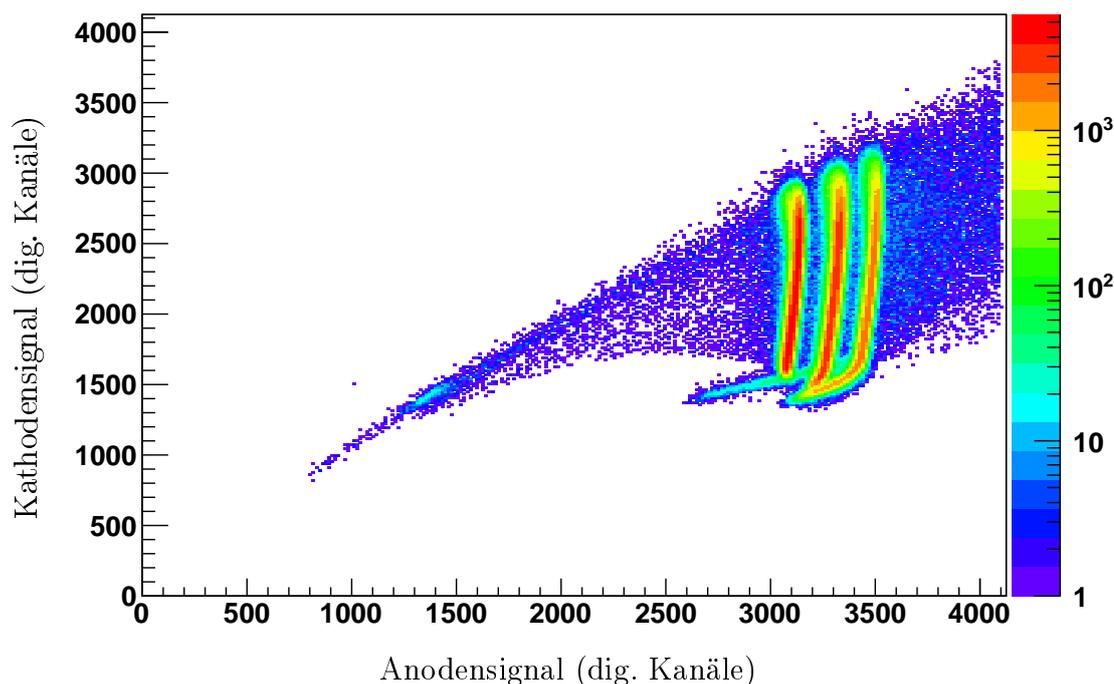


Abbildung 5.1: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals bei einem Argonfluss von 60 mln/min, einer Temperatur von 343,15 K, einem Druck von 1013,25 mbar und insgesamt 2379582 Ereignissen.

An der leichten Verkipfung der drei Linien nach rechts lässt sich die Gitterineffizienz  $GI$  [235] erkennen. Aufgrund der nicht perfekten Abschirmung der Anode gegenüber der Ladung der positiven Ionen reduziert sich das Anodensignal mit steigendem  $\bar{X}$ .

Passiert das  $\alpha$ -Teilchen auf seinem Pfad das geerdete Gitter, bevor es seine gesamte Energie deponieren konnte, werden auch im Kollektorraum Elektronen-Ionen-Paare erzeugt, die dann nicht mehr abgeschirmte positive Ladung der Ionen reduziert deutlich das Anodensignal und resultiert in der zu beobachtenden Krümmung der  $^{241}\text{Americium}$ - und  $^{244}\text{Curium}$ linien, dieser Effekt wird stärker mit kleiner werdendem Emissionswinkel und folglich kleinerem Kathodensignal. Die  $\alpha$ -Teilchen der  $^{239}\text{Plutonium}$ -linie deponieren ihre gesamte Energie im Gas bevor sie das Gitter erreichen und weisen daher keine Krümmung am unteren Ende auf.

$\alpha$ -Teilchen aus dem  $^{244}\text{Curium}$ zerfall weisen eine so große Reichweite auf, dass sie bei kleinen Emissionswinkeln nicht nur das Gitter passieren können, sondern zu einem kleinen Anteil auf die Anode auftreffen können und dort ihre zweifach positive Ladung deponieren. Das Anodensignal wird dadurch noch stärker reduziert, es bildet sich eine oberhalb der zuvor beschriebenen Krümmung liegende Linie aus, welche in Abb. 5.1 ausgehend von der  $^{244}\text{Curium}$ linie das untere Ende der  $^{239}\text{Plutonium}$ linie schneidet und noch darüber hinaus reicht.

Anhand der Signale der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle, bereinigt um die Gitterineffizienz  $GI$ , können den digitalen Kanälen der Datenaufnahme Energien zugeordnet werden. Ein kalibriertes Energiespektrum für reines Argon ist in Abb. 5.2 zu sehen.

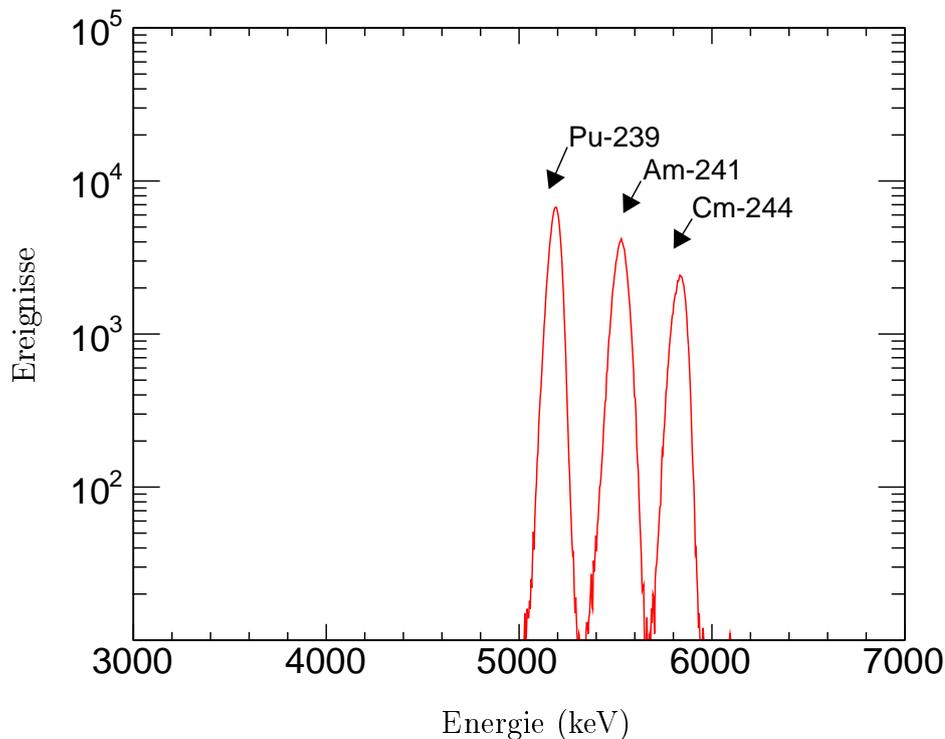


Abbildung 5.2: Energiespektrum der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle, bereinigt um die Gitterineffizienz  $GI$ , bei einem Argonfluss von 60 mln/min, einer Temperatur von 343,15 K und einem Druck von 1013,25 mbar.

Da für kleine Streuwinkel die  $\alpha$ -Teilchen aus dem  $^{241}\text{Americium}$ - und  $^{244}\text{Curium}$ zerfall nicht ihre gesamte Energie im sensitiven Volumen deponieren, konnten

die verschmierten unteren Enden nicht zur Bildung des Energiespektrums herangezogen werden. Demzufolge sind, wie in Abb. 5.2 zu sehen, die Maxima der  $^{241}\text{Americium}$ - und  $^{244}\text{Curium}$ linien kleiner als bei der  $^{238}\text{Plutonium}$ linie. Ob der höheren Energie der  $^{244}\text{Curium}$ linie ist der betreffende Streuwinkel größer, ebenso der nicht zu berücksichtigende Anteil und das Maximum der  $^{244}\text{Curium}$ linie ist nochmals reduziert.

Eine weitere, wichtige Größe zur Beschreibung der Gaseigenschaften des  $^{238}\text{Uran}$ hexafluorid/Argon-Gemisches ist die Driftgeschwindigkeit der Elektronen im sensitiven Volumen. Die Driftgeschwindigkeit basiert auf der Messung der Anstiegszeit des Kathodensignals nach Ref. [236]. Jeweils drei Messungen mit 512 Werten werden gemittelt, gemessen mit einem Oszilloskop der Firma Tektronix, Typ TDS 3052B. Die Driftgeschwindigkeit bestimmt sich zu

$$v_D = \frac{Sd}{Ph_A^*}, \quad (5.1)$$

mit der Steigung  $S$  des Signals, dem Abstand  $d$  zwischen Kathode und Gitter und der korrigierten Anodenpulshöhe  $Ph_A^*$ ,

$$S = \frac{R \langle Ph_K \rangle}{\langle \tau_K \rangle}, \quad (5.2)$$

mit dem Referenzpegel  $R$  der Linearität des Signals (üblicherweise von 10 % - 40 % der Pulshöhe), der gemittelten Kathodenpulshöhe  $Ph_K$  und der gemittelten Anstiegszeit des Kathodensignals  $\tau_K$  von Anfang bis Ende des Referenzpegels,

$$Ph_A^* = \frac{\langle Ph_A \rangle + GI \cdot \langle Ph_K \rangle}{1 - GI}, \quad (5.3)$$

mit der gemittelten Anodenpulshöhe  $Ph_A$ , der Gitterineffizienz  $GI$  und der gemittelten Kathodenpulshöhe  $Ph_K$ .

Die Driftgeschwindigkeit wird in Abhängigkeit von der reduzierten Feldstärke

$$E_r = \frac{U}{dp}, \quad (5.4)$$

mit der an die Kathode angelegten Spannung  $U$ , dem Abstand  $d$  zwischen Katho-

de und Gitter und dem Druck  $p$  in der Detektor-Kammer dargestellt. Die Driftgeschwindigkeit für reines Argon ist in Abb. 5.3 dargestellt. Sie zeigt ein für Argon typisches Verhalten mit einem Maximum bei kleinen reduzierten Feldstärken von ungefähr  $100 \frac{\text{V}}{\text{cm bar}}$  und einem Plateau bei höheren reduzierten Feldstärken.

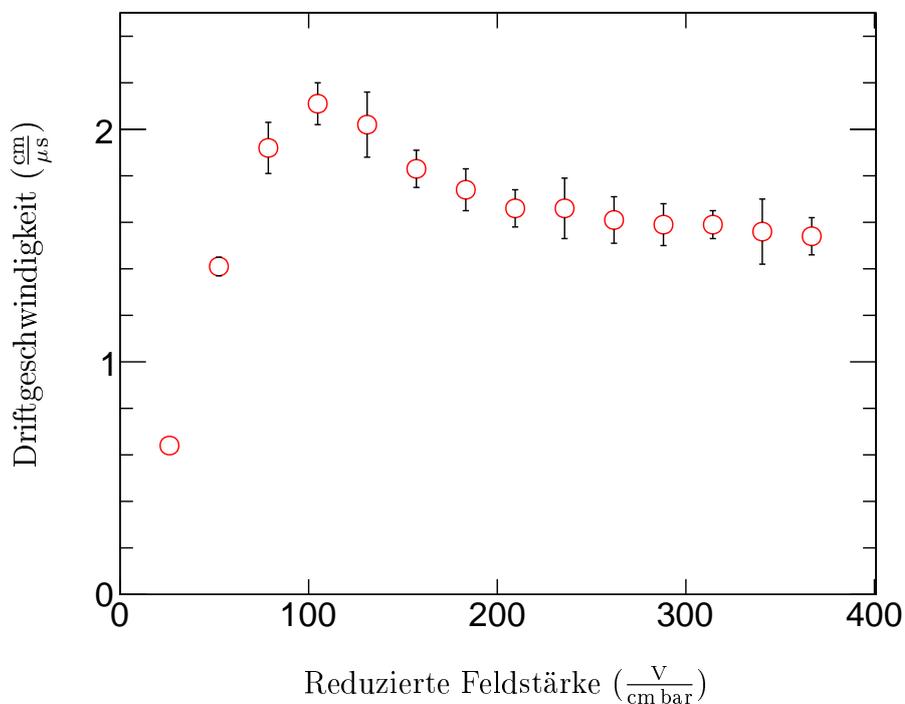


Abbildung 5.3: Driftgeschwindigkeit der Elektronen in Argon bei einem Argonfluss von 60 mln/min, einer Temperatur von 343,15 K und einem Druck von 1013,25 mbar.

Bereits bei der ersten Aufnahme einer Spannungskennlinie traten bei -1800 V an der Kathode Spannungsdurchschläge auf, in der späteren Messung der Driftgeschwindigkeit bereits bei -1500 V an der Kathode, obwohl alle Abstände zwischen elektrisch geladenen Komponenten in der ursprünglichen Detektor-Kammer mindestens 5 mm betragen. Als mögliche Schwachstellen für ein erhöhtes elektrisches Feld wurden ein nach außen gerichteter Kupfer-Kabelschuh oder die Ecken der Edelstahlklemmen an den MHV-Spannungsdurchführungen identifiziert. Tatsächlich ist der Grund für die Spannungsdurchschläge in der deutlich niedrigeren Durchschlagsfestigkeit (reduziert um einen Faktor von ca. 3,5) von Argon gegenüber Luft [237] zu suchen, dementsprechend waren die Abstände zwi-

schen elektrisch geladenen Komponenten und die Spannungsfestigkeit der MHV-Spannungsdurchführung zu klein gewählt. Die Messung der Driftgeschwindigkeit für reines Argon war durch diesen Umstand auf eine Kathodenspannung von -1400 V limitiert.

Anschließend wurde die ursprüngliche Detektor-Kammer mit der Turbopumpe des Leckdetektors mit einer Saugleistung von 60 l/s über einen Zeitraum von 3 h in den oberen Hochvakuum-Bereich evakuiert. Abschließend erfolgte eine Befüllung mit 950 mln hochreinem Argon 6.0 und die Detektor-Kammer wurde auf eine Temperatur von 353,15 K gebracht. Mit der Van-der-Waals-Gleichung für reale Gase

$$\left(p + \frac{an^2}{V^2}\right)(V - bn) = nRT, \quad (5.5)$$

mit dem Druck  $p$ , der Stoffkonstanten zur Beschreibung der gegenseitigen Anziehung der Gasmoleküle  $a = 1,365 \frac{\text{Pa m}^2}{\text{mol}^2}$  für Argon [238], der Stoffmenge  $n$ , dem Volumen  $V$ , der Stoffkonstanten zur Beschreibung des Eigenvolumens der Gasmoleküle  $b = 32,188 \cdot 10^6 \frac{\text{m}^3}{\text{mol}}$  für Argon [238], der idealen Gaskonstanten  $R$  und der Temperatur  $T$  sowie dem Volumen der ursprünglichen Detektor-Kammer nach Tab. 5.1 und dem Umrechnungsfaktor für die Stoffmenge nach Kap. 4.1 ergibt sich ein Druck von 844,84 mbar im Inneren der ursprünglichen Detektor-Kammer. Mit einer angelegten Hochspannung von -400 V an der Kathode und 250 V an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.4.

Wegen des deutlich niedrigeren Drucks deponieren die unter kleinen Emissionswinkeln emittierten  $\alpha$ -Teilchen aus allen drei Zerfallsprozessen nicht ihre gesamte Energie im sensitiven Volumen, sondern auch im Kollektorraum zwischen Gitter und Anode, zudem erreichen mehr  $\alpha$ -Teilchen die Anode. Ein größerer Anteil der positiven Ladung der Ionen wird somit nicht abgeschirmt und reduziert das Anodensignal über einen deutlich weiteren Emissionswinkelbereich.

Der Pfad der unter großen Emissionswinkeln emittierten  $\alpha$ -Teilchen reicht ob des niedrigen Drucks bis zum Rand der Kathode und darüber hinaus. Unter diesen

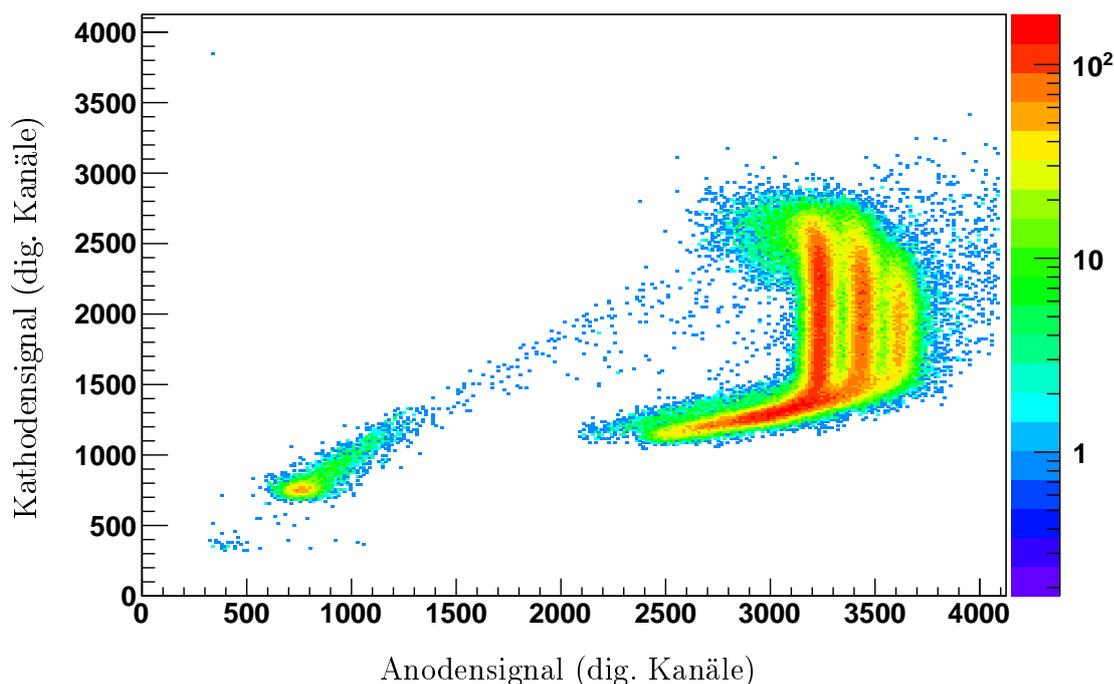


Abbildung 5.4: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 950 mln Argon, einer Temperatur von 353,15 K, einem Druck von 844,84 mbar und insgesamt 184115 Ereignissen.

Bedingungen werden die am Rand freigesetzten Elektronen durch den breiten Gitterring aufgesammelt, das Anodensignal ist gegenüber dem Kathodensignal reduziert. Dies erklärt die in Abb. 5.4 sichtbare Verschmierung für große Kathodensignale. Dennoch sind die drei Linien klar separiert.

