

# TECHNISCH-PHYSIKALISCHE MONOGRAPHIEN

HERAUSGEGEBEN VON

PROF. DR. DR. H. C. PAUL GÖRLICH

JENA

BAND 11



LEIPZIG 1963

AKADEMISCHE VERLAGSGESELLSCHAFT

GEEST & PORTIG K.-G.

# TECHNIK DES MESSENS RADIOAKTIVER STRAHLUNG

VON

VÍTĚZSLAV KMENT UND ARNO KUHN

Verein für chemische und  
metallurgische Produktion  
National-Unternehmen Ústí N. L.

Institut für  
Einkristallforschung  
Turnov

2., BEARBEITETE UND ERGÄNZTE AUFLAGE

MIT 428 ABBILDUNGEN UND 48 TABELLEN

S 3308

Sektion Physik  
— Bibliothek —  
Universität Halle  
Friedemann-Bach-Platz 6



LEIPZIG 1963

AKADEMISCHE VERLAGSGESELLSCHAFT

GEEST & PORTIG K.-G.

erneuert werden, besonders das unter dem Ofen befindliche Saugrohr. Über die Diffusionspumpe dürfen auf keinen Fall Bromdämpfe mit höherem Druck geleitet werden. Diese müssen immer zuerst mit der Ölrotationspumpe abgesaugt werden. Als Öl für die Diffusionspumpe ist möglichst Silikonöl zu verwenden. Zum Fetten der Vakuummöhne soll auch Silikonfett benutzt werden (die Quecksilberschlüsse sind leider nicht verwendbar, da Brom mit Quecksilber reagiert und sich die Glasfritten verstopfen würden). Das Quecksilber in den Manometern ist mit einer Silikonölschicht zu bedecken.

Reines Brom kann verwendet werden, sofern es völlig trocken ist und keine Spuren von HBr enthält (sie lassen sich durch Reduktion mit CaO eventuell beseitigen). Gelöste Luft und Feuchtigkeit können entfernt werden durch Destillieren des Broms über  $P_2O_5$  im Vakuum bei niedrigen Temperaturen. Das Brom wird dann in kleine evakuierte Vorratsfläschchen überdestilliert, die an die Füllapparatur angeschmolzen werden und durch Fallenlassen eines Gewichtes im Vakuum geöffnet werden können. Nach der oben beschriebenen Entgasung (Ausheizung) der Zähler wird Brom in das Saugrohr bei einem Druck von  $3 \dots 5$  Torr eingeleitet. Der Ofen wird wieder herabgezogen und für  $2 \dots 6$  Stunden auf  $100 \dots 200$  °C geheizt. Danach werden die Zähler über die Ölrotationspumpe evakuiert und erneut mit Brom gefüllt. Zur genauen Einstellung des geringen Bromdruckes schiebt man über die Bromvorratsflasche eine DEWARDSche Flasche, die mit gekühltem Alkohol gefüllt ist. Die Temperatur des Alkohols ist durch Einwerfen kleiner Stücken Trockeneis (festes  $CO_2$ ) soweit herabzusetzen, daß die Temperatur des Alkohols und daher nach einiger Zeit auch des Broms dem richtigen Fülldruck entsprechen. Danach wird die Neon-Argon-Mischung eingeleitet, und man wartet wieder einige Stunden, bis sich die Druckunterschiede durch Diffusion ausgleichen; dann schmilzt man die Zähler ab.

Die hier angegebenen Arbeitsvorschriften sind natürlich den experimentellen Möglichkeiten sowie dem verwendeten Material anzupassen.

#### Literatur zum Kapitel 12.6

- [1] W. ESPE und M. KNOLL, Werkstoffkunde der Hochvakuumtechnik, Springer, Berlin 1936.
- J. STRONG, Procedures in Experimental Physics, Prentice Hall, New York 1948.
- E. VON ANGERER, Kunstgriffe bei physikalischen Untersuchungen, Vieweg, Braunschweig 1939.
- [2] O. K. JOHANSSON and J. J. TOROK, Proc. I. R. E. **34** (1946) 296.
- [3] F. J. NORTON, General Electric Rev. (1944) 6.
- [4] D. T. HURD, U. S. A. Patent 2446008.
- [5] H. C. RAMSPERGER, Rev. Sci. Instr. **2** (1931) 738.
- [6] PALMER, Phys. Rev. **45** (1934) 556.
- [7] RAWSON, Soc. Chem. Ind. **9** (1890) 151.
- [8] C. BOSCH, A. M. ORDAVENKO and C. L. SNYDER, Fiat report 278 (1945), London.
- [9] M. ČÁP, unveröffentlicht.

- [10] H. A. HILL, Rev. Sci. Instr. **27** (1956) 1086.
- [11] G. J. SAFFORD, Rev. Sci. Instr. **27** (1956) 972.
- [12] B. B. ROSSI and H. H. STAUB, Ionization Chambers and Counters, McGraw-Hill, New York 1949.
- [13] J. SCHINTLMEISTER, Die Elektronenröhre als physikalisches Meßgerät, Springer, Wien 1942.
- [14] E. R. HARRISON, J. Sci. Instr. **29** (1952) 295.
- [15] H. EBERT, Phys. Z. **36** (1935) 258.
- [16] H. DROST und H. PUPKE, Exp. Techn. d. Phys. **7** (1959) 20.
- [17] W. ESPE und A. KUHN, Slaboproudý obzor **21** (1960) 288.
- [18] A. S. BRILL, Rev. Sci. Instr. **29** (1958) 249.
- [19] K. A. BARGH, Rev. Sci. Instr. **29** (1958) 536.
- [20] D. E. MARTZ, Rev. Sci. Instr. **32** (1961) 214.
- [21] M. H. GREENBLATT, Rev. Sci. Instr. **29** (1958) 738.
- [22] L. S. NELSON and G. P. SPINDLER, Rev. Sci. Instr. **29** (1958) 324.
- [23] V. F. TITOV, Atomnaja energija **9** (1960) 257.

### 13. Szintillationszähler

#### Übersicht

Die Szintillationszähler gehören zu den ältesten Detektoren der Radioaktivität. Schon seit 1903 wurden die durch  $\alpha$ -Strahlung in einer Zinksulfid-Schicht entstehenden Lichtblitze, sog. Szintillationen, zum Messen der Aktivität von  $\alpha$ -Strahlern benutzt. Im Spinthariskop wurden die Lichtblitze über eine Lupe mit dem Auge gezählt. Diese Methode gehörte bis zum Jahre 1932 zu den wichtigsten Methoden in der experimentellen Kernphysik; selbst die erste künstliche Atomumwandlung wurde von COCKROFT und WALTON [24] noch nach dieser Methode nachgewiesen. Die Arbeiten mit dem so primitiven Gerät waren äußerst schwierig und unbequem. Da die einzelnen Szintillationen lichtschwach sind, muß das Auge des Beobachters ausgeruht und gut adaptiert sein. Außerdem ist die direkte Beobachtung eine subjektive Methode, bei der sich besonders die schnelle Ermüdbarkeit des Auges bemerkbar macht und auch keine größeren Szintillationshäufigkeiten gezählt werden können.

1941 benutzte KREBS [25] einen Photozähler in Verbindung mit einer Zinksulfidschicht zum Nachweis von  $\alpha$ -Strahlung.

Die rasche Entwicklung des Szintillationszählers, so wie man ihn heute kennt, begann erst nach dem Kriege mit der Benutzung von Photovervielfachern durch die Arbeiten von KALLMANN [26]. Die heutige Entwicklungsstufe des Szintillationszählers gestattet es, ihn als Präzisionsdetektor für fast alle Arbeiten auf den Gebieten der Technik des Messens von Radioaktivität und der experimentellen Kernphysik zu benutzen.

Das Prinzip des Szintillationszählers besteht darin, daß die nachzuweisende Strahlung in der Schicht eines geeigneten Lumineszenzstoffes

Lichtblitze auslöst; die Photonen fallen entweder direkt oder nach Reflexion an geeigneten Schichten bzw. über „Lichtleiter“ auf die Photokathode des Photovervielfachers (im weiteren als SEV = Sekundärelektronen-Vervielfacher bezeichnet). Hier werden Photoelektronen freigegeben, die durch Wirkung von elektrostatischen Feldern nacheinander auf die einzelnen Dynoden (Elektroden mit starker Sekundärelektronenemission) fallen, wobei sich in jeder Stufe ihre Zahl auf das drei- bis fünffache erhöht. Die Zahl der Dynoden ist bei den einzelnen Typen der SEV nicht gleich; man kann insgesamt Verstärkungen von  $10^5 \dots 10^{10}$  erzielen. Die Impulse, die infolge der Verstärkung der ursprünglichen Photoelektronen am Arbeitswiderstand der Anode des SEV entstehen, können Amplituden bis zu 100 V haben. Die Flugzeit in dem SEV, d. h. die Zeit, die zwischen Auslösung der Photoelektronen von der Photokathode und der Sammlung der Hälfte aller Sekundärelektronen an der Anode verstreicht, ist bedeutend kürzer als die Impulsanstiegszeit in Ionisationsdetektoren. Dies ist leicht verständlich, da die Elektronen im Vakuum höhere Geschwindigkeiten haben als in elektropositiven Gasen. In der schnellen Arbeitsweise liegt ein großer Vorteil der Szintillationszähler.