Gasförmiges  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$  wurde über einen ganzmetallisch gedichteten Massenflussregler [239] mit einem maximalen Durchfluss von 6 mln/min und einer Kalrez<sup>®</sup>-Prallplatte auf der Durchlassöffnung des Massenflussreglers eingefüllt. Das Uran(VI)-fluoridreservoir wurde auf eine Temperatur von 343,15 K gebracht und die Detektor-Kammer auf eine Temperatur von 353,15 K, anschließend wurden 1,716 mln  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$  in die Detektor-Kammer eingefüllt. Mit der Van-der-Waals-Gleichung für reale Gase (Gl. (5.5)), den Stoffkonstanten  $a = 16,01 \frac{\text{Pa m}^2}{\text{mol}^2}$  und  $b = 112,8 \cdot 10^6 \frac{\text{m}^3}{\text{mol}}$  für Uran(VI)-fluorid [238] und einer Addition der Partialdrücke ergibt sich ein Druck von 846,33 mbar im Inneren der ursprünglichen Detektor-Kammer.

Mit einer angelegten Hochspannung von -400 V an der Kathode und 250 V an der Anode ergibt sich in Abb. 5.5 folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) während der Befüllung.

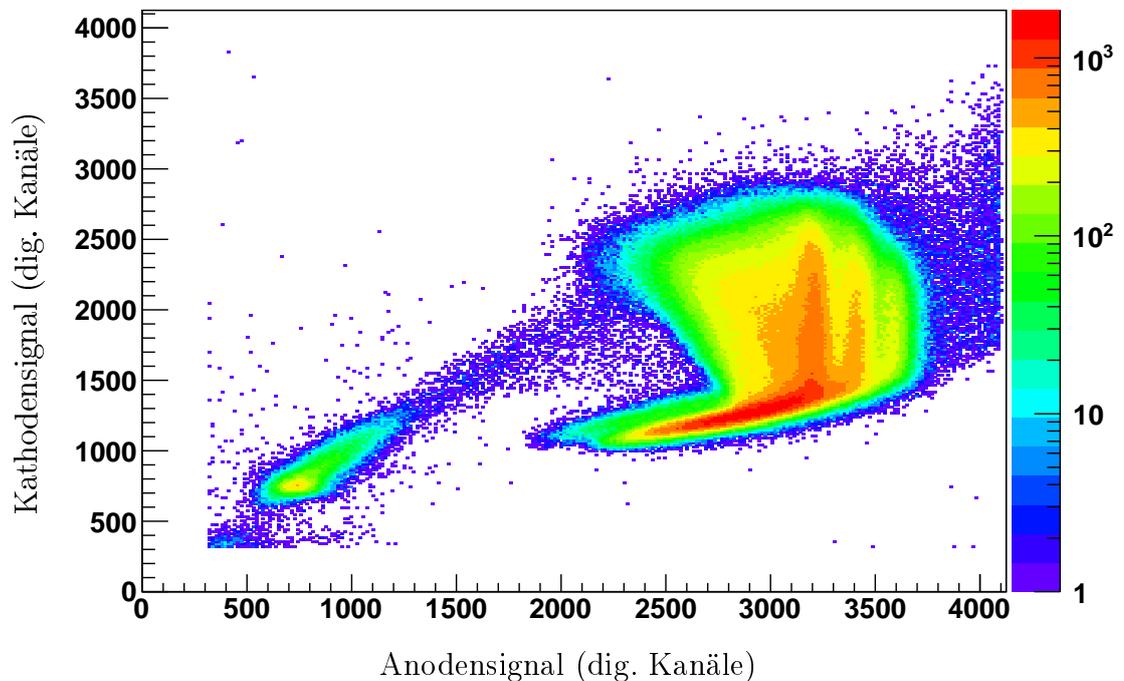


Abbildung 5.5: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 950 mln Argon, einer Temperatur von 353,15 K, einem Druck von 846,33 mbar und insgesamt 2401806 Ereignissen, aufgenommen während der Befüllung mit 1,716 mln  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid.

Die Verkippung der drei Linien kehrt sich während der Befüllung um, ein Indiz dafür, dass die freigesetzten Elektronen von Kontaminationen im Gas aufgesammelt werden. Bei einer gleichförmigen Verteilung der Kontamination im Argongas ist dieser Effekt besonders groß für große Emissionswinkel, da die Driftstrecke mit fallendem  $\bar{X}$  ansteigt. Zu diesem Zeitpunkt konnte eine Kontamination durch ein Fremdgas aus dem Uran(VI)-fluoridreservoir oder durch eingeschlossene Luft zwischen dem Massenflussregler und dem Uran(VI)-fluoridreservoir nicht ausgeschlossen werden.

Mit einer angelegten Hochspannung von -800 V an der Kathode und 500 V an der Anode ergibt sich nach der Befüllung folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.6.

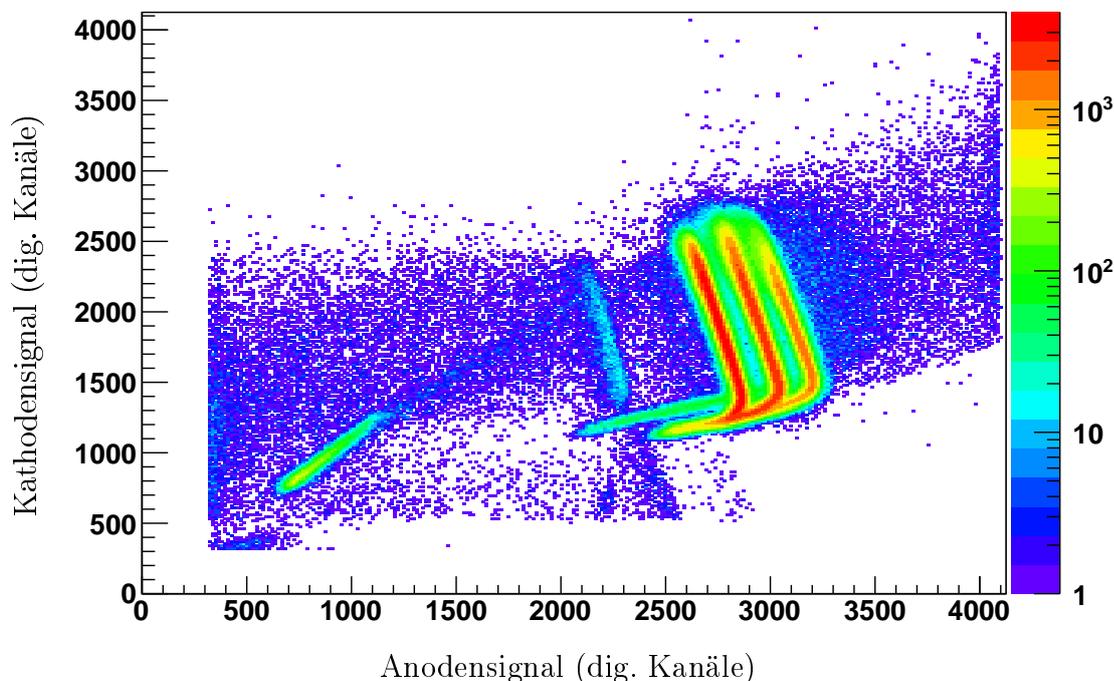


Abbildung 5.6: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 950 mln Argon und 1,716 mln  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid, einer Temperatur von 353,15 K, einem Druck von 846,33 mbar und insgesamt 2183510 Ereignissen.

Die Füllmenge entspricht einer  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichte von  $16,07 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Die Signale der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle sind klar zu erkennen, ebenso eine Linie mit verminderter Energie und Intensität. Die Diskussion erfolgt anhand von Abb. 5.7.

Uran(VI)-fluorid ist deutlich schwerer als Argon. Um auszuschliessen, dass sich eine Schicht  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid am Boden der Detektor-Kammer ausbildet und keine gleichmäßige Verteilung des  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorides im Gasgemisch vorliegt, wurde die Detektor-Kammer um einen Winkel von  $100^\circ$  verkippt. Bei der Datenaufnahme konnte keine Änderung der Signale festgestellt werden.

Für die Messung der Driftgeschwindigkeit wurde die Argonfüllmenge auf 1055 mln erhöht. Mit der Van-der-Waals-Gleichung für reale Gase (Gl. (5.5)) und einer Addition der Partialdrücke ergibt sich ein Druck von 939,66 mbar im Inneren der ursprünglichen Detektor-Kammer.

Anschließend wurde die  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluoridfüllmenge auf 3,484 mln erhöht. Mit der Van-der-Waals-Gleichung für reale Gase (Gl. (5.5)) und einer Addition der Partialdrücke ergibt sich ein Druck von 941,20 mbar im Inneren der ursprünglichen Detektor-Kammer.

Mit einer angelegten Hochspannung von -800 V an der Kathode und 500 V an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.7.

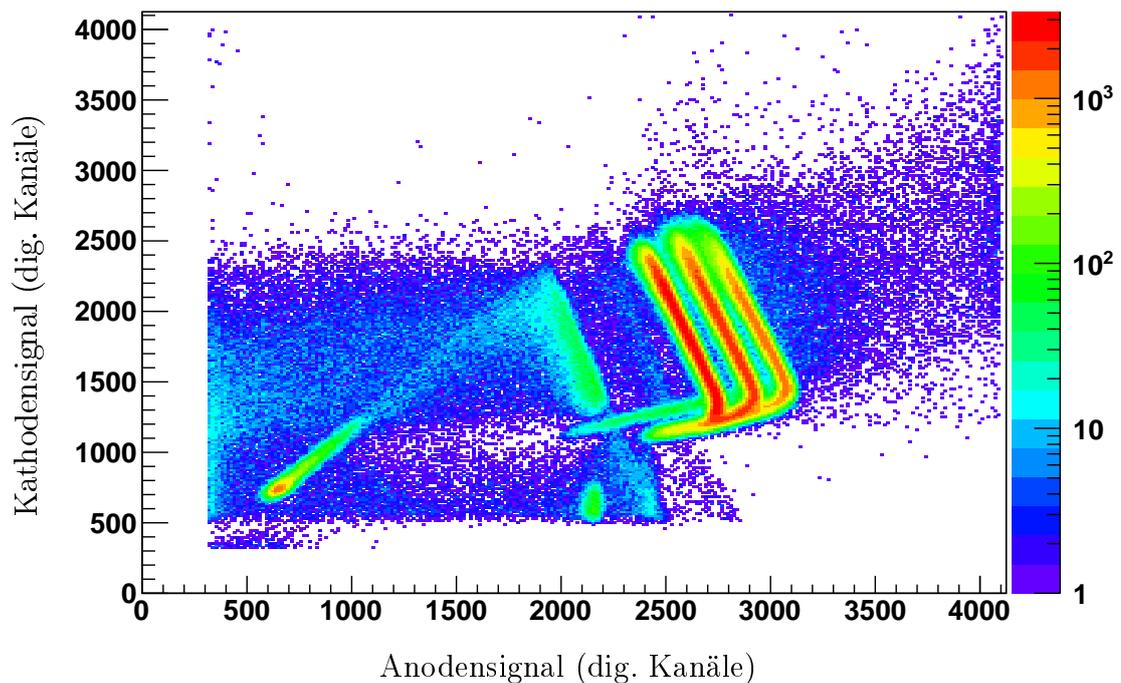


Abbildung 5.7: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1055 mln Argon und 3,484 mln  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid, einer Temperatur von 353,15 K, einem Druck von 941,20 mbar und insgesamt 1960926 Ereignissen.

Die Füllmenge entspricht einer  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichte von  $32,62 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Die Signale der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle sind klar separiert, die Verkipfung der Signale aufgrund einer möglichen Kontamination erscheint nochmals verstärkt.

Die in Abb. 5.6 bereits zu beobachtende Linie zeigt nun eine deutlich höhere Intensität und wird als  $\alpha$ -Zerfall des  $^{238}\text{Uran}$  mit einer Energie von 4188 keV identifiziert. Zwischen dieser und den Signalen der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle ist eine weitere schwache Linie zu erkennen, diese wird als  $\alpha$ -Zerfall des  $^{234}\text{Uran}$  mit einer Energie von 4750 keV identifiziert.

Anoden- und Kathodensignal der Uranlinien verhalten sich analog zu den Signalen der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle, allerdings setzen sich die Uranlinien für sehr kleine Kathodensignale fort, entsprechend großem  $\bar{X}$ . Diese Eigenschaft wird nicht bei der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle beobachtet. Aufgrund der niedrigeren Energie der Uranzerfälle gegenüber den Zerfällen der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle und der daraus folgenden geringeren Reichweite ist dies ein zwingendes Indiz für Uranzerfallsprozesse, deren Ursprung oberhalb der Kathodenebene liegt. Entgegen den Signalen der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle, die ihren Ursprung im Zentrum der Kathodenebene haben, tragen all die Ereignisse aus dem isotropen Zerfallsprozess zu den Uranlinien bei, die ihre gesamte Energie im sensitiven Volumen zwischen Kathode und Gitter deponieren.

Für größere Kathodensignale, entsprechend kleinerem  $\bar{X}$ , ist eine verstärkte Intensität der Uranlinien zu erkennen, insbesondere für die  $^{238}\text{Uran}$ linie. Diese Verstärkung der Intensität beginnt bei kleinsten  $\bar{X}$  entsprechend einer Emission parallel zur Kathode und ausgehend von dieser und endet für große  $\bar{X}$  entsprechend der maximalen Reichweite senkrecht zur Kathode emittierter  $\alpha$ -Teilchen, deren Ursprung auf der Kathode liegt. Folglich ist ein Teil des  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorides auf der Oberfläche der Kathode desublimiert.

Unterhalb der Uranlinien ist eine weitere Verstärkung der Intensität zu beobachten. Diese existiert separat für beide sichtbare Uranlinien, überschneidet sich im Fall des  $^{234}\text{Uran}$ s jedoch mit dem untersten Teil der  $^{238}\text{Uran}$ linie. Diese Verstärkung der Intensität liegt im Bereich sehr kleiner Kathodensignale bei konstantem Anodensignal, welches jedoch gegenüber dem maximalen Anodensignal reduziert ist. Dies wird verursacht durch Zerfälle ausgehend von der Anode, deren Ionisa-

tionspfad das Gitter passiert, sodass ein Signal auf der Kathode induziert wird und das Anodensignal durch die positiven Ionen im Kollektorraum zwischen Gitter und Anode reduziert wird. Folglich ist ein Teil des  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorides auf der Oberfläche der Anode desublimiert.

Mit kleineren Anodensignalen als durch die Uranlinien definiert und über das gesamte Spektrum der Kathodensignale verteilt finden sich Ereignisse, welche nicht ihre gesamte Energie im sensitiven Volumen oder im Kollektorraum deponieren. Oberhalb der Diagonalen liegen Ereignisse mit größerem Kathoden- als Anodensignal, hervorgerufen durch Zerfälle in der Nähe der Wände der Detektor-Kammer, bei denen nicht alle Elektronen die Anode erreichen.

Die Driftgeschwindigkeit für Argon bei einem Argonfluss von 60 mln/min, einer Temperatur von 343,15 K und einem Druck von 1013,25 mbar aus Abb. 5.3 und für 1055 mln Argon mit Beimischungen von 1,716 mln und 3,484 mln  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid bei einer Temperatur von 353,15 K und einem Druck von 939,66 mbar und 941,20 mbar ist in Abb. 5.8 dargestellt. Im Vergleich zu reinem Argon verschiebt sich das Maximum mit steigendem  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluoridanteil zu größeren reduzierten Feldstärken, die Maxima liegen zudem bei höheren Driftgeschwindigkeiten, ebenso wie das Plateau bei höheren reduzierten Feldstärken.

Nach der Befüllung mit 3,484 mln  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid wurde ein Defekt am Massenflussregler [239] festgestellt. Trotz maximal möglichem Stellsignal konnte kein Massenfluss gemessen werden. Als mögliche Ursache wurde eine Quellung der verwendeten Kalrez<sup>®</sup>-Prallplatte in Betracht gezogen. Diese liegt auf der Durchlassöffnung des Massenflussreglers auf, der Anpressdruck wird über eine mechanische Feder hergestellt und durch eine geregelte Magnetspule entlastet, um so den Massenfluss zu ermöglichen. Kalrez<sup>®</sup> ist ein voll fluoriertes Perfluorelastomer und wird als beständig [240] und sehr gut geeignet [241] für Anwendungen mit Uran(VI)-fluorid bei Temperaturen von 353,15 K ausgewiesen. Physikalisch aktive Medien können jedoch in das Polymergefüge oder mikroskopisch kleine Fehlstellen eindringen, die intermolekularen Bindungskräfte werden reduziert und die Beweglichkeit der Makromoleküle erhöht, es können weitere Moleküle des Mediums in das Polymergefüge eindringen und in Folge davon tritt eine Quellung einhergehend mit einer Dimensionsänderung auf [242, 243]. Da

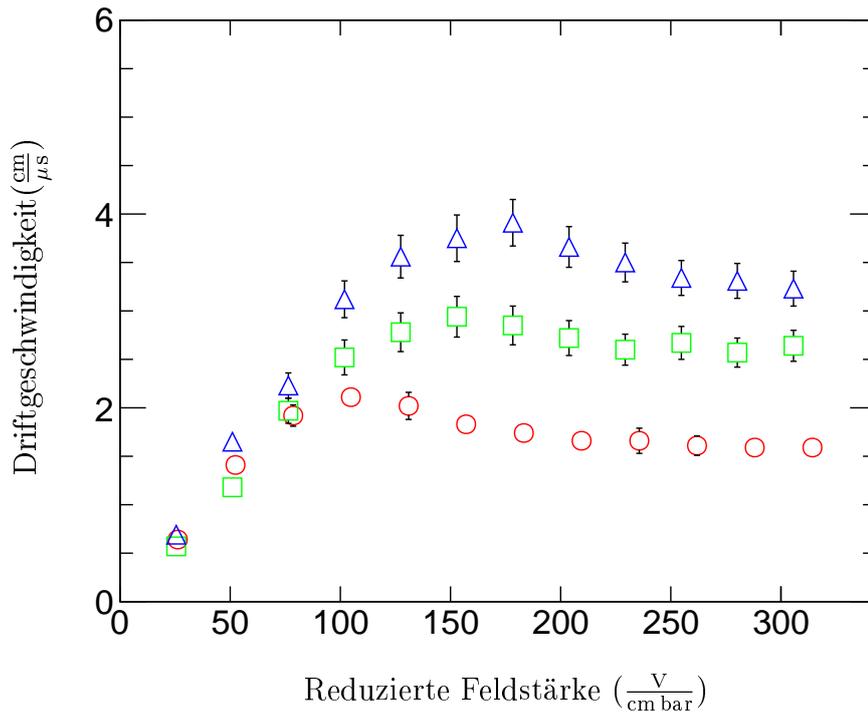


Abbildung 5.8: Driftgeschwindigkeit in reinem Argon bei einem Argonfluss von 60 mln/min (rote Kreise), einer Temperatur von 343,15 K und einem Druck von 1013,25 mbar, sowie in 1055 mln Argon mit Beimischungen von 1,716 mln (grüne Quadrate) und 3,484 mln (blaue Dreiecke)  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid bei einer Temperatur von 353,15 K und einem Druck von 939,66 mbar und 941,20 mbar.

der Massenfluss nur über die Regulierung des Anpressdrucks der Prallplatte auf der Durchlassöffnung des Massenflussreglers gesteuert wird, kann eine Quellung der Kalrez<sup>®</sup>-Prallplatte zu einer Funktionsunfähigkeit des Massenflussreglers führen.

Wegen der großen Aggressivität und der hohen Gesundheitsrisiken des Uran(VI)-fluorides war es nicht vorgesehen Teile der Detektor-Kammer zu öffnen, zudem waren die vorhandenen technischen Möglichkeiten begrenzt. Durch den Vorfall mit dem defekten Massenflussregler wurde dies jedoch notwendig. Daraufhin wurde der ursprüngliche Massenflussregler [239] im Labor für offene radioaktive Stoffe in einer Handschuhbox unter Argonatmosphäre durch einen ganzmetallisch gedichteten Massenflussregler [214] mit metallischer Prallplatte ausgetauscht. Hier-

bei wurde der Austritt einer kleinen Menge  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorides}$  in der Form von feinem weißen Rauch festgestellt, die resultierende Kontamination der Detektor-Kammer war allerdings vernachlässigbar. Das Uran(VI)-fluoridreservoir sowie das große Volumen der Detektor-Kammer blieben jedoch geschlossen.

## Zweiter Aufbau

Ob des guten Erfolges beim Umbau der Massenflussregler wurde eine Änderung der inneren Komponenten beschlossen, um die Problematik der Spannungsdurchschläge zu eliminieren. Die Edelstahlklemmen an den MHV-Spannungsdurchführungen wurden durch PTFE-isolierte Kabelschuhe ersetzt und die MHV-Spannungsdurchführungen zusätzlich durch PTFE-Elemente isoliert. Anode und Kathode wurden mit PTFE-Schilden verkleidet um die erhöhte Feldliniendichte an den Kanten gegenüber den geerdeten Kammerwänden zu isolieren und der elektrische Kontakt mit den Stromkabeln wurde durch Schweißverbindungen hergestellt. Die technischen Details dieser neuen, verbesserten Konstruktion wurden bereits in Kap. 3 vorgestellt. Die Distanz zwischen Kathode und Gitter beträgt in diesem Aufbau 4,14 cm und die Distanz zwischen Gitter und Anode 0,7 cm.

Die Öffnung des großen Volumens der Detektor-Kammer zur Änderung der inneren Komponenten erfolgte wiederum im Labor für offene radioaktive Stoffe in einer mit Argon gefüllten Handschuhbox. Zuvor wurde die Detektor-Kammer auf eine Temperatur von 393,15 K gebracht und über eine Kältefalle bei etwa 173,15 K mit einer bereits kontaminierten, ölgelagerten Drehschieberpumpe evakuiert. Die Kältefalle ist U-förmig gebogen und wurde in den kalten Dampf über einem flüssigen Stickstoffniveau eingetaucht, um das  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$  aus dem abgepumpten Gasstrom auszufrieren. Bei einer vollständigen Immersion wäre die Wirksamkeit der Kältefalle für Uran(VI)-fluorid aufgrund des niedrigeren Dampfdrucks erhöht, allerdings würde sich bei der Temperatur flüssigen Stickstoffs auch das Argon verflüssigen und könnte nicht mehr effektiv gepumpt werden. Anschließend wurde die Kammer mit Argon gefüllt und über einen Zeitraum von 1 h mit einem Fluss von ca. 40 mln/min durchspült.

Aufgrund der bereits vorliegenden Kontamination der Detektor-Kammer konnte kein erneuter Lecktest mit dem Leckdetektor zur Sicherstellung der Integrität

der Detektor-Kammer durchgeführt werden. Die Dichtungen am neuen Uran(VI)-fluorid-Massenflussregler sowie die CF-Kupferdichtung wurden sorgfältig nach Herstellervorgaben installiert, folgend wurde angenommen, dass die tatsächliche Leckrate nicht wesentlich schlechter als die bereits gemessene Leckrate von  $9,1 \cdot 10^{-10}$  mbar l/s sei.

Nach den erfolgreich abgeschlossenen Umbaumaßnahmen wurde die Detektor-Kammer mit hochreinem Argon über einen Zeitraum von 1 h mit einem Fluss von ca. 40 mln/min durchspült und anschließend mit der bereits kontaminierten, ölgelagerten Drehschieberpumpe evakuiert. Es folgte eine Füllung mit 1100 mln Argon, die Temperatur der Detektor-Kammer betrug 353,15 K. Trotz des Austausches aller inneren Komponenten außer der Gasverrohrung war immer noch ein Uransignal zu erkennen. Um eventuell an den Wänden der Detektor-Kammer anhaftendes  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$  zu lösen wurde zusätzlich zur Saugleistung der bereits kontaminierten, ölgelagerten Drehschieberpumpe die Kältefalle für einen Zeitraum von 5 min vollständig in das flüssige Stickstoffniveau eingetaucht um den Partialdruck des  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorides}$  weiter zu reduzieren. Zudem wurde die Detektor-Kammer für einen Zeitraum von 3 h auf eine Temperatur von 423,15 K geheizt und mit einem Argonfluss von ca. 40 mln/min durchspült, währenddessen wurde die Kältefalle erneut für 5 min eingetaucht. Anschließend wurde der Argonfluss eingestellt, die Detektor-Kammer bis zum Pumpenenddruck evakuiert und die Kältefalle wiederum für 5 min eingetaucht. Dennoch war nach erneuter Befüllung mit Argon keine wesentliche Änderung des Uransignals zu erkennen.

Als neue Referenz wurde die Detektor-Kammer mit hochreinem Argon über einen Zeitraum von 1 h mit einem Fluss von ca. 40 mln/min durchspült und anschließend mit der bereits kontaminierten, ölgelagerten Drehschieberpumpe evakuiert. Es folgte eine Füllung mit 1100 mln Argon, die Temperatur der Detektor-Kammer betrug 373,15 K. Mit der Van-der-Waals-Gleichung für reale Gase (Gl. (5.5)) ergibt sich ein Druck von 978,17 mbar im Inneren der Detektor-Kammer.

Mit einer angelegten Hochspannung von -880 V an der Kathode und 250 V an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.9.

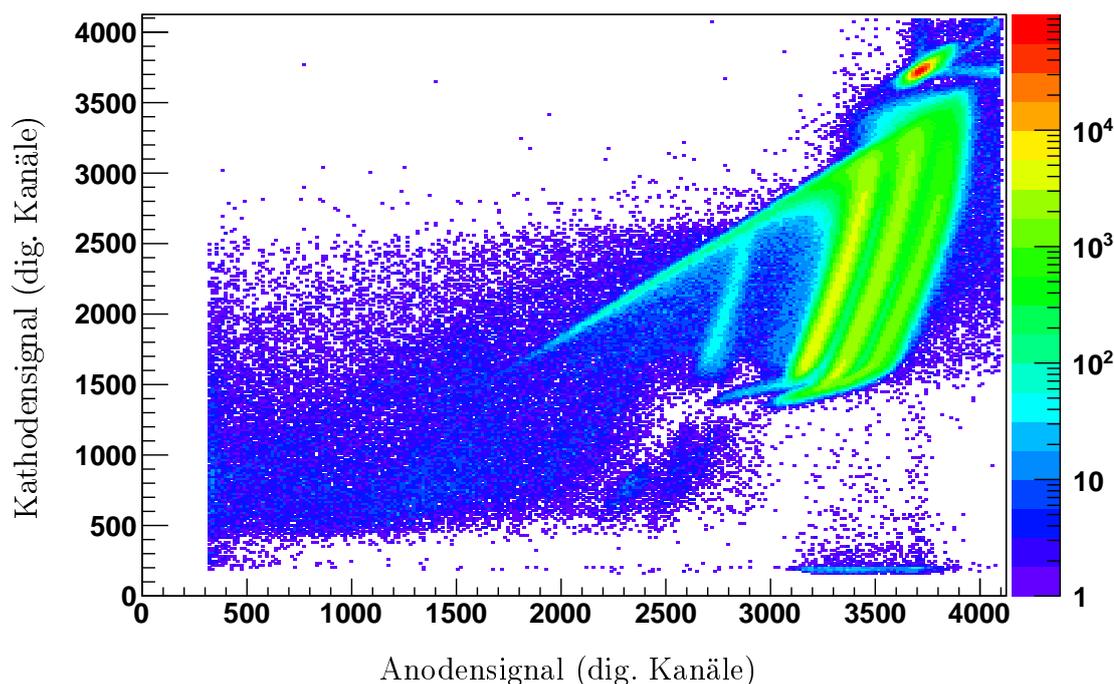


Abbildung 5.9: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1100 mln Argon, einer Temperatur von 373,15 K, einem Druck von 1033,66 mbar und insgesamt 6472750 Ereignissen.

An der Verkipfung der drei Linien nach rechts lässt sich die nun deutlich größere Gitterineffizienz erkennen. Aufgrund der nicht perfekten Abschirmung der Anode gegenüber der Ladung der positiven Ionen reduziert sich das Anodensignal mit steigendem  $\bar{X}$ . Der Anstieg der Gitterineffizienz gegenüber dem früheren Aufbau ist in der mangelnden elektrischen Verbindung des Gitters durch den Keramikkleber mit dem Gitterring begründet. Die Signale der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle sind noch getrennt voneinander darstellbar, jedoch nicht mehr so klar separiert wie im früheren Aufbau. Zur Beurteilung der Qualität der Datenaufnahme wurden Pulssignale auf der Kathode und Anode hinzugefügt, zu sehen in der oberen rechten Ecke in Abb. 5.9.

Die  $^{238}\text{U}$ Linie ist trotz Evakuierung und Argonspülung der Detektor-Kammer noch deutlich zu erkennen, die  $^{234}\text{U}$ Linie ist nur schwach neben der  $^{239}\text{Pu}$ Linie zu erkennen.

In einer ersten Version neuer innerer Komponenten erfolgte die zusätzliche Abschirmung der MHV-Spannungsdurchführungen nur an der Oberfläche des CF-150-Blindflansches. Erste Tests mit Argon zeigten immer noch Spannungsdurchschläge, wenn auch bei höheren Spannungen. Der in die MHV-Spannungsdurchführung eingeführte PTFE-Hohlzylinder wurde daher von 2 mm auf 14 mm verlängert. Dadurch traten Spannungsdurchschläge erst bei 2700 V an der Kathode auf, jedoch mit deutlich verminderter Intensität, sodass die verwendeten Vorverstärker nicht in Mitleidenschaft gezogen wurden, jedoch hatte die Signalqualität nach den Spannungsdurchschlägen deutlich nachgelassen, siehe Abb. 5.10.

Mit einer angelegten Hochspannung von -880 V an der Kathode und 250 V an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) nach den Spannungsdurchschlägen in Abb. 5.10.

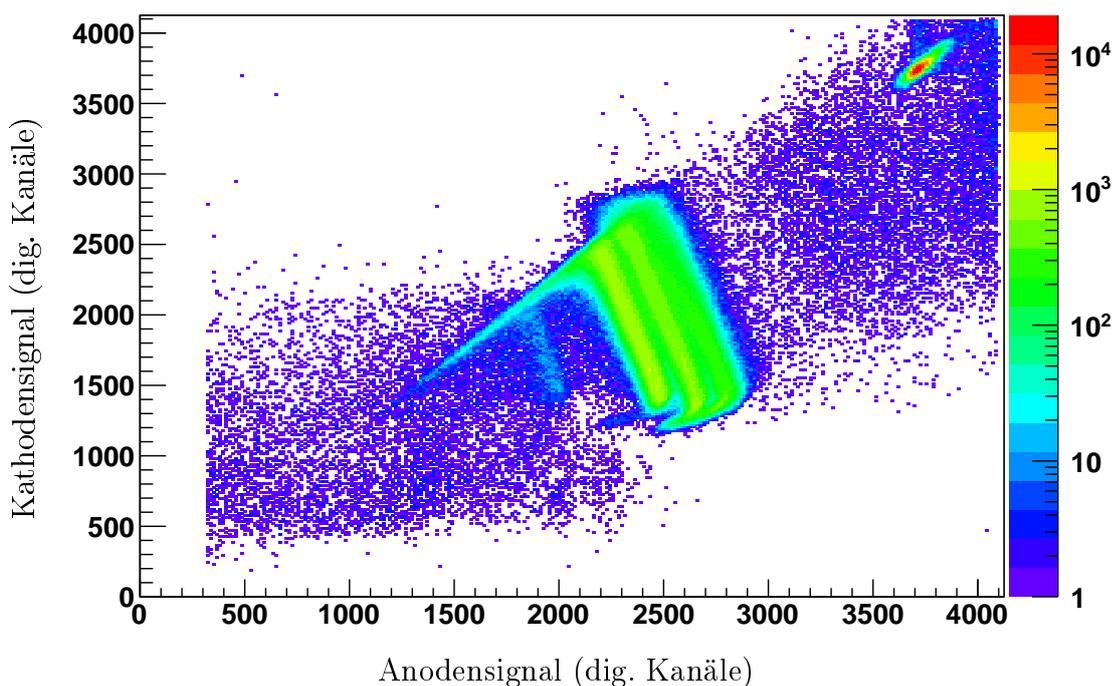


Abbildung 5.10: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1100 mln Argon, einer Temperatur von 373,15 K, einem Druck von 1033,66 mbar und insgesamt 1305563 Ereignissen.

Die Signallinien sind deutlich nach links verkippt, ein Indiz dafür, dass die freigesetzten Elektronen von Kontaminationen im Gas aufgesammelt werden. Bei einer gleichförmigen Verteilung der Kontamination ist dieser Effekt besonders groß für große Emissionswinkel, da die Driftstrecke mit fallendem  $\bar{X}$  ansteigt.

Erneut wurde die Detektor-Kammer mit hochreinem Argon über einen Zeitraum von 1 h mit einem Fluss von ca. 40 mln/min durchspült und anschließend mit der bereits kontaminierten, ölgelagerten Drehschieberpumpe evakuiert. Es folgte eine Füllung mit 1100 mln Argon, die Temperatur der Detektor-Kammer betrug 373,15 K.

Mit einer angelegten Hochspannung von -880 V an der Kathode und 250 V an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) nach der Argon-Spülung in Abb. 5.11.

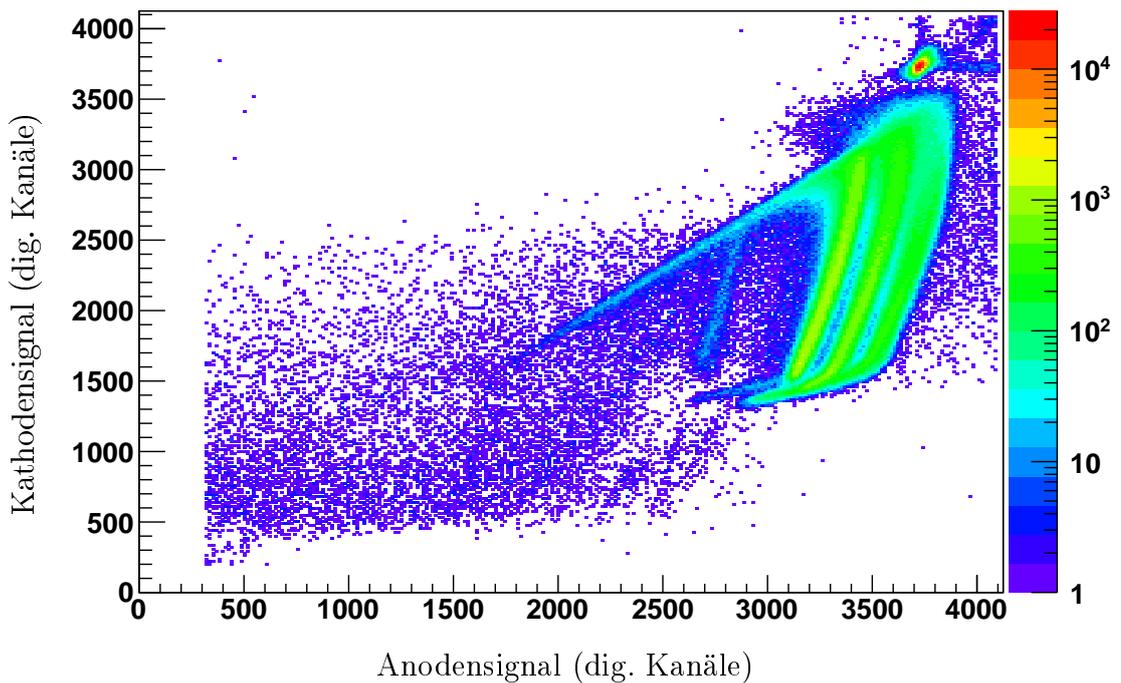


Abbildung 5.11: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1100 mln Argon, einer Temperatur von 373,15 K, einem Druck von 1033,66 mbar und insgesamt 1294148 Ereignissen.

Nach der Argon-Spülung war die ursprüngliche Signalqualität wiederhergestellt. Die Datenaufnahme wurde optimiert, die Pulssignale sind nun deutlicher und die Signale der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle wieder klar separiert. Als neue Referenz wurde die Detektor-Kammer mit hochreinem Argon über einen Zeitraum von 1 h mit einem Fluss von ca. 40 mln/min durchspült und anschließend mit der bereits kontaminierten, ölgelagerten Drehschieberpumpe evakuiert. Es folgte eine Füllung mit 1100 mln Argon, die Temperatur der Detektor-Kammer betrug 373,15 K. Mit der Van-der-Waals-Gleichung für reale Gase (Gl. (5.5)) ergibt sich ein Druck von 1033,66 mbar im Inneren der Detektor-Kammer.

Mit einer angelegten Hochspannung von -880 V an der Kathode und 250 V an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.12.