Man kann zum Nachweis verschiedener Strahlungen auch verschiedene Lumineszenzstoffe wählen, die für die auszuführenden Messungen einen optimalen Wirkungsgrad des Szintillationsdetektors zulassen. Dies ist der zweite große Vorteil der Szintillationsdetektoren; es lassen sich mit ihnen Wirkungsgrade erzielen, die man bei vielen Arbeiten mit keinem anderen Detektor erreicht.

Die Lumineszenzstoffe können sich im gasförmigen, flüssigen oder festen Aggregatzustand befinden. Wenn man gasförmige Präparate mit lumineszierenden Gasen mißt, fallen die bei Ionisationsdetektoren häufig so komplizierten vakuumtechnischen Probleme fort. Man kann auch flüssige Präparate direkt in flüssigen Lumineszenzstoffen lösen und somit ohne große Schwierigkeiten Absolutmessungen ausführen, wenn es sich um härtere  $\beta$ -Strahler handelt.

Andererseits muß jedoch festgestellt werden, daß der Szintillationszähler auch gewisse Nachteile hat. Zu ihnen gehören bestimmte nachteilige Eigenschaften der SEV, wie Dunkelstrom, Ermüdungserscheinungen usw., außerdem ist der Meßplatz mit einem Szintillationszähler häufig anspruchsvoller als mit einem einfachen Ionisationsdetektor. Man wird daher bei allen Arbeiten Vor- und Nachteile der Szintillationszähler und anderer Detektoren abwägen und sich dann für den geeignetesten Detektor entscheiden.

Im folgenden werden zuerst die Eigenschaften der verschiedenen Lumineszenzstoffe besprochen, dann folgt eine kurze Beschreibung der Eigenschaften der SEV, die für die Szintillationszähler von Bedeutung sind, und endlich werden an einigen Konstruktionsbeispielen die mannigfaltigen Anwendungsmöglichkeiten der Szintillationsdetektoren behandelt.

### 13.1. Lumineszenzstoffe

Für die Szintillationszähler steht eine Reihe geeigneter Lumineszenzstoffe zur Verfügung, so daß man die Möglichkeit hat, für die auszuführenden Arbeiten besonders vorteilhafte Stoffe zu wählen. Zu den Lumineszenzstoffen gehören anorganische und organische Substanzen im gasförmigen, flüssigen, plastischen oder kristallinen Zustand. Bevor die einzelnen Gruppen von Lumineszenzstoffen besprochen werden, soll zuerst ein kurzer Überblick über die Lumineszenz gegeben werden.

#### a) Lumineszenz

Bei der Lumineszenz werden durch Photonen-, Quanten- oder sonstige Strahlung Moleküle oder Atome angeregt, Elektronen werden in höhere Energiebanden gehoben oder verlassen das Atom, um nach gewisser Zeit in den Grundzustand zurückzuspringen. Der letztgenannte Effekt wird durch Aussendung von Photostrahlung im sichtbaren oder ultravioletten Spektralgebiet begleitet. Diese Photonenstrahlung hat für jeden lumineszierenden Stoff einen charakteristischen Spektralverlauf, das sogenannte Emissionsspektrum.

Man unterscheidet zwei Arten der Lumineszenz, die Fluoreszenz und die Phosphoreszenz; bei manchen Lumineszenzstoffen verlaufen beide Vorgänge parallel.

Bei der Fluoreszenz wird durch die anregende Strahlung ein Elektron auf ein höheres Energie-Niveau gehoben, aus dem es in kürzester Zeit in den Grundzustand zurückkehrt. Die Fluoreszenz wird in anorganischen Gasen und in den meisten organischen Molekülen in sämtlichen drei Aggregatzuständen beobachtet. Ihre Abklingzeit, das ist die Zeit, in der die Hälfte der angeregten Elektronen in den Grundzustand zurückkehrt, ist äußerst gering. Da das Elektron bei der Fluoreszenz das Atom oder Molekül nicht verläßt, spricht man von monomolekularen Vorgängen. Die Intensität der Photostrahlung klingt nach Anregung entsprechend einem Exponentialgesetz schnell ab:

$$I = (a + bt)^{-2} \quad (13.1)$$

$a$  und  $b$  sind hier Materialkonstanten, und  $a$  die Abkling-Zeitkonstante, ist ebenfalls charakteristisch für den verwendeten Stoff. Die Zeit, in der die Lumineszenz abklingt, nennt man auch das Nachglühen.

Bei der Phosphoreszenz in Kristallen wird durch die anregende Strahlung ein Elektron aus dem Verband des Atoms oder Moleküls entfernt und kann eventuell in dem Kristallgitter wandern. Es wird nach gewisser Zeit von dem ursprünglichen Atom oder einem anderen Atom eingefangen und springt in den Grundzustand, wobei ein oder mehrere Photonen ausgesandt werden. Hierbei handelt es sich um einen bimolekularen Vorgang, bei dem die Abklingzeit von einigen  $\mu$ s bis zu einigen Tagen dauern kann. Die Intensität  $I$  der Phosphoreszenz sinkt nach Anregung bedeutend langsamer als die der Fluoreszenz, ihr

zeitlicher Verlauf ist gegeben durch

$$I = \frac{1}{(a + bt)^2}, \quad (13.2)$$

wo  $t$  (s) die Zeit nach beendeter Anregung und  $a$  und  $b$  Materialkonstanten sind. Der zeitliche Verlauf der Lumineszenz ist der Abb. 13.1 zu entnehmen. Wenn der lumineszierende Stoff für eine gewisse Zeit durch eine konstante Strahlung angeregt wird, kann man bei der Fluoreszenz einen sehr schnellen steilen Anstieg bis zum Maximalwert beobachten, während die Phosphoreszenz sehr langsam ansteigt. Nach Beendigung der Anregung fällt die Intensität bei der Fluoreszenz wieder sehr schnell ab, während bei phosphoreszierenden Stoffen ein lang anhaltendes Nachglühen beobachtet werden kann. Die meisten anorganischen Lumineszenz-Kristalle weisen Phosphoreszenz auf.

Nur wenige Stoffe zeigen nach Anregung Lumineszenz mit Photonenemission. Bei den meisten Stoffen kehren nach Anregung die Elektronen in den Grundzustand zurück, ohne daß dabei Photonen ausgesandt werden; die bei der Anregung absorbierte Energie wird in diesem Falle ausschließlich zur Erhöhung der Vibrations- und Rotationsenergie der Moleküle verwendet, d. h. praktisch zur Erwärmung der lumineszenzlosen Stoffe. Die Theorie der Lumineszenz ist in vielen Werken eingehend beschrieben (s. z. B. LEVERENZ [8] und FÖRSTER [8a]).

Nach der Art der Anregung unterscheidet man verschiedene Arten der Lumineszenz. Bei Anregung durch Photonen spricht man von Photolumineszenz, bei Anregung durch Röntgen-Strahlen,  $\gamma$ - oder Korpustularstrahlen spricht man von Röntgenlumineszenz. Die anderen Arten der Lumineszenzanregung, wie Thermolumineszenz (Wärme) und Tribolumineszenz (Reibung) sind für die Szintillationszähler bedeutungslos.

Mit der Energie der die Anregung verursachenden Strahlung verändert sich auch der physikalische Wirkungsgrad der Lumineszenz  $\eta$ . Er wird weiterhin beeinflusst durch die Art der anregenden Strahlung. Bei einer Korpustularstrahlung mit hoher spezifischer Ionisationsfähigkeit liegen die einzelnen angeregten Zentren sehr dicht nebeneinander, die Rückkehr der Elektronen ist nicht nur von der Aussendung von Photonen begleitet, sondern bedeutet in vielen Fällen auch eine Erhöhung der Vibrations- und Rotationsenergie. Bei Strahlung mit niedriger spezifischer Ionisationsfähigkeit, die in dem lumineszierenden Stoff ihre Energie auf einem bedeutend längeren Wege abgibt, sind die angeregten Zentren voneinander entfernt, der Wirkungsgrad der Lumineszenz ist daher bedeutend günstiger. So kann man verstehen, daß in lumineszierenden Kristallen die Impulse, die durch  $\beta$ -Strahlung gleicher Energie erzeugt werden, bedeutend größer sind als die von  $\alpha$ -Strahlung. Der Verlauf des Wirkungsgrades der Lumineszenz<sup>1)</sup> für Strahlen verschiedener Energie ist in Abb. 13.2 gezeigt.