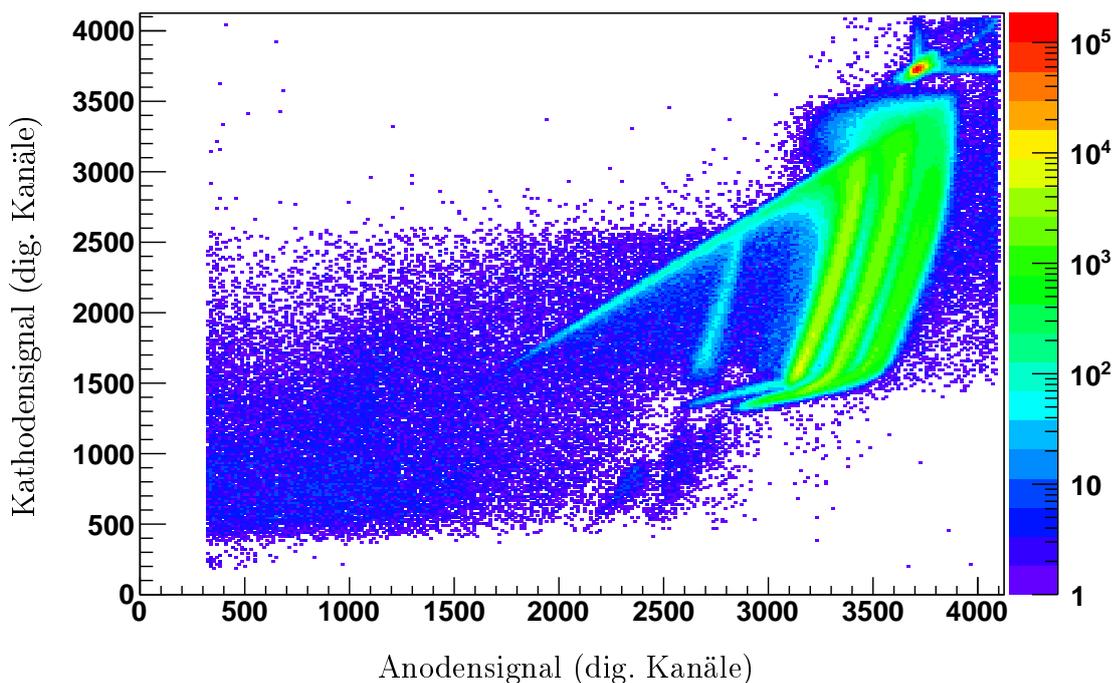


Abbildung 5.12: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1100 mln Argon, einer Temperatur von 373,15 K, einem Druck von 1033,66 mbar und insgesamt 5503142 Ereignissen.

Im Anschluss wurde die Detektor-Kammer erneut mit  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid befüllt. Der Massenflussregler [214] wurde mangels einer geeigneten Steuereinheit mit für den S-DALINAC neu entwickelten stromstabilisierten Netzteilen [244] angesteuert und das Messsignal mit einem  $\Sigma\Delta$ -Wandler [245] ausgelesen. Ein Defekt in dem verwendeten Netzteil führte zu einem Kurzschluss in der Ansteuerung. Das Steuerelement des Massenflussreglers wurde irreparabel zerstört, die Ausleseinheit blieb jedoch funktionsfähig. Der Massenflussregler wurde stattdessen über eine direkte Stromversorgung der Magnetspule gesteuert, mit steigendem Stellsignal reduziert sich der Anpressdruck der metallischen Prallplatte auf die Durchlassöffnung des Massenflussreglers und es ergibt sich ein steigender Massenfluss. Die Auslese war weiterhin über den  $\Sigma\Delta$ -Wandler möglich, das dem Massenfluss entsprechende Signal wurde über den Signal-Nullpunkt des Massenflussreglers, dessen Spezifikationen und eine Referenzspannungsquelle kalibriert.

Das Uran(VI)-fluoridreservoir wurde auf eine Temperatur von 353,15 K gebracht, die Detektor-Kammer auf eine Temperatur von 363,15 K, das Ventil zwischen Massenflussregler und Detektor-Kammer blieb noch geschlossen.

Als das Ventil zwischen Uran(VI)-fluoridreservoir und Massenflussregler geöffnet wurde, ergab sich ein Druckstoss, der trotz geschlossenem Massenflussregler für kurze Zeit zu einem maximalen Massenfluss führte und anschließend exponentiell abfiel. Eine Stoffmenge von 3,126 mln wurde in die Detektor-Kammer eingebracht.

Ausfälle in den Heizelementen und erneutes Anfahren der Solltemperatur führten zu Temperaturschwankungen bei der Temperatur des Uran(VI)-fluoridreservoirs und der Detektor-Kammer und infolgedessen zu Druckschwankungen, die in einem Massenfluss von 3,445 mln resultierten.

Bei der Öffnung des Ventils zwischen Massenflussregler und Detektor-Kammer wurde ein Massenfluss von 0,056 mln gemessen. Insgesamt gelangten so 6,627 mln  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid in die Detektor-Kammer.

Mit einer angelegten Hochspannung von -1600 V an der Kathode und 400 V an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.13.

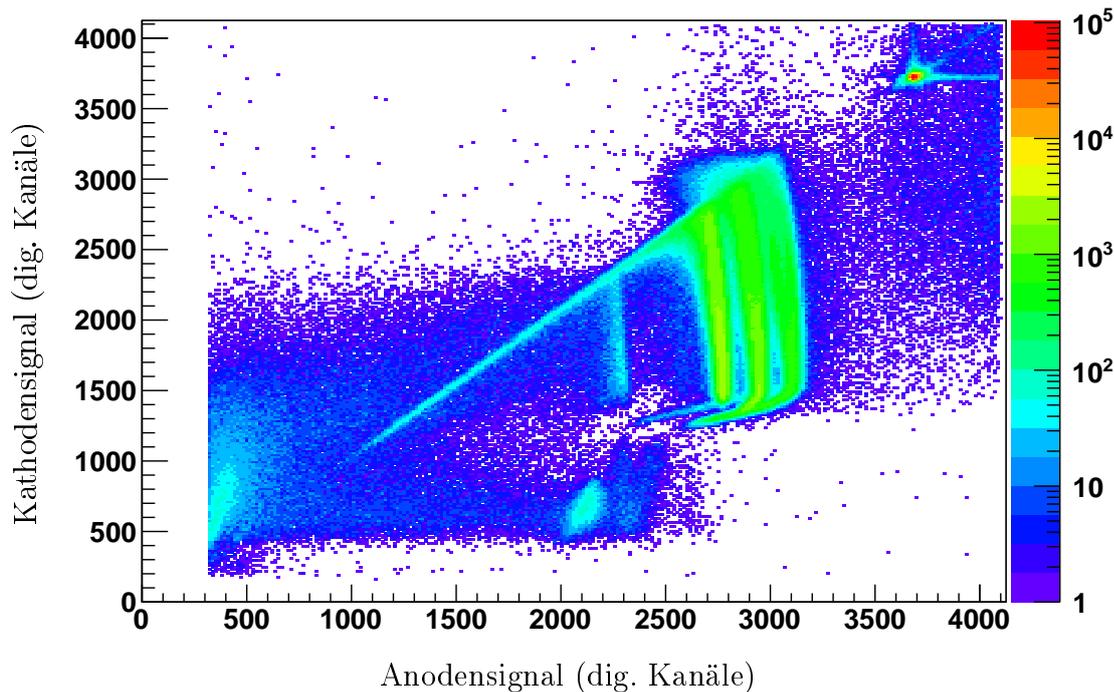


Abbildung 5.13: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1100 mln Argon und 6,627 mln  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid, einer Temperatur von 363,15 K, einem Druck von 1011,84 mbar und insgesamt 2534072 Ereignissen.

Die Füllmenge entspricht einer  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichte von  $62,05 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Gegenüber den Referenzdaten aus Abb. 5.12 sind die Signallinien deutlich nach rechts verkippt, ein Indiz dafür, dass die freigesetzten Elektronen von Kontaminationen im Gas aufgesammelt werden. Da der Umbau der Massenflussregler in einer Argonatmosphäre erfolgte, kann eine Kontamination durch eingeschlossene Luft zwischen dem Massenflussregler und dem Uran(VI)-fluoridreservoir ausgeschlossen werden. Die Datenaufnahme wurde nochmals optimiert, die Pulssignale sind noch deutlicher und die Signale der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle klar separiert. Für diese Darstellung wurde die an der Kathode anliegende Hochspannung deutlich erhöht und die Anodenhochspannung angepasst, da bei kleinerer Hochspannung die Verkipfung noch drastischer ausfiel.

Folgend wurde über den Massenflussregler eine Stoffmenge von 1,245 mln kontrolliert eingebracht. Mit der Van-der-Waals-Gleichung für reale Gase (Gl. (5.5))

und einer Addition der Partialdrücke ergibt sich ein Druck von 1012,95 mbar im Inneren der ursprünglichen Detektor-Kammer.

Mit einer angelegten Hochspannung von -1800 V an der Kathode und 500 V an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.14.

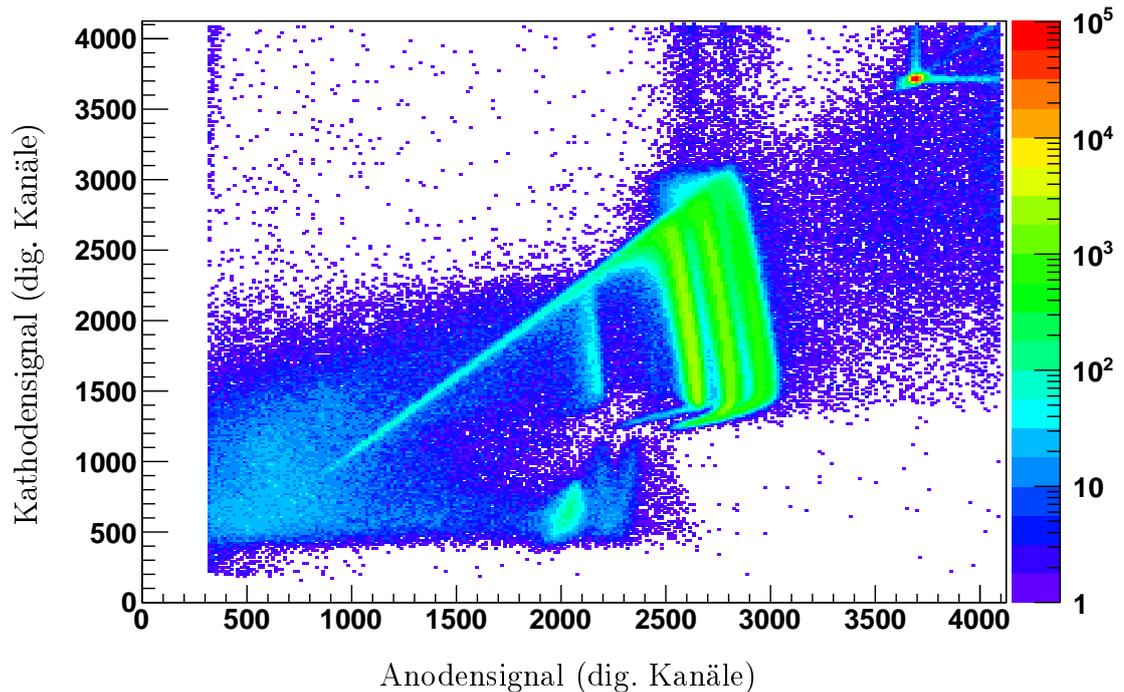


Abbildung 5.14: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1100 mln Argon und 7,872 mln  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid, einer Temperatur von 353,15 K, einem Druck von 1012,95 mbar und insgesamt 2521118 Ereignissen.

Die Füllmenge entspricht einer  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichte von  $73,71 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Gegenüber den Daten aus Abb. 5.13 sind die Signallinien nochmals nach rechts verkippt, der Einfluss der Kontamination wächst mit steigendem  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluoridanteil. Für diese Darstellung wurde die an der Kathode anliegende Hochspannung wiederum erhöht und die Anodenhochspannung angepasst, da bei kleinerer Hochspannung die Verkipfung noch drastischer ausfiel.

Beim Versuch, eine weitere kleine Menge  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid kontrolliert der Detektor-Kammer zuzuführen, konnte der Massenfluss erst gestoppt werden, als das Ventil zwischen Uran(VI)-fluoridreservoir und Massenflussregler komplett geschlossen wurde. Die eingebrachte Stoffmenge belief sich auf 37,925 mln.

Mit einer angelegten Hochspannung von -2800 V an der Kathode und 800 V an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.15.

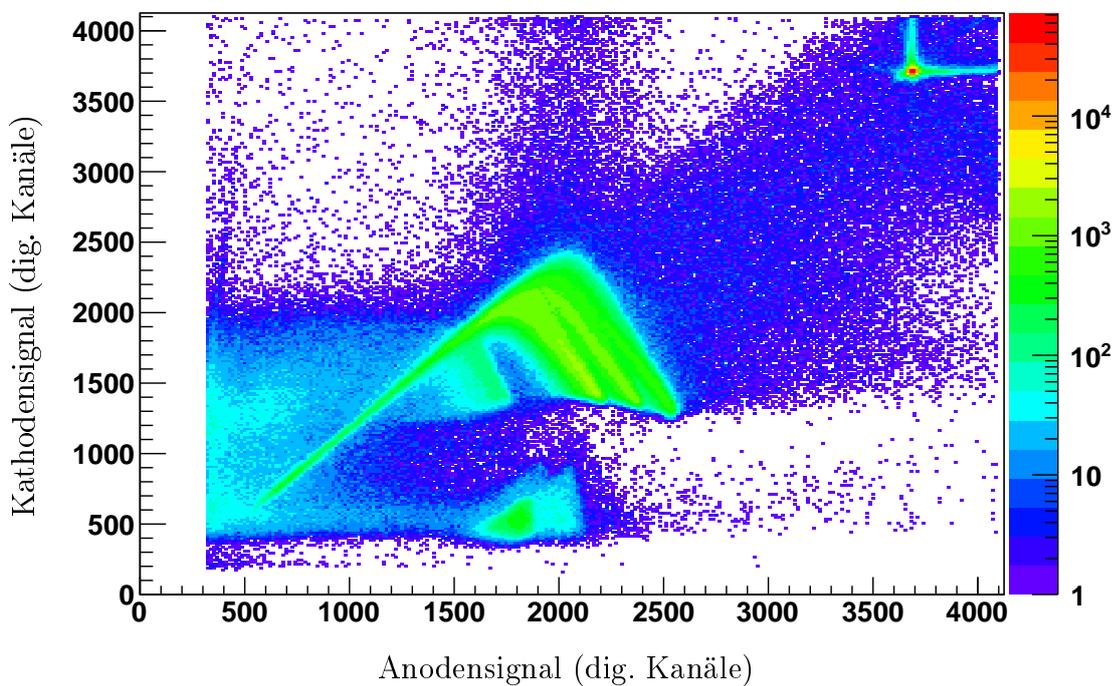


Abbildung 5.15: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1100 mln Argon und 45,797 mln  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid, einer Temperatur von 353,15 K, einem Druck von 1046,82 mbar und insgesamt 2280834 Ereignissen.

Die Füllmenge entspricht einer  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichte von 428,82  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Gegenüber den Daten aus Abb. 5.14 sind die Signallinien nochmals nach rechts verkippt, der Einfluss der Kontamination wächst mit steigendem  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluoridanteil. Für diese Darstellung wurde die an der Kathode anliegende Hochspannung wei-

ter erhöht und die Anodenhochspannung angepasst. Dennoch ist das maximale Anoden- und Kathodensignal der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle deutlich reduziert.

Aufgrund der großen Differenz wurde die Detektor-Kammer erneut mit hochreinem Argon über einen Zeitraum von 1 h mit einem Fluss von ca. 40 mln/min durchspült und mit der kontaminierten, ögelagerten Drehschieberpumpe über die zwischengeschaltete Kältefalle evakuiert. Es wurden neue Referenzdaten für 1100 mln Argon bei einer Temperatur der Detektor-Kammer von 363,15 K aufgenommen. Mit der Van-der-Waals-Gleichung für reale Gase (Gl. (5.5)) ergibt sich ein Druck von 1005,92 mbar im Inneren der Detektor-Kammer.

Mit einer angelegten Hochspannung von -1600 V an der Kathode und 400 V an der Anode ergibt sich folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.16.

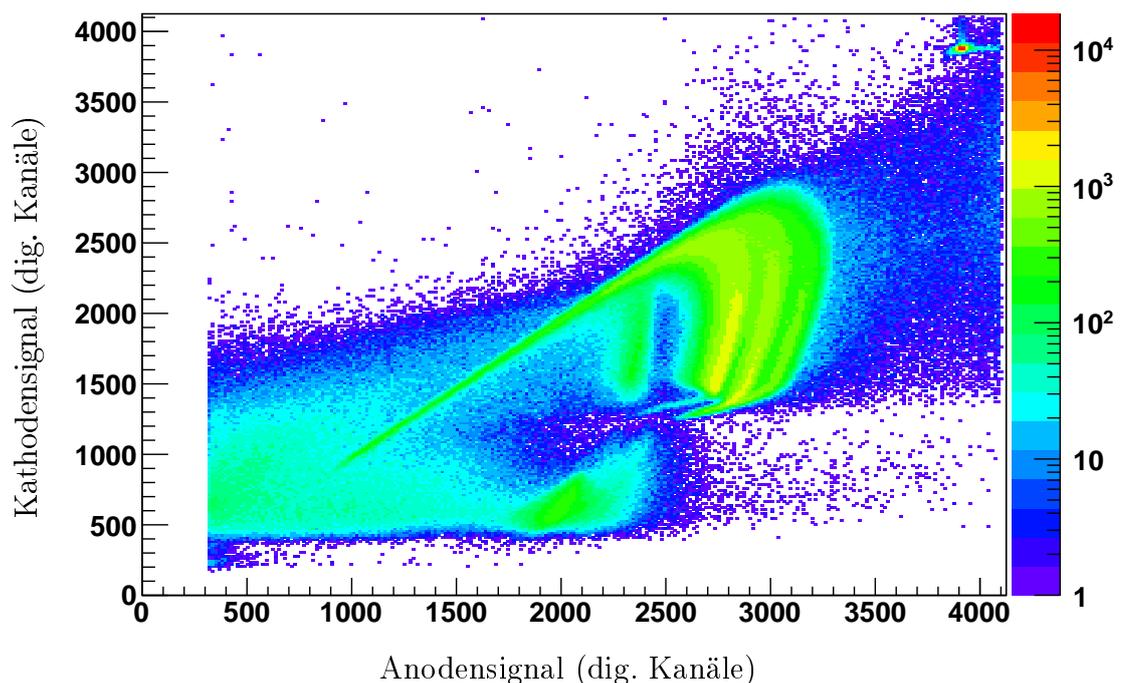


Abbildung 5.16: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1100 mln Argon, einer Temperatur von 353,15 K, einem Druck von 1005,92 mbar und insgesamt 2426695 Ereignissen.

Die Verkippung der Signallinien wendet sich wiederum nach rechts, die Signale der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle sind jedoch nicht mehr so klar separiert wie in Abb. 5.12, zudem ist das maximale Anoden- und Kathodensignal der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle deutlich reduziert.

Der zweite Versuch, eine kleine Menge  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid kontrolliert der Detektor-Kammer zuzuführen, scheiterte jedoch. Erst das Verschließen des Ventils zwischen Uran(VI)-fluoridreservoir und Massenflussregler stoppte den Massenfluss. Hierbei wurde eine Stoffmenge von 47,881 mln eingebracht. Die Füllmenge entspricht einer  $^{238}\text{Uran}$ -Flächendichte von  $448,34 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ .

Mit einer angelegten Hochspannung von  $-3000 \text{ V}$  (Maximalwert des Vorverstärkers) an der Kathode und  $1000 \text{ V}$  an der Anode ergibt sich ähnlich zu Abb. 5.15 folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.17.