<sup>1)</sup> Verhältnis der ausgestrahlten ( $h\nu_e$ ) zur absorbierten Energie ( $h\nu_a$ ).

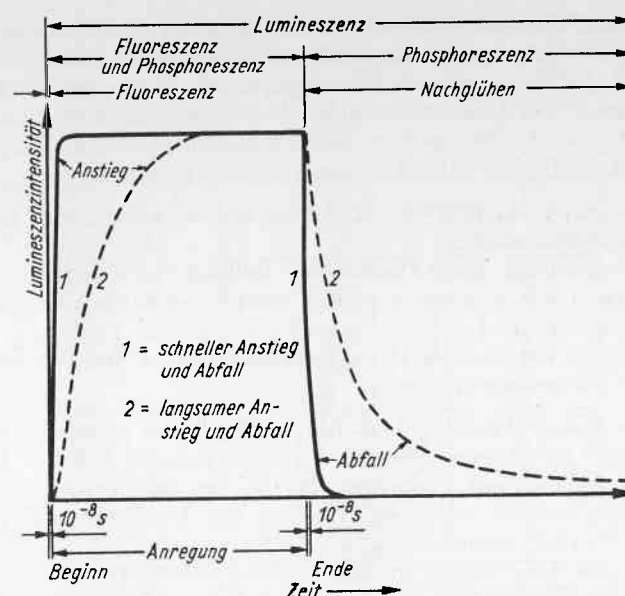


Abb. 13.1. Zeitlicher Verlauf des Anstiegs und Abfalls der Lumineszenz, nach LEVERENZ [8]

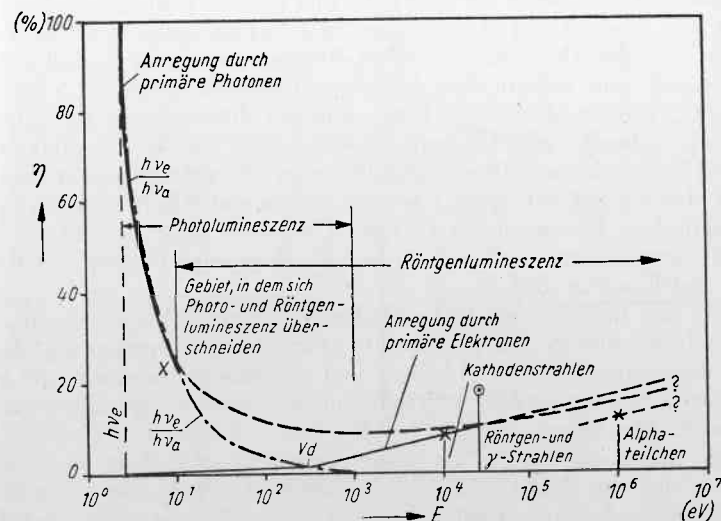


Abb. 13.2. Verlauf des Lumineszenzwirkungsgrades für verschiedene Strahlungen, nach LEVERENZ [8]

MEYER und MURRAY [131] arbeiteten ein neues Modell für aktivierte Ionenkristalle, insbesondere für mit Thallium aktivierte Alkalijodide, aus, mit dessen Hilfe es theoretisch möglich ist, Voraussagen über den Wirkungsgrad von Lumineszenzkristallen für verschiedene Strahlungsarten und Energien zu machen. Nach dieser Modellvorstellung finden bei jeder Szintillation folgende Einzelvorgänge statt:

- Bremsen des einfallenden Teilchens durch Bildung von Elektron-Loch-Paaren,
- Rekombinieren dieser Paare unter Bildung von Exzitonen,
- Diffusion der Exzitonen zu den Aktivatorzentren und Anregung der letzteren und
- Übergang der angeregten Aktivatorzentren in den Grundzustand unter Photonenemission.

Die aus dieser Theorie abgeleiteten Ergebnisse stimmen mit den experimentell gefundenen überein. Es wird gezeigt, daß der Lumineszenzwirkungsgrad mit steigender Masse der einfallenden Strahlung kleiner wird und für schwerere Teilchen der Lichtimpuls nicht mehr linear von deren Energie abhängt.

Der Lumineszenzvorgang in organischen Substanzen ist wesentlich komplizierter. BIRKS [132] beschreibt ihn für organische Kristalle und Lösungen und versucht, die schnelle (etwa  $10^{-7}$  s) und die langsame (etwa  $10^{-5}$  s) Lumineszenzkomponente zu erklären. Es werden theoretisch die Energie-Migrations- und Übertragungsvorgänge für reine und Mischkristalle sowie für plastische und flüssige Lösungen behandelt, wobei der Einfluß der Temperatur und Schichtdicke berücksichtigt werden. Aus den theoretischen Betrachtungen geht hervor, daß sich in allen Arten von organischen Lumineszenzstoffen ähnliche Vorgänge abspielen, die zu denselben Erscheinungen führen, wie Ionisationslöschung, schnelle und langsame Komponente durch Singulett- und Triplett-Zustände und Oberflächenlöschung; Strahlungsmigration und (oder) Strahlungsübertragung finden in reinen und Mischkristallen sowie in plastischen Lösungen statt. Eine Übersicht über den Stand der Lumineszenz in organischen Substanzen geben auch ausführlich BUCK [133] und FÖRSTER [8a].

Die in den Lumineszenzstoff einfallende Strahlung hat in diesem eine maximale Reichweite, die sogenannte Durchdringungsgrenze  $d_G$ . Diese Durchdringungsgrenze ist abhängig von der Energie und Art der einfallenden Strahlung. In Abb. 13.3 sieht man die Durchdringungsgrenze für Photonen, Elektronen bzw.  $\beta$ -Strahlen und  $\alpha$ -Teilchen in einem organischen Lumineszenzstoff. Da jeder Lumineszenzstoff in mehr oder weniger starkem Maße sein eigenes Emissionsspektrum absorbiert, soll bei optimaler Ausnutzung der emittierten Photonen die Schichtdicke nur etwas größer gewählt werden als die Durchdringungsgrenze. Dies ist besonders wichtig bei der Verwendung von polykristallinen

Lumineszenzstoffen. Als Beispiel sei hier in Abb. 13.4 die Abhängigkeit der Fluoreszenz-Lichtintensität von Zinksulfid von seiner Schichtdicke für die Bestrahlung durch  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung angeführt. Man sieht daraus, daß für jede Strahlungsart und natürlich auch für jede Energie eine optimale Schichtdicke besteht.

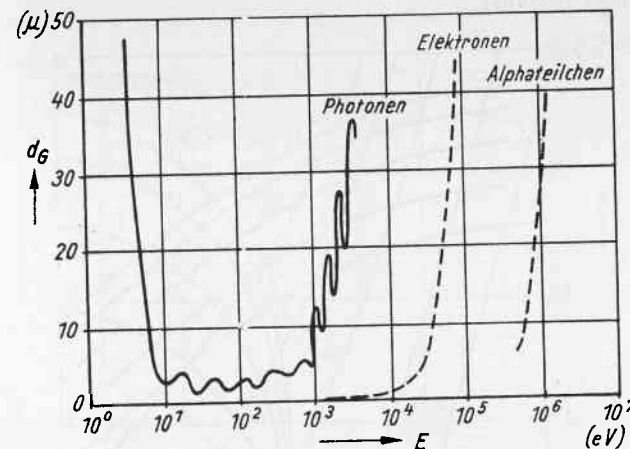


Abb. 13.3. Verlauf der Durchdringungsgrenze von Photonen- und Elektronenstrahlen und  $\alpha$ -Teilchen in einem organischen Lumineszenzstoff, nach LEVERENZ [8]

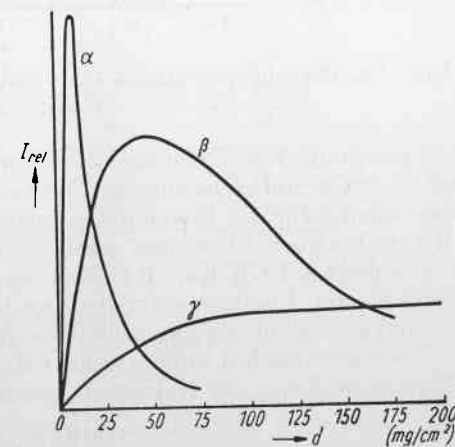


Abb. 13.4. Die Fluoreszenzlichtintensität von Zinksulfid, das mit  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlen bestrahlt wird, in Abhängigkeit von der Schichtdicke, nach BROSER u. KALLMANN [27]

#### b) Anorganische Lumineszenzstoffe

Zu den anorganischen Lumineszenzstoffen, die sich besonders für Szintillationszähler eignen, gehören in erster Linie anorganische Mono- und Polykristalle. Ihr Vorteil besteht darin, daß sie einen großen

Absorptionskoeffizienten für  $\gamma$ -Strahlung besitzen; große Monokristalle werden daher in erster Linie zum Messen von  $\gamma$ -Strahlung benutzt. Diese Kristalle sind für ihr eigenes Emissionsspektrum gut durchsichtig, die Erzeugung großer Kristalle ist jedoch schwierig und kostspielig. Zum Nachweis von  $\alpha$ -Strahlung haben sich Schichten von Zinksulfidkristallpulver bestens bewährt.