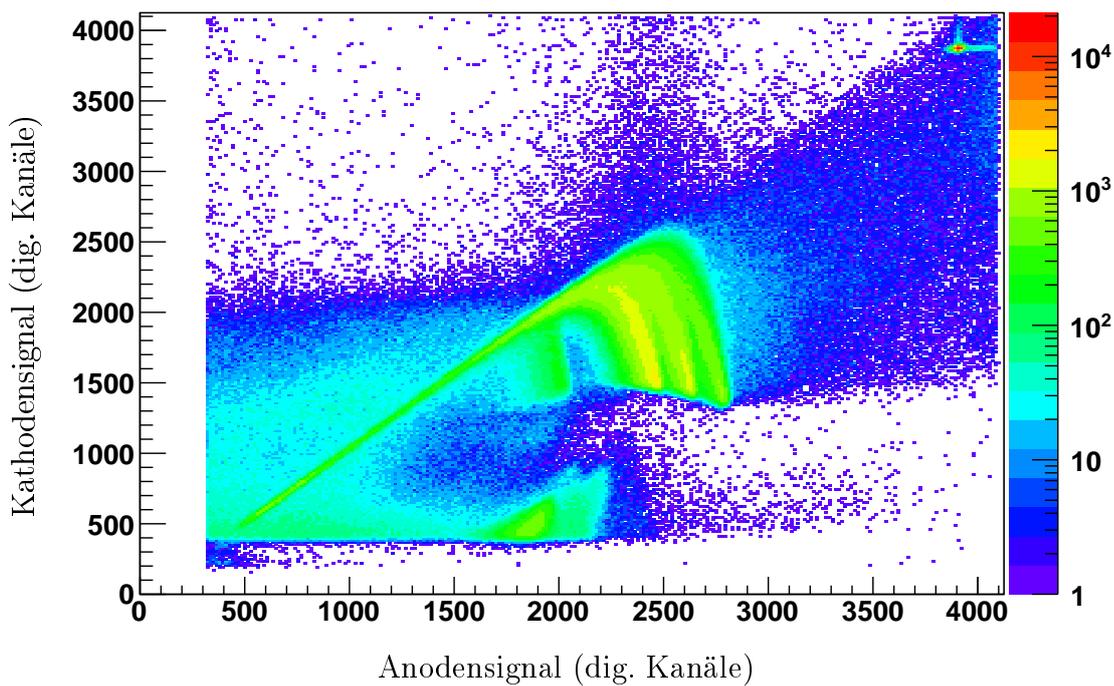


Abbildung 5.17: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1100 mln Argon und 47,881 mln  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid, einer Temperatur von  $353,15 \text{ K}$ , einem Druck von  $1048,68 \text{ mbar}$  und insgesamt 2318122 Ereignissen.

## 5.2 Zeitliche Änderung

Weitere 10,967 mln wurden kontrolliert der Detektor-Kammer zugeführt, indem das Ventil zwischen Uran(VI)-fluoridreservoir und Massenflussregler kurz nach dem Öffnen direkt wieder verschlossen wurde. Die Füllmenge entspricht einer  $^{238}\text{U}$ -Flächendichte von  $551,03 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ .

Mit einer angelegten Hochspannung von -3000 V an der Kathode und 1000 V an der Anode ergibt sich beginnend mit der  $^{238}\text{U}$ (VI)-fluorid-Befüllung folgender zeitlicher Verlauf der zweidimensionalen, logarithmisch farbkodierten Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.18. Jeder Datensatz entspricht ca. einer halben Stunde.

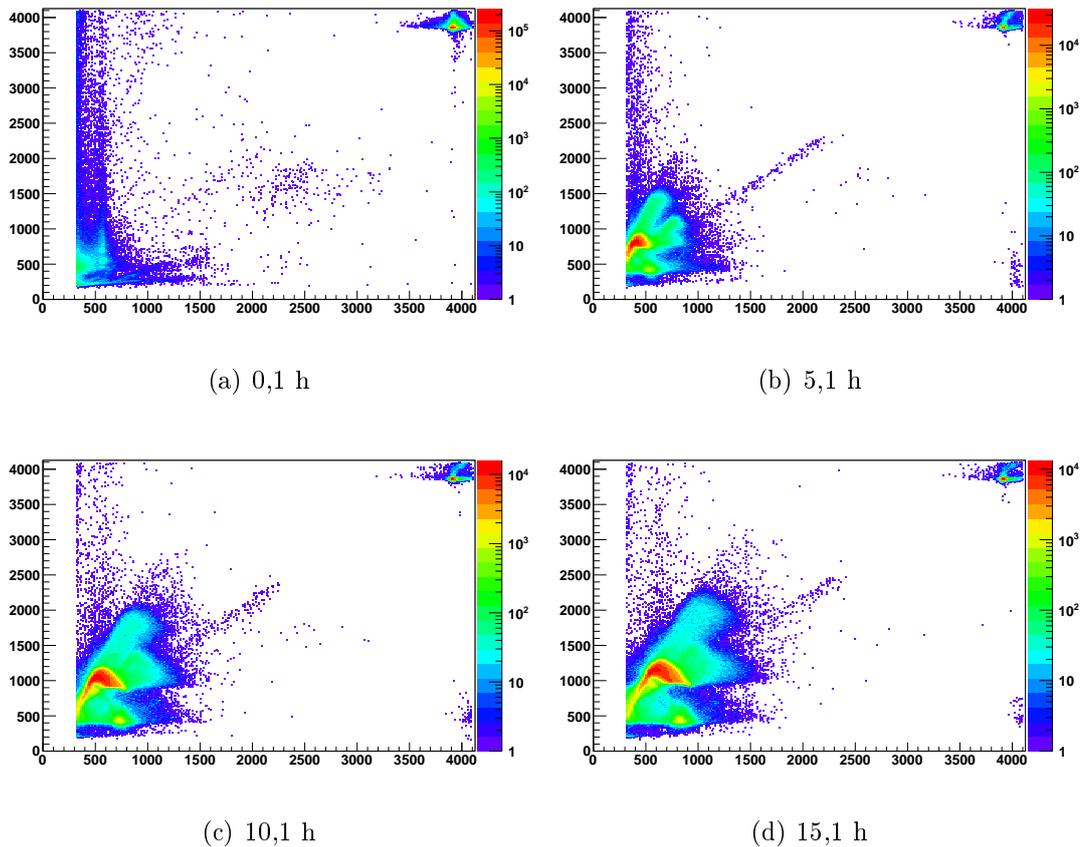


Abbildung 5.18: Zeitlicher Verlauf der logarithmisch farbkodierten Darstellung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate).

Direkt im Anschluss an die Befüllung mit  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid sind Anoden- und Kathodensignal vollständig eingebrochen und erholen sich nur langsam. Nach 10,1 h ist zumindest die typische Struktur der Signale wiederzuerkennen, wenn auch in deutlich verkleinerter Form.

Ein technischer Defekt im Proportionaldiskriminator unterbrach die Messung des zeitlichen Verlaufs nach ca. 20 h. Nach der Korrektur des Defektes wurde die Messung des zeitlichen Verlaufs 72 h nach dem Abschluss der  $^{238}\text{Uran(VI)}$ -fluorid-Befüllung fortgesetzt.

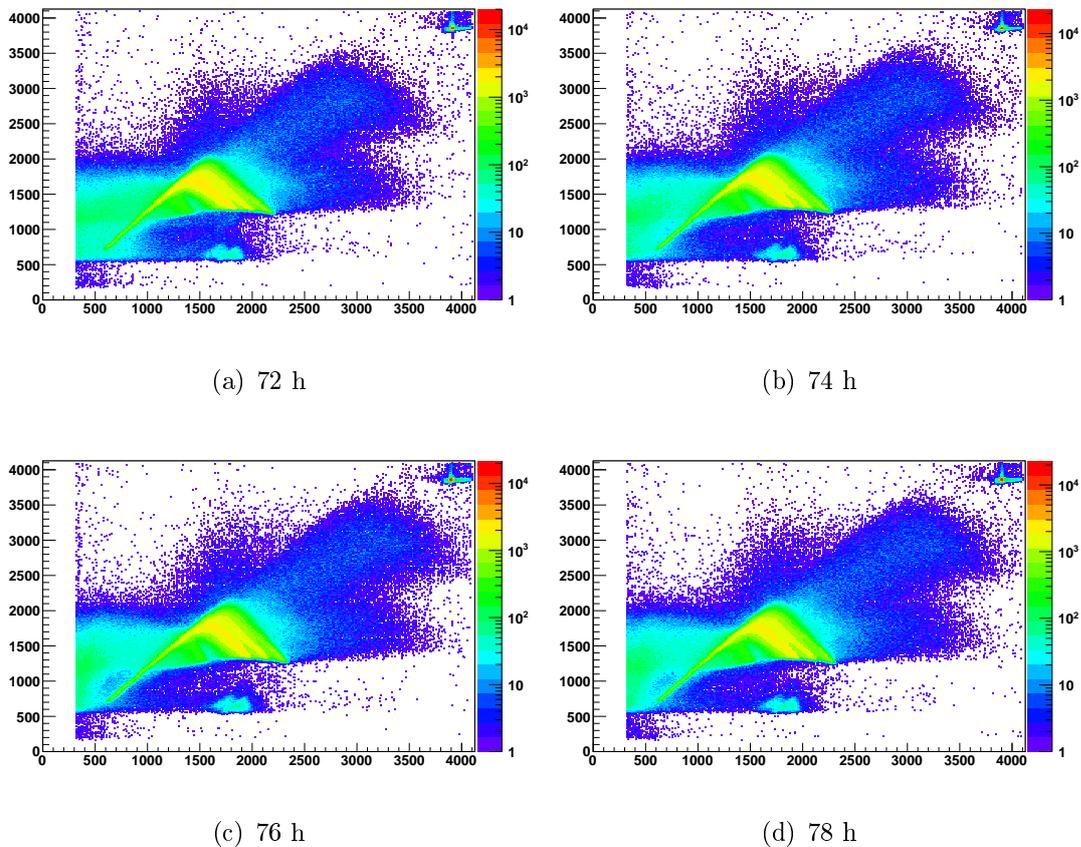


Abbildung 5.19: Zeitlicher Verlauf der logarithmisch farbkodierten Darstellung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate).

Anhand der Darstellung des zeitlichen Verlaufs in Abb. 5.19 im Zeitraffer von 2 h ist zu erkennen, dass die zeitliche Änderung der Signale der Drei-Linien- $\alpha$ -Quelle nach 72 h deutlich langsamer voranschreitet.

Mit einer angelegten Hochspannung von -3000 V an der Kathode und 1000 V an der Anode ergibt sich nach 14 Tagen folgende zweidimensionale, logarithmisch farbkodierte Darstellung der Verteilung des Anoden- (Abszisse) und Kathodensignals (Ordinate) in Abb. 5.20.

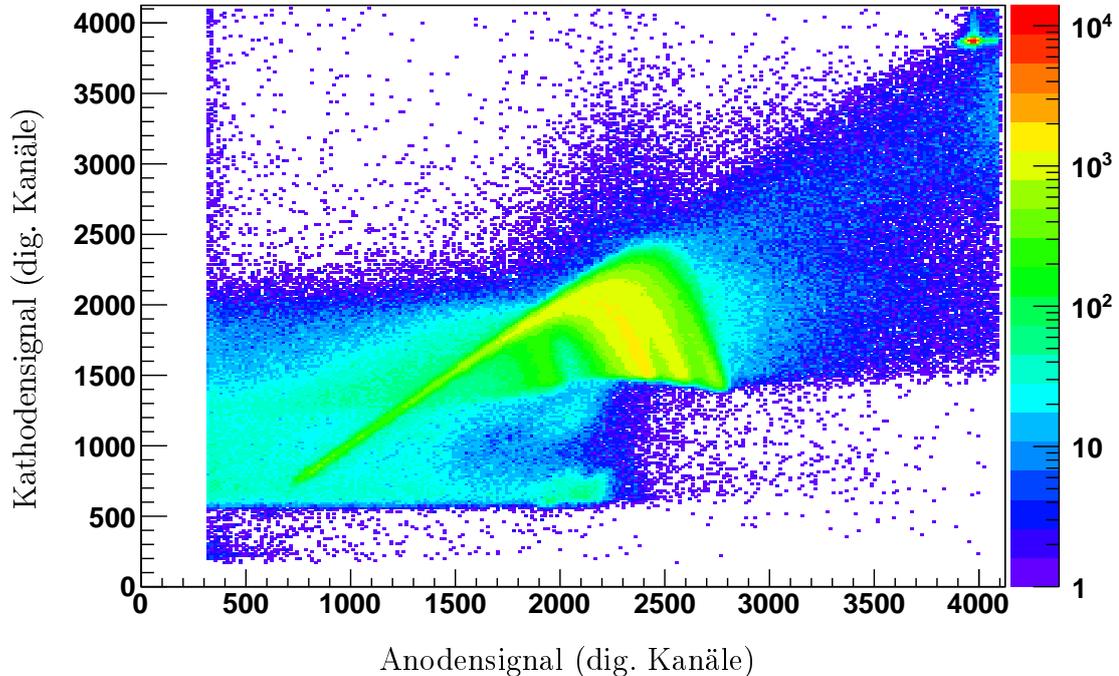


Abbildung 5.20: Logarithmisch farbkodierte Darstellung des Anoden- und Kathodensignals mit 1100 mln Argon und 58,848 mln <sup>238</sup>Uran(VI)-fluorid, einer Temperatur von 353,15 K, einem Druck von 1058,47 mbar und insgesamt 2394641 Ereignissen.

Die Detektor-Kammer wurde erneut um einen Winkel von 100° verkippt, um auszuschliessen, dass sich eine Schicht <sup>238</sup>Uran(VI)-fluorid am Boden der Detektor-Kammer ausbildet. Bei der Datenaufnahme konnte keine Änderung der Signale festgestellt werden.

## 5.3 Fazit

Anhand der aufgenommenen Daten lassen sich folgende Schlussfolgerungen ziehen:

Aufgrund der in Abb. 5.18 und Abb. 5.19 dargelegten zeitlichen Änderung der Signalqualität ist eine sinnvolle Datenaufnahme direkt nach der Befüllung der Detektor-Kammer mit gasförmigem  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$  nicht möglich. Mit der Zeit entwickelt sich die Darstellung der Signale, sodass die Signallinien der Dreiliniens- $\alpha$ -Quelle und die  $^{238}\text{Uranlinie}$  wieder erkennbar werden. Folglich muss das  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$ , vermutlich ob seiner Komplexität und des hohen Fluoranteils und dessen Elektronegativität, als sehr effizienter Elektronenkollektor agieren. Unter dieser Annahme muss sich im Verlauf der Zeit der Anteil gasförmigen  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorides}$  reduzieren, um die Signallinien wieder erkennen zu können.

Mehrere Prozesse zur Reduktion des  $^{238}\text{Uran(VI)-fluoridanteils}$  sind denkbar:

Zum einen die chemische Reaktion des  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorides}$  mit den metallischen Kammerwänden. Sowohl die verwendeten Edelmessing als auch die Kupferdichtung werden von Uran(VI)-fluorid angegriffen und korrodieren. Aufgrund der großen Oberfläche nach Tab. 3.3 sollte dies den dominanten Effekt darstellen.

Der Angriff des Uran(VI)-fluorides beginnt bevorzugt an nichtmetallischen Einschlüssen, wie etwa dem in kleinen Mengen vorhandenen Kohlenstoff. Die Reaktion führt zu einer Verunreinigung der Gasphase mit  $\text{CF}_4$  [204]. Die Bildung von  $\text{CF}_4$  liefert eine sehr gute Erklärung für das zu beobachtende Wachstum der Driftgeschwindigkeit [246].

Zweitens besteht die Möglichkeit einer reversiblen Sorption an den PTFE-Oberflächen [204], die ebenfalls nach Tab. 3.3 eine große Oberfläche im Inneren der Detektor-Kammer aufweisen.

Drittens bleibt noch eine Zersetzungsreaktion aufgrund von Fremd- und Eigenbestrahlung mit  $\alpha$ -Teilchen [204]. Hierbei bildet sich ein nicht identifiziertes Uranfluorid und Fluorgas. Die Bildung von Fluor in der Zersetzungsreaktion erklärt zudem die notwendige Anhebung der verwendeten Hochspannung aufgrund der hohen Elektronegativität und einer erhöhten Rekombinationswahrscheinlichkeit.

Letztlich besteht die Möglichkeit einer Desublimation an kalten Oberflächen, deren Temperaturen sich unterhalb des Sublimationspunktes befinden.

Somit bleibt festzuhalten, dass in der derzeitigen Konfiguration der aktiven  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid-Detektor-Kammer}$  keine quantitativen Aussagen über die Eigenschaften eines  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid/Argon-Gemisches}$  getroffen werden können. Die Annahme einer gleichmäßigen Verteilung gasförmigen  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorides}$  in der Detektor-Kammer lässt sich ebenfalls nicht mehr aufrechterhalten.

Die Steigerung der Luminosität für Präzisionsexperimente in der photoneninduzierten Spaltung am S-DALINAC durch eine aktive  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid-Detektor-Kammer}$  erscheint zum jetzigen Zeitpunkt als nicht möglich.

## 6 Ausblick

Trotz der bisher gewonnenen Erkenntnisse ist die Untersuchung der Eigenschaften des  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid/Argon-Gemisches}$  nicht abgeschlossen.

Statt mit Heizelementen kann die Detektor-Kammer mit heißer Luft in ein thermisches Gleichgewicht bei einer gewählten Temperatur gebracht werden. Durch eine gleichmäßigere Temperaturverteilung der Detektor-Kammer werden kalte Zonen vermieden, deren Temperaturen sich unterhalb des Sublimationspunktes befinden. Eine Messung der Temperatur an mehreren Stellen im Inneren der Detektor-Kammer liefert eine klare Aussage, ob Anteile des  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorides}$  an den Oberflächen im Inneren der Detektor-Kammer desublimieren. Hierfür werden zusätzliche Vakuumdurchführungen und für Uran(VI)-fluorid geeignete Messfühler benötigt. Temperaturabhängige Effekte in der  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid-Konzentration}$  können somit ausgeschlossen werden.

Bei einem konstanten Argondruck ermöglicht der Einbau eines Druckmessfühlers zeitlich aufgelöst die Bestimmung des vorherrschenden Aggregatzustandes des  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorides}$ . Eine zusätzliche Fremdgaskonzentration als Reaktionsprodukt des  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$  mit den Materialien der Detektor-Kammer führt jedoch zu einem nur leicht veränderten Druck bei einer stark verminderten  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid-Konzentration}$ .

Letztlich gibt erst eine massenspektrometrische Analyse Auskunft über die tatsächliche Gaszusammensetzung aus Argon,  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$  und möglichen gasförmigen Reaktionsprodukten.

Nach der letzten Befüllung der aktiven  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid-Detektor-Kammer}$  wurde die Driftgeschwindigkeit mehrfach, verteilt über einen längeren Zeitraum, gemessen. Hierbei wurde eine zeitliche Abhängigkeit der Driftgeschwindigkeit beobachtet [247], die noch genauer untersucht wird [248].