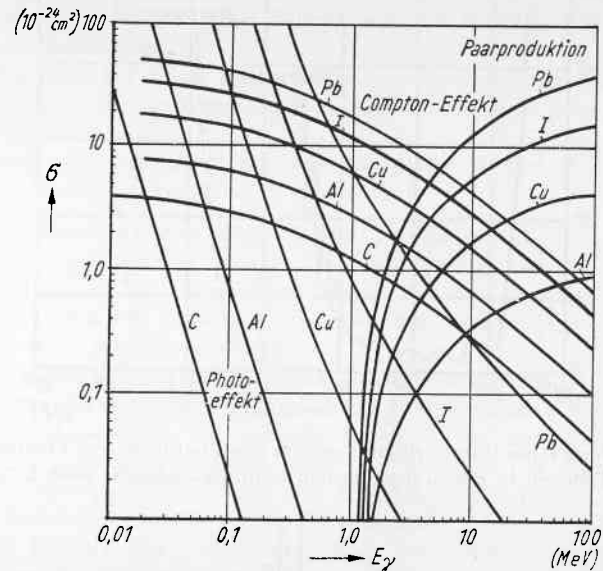


Abb. 13.5. Wirkungsquerschnitte von  $\gamma$ -Strahlung in C, Al, Cu, I und Pb, nach WHITE [28]

Um sich eine Vorstellung über die Absorption von  $\gamma$ -Strahlung in den verschiedensten Stoffen machen zu können, sind in Abb. 13.5 die Wirkungsquerschnitte für den Photoeffekt, COMPTON-Effekt und die Paarbildung in verschiedenen Elementen gezeigt. Näheres über die Absorption der  $\gamma$ -Strahlung s. EGK Kap. B 3. Man wird beim Messen von  $\gamma$ -Strahlung bestrebt sein, Lumineszenzkristalle zu benutzen, die sich möglichst aus schweren Elementen zusammensetzen und eine hohe Dichte haben.

Von anorganischen Lumineszenzkristallen kommen hauptsächlich drei Gruppen in Frage, die Halogenide, die Sulfide und die Wolframate.

#### Halogenide

Der wichtigste Vertreter dieser Gruppe ist das mit Thallium aktivierte Natriumjodid, das in großen Kristallen hergestellt werden kann (s. MILLER und Mitarbeiter [29]). Der Nachteil dieses Kristalls besteht darin, daß er stark hygroskopisch ist und daher hermetisch gekapselt werden muß. Der Verlauf des linearen Absorptionskoeffizienten und seiner drei Kom-

ponenten ist für NaJ/Tl in Abb. 13.6 angeführt. Der Sprung im Verlauf des Photoabsorptionskoeffizienten bei 33 keV ist die sogenannte K-Kante.

Für einen Kristall von 25 mm Dicke beträgt die Absorption und damit auch der Nachweiswirkungsgrad für eine Strahlungsenergie von 100 keV 90 % und für die Strahlungsenergie 1 MeV 40 %. NaJ/Tl ist zum Nachweis schneller Teilchen aller Art geeignet (s. BROILEY u. RIBE [31]). In

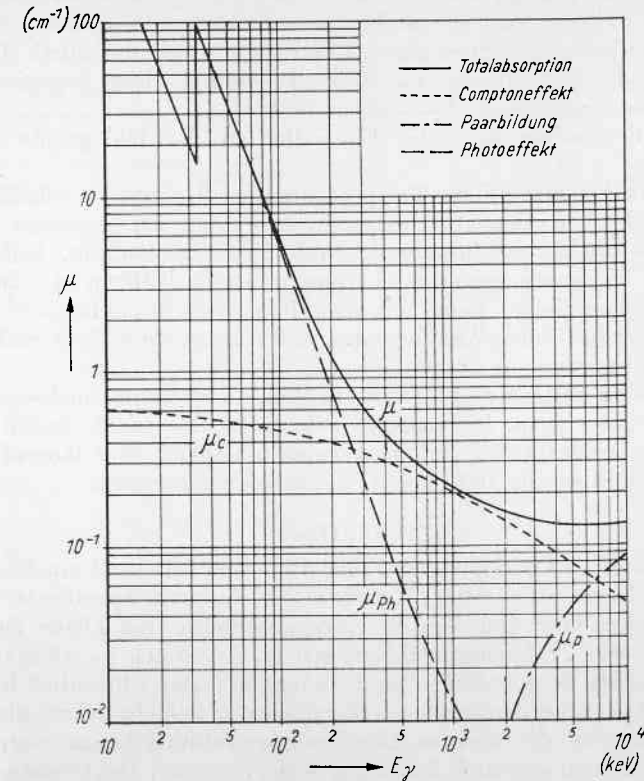


Abb. 13.6. Der Absorptionskoeffizient  $\mu$  und seine drei Komponenten für  $\gamma$ -Strahlung in NaJ/Tl, nach JORDAN [30]

letzter Zeit findet das Zäsiumjodid immer stärkere Anwendung. KNÖPFEL, LÖFFE und STOLL [32] beschäftigten sich eingehend theoretisch und praktisch mit diesem Stoff. Sie behaupten, daß das Thallium als Aktivator nicht benutzt werden darf, da die Emissionszentren Störstellen im Kristallgitter sind, an denen das Jodion fehlt. Diese Behauptung konnte jedoch nicht bestätigt werden [33].

MURRAY und MEYER [131] veröffentlichen theoretische und experimentelle Angaben über den Wirkungsgrad von NaJ--Tl und CsJ--Tl

für verschiedene Strahlungsarten und -energien. NEWMAN, SMITH und STEIGERT [134] verfolgten den Lumineszenzwirkungsgrad von CsJ—Tl für die Strahlung von schweren Ionen ( $B^{10}$ — $F^{19}$ ), BELJAJEV und Mitarbeiter [135] und PECK und Mitarbeiter [136] für  $\alpha$ -,  $p$ - und  $d$ -Strahlung. Nach SCHMIDT [137] ist CsJ—Tl in vieler Hinsicht geeigneter als NaJ—Tl; CsJ—Tl ist besonders für  $\gamma$ -Spektrometrie für hohe  $\gamma$ -Strahlenenergien brauchbar. Im Energiebereich von 80 keV bis 7,2 MeV ist CsJ—Tl linear. Ein weiterer Vorteil besteht darin, daß ein sehr großer Teil des Szintillationspektrums unter dem „Photopeak“ liegt, der durch Totalabsorption der  $\gamma$ -Strahlung im Kristall entsteht. Das Energie-Auflösungsvermögen ist bei CsJ—Tl ebenfalls besser.

Neuere Ergebnisse über die Eigenschaften der Halogenide siehe [188—193].

Man kann bei niedrigeren Temperaturen die Halogenide alkalischer Metalle auch ohne Aktivator benutzen, es werden beispielsweise beim NaJ bei  $-190^\circ\text{C}$  Abklingzeiten von  $3 \cdot 10^{-8}$  s beobachtet, während NaJ/Tl bei Zimmertemperatur Abklingzeiten von  $3 \cdot 10^{-7}$  s hat. In der Praxis wird man jedoch kaum mit gekühlten Kristallen arbeiten.

$\text{CdF}_2$  [187] hat kurze Abklingzeiten und scheint für  $\gamma$ -Spektroskopie geeignet zu sein.

Wichtig sind weiterhin LiJ/Tl und LiJ/Sn, die sich zum Nachweis von Neutronen gut eignen. Die anderen bekannten Halogenide haben entweder einen schlechteren Lumineszenzwirkungsgrad oder längere Abklingzeiten und werden daher heute kaum noch verwendet.

#### Zinksulfide

Die mit Ag oder Cu aktivierten Zinksulfide sind beliebte Lumineszenzstoffe zum Nachweis schwerer Teilchen, die eine hohe spezifische Ionisationsfähigkeit und damit große Anregungsdichte und kleine Durchdringungsgrenze (Eindringtiefe) besitzen (s. CALDWELL u. ARMSTRONG [34]). Optimale Schichtdicken sind  $10 \text{ mg/cm}^2$ . Das Zinksulfid ist als feines Kristallpulver zu beziehen, bei stärkeren Schichtdicken wird zu große Absorption der eigenen Lumineszenzstrahlung beobachtet. Die Zinksulfide eignen sich zum Nachweis von Protonen-, Deuteronen- und  $\alpha$ -Strahlung (GRAVES u. Mitarb. [35]) sowie schwerer Kerne, wie der Spaltprodukte des Uran (SCHÖNHEIT [36]). Da das ZnS/Ag eine kürzere Abklingzeit besitzt als das ZnS/Cu und weiterhin sein Emissionsspektrum günstiger liegt als das des letzteren, wird man es im allgemeinen vorziehen. KOEKLIN und Mitarbeiter [95] fanden bei ZnS·Ag drei Abklingzeiten, und zwar zu 85%  $0,7 \cdot 10^{-8}$  s, zu 23%  $0,9 \cdot 10^{-7}$  s und zu 2%  $1,3 \cdot 10^{-5}$  s.

#### Wolframate

Für den Nachweis der  $\gamma$ -Strahlung sind zwei Wolframate geeignet, das  $\text{CdWO}_4$  und das  $\text{CaWO}_4$ . Sie haben eine große Dichte von 7,9 bzw.  $6,06 \text{ g/cm}^3$ , und infolge des Wolframs einen hohen Absorptionskoeffizienten.

Sie wurden ursprünglich im VERNEUILSchen Ofen erzeugt, es konnten daher nur Kristalle mit kleinen Abmessungen gezüchtet werden. Heute werden sie aus der eigenen Schmelze gezogen und Abmessungen von  $\varnothing 10 \times 150 \text{ mm}$  erreicht. Ein weiterer Nachteil liegt in ihrer verhältnismäßig hohen Abklingzeit.

Die Eigenschaften der wichtigsten anorganischen Lumineszenzkristalle sind in Tab. 13.1 zu finden.

Tabelle 13.1  
Die Eigenschaften wichtiger anorganischer Szintillationskristalle

Substanz	Emission max. (Å)	Abklingzeit ( $10^{-8}$ s)	Relat. Ausbeute <sup>1)</sup>	Energie-Ausbeute für			Transparenz ( $\text{mg/cm}^2$ )	Dichte ( $\text{g/cm}^3$ )
				$\alpha$ -	$\gamma$ -	Röntgen- Strahlen		
ZnS/Ag	4500	etwa 500	2,0	0,28	0,14	0,20	80	4,10
ZnS/Cu	5200	etwa 1500		0,25	0,22	0,30	200	
ZnO	5500			0,02	0,10	0,04		
$\text{CdWO}_4$	5200	etwa 600	2,0					7,90
$\text{CaWO}_4$	4300	etwa 600	1,0	0,017	0,08	0,04		6,06
$\text{MgWO}_4$	4900	etwa 200		0,017			100	
$\text{CdS/Ag}$	7600	etwa 1000		0,23			hoch	
$\text{CaJ}_2/\text{Tl}$		etwa 110	2,5					
NaJ/Tl	4100	etwa 25	2,0	0,1	0,1			3,67
KJ/Tl	4100	etwa >100	0,5	0,025	0,02			3,13
KBr/Tl	3600			0,017			hoch	
CsJ/Tl		>100	1,5					4,50
LiJ/Tl	~5000	120	0,2					
LiJ/Sn	5300	70	0,08					

<sup>1)</sup> Bezogen auf Anthrazen = 1.

#### Lumineszenz in Gasen

EGGLER und HUDDLESTON [37] beobachteten, daß Gasmoleküle, die durch Beschuß mit radioaktiver Strahlung ionisiert und gleichzeitig angeregt wurden, Photonen aussandten. Es liegen hier zwei Prozesse vor. Einerseits werden Atome oder Moleküle angeregt und senden sofort Photonen aus, andererseits werden Moleküle oder Atome ionisiert.



## 15.11 p-n-Kristallzähler

Die p-n-Kristallzähler (Halbleiter-Sperrschichtzähler) haben in letzter Zeit starke Verbreitung gefunden und sind jetzt die wichtigsten Kristallzähler. Da sie keine Eigenverstärkung haben, werden sie auch häufig „feste Ionisationskammern“ genannt. Sie sind im Gegensatz zu den klassischen Kristallzählern schnell arbeitende Zähler, die sich ausgezeichnet zum Nachweis und zur Spektroskopie von schweren Teilchen wie  $\alpha$ -,  $p$ -,  $d$ - und  $n$ -Strahlung sowie in der Massenspektroskopie bewähren. Auch zum Nachweis und zur Spektrometrie von  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung sind manche p-n-Kristallzähler, besonders die Kristallzähler des p-i-n-Typs, geeignet, mit denen auch dosimetrische Messungen ausgeführt werden können.

Wenn man in einen Halbleiterkristall (Si oder Ge) des n-Typs Verunreinigungen eindiffundieren läßt, die p-Typ bilden, also Akzeptoren, so erhält man eine durch den n-p-Übergang gebildete Sperrschicht, deren Entfernung von der Kristalloberfläche von der Diffusionstemperatur und -dauer abhängt, also verhältnismäßig leicht beherrscht werden kann. Man kann auch umgekehrt Donatoren in ein p-Typ-Material eindiffundieren lassen. Das spannungsabhängige Raumladungsgebiet der Sperrschicht, die „aktive Stärke“ oder Feldzone, kann bis 1 mm betragen. Wenn man an eine derartige Sperrschicht eine Spannung in Sperrrichtung legt, so fließt bei hochohmigem Si bei Zimmertemperatur nur ein schwacher Dunkelstrom, beim Ge ist jedoch hierfür tiefe Kühlung erforderlich. Tritt durch Bestrahlung der Sperrschicht in dieser Ionisierung ein, so werden die freien Elektronen aus dem Raumladungsgebiet zur p-Schicht und umgekehrt die gebildeten „Löcher“ zur n-Schicht wandern. Es gelten dann die von RYVKIN [83] für Photodioden angeführten Gleichungen. Wenn man die Sperrschicht über einen niedrigen Widerstand kurzschließt, so kann man einen Ionisationsstrom auch ohne äußere Spannungsquelle nachweisen. Die Schaltung der p-n-Kristallzähler als Photodioden mit äußerer Spannungsquelle hat jedoch den Vorteil, daß man einen größeren Arbeitswiderstand benutzen kann und daß kurze Impulsanstiegszeiten erzielt werden können.

Man kann an Hand von Abb. 15.4 die Vorgänge an einer Sperrschicht verfolgen, an der anfangs kein äußeres Potential liegt. Die Vorderseite des niedrig dotierten (hochohmigen) p-Kristalls sei eine dünne, stark dotierte (niederohmige) n-Schicht. Infolge des Dichteunterschieds der Donator- und Akzeptorkonzentration diffundieren Elektronen aus der n-Schicht in die p-Schicht und Löcher aus der p- in die n-Schicht (Diffusionsstrom). Dadurch entsteht eine Raumladung mit einem elektrischen Feld (Diffusionsspannung), das einen entgegengesetzten Feldstrom von Elektronen und Löchern verursacht. Wenn keine äußere Spannung am Übergang liegt, sind Feld- und Diffusionsstrom gleich groß, so daß sich alle Ladungsträger im Mittel in Ruhe befinden. Wenn

man jedoch eine äußere Spannung an den Übergang legt, verbreitet sich die Feldzone, und die Feldstärke in ihr erhöht sich. Fällt eine Strahlung ein, z. B. ein  $\alpha$ -Teilchen, so bilden sich längs der Teilchenbahn Elektron-Loch-Paare; die Löcher bewegen sich zur negativen, die Elektronen zur positiven Elektrode. Da die Beweglichkeit der Elektronen und Löcher

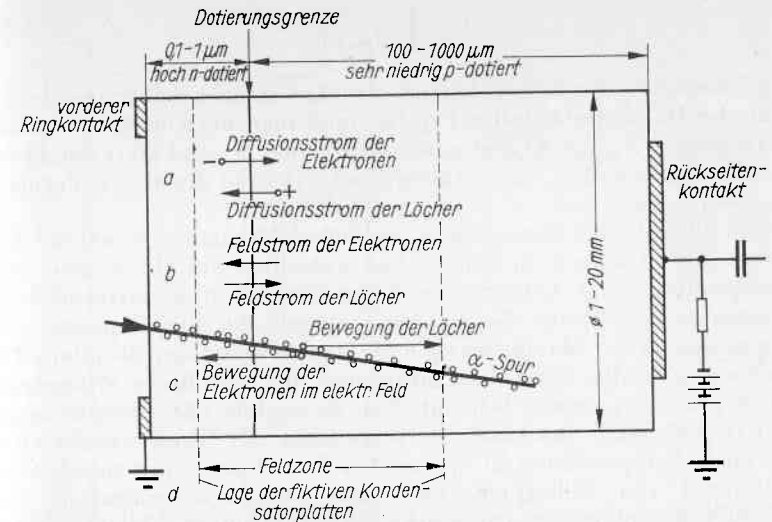


Abb. 15.4. Schema des p-n-Zählers. a: Diffusionsstrom; b: Feldstrom; c: Bewegung der durch die einfallende Strahlung erzeugten Ladungsträger; d: Feldzone

im Silizium sowie die Feldstärke in der Feldzone relativ groß sind, ist die Impulsanstiegszeit sehr kurz.