Die Verwendung einer digitalen Pulsformanalyse erlaubt die Gewinnung einer zusätzlichen Ortsinformation zur Definition eines ausgezeichneten Volumens in der Detektor-Kammer. Allerdings muss zur Definition des Volumens die zeitlich variable Driftgeschwindigkeit bekannt sein.

Zudem kann mit einer geringen Füllmenge  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorides}$  in der Detektor-Kammer versucht werden Ereignisse aus der Spontanspaltung des  $^{238}\text{Urans}$  nachzuweisen.

Sollte es gelingen, hohe gasförmige  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid-Konzentrationen}$  in einer Detektor-Kammer zu erzielen, ohne den Prozess der Signalbildung zu beeinträchtigen, werden spezielle Detektorsysteme benötigt, um präzise einen paritätsverletzenden Effekt zu vermessen.

Aufgrund der sehr exakten Orts- und Winkelauflösung bieten sich hier segmentierte aktive Zeit/Ladungs-Projektionskammern an [249, 250]. Diese ermöglichen eine dreidimensionale Spurverfolgung und die vollständige Rekonstruktion der Kinematik von Zwei-Teilchen-Reaktionen bis hin zur Teilchen-Identifikation.

Eine segmentierte Kathode liefert eine zweidimensionale Ortsinformation aufgrund der Ladungsverteilung, während Informationen über die dritte Dimension anhand der Driftzeit ermittelt werden. Beide Zeit/Ladungs-Projektionskammern weisen eine Kantenlänge der Segmente von 5 mm auf, die eine mit hexagonaler [249], die andere mit quadratischer Form [250]. Da die Driftzeit unter Beimischung von  $^{238}\text{Uran(VI)-fluorid}$  keine Konstante ist, erschwert sich die vollständige Rekonstruktion der Kinematik.

Die Auflösung eines solchen Systems ist a priori nicht bestimmt, sondern ergibt sich aus Simulationen. Bei einem Gasgemisch mit 80 Volumenanteilen Argon und 20 Volumenanteilen Uran(VI)-fluorid, einem Druck von 1,013 bar, einer Temperatur von 329,75 K und der Gasdichte nach Ref [206] ergibt sich mit dem Software-Paket SRIM für ein  $^{56}\text{Fe-Spaltfragment}$  eine Reichweite von  $21,5 \pm 0,5$  mm und für ein  $^{137}\text{Ba-Spaltfragment}$  eine Reichweite von  $16,7 \pm 1,7$  mm [248]. Um eine präzisere zweidimensionale Ortsinformation zu erhalten muss die Segmentierung der Kathode einer aktiven Zeit/Ladungs-Projektionskammer noch erhöht werden.

Eine vollständige theoretische Betrachtung des paritätsverletzenden Effektes der einzelnen angeregten Niveaus in der Vorwärts-Rückwärts-Asymmetrie des leichten und schweren Spaltfragmentes unter Berücksichtigung eines breiten Anregungsspektrums und der hohen Niveaudichte kann detaillierte Informationen über eine geeignete Endpunktsenergie sowie die Anforderungen an die Energieauflö-

sung liefern. Denkbar wäre z.B. die Bestimmung eines Asymmetriefaktors  $A_{PV}$  als statistischer Erwartungswert über 1000 Anregungsniveaus in Abhängigkeit von der gewählten Endpunktsenergie.

Durch die Entwicklung neuer, hochintensiver Strahlungsquellen mit guter Energieauflösung wird es möglich nur sehr wenige Niveaus anzuregen und doch eine hohe Spaltrate zu erzielen, ein statistisch signifikanter paritätsverletzender Effekt kann somit auch an einer konventionellen Materialfolie gemessen werden. Als Beispiel stehen hier die High Intensity Gamma-Ray Source HIGS [251] mit einer Energieauflösung von wenigen Prozent sowie das Extreme Light Infrastructure Nuclear Physics ELI-NP Projekt [252] mit einer Energieauflösung von 0,1%.

Zur Steigerung der Spaltrate ist auch eine Kombination mehrerer hintereinander aufgebauter doppelter Frisch-Gitter-Ionisationskammern denkbar, der Gasdruck wird um einen Faktor 10 verstärkt, um eine kompakte Bauweise zu ermöglichen.

# Literatur

- [1] E. Rutherford und F. Soddy: *Condensation of the Radioactive Emanations*, Phil. Mag. **5**, 561 (1903).
- [2] J. D. Cockcroft und E. T. S. Walton: *Disintegration of Lithium by Swift Protons*, Nature **129**, 649 (1932).
- [3] J. Chadwick: *Possible Existence of a Neutron*, Nature **129**, 312 (1932).
- [4] I. Curie und F. Joliot: *I. Production artificielle d'éléments radioactifs - II. Preuve chimique de la transmutation des éléments*, J. Phys. Radium **5**, 153 (1934).
- [5] E. Fermi: *Possible Production of Elements of Atomic Number Higher than 92*, Nature **133**, 898 (1934).
- [6] I. Noddack: *Über das Element 93*, Angew. Chem. **47**, 653 (1934).
- [7] I. Curie und P. Savitch: *Sur le radioélément de période 3,5 heures formé dans l'uranium irradié par les neutrons*, C. R. Acad. Sci. **206**, 906 (1938).
- [8] I. Curie und P. Savitch: *Sur la nature du radioélément de période 3,5 heures formé dans l'uranium irradié par les neutrons*, C. R. Acad. Sci. **206**, 1643 (1938).
- [9] O. Hahn und F. Strassmann: *Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle*, Naturwiss. **27**, 11 (1939).
- [10] L. Meitner und O. R. Frisch: *Disintegration of Uranium by Neutrons: A New Type of Nuclear Reaction*, Nature **143**, 239 (1939).
- [11] O. R. Frisch: *Physical Evidence for the Division of Heavy Nuclei under Neutron Bombardment*, Nature **143**, 276 (1939).
- [12] N. Bohr: *Resonance in Uranium and Thorium Disintegrations and the Phenomenon of Nuclear Fission*, Phys. Rev. **55**, 418 (1939).

- [13] N. Bohr und J. A. Wheeler: *The Mechanism of Nuclear Fission*, Phys. Rev. **56**, 426 (1939).
- [14] R. O. Haxby, W. E. Shoupp, W. E. Stephens und W. H. Wells: *Photo-Fission of Uranium and Thorium*, Phys. Rev. **59**, 57 (1941).
- [15] C. Wagemans: *The Nuclear Fission Process* (CRC Press, Boca Raton, FL, USA, 1991).
- [16] A. Göök *et al.*: *Particle Emission Angle Determination in Frisch Grid Ionization Chambers by Electron Drift-Time Measurements*, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A **621**, 401 (2010).
- [17] M. Freudenberger *et al.*: *Recent Results from Photon-Induced Fission at the S-DALINAC, Proc. of the 5<sup>th</sup> Int. Conf. Fission and Properties of Neutron-Rich Nuclei*, im Druck (2012).
- [18] A. Göök *et al.*: *Fragment Properties from Fission of Actinide Nuclei Induced by 6-10 MeV Bremsstrahlung*, Physics Procedia **31**, 165 (2012).
- [19] A. Göök *et al.*: *Fragment Characteristics from Fission of  $^{238}\text{U}$  and  $^{234}\text{U}$  Induced by 6.5-9.0 MeV Bremsstrahlung*, Nucl. Phys. A **851**, 1 (2011).
- [20] A. Kötzle *et al.*: *Parity Nonconservation in Nuclear Fission: Does it Depend on Fragment Mass/Energy?*, Nucl. Inst. Meth. A **440**, 750 (2000).
- [21] G. V. Danilyan *et al.*: *P-Odd Asymmetry in the Fission of  $^{239}\text{Pu}$  by Polarized Thermal Neutrons*, JETP Lett. **26**, 186 (1977).
- [22] G. V. Danilyan *et al.*: *Parity Violation in Fission*, Sov. J. Nucl. Phys. **27**, 21 (1978).
- [23] V. P. Alfimenkov *et al.*: *Investigations of Parity Violation and Interference Effects in  $^{235}\text{U}$  Fission Induced by Resonance Neutrons*, Nucl. Phys. A **645**, 31 (1999).
- [24] N. V. Borovikova *et al.*: *Investigation of Spatial Parity Breakdown Effects in Thermal Polarized Neutron Capture Reactions with the Release of Heavy Charged Particles*, JETP Lett. **30**, 495 (1979).

- [25] U. Graf *et al.*: *Parity Nonconservation and Brosa Modes in Nuclear Fission*, Z. Phys. A **351**, 281 (1995).
- [26] G. E. Mitchell, A. Richter und H. A. Weidenmüller: *Parity Violation in Compound Nuclei: Experimental Methods and Recent Results*, Phys. Rep. **354**, 157 (2001).
- [27] V. V. Flambaum und O. P. Sushkov: *Mechanism of Parity Violation in Nuclear Fission*, Phys. Lett. B **94**, 277 (1980).
- [28] V. V. Flambaum und G. F. Gribakin: *Enhancement of Parity and Time-Invariance Violating Effects in Compound Nuclei*, Prog. Part. Nucl. Phys. **35**, 423 (1995).
- [29] T. Wettig und H. A. Weidenmüller: *Private Mitteilung*.
- [30] C. Budtz-Jørgensen *et al.*: *A Twin Ionization Chamber for Fission Fragment Detection*, Nucl. Inst. Meth. A **258**, 209 (1987).
- [31] C. Eckardt *et al.*: *Polarized Electrons for Experiments at Low Momentum Transfer SPIN @ S-DALINAC*, AIP Conference Proceedings **1149**, 919 (2009).
- [32] A. Göök: *Determination of Photofission Fragment Characteristics of  $^{234,238}\text{U}$  and  $^{232}\text{Th}$  in the Barrier Region*, Dissertation D17, TU Darmstadt, 2012.
- [33] U. Brosa: *Nuclear Scission*, Phys. Rep. **197**, 167 (1990).
- [34] T. Kürzeder: *Entwicklung, Aufbau und Test eines neuen Kryostatmoduls für den S-DALINAC*, Dissertation D17, TU Darmstadt, 2013.
- [35] F. Gudden *et al.*: *Eine Anordnung für Experimente zur Elektronenstreuung unterhalb 60 MeV*, Z. Phys. **181**, 453 (1964).
- [36] T. Grundey *et al.*: *Construction and First Operation of a Pilot cw Superconducting Electron Accelerator*, Nucl. Inst. Meth. A **224**, 5 (1984).

- [37] H. Heinrichs *et al.*: *Design of a Proposed 130 MeV Superconducting Recyclotron for Electrons*, *Lecture Notes in Physics* **108** (Springer Verlag, Berlin, 1979), S. 176.
- [38] A. Richter: *Operational Experience at the S-DALINAC*, *Proc. of the 5<sup>th</sup> EPAC* (IOP Publishing, Bristol, UK, 1996), S. 110.
- [39] W. Beinhauer *et al.*: *Latest Developments from the S-DALINAC*, *Proc. of the 10<sup>th</sup> Workshop RF Superconductivity* (CERN Press, Genf, Schweiz, 2001), S. 594.
- [40] Institut für Kernphysik: *Collaborative Research Centre 634 „Nuclear Structure, Nuclear Astrophysics and Fundamental Experiments at Low Momentum Transfer at the Superconducting Darmstadt Accelerator (S-DALINAC)“ Renewal Proposal* (unveröffentlicht, Darmstadt, 2010).
- [41] K. Alrutz-Ziemssen: *Die Injektion des Darmstädter supraleitenden 130 MeV Rezyklotrons für Elektronen*, Diplomarbeit, TH Darmstadt, 1986 (unveröffentlicht).
- [42] H. Weise: *Entwicklung, Aufbau und Betrieb eines Hochstrominjektors mit subharmonischem Chopper- und Prebunchersystem für den Freielektronen-Laser am S-DALINAC*, Dissertation D17, TH Darmstadt, 1992.
- [43] Y. Fritzsche: *Aufbau und Inbetriebnahme einer Quelle polarisierter Elektronen am S-DALINAC*, Dissertation D17, TU Darmstadt, 2011.
- [44] T. Bahlo: *Konfiguration und Test eines Hochfrequenz-Chopper- und Bunchersystems für den S-DALINAC*, Bachelor-Thesis, TU Darmstadt, 2010 (unveröffentlicht).
- [45] P. Mohr *et al.*: *Real Photon Scattering up to 10 MeV: The Improved Facility at the Darmstadt Electron Accelerator S-DALINAC*, *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A* **423**, 480 (1999).
- [46] K. Lindenberg: *Aufbau und Inbetriebnahme des Niederenergie-Photonentaggers NEPTUN am S-DALINAC*, Dissertation D17, TU Darmstadt, 2007.

- [47] J. Hasper: *Design eines Niederenergie-Photonentaggers am S-DALINAC*, Diplomarbeit, TU Darmstadt, 2005 (unveröffentlicht).
- [48] D. Savran *et al.*: *The Low Energy Photon Tagger NEPTUN*, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A **613**, 232 (2010).
- [49] S. Watzlawik: *Aufbau und Erprobung eines Messplatzes zur Bestimmung der Polarisierbarkeit des Protons und des Deuterons über eine neue Messmethode der Comptonstreuung bei niedrigen Energien am S-DALINAC*, Dissertation D17, TU Darmstadt, 2005.
- [50] O. Yevetska *et al.*: *New Experimental Method for Investigation of the Nucleon Polarizabilities*, Nucl. Inst. Meth. A **618**, 160 (2010).
- [51] M. Knirsch: *Konzeption, Aufbau und Erprobung eines hochauflösenden QCLAM-Elektronenspektrometers mit großem Raumwinkel und hoher Impulsakzeptanz am Elektronenbeschleuniger S-DALINAC*, Dissertation D17, TH Darmstadt, 1991.
- [52] H. Diesener *et al.*: *Excitation and Decay of Giant Resonances in the  $^{40}\text{Ca}(e, e'x)$  Reaction*, Phys. Rev. Lett. **72**, 1994 (1994).
- [53] C. Lüttge *et al.*: *Large-Aperture System for High-Resolution  $180^\circ$  Electron Scattering*, Nucl. Inst. Meth. A **366**, 325 (1995).
- [54] T. Walcher *et al.*: *High Resolution Electron Scattering Facility at the Darmstadt Linear Accelerator (DALINAC) II. Beam Transport System and Spectrometer (Energy-Loss System)*, Nucl. Inst. Meth. **153**, 17 (1978).
- [55] P. von Neumann-Cosel *et al.*: *Deuteron Breakup in the  $^2\text{H}(e, e'p)$  Reaction at Low Momentum Transfer and Close to Threshold*, Phys. Rev. Lett. **88**, 202304 (2002).
- [56] N. Ryezayeva *et al.*: *Measurement of the Reaction  $^2\text{H}(e, e')$  at  $180^\circ$  Close to the Deuteron Breakup Threshold*, Phys. Rev. Lett. **100**, 172501 (2008).
- [57] O. Burda *et al.*: *High-Energy-Resolution Inelastic Electron and Proton Scattering and the Multiphonon Nature of Mixed-Symmetry  $2^+$  States in  $^{94}\text{Mo}$* , Phys. Rev. Lett. **99**, 092503 (2007).

- [58] F. Hug: *Erhöhung der Energieschärfe des Elektronenstrahls am S-DALINAC durch nicht-isochrones Rezirkulieren*, Dissertation D17, TU Darmstadt, 2013.
- [59] M. Konrad: *Development and Commissioning of a Digital RF Control System for the S-DALINAC and Migration of the Accelerator Control System to an EPICS-Based System*, Dissertation D17, TU Darmstadt, 2013.
- [60] J. Enders *et al.*: *Reactions with Polarized Electrons and Photons at Low Momentum Transfers at the Superconducting Darmstadt Electron Linear Accelerator S-DALINAC*, J. Phys.: Conf. Ser. **295**, 012152 (2011).
- [61] D. Pierce und F. Meier: *Photoemission of Spin-Polarized Electrons from GaAs*, Phys. Rev. B **13**, 5484 (1976).
- [62] K. Aulenbacher: *Eine Quelle longitudinal polarisierter Elektronen für das MAMI-Beschleunigersystem*, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 1994.
- [63] K. Aulenbacher *et al.*: *The MAMI Source of Polarized Electrons*, Nucl. Inst. Meth. A **391**, 498 (1997).
- [64] B. Steiner *et al.*: *Recent Simulation Results of the Polarized Electron Injector (SPIN) of the S-DALINAC*, Proc. of the 10<sup>th</sup> EPAC (CERN Press, Genf, Schweiz, 2006), S. 2118.
- [65] Heinzinger electronic GmbH: *Bedienungsanleitung PNChp 125000 - 5 NEG /02/04/76*, [http://www.heinzinger.com/de/produkte/hoechste\\_praezision.php#produkt2](http://www.heinzinger.com/de/produkte/hoechste_praezision.php#produkt2), Mai 2013.
- [66] C. Heßler: *Aufbau und Test einer Quelle spinpolarisierter Elektronen für den supraleitenden Darmstädter Elektronenlinearbeschleuniger S-DALINAC*, Dissertation D17, TU Darmstadt, 2008.
- [67] K.-H. Steffens: *Konzeption und Optimierung eines 100 keV Injektionssystems zur Erzeugung eines longitudinal polarisierten Elektronenstrahls an MAMI*, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 1993.

- [68] B. Steiner *et al.*: *Wien Filter as a Spin Rotator at Low Energy*, *Proc. of the 22<sup>nd</sup> PAC* (IEEE Publishing, Piscataway, NJ, USA, 2007), S. 170.
- [69] Y. Poltoratska: *Setup and Design of a 100 keV Mott-Polarimeter for the future S-DALINAC Polarized Injector*, Diplomarbeit, TU Darmstadt, 2005 (unveröffentlicht).
- [70] N. Somjit *et al.*: *Numerical Simulation and Optimization of a 3-GHz Chopper/Prebuncher System for the S-DALINAC*, *Proc. of the 10<sup>th</sup> EPAC* (CERN Press, Genf, Schweiz, 2006), S. 2185.
- [71] C. Eckardt, H. P. Loens und J. Schütrumpf: Miniforschungsprotokoll „Die Leuchttargets und deren Befestigung“, (unveröffentlicht) (2006).
- [72] C. Eckardt: *Emittanzmessung an der Quelle spinpolarisierter Elektronenstrahlen am S-DALINAC*, Diplomarbeit, TU Darmstadt, 2008 (unveröffentlicht).
- [73] W. Rick: Miniforschungsprotokoll „Aufbau eines Drahtscanners“, (unveröffentlicht) (2005).
- [74] Y. El-Hayek: Miniforschungsprotokoll „Aufbau eines Faraday-Cups“, (unveröffentlicht) (2007).
- [75] R. Barday *et al.*: *Electron Beam Polarimetry at Low Energies and its Applications*, *Proc. of the 13<sup>th</sup> Int. Workshop Polarized Sources, Targets and Polarimetry* (World Scientific Publishing, Ferrara, Italien, 2011), S. 105.
- [76] S. Tashenov *et al.*: *Measurement of the Correlation between Electron Spin and Photon Linear Polarization in Atomic-Field Bremsstrahlung*, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 173201 (2011).
- [77] S. Tashenov *et al.*: *Bremsstrahlung Polarization Correlations and their Application for Polarimetry of Electron Beams*, *Phys. Rev. A* **87**, 022707 (2013).
- [78] R. Martin *et al.*: *Polarization Transfer of Bremsstrahlung Arising from Spin-Polarized Electrons*, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 264801 (2012).

- [79] U. Kneissl, H. H. Pitz und A. Zilges: *Investigation of Nuclear Structure by Resonance Fluorescence Scattering*, Prog. Part. Nucl. Phys. **37**, 349 (1996).
- [80] T. Hartmann *et al.*: *Measurement of the Dipole and Electric Quadrupole Strength Distribution up to 10 MeV in the Double Magic Nuclei  $^{40}\text{Ca}$  and  $^{48}\text{Ca}$* , Phys. Rev. Lett. **85**, 274 (2000).
- [81] P. Mohr *et al.*: *Experimental Simulation of a Stellar Photon Bath by Bremsstrahlung: The Astrophysical  $\gamma$ -Process*, Phys. Lett. B **488**, 127 (2000).
- [82] F. Käppeler *et al.*: *Nuclear Physics of the s-Process*, PASA **25**, 18 (2008).
- [83] J. Enders *et al.*: *Photon Scattering off  $^{52}\text{Cr}$ : Two-Phonon E1 Strength at the N=28 Shell Closure?*, Nucl. Phys. A **636**, 139 (1998).
- [84] G. A. Bartholomew, E. D. Earle und A. S. Ferguson: *Gamma-Ray Strength Functions*, Adv. Nucl. Phys. **7**, 229 (1973).
- [85] R. D. Herzberg *et al.*: *Fine Structure of the E1 Response in  $^{140}\text{Ce}$  below the Particle Threshold*, Phys. Lett. B **390**, 49 (1997).
- [86] J. Enders *et al.*: *Electric Dipole Strength below the Giant Dipole Resonance*, Acta Phys. Pol. B **36**, 1077 (2005).
- [87] O. Yevetska *et al.*: *Dipole Strength in the  $^{235}\text{U}(\gamma, \gamma')$  Reaction up to 2.8 MeV*, Phys. Rev. C **81**, 044309 (2010).
- [88] K. Sonnabend *et al.*: *The Darmstadt High-Intensity Photon Setup (DHIPS) at the S-DALINAC*, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A **640**, 6 (2011).
- [89] G. Audi und A. H. Wapstra: *The 1993 Atomic Mass Evaluation: (I+II) Atomic Mass Table, Nuclear-Reaction and Separation Energies*, Nucl. Phys. A **565**, 1 (1993).
- [90] D. T. Pierce, F. Meier und P. Zürcher: *Direct Observation of Spin Dependent Electronic Structure of GaAs using Spin Polarized Photoemission*, Phys. Lett. A **51**, 465 (1975).

- [91] D. T. Pierce, F. Meier und P. Zürcher: *Negative Electron Affinity GaAs: A New Source of Spin-Polarized Electrons*, App. Phys. Lett. **26**, 670 (1975).
- [92] D. Pierce *et al.*: *GaAs Spin Polarized Electron Source*, Rev. Sci. Inst. **51**, 478 (1980).
- [93] J. R. Chelikowsky und M. L. Cohen: *Electronic Structure of GaAs*, Phys. Rev. Lett. **32**, 674 (1974).
- [94] J. R. Chelikowsky und M. L. Cohen: *Nonlocal Pseudopotential Calculations for the Electronic Structure of Eleven Diamond and Zinc-Blende Semiconductors*, Phys. Rev. B **14**, 556 (1976).
- [95] T. Maruyama: *Observation of Strain-Enhanced Electron-Spin Polarization in Photoemission from InGaAs*, Phys. Rev. Lett. **66**, 2376 (1991).
- [96] T. Omori *et al.*: *Large Enhancement of Polarization Observed by Extracted Electrons from the AlGaAs-GaAs Superlattice*, Phys. Rev. Lett. **67**, 2376 (1991).
- [97] T. Nishitani *et al.*: *Highly Polarized Electrons from GaAs-GaAsP and InGaAs-AlGaAs Strained-Layer Superlattice Photocathodes*, J. Appl. Phys. **97**, 094907 (2005).
- [98] J. J. Scheer und J. van Laar: *GaAs-Cs: A New Type of Photoemitter*, Solid State Com. **3**, 189 (1967).
- [99] J. J. Uebbing und R. L. Bell: *CesiumGaAs Schottky Barrier Height*, Appl. Phys. Lett. **11**, 357 (1967).
- [100] J. J. Scheer und J. van Laar: *Fermi Level Stabilization at Cesium-Semiconductor Surfaces*, Solid State Com. **5**, 303 (1967).
- [101] F. Wooten und W. E. Spicer: *Surface Effects, Band Bending, and Photoemission in Semiconducting Films of Cs<sub>3</sub>Sb*, Surface Science **1**, 367 (1964).
- [102] V. N. Brudnyi, S. N. Grinyaev und N. G. Kolin: *The Fermi Level Pinning in Semiconductors (Interphase Boundaries, Clusters, and Radiation Modification)*, Russ. Phys. J. **46**, 594 (2003).

- [103] I. Ruge und H. Mader: *Halbleiter-Technologie, Halbleiter-Elektronik* **4** (Springer-Verlag, Berlin, 1991), S. 124.
- [104] J. van Laar und J. J. Scheer: *Influence of Band Bending on Photoelectric Emission from Silicon Single Crystals*, Philips Res. Rep. **17**, 101 (1962).
- [105] R. T. Tung: *Chemical Bonding and Fermi Level Pinning at Metal-Semiconductor Interfaces*, Phys. Rev. Lett. **84**, 6078 (2000).
- [106] J. Kessler: *Polarized Electrons, 2<sup>nd</sup> Edition* (Springer-Verlag, Berlin, 1985).
- [107] M. Wagner: *Erzeugung und Untersuchung gepulster polarisierter Elektronenstrahlen am S-DALINAC*, Dissertation D17, TU Darmstadt, 2013.
- [108] M. Ciarrocca, H. Avramopoulos und C. N. Papanicolas: *A Modelocked Semiconductor Laser for a Polarized Electron Source*, Nucl. Inst. Meth. A **385**, 381 (1997).
- [109] M. Espig: *Charakterisierung von 3 GHz modulierten Laserdioden für den Einsatz am S-DALINAC*, Master-Thesis, TU Darmstadt, 2011 (unveröffentlicht).
- [110] Coherent, Inc.: *Verdi G SLM-Series - High-Power Optically Pumped Semiconductor Lasers (OPSL)*, [http://www.coherent.com/downloads/Verdi\\_G\\_SLMseries\\_DS\\_0212\\_5.pdf](http://www.coherent.com/downloads/Verdi_G_SLMseries_DS_0212_5.pdf), 2013.
- [111] Coherent, Inc.: *Mira HP - High power Ultrafast Ti:Sapphire Oscillators*, [http://www.coherent.com/downloads/MiraHP\\_DS.pdf](http://www.coherent.com/downloads/MiraHP_DS.pdf), 2013.
- [112] Coherent, Inc.: *Synchrolock AP - Synchronization Accessory for Mira and Micra Ti:Sapphire Oscillators*, [http://www.coherent.com/downloads/Synchrolock-AP\\_DS\\_3.pdf](http://www.coherent.com/downloads/Synchrolock-AP_DS_3.pdf), 2013.
- [113] F. Schneider: *Erweiterung des Lasersystems zum Betrieb der Quelle polarisierter Elektronen SPIN am S-DALINAC*, Master-Thesis, TU Darmstadt, 2011 (unveröffentlicht).

- [114] F. Schneider: *Aufbau eines Spektrometers für Wellenlängen zwischen 700 und 950 Nanometern*, Bachelor-Thesis, TU Darmstadt, 2009 (unveröffentlicht).
- [115] A. Weber: *Optimierung und Charakterisierung des Kurzpuls-Betriebs eines Titan:Saphir-Lasersystems zur Erzeugung spinpolarisierter Elektronen am S-DALINAC*, Master-Thesis, TU Darmstadt, 2012 (unveröffentlicht).
- [116] J. Lindemann: *Aufbau und Entwicklung eines Stokes-Polarimeters*, Bachelor-Thesis, TU Darmstadt, 2011 (unveröffentlicht).
- [117] B. Zwicker: *Ein ort- und lagestabilisierter Titan:Saphir-Lasertransfer für die polarisierte Elektronenquelle am S-DALINAC*, Master-Thesis, TU Darmstadt, 2012 (unveröffentlicht).
- [118] M. Freudenberger: *Intensitätsstabilisierung eines gepulsten Diodenlasers für die Quelle spinpolarisierter Elektronen am S-DALINAC*, Bachelor-Thesis, TU Darmstadt, 2006 (unveröffentlicht).
- [119] L. H. Thomas: *The Kinematics of an Electron with an Axis*, Phil. Mag. **3**, 1 (1927).
- [120] V. Bargmann, L. Michel und V. L. Telegdi: *Precession of the Polarization of Particles Moving in a Homogeneous Electromagnetic Field*, Phys. Rev. Lett. **2**, 455 (1959).
- [121] M. Salomaa und H. A. Enge: *Velocity Selector for Heavy-Ion Separation*, Nucl. Inst. Meth. **145**, 279 (1977).
- [122] W. Ackermann *et al.*: *Utilizing a Wien Filter within the Beam Dynamics Simulation Tool V-Code*, Proc. of the 22<sup>nd</sup> PAC (IEEE Publishing, Piscataway, NJ, USA, 2007), S. 3265.
- [123] V. Tioukine und K. Aulenbacher: *Operation of the MAMI Accelerator with a Wien Filter based Spin Rotation System*, Nucl. Inst. Meth. A **568**, 537 (2006).

- [124] B. Steiner: *Strahldynamik-Simulation einer polarisierten Quelle für den S-DALINAC (SPIN)*, Dissertation D17, TU Darmstadt, 2008.
- [125] N. F. Mott: *The Scattering of Fast Electrons by Atomic Nuclei*, Proc. R. Soc. A **124**, 425 (1929).
- [126] N. Sherman: *Coloumb Scattering of Relativistic Electrons by Point Nuclei*, Phys. Rev. **103**, 1601 (1956).
- [127] G. Holzwarth und H. J. Meister: *Elastic Scattering of Relativistic Electrons by Screened Gold and Mercury Nuclei*, Nucl. Phys. **59**, 56 (1964).
- [128] S. R. Lin: *Elastic Electron Scattering by Screened Nuclei*, Phys. Rev. A **133**, 965 (1964).
- [129] A. W. Ross und M. Fink: *Atomic Scattering Factor and Spin-Polarization Calculations*, Phys. Rev. A **38**, 6055 (1988).
- [130] P. Uginčius, H. Überall und G. H. Rawitscher: *Nuclear Size Effects in the Polarization of Elastically Scattered Electrons*, Nucl. Phys. A **158**, 418 (1970).
- [131] D. Jakubassa-Amundsen und R. Barday: *The Sherman Function in Highly Relativistic Elastic Electron–Atom Scattering*, J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. **39**, 025102 (2012).
- [132] A. Gellrich und J. Kessler: *Precision Measurement of the Sherman Asymmetry Function for Electron Scattering from Gold*, Phys. Rev. A **43**, 204 (1991).
- [133] J. Sromicki *et al.*: *Polarization in Mott Scattering of Multi-MeV Electrons from Heavy Nuclei*, Phys. Rev. Lett. **82**, 57 (1999).
- [134] J. W. Motz, H. Olsen und H. W. Koch: *Electron Scattering without Atomic or Nuclear Excitation*, Rev. Mod. Phys. **36**, 881 (1964).
- [135] T. J. Gay *et al.*: *Extrapolation Procedures in Mott Electron Polarimetry*, Rev. Sci. Inst. **63**, 114 (1992).

- [136] C. Eckardt *et al.*: *Polarimetry of 0.1-130 MeV Electron Beams at the S-DALINAC, Proc. of the 10<sup>th</sup> European Workshop Beam Diagnostics and Instrumentation for Particle Accelerators* (CERN Press, Genf, Schweiz, 2011), S. 515.
- [137] H. Eberhardt: *Messung der Targetpolarisation und Detektorstudie für das Møllerpolarimeter des Crystal-Barrel-Aufbaus an ELSA*, Diplomarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 2006 (unveröffentlicht).
- [138] R. Barday *et al.*: *Compton Transmission Polarimeter for a Very Precise Polarization Measurement within a Wide Range of Electron Currents*, J. Phys.: Conf. Ser. **298**, 012022 (2011).
- [139] P. Bangert: *Konzeption und Aufbau eines Compton-Transmissions-Polarimeters am supraleitenden Darmstädter Elektronenbeschleuniger S-DALINAC*, Bachelor-Thesis, TU Darmstadt, 2010 (unveröffentlicht).
- [140] Y. Mamaev: *Temperature Dependence of Spin Dynamics*, AIP Conference Proceedings **570**, 920 (2001).
- [141] W. Heitler: *The Quantum Theory of Radiation* (Oxford University Press, Oxford, UK, 1957).
- [142] H. Olsen und L. C. Maximon: *Photon and Electron Polarization in High-Energy Bremsstrahlung and Pair Production with Screening*, Phys. Rev. **114**, 887 (1959).
- [143] H. Schopper: *Measurement of Circular Polarization of  $\gamma$ -Rays*, Nucl. Inst. **3**, 158 (1958).
- [144] O. Klein und T. Nishina: *Über die Streuung von Strahlung durch freie Elektronen nach der neuen relativistischen Quantendynamik von Dirac*, Z. Phys. **52**, 853 (1929).
- [145] W. Nakel und E. Haug: *The Elementary Process of Bremsstrahlung, World Scientific Lecture Notes in Physics 73* (World Scientific Publishing, Singapur, Singapur, 2004).

- [146] W. Nakel: *Koinzidenzexperimente am Elementarprozess der Bremsstrahlungserzeugung*, Phys. Lett. **22**, 614 (1966).
- [147] W. Nakel: *Zum Elementarprozess der Bremsstrahlungserzeugung*, Phys. Lett. A **25**, 569 (1967).
- [148] W. Nakel: *Koinzidenzexperimente zum Elementarprozeß der Bremsstrahlungserzeugung*, Z. Phys. **214**, 168 (1968).
- [149] W. Nakel und E. Pankau: *Electron-Electron Bremsstrahlung at 300 keV from a Kinematically Overdetermined Measurement*, Phys. Lett. A **38**, 307 (1972).
- [150] W. Nakel und E. Pankau: *Measurement of the Absolute Cross Section of the Elementary Process of Electron-Electron Bremsstrahlung at 300 keV*, Phys. Lett. A **44**, 65 (1973).
- [151] W. Nakel und E. Pankau: *Eine Koinzidenzmessung zum Elementarprozeß der Elektron-Elektron-Bremsstrahlung bei 300 keV*, Z. Phys. **264**, 139 (1973).
- [152] W. Nakel und E. Pankau: *Messung der Winkelverteilung und des Wirkungsquerschnittes beim Elementarprozeß der Elektron-Elektron-Bremsstrahlung*, Z. Phys. **274**, 319 (1975).
- [153] E. Haug und M. Keppler: *Bremsstrahlung in the Field of Bound Electrons*, J. Phys. B: At. Mol. Phys. **17**, 2075 (1984).
- [154] G. Elwert und E. Haug: *Calculation of Bremsstrahlung Cross Sections with Sommerfeld-Maue Eigenfunctions*, Phys. Rev. **183**, 90 (1969).
- [155] B. H. Brandsen und C. J. Joachain: *Physics of Atoms and Molecules, 2<sup>nd</sup> Edition* (Addison-Wesley, München, 2003).
- [156] H. Bethe und W. Heitler: *On the Stopping of Fast Particles and on the Creation of Positive Electrons*, Proc. R. Soc. Lond. A **146**, 83 (1934).
- [157] H. K. Tseng und R. H. Pratt: *Exact Screened Calculations of Atomic-Field Bremsstrahlung*, Phys. Rev. A **3**, 100 (1971).

- [158] S. Keller und R. M. Dreizler: *Relativistic Independent Particle Approximation Study of Triply Differential Cross Sections for Electron-Atom Bremsstrahlung*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, 3257 (1997).
- [159] C. D. Shaffer, X. M. Tong und R. H. Pratt: *Triply Differential Cross Section and Polarization Correlations in Electron Bremsstrahlung Emission*, Phys. Rev. A **53**, 4158 (1996).
- [160] H. K. Tseng: *Relativistic Calculation of the Unpolarized Triple-Differential Cross Section and the Polarization Correlation of the Electron Bremsstrahlung from Atoms*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **35**, 1129 (2002).
- [161] L. I. Schiff: *Energy-Angle Distribution of Thin Target Bremsstrahlung*, Phys. Rev. **83**, 252 (1951).
- [162] S. Agostinelli *et al.*: *Geant4 - A Simulation Toolkit*, Nucl. Inst. Meth. A **506**, 250 (2003).
- [163] J. Allison *et al.*: *Geant4 Developments and Applications*, IEEE Trans. Nucl. Sci. **53**, 270 (2006).
- [164] D. Bucurescu und T. von Egidy: *Systematics of Nuclear Level Density Parameters*, Phys. Rev. C **72**, 044311 (2005).
- [165] D. Bucurescu und T. von Egidy: *Erratum: Systematics of Nuclear Level Density Parameters* [Phys. Rev. C **72**, 044311 (2005)], Phys. Rev. C **73**, 049901(E) (2006).
- [166] D. Bucurescu und T. von Egidy: *Correlations between the Nuclear Level Density Parameters*, Phys. Rev. C **72**, 067304 (2005).
- [167] A. Sommerfeld: *Über die Beugung und Bremsung der Elektronen*, Ann. Phys. **11**, 257 (1931).
- [168] H. Kulenkampff: *Untersuchungen über die kontinuierliche Röntgenstrahlung*, Phys. Z. **30**, 513 (1929).
- [169] M. M. May und G. C. Wick: *On the Production of Polarized High Energy X-Rays*, Phys. Rev. **81**, 628 (1951).