Bei einer Sperrschicht mit scharfem Übergang (Potentialschleife des SCHOTTKY-Typs) gilt für die Bedingungen, die bei einem Halbleiter-Sperrschicht-Zähler erfüllt sind, folgende angenäherte Beziehung für die Dicke der Feldzone für einen n-Typ-Halbleiter:

$$d = \sqrt{\frac{2 \varepsilon \varepsilon_0 U}{e N_D}} \quad (15.24)$$

wo  $\varepsilon$  die relative Dielektrizitätskonstante (DK) des Halbleitermaterials,  $\varepsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12}$  F/m die DK des Vakuums,  $U$  die Spannung am Übergang und  $N_D$  die Donatorkonzentration sind. Man kann die Dicke der Feldzone auch durch den spezifischen Widerstand  $\rho$  und die Beweglichkeit  $\mu$  der Ladungsträger ausdrücken:

$$d = \sqrt{2 \varepsilon \varepsilon_0 \mu_n \rho U} \quad (15.25)$$

Die Stärke der Feldzone ist also  $\sqrt{\rho U}$  proportional.



Die Kapazität pro Flächeneinheit ist angenähert

$$C = \sqrt{\frac{\epsilon \epsilon_0 N_D}{2U}}, \quad (15.26)$$

oder

$$C = \sqrt{\frac{\epsilon \epsilon_0}{2\mu_n q U}} \quad (15.27)$$

Die Kapazität des Übergangs ist also  $\sqrt{qU}$  umgekehrt proportional. Wenn der Halbleiterkristall p-Typ ist, muß man anstelle der Donatorkonzentration  $N_D$  die Akzeptorenkonzentration  $N_A$  und statt der Elektronenbeweglichkeit  $\mu_n$  die Lochbeweglichkeit  $\mu_p$  in die obigen Formeln einsetzen.

Beim Silizium sind angenähert  $\mu_n \approx 1200 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  und  $\mu_p \approx 400 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ .

Diese Berechnungen muß man nicht unbedingt ausführen, denn das Nomogramm nach BLANKENSHIP und BORKOWSKI [90] gestattet schnelle Bestimmung der Stärke des Raumladungsgebietes, der Kapazität des Übergangs und der Maximalenergie der nachzuweisenden Strahlung für Siliziumeinkristalle, wenn der Leitungstyp, der spezifische Widerstand und die Arbeitsspannung bekannt sind. Es sei folgendes Beispiel angeführt (s. Abb. 15.5): An einer Si-Sperrschicht mit Oberflächenbarriere liegt die Arbeitsspannung 45 V. Der n-Si-Kristall hat einen spezifischen Widerstand von  $3600 \Omega \text{ cm}$ , was einer Donatorkonzentration von  $1,45 \cdot 10^{12}/\text{cm}^3$  entspricht. Die Stärke des Raumladungsgebietes beträgt 0,21 mm, der Übergang hat eine Kapazität von  $52 \text{ pF}/\text{cm}^2$ . Es können  $\alpha$ -Teilchen bis 21 MeV, Protonen bis 5 MeV und  $\beta$ -Strahlen bis 0,2 MeV nachgewiesen werden, wobei die Impulsamplitude linear von der Strahlungsenergie abhängig ist (unter der Voraussetzung, daß die Totschicht vor dem Raumladungsgebiet äußerst dünn ist, so daß man die Absorption der Strahlung in dieser Oberflächenbarriere vernachlässigen kann).

Wenn man von einem n-Typ-Halbleiterkristall ausgeht, auf dem man durch irgendeine Technologie eine p-Schicht erzeugt (Oberflächenbarriere, durch Diffusion oder Legierung), so bezeichnet man den Zähler als n-p-Zähler; umgekehrt, wenn man von einem p-Kristall ausgeht, erhält man einen p-n-Zähler; das erste Symbol charakterisiert also immer den Leitungstyp des Grundkristalls. Wenn man durch die PELLEsche Technologie [107] ein Gebiet mit Eigenleitung erzeugt (*intrinsic region*), erhält man die p-i-n-Zähler.

Allgemeine Eigenschaften der p-n-Kristallzähler

Impulsanstieg

Es haben in einem p-n- oder n-p-Kristallzähler, an dem eine Arbeitsspannung über den Widerstand  $R$  angelegt wird und dessen Kapazität einschließlich der Streukapazität  $C$  ist, die Ladungsträger eine Lebens-

dauer  $\tau$ . Die Durchlaufzeit der Ladungsträger vom Entstehungsort bis zum p-n-Übergang sei  $t_0$ . Der Verlauf des Stromimpulses eines p-n-Kristallzählers wird beeinflusst durch  $\tau$ ,  $t_0$  und  $RC$ . Man kann folgende Fälle beobachten:

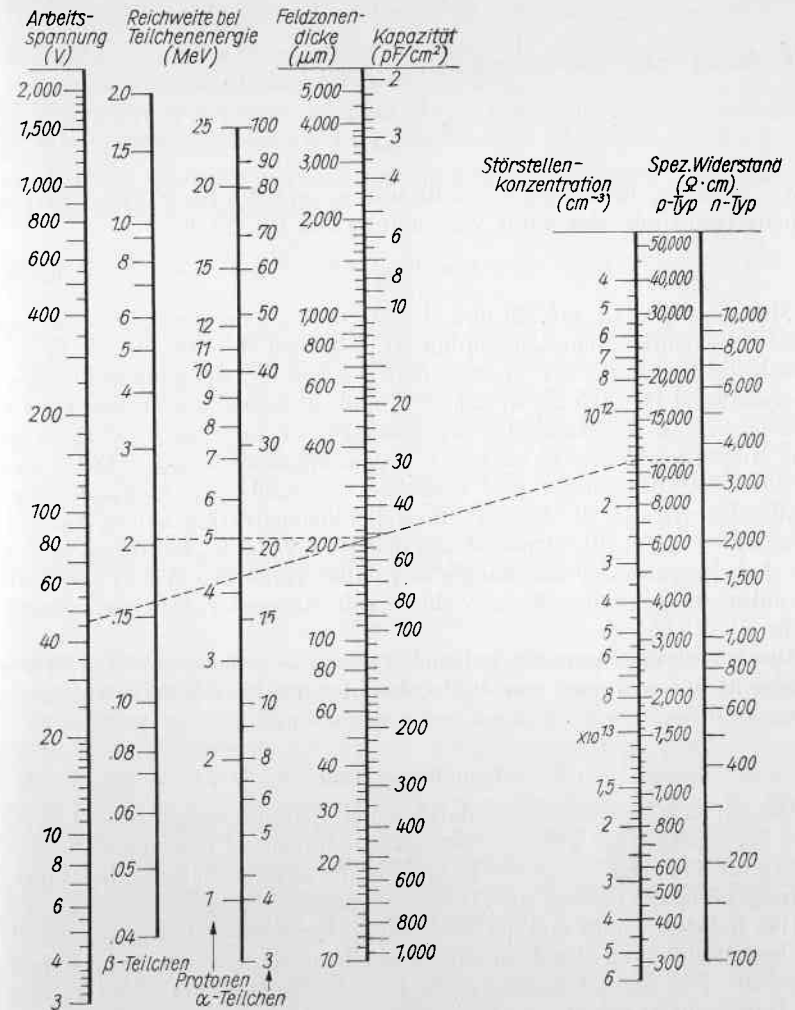


Abb. 15.5. Nomogramm nach BLANKENSHIP und BORKOWSKI [90]

- a) Wenn  $t_0 \ll \tau$  ist, dann sind nur  $t_0$  und  $RC$  ausschlaggebend, und der Impulsanstieg wird durch  $e^{\frac{t_0}{RC}}$  bestimmt.

b) Ist  $RC \ll t_0$ , dann entspricht der Impulsanstieg dem zeitlichen Verlauf des Ladungsträgerstromes über die Sperrschicht [54].

Die Durchlaufzeit  $t_0$  ist

$$t_0 = \frac{d^2}{\mu U}, \quad (15.28)$$

Man erhält unter Verwendung von Gl. (15.24)

$$t_0 = \frac{2 \varepsilon \varepsilon_0}{\mu e N}, \quad (15.29)$$

wo  $\mu_n$  und  $N_D$  für n-Typ-Kristalle und  $\mu_p$  und  $N_A$  für p-Typ-Kristalle einzusetzen sind, oder unter Verwendung von Gl. (15.25)

$$t_0 = 2 \varepsilon \varepsilon_0, \quad (15.30)$$

Man sieht aus Gl. (15.29) und (15.30), daß  $t_0$  unabhängig von der am Zähler liegenden Arbeitsspannung ist, während der Anteil von  $C$ , der durch die Kapazität der Sperrschicht gegeben ist, Spannungsabhängigkeit aufweist [Gl. (15.26) u. (15.27)]. Sind die Streukapazitäten wesentlich größer als die Kapazität der Sperrschicht, oder ist  $RC \ll t_0$ , so ist die Impulsanstiegszeit praktisch spannungsunabhängig. Will man kürzere Impulsanstiegszeiten erreichen, so muß man niederohmigere Halbleiterkristalle, die höhere Störstellenkonzentration haben, verwenden. Anders liegt die Situation bei den p-i-n-Zählern, bei denen  $d_i$  von der Arbeitsspannung unabhängig ist; daher verkürzen sich  $t_0$  sowie die Impulsanstiegszeit bei diesen Zählern mit steigender Arbeitsspannung, siehe Gl. (15.28).

Die Impulsanstiegszeiten haben bei den n-p- und p-n-Zählern Werte in der Größenordnung von  $10^{-9}$  s, bei den p-i-n-Zählern betragen sie etwa  $3 \cdot 10^{-7}$  s.

#### Impulsamplitude

Die am Arbeitswiderstand entstehenden Spannungsimpulse sind linear von der Energie der auf die Sperrschicht fallenden Teilchen abhängig, sofern die Teilchen ihre ganze Energie in der aktiven Schicht des Raumladungsgebietes abgeben. Die Dicke der empfindlichen Sperrschicht, die aktive Schicht, hängt von der Technologie ihrer Herstellung, dem spezifischen Widerstand des Halbleiterkristalls sowie von der Arbeitsspannung ab. Für die Erzeugung eines Elektron-Loch-Paars benötigt man im Durchschnitt 3,5 eV.

#### Wärmeabhängigkeit

Die Impulsamplituden sind für bestimmte Teilchenenergien temperaturunabhängig, sofern die Arbeitsspannung eingehalten wird. Mit steigender

Temperatur wächst jedoch der Dunkelstrom (Wärmerauschen), und das Energie-Auflösungsvermögen wird daher schlechter.

#### Einfluß der Arbeitsspannung

Durch Veränderung der Arbeitsspannung treten drei Effekte ein:

1. Veränderung der Sperrschichtkapazität, Gl. (15.26) u. (15.27),
2. Veränderung der Rekombinationsverluste,
3. Veränderung der Sperrschichtdicke (Raumladungsgebiet) und damit Veränderung des aktiven Volumens, Gl. (15.24) u. (15.25).

Diese Effekte werden von BALDINGER und Mitarbeitern [84] theoretisch und experimentell behandelt.

#### Ausführung und Eigenschaften der p-n- und n-p-Kristallzähler

Den ersten p-n-Kristallzähler beschrieb MCKAY [36]. Er beobachtete an einem Ge-Kristall mit Sperrschicht bei Bestrahlung mit  $\alpha$ -Teilchen Impulse, die einwandfrei von den Rauschimpulsen des Halbleiters getrennt werden konnten. Die Impulsanstiegszeit betrug bei diesen ersten Versuchen 0,05  $\mu$ s. ORMAN und Mitarbeiter [37] konnten an einem p-n-Ge-Kristall  $\beta$ -Strahlen eines RaE-Präparates nachweisen. Heute werden drei Kristallarten für die Herstellung von p-n-Kristallzählern benutzt: Si und GaAs, die bei Zimmertemperatur arbeiten, und Ge, das zwecks Herabsetzung des Wärmerauschens gekühlt werden muß.

#### Silizium

Silizium ist heute das wichtigste Ausgangsmaterial für die Sperrschichtzähler. Da diese in erster Linie zur Messung von schweren Teilchen wie  $\alpha$ -Strahlen und Spaltprodukten oder Ionen in der Massenspektroskopie, deren Reichweite im Si nur einige  $\mu$ m beträgt, Anwendung finden, benutzt man Oberflächensperrschichten. Eine derartige Sperrschicht bildet sich durch Sauerstoff an der Oberfläche von n-Si. Die Zähler dieses n-p-Typs (n-Si-O-Au) haben gute Eigenschaften und können verhältnismäßig leicht im Laboratorium gefertigt werden. Es sei daher kurz ihre Herstellungstechnologie nach DEARNALEY und WHITEHEAD [85] und BREDIEL und MICHEJEV [86] wiedergegeben.

#### Technologie der Herstellung von n-p-Oberflächenbarriere-Kristallzählern

1. Ausgangsmaterial: n-Typ-Siliziumkristalle hoher Reinheit, Leitfähigkeit  $\sigma < 5 \cdot 10^{-3} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ .
2. Schneiden: Der Ausgangskristall wird an einer Diamantsäge orientiert auf die gewünschten Abmessungen geschnitten, so daß die Sperrschichtfläche die Orientierung (1,1,1) hat.

3. Schleifen: Das Schleifen erfolgt auf rotierenden, mit Seide bezogenen Scheiben mit Korund oder SiC, Korngröße  $7\ \mu\text{m}$  und kleiner, bis auf Spiegelglanz.
4. Waschen: Der Kristall wird in destilliertem oder entmineralisiertem Wasser gewaschen, anschließend einige Minuten in konzentrierter Salpetersäure (p. a.) gekocht. Er darf während keiner Operation mit der Hand direkt berührt werden.
5. Ätzmittel: Das Ätzmittel CP-2A besteht aus 2 Volumina konzentrierter Salpetersäure, 1 Volumen Eisessigsäure und 1 Volumen 40%iger Flußsäure (Reinheitsgrad mindestens p. a.). Die Säuren werden in Polyäthylen- oder Teflongefäßen gemischt. Das fertige Ätzmittel soll vor der Anwendung mindestens 30 min stehen, danach wird es auf  $0\ ^\circ\text{C}$  gekühlt. Es muß jeden Tag frisch zubereitet werden.
6. Ätzen: In einen Polyäthylenbecher, der in einem Eisbad steht, werden für je einen zu ätzenden Kristall  $20 \dots 30\ \text{cm}^3$  Ätzmittel eingegossen. Danach legt man die Kristalle hinein. Der Becher wird zwecks Beseitigung von Luftblasen an der Kristalloberfläche während des Ätzens bewegt. Das Ätzen dauert  $5 \dots 10\ \text{min}$ , die Kristalloberfläche hat danach höchsten Spiegelglanz.
7. Nachwaschen: Durch zulaufendes demineralisiertes Wasser wird das Ätzmittel im Becher immer stärker verdünnt. Dabei darf der Kristall, solange die Lösung sauer reagiert, nicht mit der Luft in Berührung kommen. Nach sehr starker Verdünnung wird der Kristall in einen neuen, sehr sauberen Polyäthylenbecher gelegt und noch mehrmals in demineralisiertem Wasser gewaschen.
8. Trocknen: Den gut gewaschenen Kristall läßt man auf Filterpapier abtropfen und trocknet ihn dann in einem Thermostaten bei  $100\ ^\circ\text{C}$ .
9. Vorbereitung zum Aufdampfen: Zum Aufdampfen wird diejenige Kristallfläche benutzt, die beim Ätzen oben lag. Eine Maske aus Glimmer wird vorbereitet und gemeinsam mit dem Kristall in der Vakuumapparatur befestigt.
10. Aufdampfen: Das Vakuumverdampfen des Goldes soll bei einem Vakuum besser als  $10^{-4}$  Torr erfolgen. Der Abstand zwischen Kristall und Molybdänschiffchen beträgt etwa  $75\ \text{mm}$ , die benötigte Goldmenge etwa  $50\ \text{mg}$ . Die optische Durchlässigkeit der Au-Schicht soll 75% betragen, was  $50 \dots 100\ \mu\text{g}/\text{cm}^2$  entspricht. (Für die Messung von Spaltprodukten soll die Au-Schicht dünner sein.) An der Befestigungsstelle der Zuleitung wird die Au-Elektrode auf etwa  $500\ \mu\text{g}/\text{cm}^2$  verstärkt. Die zweite Au-Verdampfung geschieht unter Benutzung einer anderen Maske.