- [170] M. M. May: *On the Polarization of High Energy Bremsstrahlung and of High Energy Pairs*, Phys. Rev. **84**, 265 (1951).
- [171] R. L. Gluckstern und M. H. Hull: *Polarization Dependence of the Integrated Bremsstrahlung Cross Section*, Phys. Rev. **90**, 1030 (1953).
- [172] V. Bellini, M. D. Toro, S. L. Nigro und G. S. Pappalardo: *Fission Induced by Linearly Polarized Photons on Even-Even Nuclei*, Let. Nuo. Cim. **26**, 179 (1979).
- [173] R. Ratzek *et al.*: *Photofission with Linearly Polarized Photons*, Z. Phys. A **308**, 63 (1982).
- [174] V. M. Khvastunov und V. V. Denyak:  *$^{236}\text{U}$  and  $^{238}\text{U}$  Fission Induced by Linearly Polarized Photons in the Region of a Giant Dipole Resonance*, Phys. At. Nucl. **64**, 1269 (2001).
- [175] S. G. Kadmsky, L. V. Titova und O. S. Khmelevskaya: *Photofission Induced by Linearly Polarized Photons*, Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. **73**, 831 (2009).
- [176] E. Mergl *et al.*: *Photon Emission Asymmetry in the Elementary Process of Bremsstrahlung from Transversely Polarized Electrons*, Phys. Rev. Lett. **69**, 901 (1992).
- [177] N. Bohr: *Neutron Capture and Nuclear Constitution*, Nature **137**, 344 (1936).
- [178] V. M. Strutinsky: *Shell Effects in Nuclear Masses and Deformation Energies*, Nucl. Phys. A **95**, 420 (1967).
- [179] W. D. Myers und W. J. Swiatecki: *Average Nuclear Properties*, Ann. Phys. (N.Y.) **55**, 395 (1969).
- [180] S. G. Nilsson: *Binding States of the Individual Nucleons in Strongly Deformed Nuclei*, Kgl. Dan. Vid. Selsk. Mat.-Fys. Medd. **16**, 29 (1955).
- [181] P. Møller und S. G. Nilsson: *The Fission Barrier and Odd-Multipole Shape Distortions*, Phys. Lett. B **31**, 283 (1970).

- [182] S. Bjørnholm und J. E. Lynn: *The Double-Humped Fission Barrier*, Rev. Mod. Phys. **52**, 725 (1980).
- [183] J. R. Huizenga und H. C. Britt: *Threshold Photofission: Theory and Experiment*, Proc. of the Int. Conf. Photonuclear Reactions and Applications **2**, 833 (1973).
- [184] M. B. Chadwick *et al.*: *ENDF/B-VII.0: Next Generation Evaluated Nuclear Data Library for Nuclear Science and Technology*, Nucl. Data Sheets **107**, 2931 (2006).
- [185] G. E. Mitchell, A. Richter und H. A. Weidenmüller: *Random Matrices and Chaos in Nuclear Physics: Nuclear Reactions*, Rev. Mod. Phys. **82**, 2845 (2010).
- [186] G. E. Mitchell *et al.*: *Parity Violation in the Compound Nucleus*, Rev. Mod. Phys. **71**, 445 (1999).
- [187] H. A. Weidenmüller: *Symmetry Breaking in Compound Nucleus Reactions*, Nucl. Phys. A **574**, 75 (1994).
- [188] G. Audi, A. H. Wapstra und C. Thibault: *The AME2003 Atomic Mass Evaluation: (II) Tables, Graphs and References*, Nucl. Phys. A **729**, 337 (2003).
- [189] S. Raeder: *Spurenanalyse von Aktiniden in der Umwelt mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie*, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010.
- [190] E. Browne und J. K. Tuli:  $^{234}\text{Uran}$ , Nucl. Data Sheets **113**, 2113 (2012).
- [191] E. Browne:  $^{235}\text{Uran}$ , Nucl. Data Sheets **93**, 986 (2001).
- [192] E. Browne:  $^{236}\text{Uran}$ , Nucl. Data Sheets **107**, 2579 (2006).
- [193] E. Browne und J. K. Tuli:  $^{238}\text{Uran}$ , Nucl. Data Sheets **108**, 681 (2007).
- [194] Institute for Reference Materials and Measurements: *Isotopic Reference Materials Certified by JRC-IRMM Catalogue 2008*, <http://irmm.jrc.ec.europa.eu>

pa.eu/reference\_materials\_catalogue/catalogue/Documents/isotopicrm\_catalogue\_jun2008.pdf, 2013.

- [195] World Health Organisation: *Depleted Uranium: Sources, Exposure and Health Effects, Executive Summary* (World Health Organisation, Genf, Schweiz, 2001).
- [196] H. Moissan: *Le fluor et ses composés* (G. Steinheil, Paris, Frankreich, 1900).
- [197] O. Ruff: *Über einige neue Fluoride*, Ber. D. Chem. Ges. **42**, 492 (1909).
- [198] O. Ruff und A. Heinzelmann: *Über das Uranhexafluorid*, Z. Anorg. Chem. **72**, 63 (1911).
- [199] F. Kraus: *Otto Ruff and a Fluorine that Changed the World in Many Ways: UF<sub>6</sub>*, Z. Anorg. Allg. Chem. **638**, 707 (2012).
- [200] J. L. Hoard und J. D. Stroupe: *X-Ray Crystal Structure of UF<sub>6</sub>*, Chem. Uranium - Coll. Papers **1**, 325 (1959).
- [201] P. Rigny: *Anisotropy of the Fluorine Chemical Shift Tensor in UF<sub>6</sub>*, Tech. Rep. CEA-R **2827**, 1 (1965).
- [202] G. D. Oliver, H. T. Milton und J. W. Grisard: *The Vapor Pressure and Critical Constants of Uranium Hexafluoride*, J. Chem. Soc. **75**, 2827 (1953).
- [203] M. Kimura *et al.*: *Electron-Diffraction Investigation of the Hexafluorides of Tungsten, Osmium, Iridium, Uranium, Neptunium and Plutonium*, J. Chem. Phys. **48**, 4001 (1968).
- [204] F. Huber und Z. Kolarik: *Uran, Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie, 8. Auflage, System Nummer 55* (Gmelin-Institut für Anorg. Chem. und Grenzgebiete, Frankfurt am Main, 1986).
- [205] International Organization for Standardization: *ISO/TS 3669-2:2007 Vacuum Technology - Bakable Flanges - Part 2: Dimensions of Knife-Edge Flanges* (International Organization for Standardization, Genf, Schweiz, 2011).

- [206] B. Weinstock, E. E. Weaver und J. G. Malm: *Vapour-Pressures of  $NpF_6$  and  $PuF_6$ ; Thermodynamic Calculations with  $UF_6$ ,  $NpF_6$  and  $PuF_6$* , J. Inorg. Nucl. Chem. **11**, 104 (1959).
- [207] R. DeWitt: *Uranium Hexafluoride: A Survey of the Physico-Chemical Properties* (Goodyear Atomic Corporation, Portsmouth, OH, USA, 1960).
- [208] Institut für Arbeitsschutz der Deutschen Gesetzlichen Unfallversicherung: *Uran(VI)-fluorid*, [http://gestis.itrust.de/nxt/gateway.dll/gestis\\_de/490493.xml?f=templates\\$fn=default.htm\\$3.0](http://gestis.itrust.de/nxt/gateway.dll/gestis_de/490493.xml?f=templates$fn=default.htm$3.0), Mai 2013.
- [209] Deutsche Forschungsgemeinschaft: *MAK- und BAT-Werte-Liste 2012* (Wiley-VCH, Weinheim, 2012).
- [210] Deutsches Bundesumweltschutzamt und U.S. Environmental Protection Agency: *FINAL AEGLS (31)*, <http://www.umweltbundesamt.de/nachhaltige-produktion-anlagensicherheit/anlagen/AEGLWEB/Downloads/Results.PDF>, 2013.
- [211] O. R. Frisch: *Isotope Analysis of Uranium Samples by Means of their  $\alpha$ -Ray Groups*, British Atomic Energy Project BR **49**, 1 (1942).
- [212] K. Jousten: *Wutz Handbuch Vakuumtechnik* (Friedr. Vieweg & Sohn Verlag, Wiesbaden, 2012).
- [213] Bronkhorst High-Tech: *Massedurchflussregler F-200CV-RAD-88-K*, [http://www.wagner-msr.de/pagecontrols/downloads/downloads/public/6c7b47d2-ff40-428a-8177-78f64e9296d7/el-flow\\_d\\_2013d.pdf](http://www.wagner-msr.de/pagecontrols/downloads/downloads/public/6c7b47d2-ff40-428a-8177-78f64e9296d7/el-flow_d_2013d.pdf), 2013.
- [214] Brooks Instrument: *Massedurchflussregler SLA 7850*, <http://www.brooksinstrument.com/downloads/Product/%20Documentation/Thermal%20Mass%20Flow%20Meters%20Controllers%20Digital%20Gas/Instruction%20Manuals/x-tmf-sla7800-mfc-eng.pdf>, 2013.
- [215] Pfeiffer Vacuum GmbH: *QualyTest<sup>TM</sup> HLT 260 Operating Manual*, <http://www.sunist.org/shared%20documents/References/Operating%20instructions%20of%20Pfeiffer%20HLT%20260%20Qualytest.pdf>, 2013.

- [216] B. B. Rossi und H. H. Staub: *Ionization Chambers and Counters*, 1<sup>st</sup> Edition, *National Nuclear Energy Series, Experimental Techniques* (McGraw-Hill, New York, NY, USA, 1949).
- [217] J. Hoffmann, N. Kurz und M. Richter: *TRIVA, VME Trigger Module*, [http://fpsalmon.usc.es/genp/doc/DAQ/triva3\\_6.pdf](http://fpsalmon.usc.es/genp/doc/DAQ/triva3_6.pdf), 2013.
- [218] R. Barth *et al.*: *GSI Multi-Branch System User Manual*, [http://www-win.gsi.de/daq/Docs/gm\\_mbs\\_i\\_2.pdf](http://www-win.gsi.de/daq/Docs/gm_mbs_i_2.pdf), 2013.
- [219] J. Adamczewski-Musch *et al.*: *The Go4 Analysis Framework Computer Code*, <http://www-win.gsi.de/go4/>, Mai 2013.
- [220] H. Kramer, Brooks Instrument: *Private Mitteilung*.
- [221] D. Boy, Westphal Mess- und Regeltechnik Vertriebs-GmbH: *Private Mitteilung*.
- [222] Brooks Instrument: *Gasliste J-836-D-508 Rev.b*, <http://www.brooksinstrument.com>, Mai 2013.
- [223] A. Kelderman, Brooks Instrument: *Private Mitteilung*.
- [224] TUV SUD NEL Ltd.: *PPDS - Thermodynamic Properties Suite*, <http://www.ppds.co.uk>, Mai 2013.
- [225] B. I. Lee und M. G. Kesler: *A Generalized Thermodynamic Correlation Based on Three-Parameter Corresponding States*, *AIChE J.* **21**, 510 (1975).
- [226] K. S. Pitzer: *Corresponding States for Perfect Liquids*, *J. Chem. Phys.* **7**, 583 (1939).
- [227] D. McGinnis, TUV SUD NEL Ltd.: *Private Mitteilung*.
- [228] O. Knacke, G. Lossmann und F. Müller: *Zustandsdiagramme zum System Uran-Sauerstoff-Fluor*, *Z. Anorg. Allg. Chem.* **370**, 91 (1969).
- [229] J. Bron: *Isotope Effect on the Thermodynamic Quantities of Gaseous Uranium Hexafluoride*, *Can. J. Chem.* **54**, 160 (1976).

- [230] J. Bron und S. Paul: *Isotope Effects on Partition Functions and Thermodynamic Quantities of the Stable Diatomic Hydrides*, J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2: Mol. Chem. Phys. **70**, 1294 (1974).
- [231] E. Bright Wilson, Jr., J. C. Decius und P. C. Cross: *Molecular Vibrations: The Theory of Infrared and Raman Vibrational Spectra* (McGraw-Hill, Toronto, ON, Kanada, 1955).
- [232] R. S. McDowell, L. B. Asprey und R. T. Paine: *Vibrational Spectrum and Force Field of Uranium Hexafluoride*, J. Chem. Phys. **61**, 3571 (1974).
- [233] C. W. F. T. Pistorius: *Potential Field and Force Constants of Octahedral Molecules*, J. Chem. Phys. **29**, 1328 (1958).
- [234] Vögtlin Instruments AG: *GCS-A9SS-FN00, red-y compact series Produktinformation*, [http://voegtlin.sharepointhosting.ch/DOCUMENTS/329-2016\\_de\\_infocompact.pdf](http://voegtlin.sharepointhosting.ch/DOCUMENTS/329-2016_de_infocompact.pdf), 2013.
- [235] A. Göök *et al.*: *Application of the Shockley–Ramo Theorem on the Grid Inefficiency of Frisch-Grid Ionization Chambers*, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A **664**, 289 (2010).
- [236] A. Göök: *Investigation of the Frisch-Grid Inefficiency by Means of Wave-Form Digitization*, Master-Thesis, Örebro universitet, 2008 (unveröffentlicht).
- [237] Y. A. Budagov *et al.*: *Ionization Measurements in High Energy Physics* (Springer-Verlag, Berlin, 1993).
- [238] J. d’Ans, E. Lax und R. Blachnik: *Taschenbuch für Chemiker und Physiker* (Springer-Verlag, Berlin, 1998).
- [239] Bronkhorst High-Tech: *Massedurchflussregler F-201CM-050-RAD-88-K*, [http://www.wagner-msr.de/pagecontrols/downloads/downloads/public/6c7b47d2-ff40-428a-8177-78f64e9296d7/el-flow\\_d\\_2013d.pdf](http://www.wagner-msr.de/pagecontrols/downloads/downloads/public/6c7b47d2-ff40-428a-8177-78f64e9296d7/el-flow_d_2013d.pdf), 2013.
- [240] Praher Valves GmbH: *Chemische Beständigkeitsliste*, [http://www.praher-valves.com/files/download/chem.%20Best.liste/Bestaendigkeitliste\\_D.pdf](http://www.praher-valves.com/files/download/chem.%20Best.liste/Bestaendigkeitliste_D.pdf), 2013.

- [241] DuPont: *Chemical Resistance Guide: Kalrez<sup>®</sup> Application Guide*, <http://www.dupontelastomers.com/crg/nav.asp?page=kalrezGuide.htm&csind=C>, Mai 2013.
- [242] G. W. Ehrenstein und S. Pongratz: *Beständigkeit von Kunststoffen, Band 1* (Carl Hanser Verlag, München, 2007).
- [243] A. McNaught und A. Wilkinson: *Compendium of Chemical Terminology, 2<sup>nd</sup> Edition* (Blackwell Scientific Publications, Oxford, UK, 1997).
- [244] U. Bonnes, Institut für Kernphysik: *CPS05, Eigenentwicklung einer stromstabilisierten, kompakten Spannungsversorgung*, 2005.
- [245] U. Bonnes, Institut für Kernphysik: *QM07, Eigenentwicklung eines 24-bit- $\Sigma$ - $\Delta$ -Wandler basierten Messeinschubes*, 2007.
- [246] L. G. Christophorou *et al.*: *Fast Gas Mixtures for Gas-Filled Particle Detectors*, Nucl. Inst. Meth. A **224**, 5 (1984).
- [247] M. Freudenberger *et al.*: *Recent Developments for an Active UF<sub>6</sub> Gas Target for Photon-Induced Fission Experiments*, *Proc. of the 5<sup>th</sup> Workshop Nuclear Fission and Fission Product Spectroscopy*, im Druck (2013).
- [248] M. Freudenberger: Dissertation, TU Darmstadt, in Vorbereitung.
- [249] M. Caamao *et al.*: *MAYA, a Gaseous Active Target*, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A **573**, 145 (2007).
- [250] Michigan State University, National Superconducting Cyclotron Laboratory: *Active Target Time Projection Chamber (AT-TPC)*, <http://www.nsl.msui.edu/exp/sr/attpc>, Juni 2013.
- [251] Triangle Universities Nuclear Laboratory: *High Intensity Gamma-Ray Source (HIGS)*, <http://www.tunl.duke.edu/web.tunl.2011a.higs.php>, Juni 2013.
- [252] ELI-NP Collaboration: *A European Proposal for the Compton Gamma-Ray Source of ELI-NP*, *Proc. of the 3<sup>rd</sup> IPAC* (CERN Press, Genf, Schweiz, 2012), S. 1086.

# Danksagung

All jenen Menschen möchte ich meinen Dank aussprechen, deren Rat, Tat und Beistand mir halfen das vorliegende Werk zu vervollständigen.

An erster Stelle gilt mein besonderer Dank Herrn Professor Dr. J. Enders, der mir die Promotion in seiner Arbeitsgruppe ermöglichte und dessen Tür immer für mich offen stand.

Herrn M. Freudenberger, M.Sc. und Herrn Dr. A. Göök möchte ich ganz herzlich für die engagierte und gute Zusammenarbeit danken.

Herrn Professor Dr. P. von Neumann-Cosel danke ich für die freundliche Übernahme des Korreferates und das mir entgegengebrachte Vertrauen im Umgang mit Uran(VI)-fluorid.

Herrn Professor Dr. Dr. h.c. mult. A. Richter danke ich für die initiale Idee hinter dieser Dissertation. Herrn Prof. Dr. A. Oberstedt und Herrn Dr. S. Oberstedt möchte ich für hilfreiche Diskussionen danken.

Herrn Dr. M. Brunken danke ich für seine Unterstützung und viele interessante Diskussionen.

Herrn Dipl.-Ing. S. Hennings, Frau G. Buggisch und Frau E. Schaum möchte ich für die praktische Unterstützung im Umgang mit Uran(VI)-fluorid danken. Mein Dank gilt auch den Mitarbeitern der Elektronik- und Feinmechanikwerkstatt sowie den Werkstattleitern Herrn Dipl.-Ing. U. Bonnes und Herrn P. Häckl für die Hilfe bei der Weiterentwicklung meiner Ideen und deren Umsetzung.

Ganz besonders möchte ich mich bei meinen Eltern Burkhard und Gabriele Eckardt bedanken, die mich während meines gesamten Studiums stets unterstützt und immer viel Verständnis gezeigt haben.

Ich danke meiner Frau Janine Eckardt für ihre Liebe und Zuneigung, vor allem jedoch für ihr Verständnis. In Worte gefasst würde meine Dankbarkeit mehr als die Seiten dieser Dissertation füllen.



# Curriculum Vitae

14. 01. 1982	geboren in Dortmund-Hörde
1988 - 1992	Besuch der Theodor-Heuss-Schule, Bad Soden
1992 - 1993	Besuch der Bischof-Neumann-Schule, Königstein
1993 - 1994	Fernunterricht am ILS Institut für Lernsysteme, Arak, Iran
1994 - 1998	Besuch der Bischof-Neumann-Schule, Königstein
1998 - 1999	Besuch der Central High School, Grand Forks, North Dakota, Vereinigte Staaten von Amerika
Mai 1999	Abschluss mit dem High School Diploma
1999 - 2001	Besuch der Bischof-Neumann-Schule, Königstein
Juni 2001	Abschluss mit dem Abitur
2001 - 2002	Zivildienst in der katholischen Kirche, Bad Soden
2002 - 2008	Studium der Physik an der Technischen Universität Darmstadt
Januar 2008	Abschluss des Studiums mit der Diplom-Hauptprüfung
seit 2008	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Kernphysik der Technischen Universität Darmstadt



# Versicherung an Eides statt

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Dissertation selbstständig verfasst habe. Sofern ich das Gedankengut anderer verwendet habe, wurde dies kenntlich gemacht und die jeweilige Quelle angegeben. Diese Arbeit hat in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen.

(Christian Eckardt)