11. Befestigen: Der Kristall wird mittels der Spezial-Silberpaste FSP-36 (Johnson, Matthey & Co., London) leitend auf ein Kovarblech gekittet, wobei die Silberpaste nicht die Seitenwände des Kristalls benetzen darf. (Kovar hat denselben Ausdehnungskoeffizienten wie Si). Der Kontakt an der Au-Elektrode der Arbeitsfläche wird mit einem Au-Ag-Bändchen (für Galvanometerspulen-Aufhängung) mit Hilfe der Silberpaste FSP-36 hergestellt, die das aufgedampfte Au an der verstärkten Stelle berührt. Eine direkte Berührung des Si-Kristalls durch die Paste darf jedoch nicht eintreten.
12. Härten: Das Härten wird bei  $50\ ^\circ\text{C}$  in etwa 10 Stunden vorgenommen.

AMSEL [87] behauptet, daß diese Sperrschicht-Zähler nicht einwandfrei reproduzierbar und im Vakuum nicht stabil sind. Der Übergang wird durch Sauerstoffatome gebildet, die während des Ätzens an der Oberfläche adsorbiert werden und deren Desorption im Hochvakuum zu seiner Zerstörung führen kann. Es soll daher eine dünne, gut leitende Oxydschicht über der Sperrschicht verwendet werden, die die Desorption verhindert. AMSEL schlägt vor, nach der Ätzung zuerst eine dünne Schicht  $\text{SnO}$  oder  $\text{SnO}_2$  und dann erst das Gold aufzudampfen. Seine so hergestellten Zähler sollen besser reproduzierbare Ergebnisse ermöglichen, sie sind auch im Hochvakuum gut verwendbar.

Man kann auch durch Eindiffundieren von Ga in n-Si Sperrschichten herstellen [88] (n-Si-Ga).

Benutzt man p-Typ-Silizium, so soll dessen Leitfähigkeit  $\sigma < 10^{-3}\ \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$  sein. Zur Bildung der Sperrschicht läßt man Phosphor eindiffundieren (p-n-Sperrschichten, siehe FRIEDLAND und Mitarbeiter [89]). Der Übergang liegt etwa  $1\ \mu\text{m}$  unter der Oberfläche. Die Raumladungsschicht im p-Silizium und damit die aktive Schicht sind je nach spezifischem Widerstand und Arbeitsspannung bis  $1\ \text{mm}$  dick. Derartige p-n-Kristallzähler können gut zum Nachweis von  $\beta$ -Strahlung sowie für dosimetrische Messungen benutzt werden. Für  $\alpha$ -Strahlen einer Energie von  $6\ \text{MeV}$  beträgt das energetische Auflösungsvermögen dieser Zähler etwa  $0,6\%$  (es ist also bedeutend besser als das der Szintillations-Spektrometer), die Impulsanstiegszeit ist kleiner als  $3,5 \cdot 10^{-9}\ \text{s}$ . Die Herstellungsmethode der p-n-Zähler ist anspruchsvoller als die der n-p-(Oberflächenbarriere-)Zähler, sie scheint jedoch bessere Serienergebnisse zu gewährleisten und wird daher in der Industrie angewandt. So erzeugt beispielsweise die RCA Victor Co., Kanada, [91], p-n-Kristallzähler mit Flächen von  $5,20$  und  $200\ \text{mm}^2$ ; der Widerstand des Ausgangs-p-Si beträgt  $1000$  bis  $10000\ \Omega\text{cm}$ , die Diffusionstiefe des Überganges  $0,2 \dots 2\ \mu\text{m}$  und die Arbeitsspannung  $25 \dots 400\ \text{V}$ ; die Zähler sind zum Nachweis von  $\alpha$ -,  $p$ - und  $\beta$ -Strahlung geeignet. Ähnliche p-n-Kristallzähler stellt die Firma Semi-Elements, Inc., USA [92], her. Zum Nachweis von Neutronen werden vor diesen Zählern Schichten aus U, B, Li oder wasserstoffhaltigen Substanzen angebracht [93].

Wenn man bei dem Sperrschichtzähler den Dunkelstrom herabsetzen will, ist es günstig, Schutzringzähler zu bauen, ähnlich wie bei den Ionisationskammern; man kann so den Oberflächen-Leckstrom am Übergang, der wesentliche Werte erreichen kann, völlig beseitigen. Die Ausführung und Schaltung eines derartigen Zählers ist Abb. 15.6 zu entnehmen.

In letzter Zeit wird auch der p-i-n-Zähler benutzt, bei dem man durch eine besondere Technologie große Dicken der Feldzone (einige mm) erzielen kann, die von einigen Volt aufwärts von der Arbeitsspannung

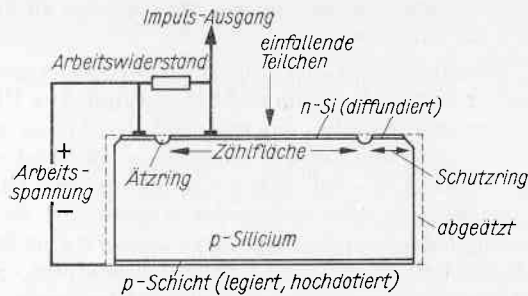


Abb. 15.6. Ausführung und Schaltung eines Schutzringzählers [105], Ätzringbreite etwa 60  $\mu\text{m}$ , Ätzringtiefe etwa 2  $\mu\text{m}$

unabhängig ist. Diese schon erwähnte PELL-Kompensationstechnologie [106] beruht auf der Drift von Lithium-Ionen im p-Typ-Silizium bei Temperaturen zwischen 120 und 160  $^{\circ}\text{C}$  unter Anlegung eines elektrischen Feldes in Sperrichtung. Durch die Lithium-Drift werden in der Feldzone die Akzeptoren kompensiert, und es entsteht so ein Gebiet mit Eigenleitung (*intrinsic region*) mit  $\rho > 10^5 \Omega\text{cm}$  bei Zimmertemperatur.

Man kann sich die Entstehung des p-i-n-Zählers an Hand von Abb. 15.7 erklären. Das Ausgangssilizium mit p-Typ möge die Akzeptorkonzentration  $N_A$  (Bor) haben. Man läßt in die Vorderseite der geschliffenen und geätzten Si-Kristallscheibe Lithium bei einer Temperatur von 400  $^{\circ}\text{C}$  während der Zeit von einigen Minuten eindiffundieren (im Vakuum oder in einer Edelgasatmosphäre). Der Konzentrationsverlauf der Lithiumdonatoren  $N_D$  ist aus Teilbild a) zu sehen. Im Punkt  $d$  ist  $N_D = N_A$ . Wenn man nun die Lithiumscheibe auf 120 bis 160  $^{\circ}\text{C}$  erwärmt und ein elektrisches Feld in Sperrichtung anlegt, wandern die Li-Ionen in Richtung zur negativen Elektrode, wobei jedoch ihre Konzentration  $N_D$  beinahe gleich  $N_A$  ist. Nur an der Driftfront, die sich je nach der Drifttemperatur und Driftspannung langsamer oder schneller vorwärtsbewegt ( $x = d_i$ ), sinkt  $N_D$  unter  $N_A$ , siehe Teilbild b). Man hat also zuerst bis  $x = 0$  ein n-Typ-Gebiet, die sogenannte Totschicht, von

$x = 0$  bis  $x = d_i$  folgt das Gebiet mit Eigenleitung, die Feldzone, in der der Strahlungsnachweis erfolgt, und dann schließt das p-Gebiet an. Da das n- und das p-Gebiet im Vergleich zum i-Gebiet niederohmig sind, hat der Feldverlauf die im Teilbild c) angedeutete Form.

Die Dicke  $d_i$  der Zone mit Eigenleitung ist eine einfache Funktion der Driftbeweglichkeit  $\mu_d$ , der Driftspannung  $U$  und der Driftdauer  $t$ :

$$d_i = \sqrt{2\mu_d U t}, \quad (15.31)$$

sie ist also nicht mehr, wie bei den anderen Sperrschichtzählern, von der Arbeitsspannung abhängig, sofern diese einen Mindestwert überschreitet (bei  $d_i = 1$  mm genügt eine Arbeitsspannung über 5 V).

Die Driftbeweglichkeit des Lithiums im Silizium ist eine komplizierte Funktion der Drifttemperatur  $T$  [108]:

$$\mu_d = (1,16 \cdot 10^4 / T) \cdot 2,4 \cdot 10^{-3} \exp(-7,5 \cdot 10^3 / T) \quad (15.32)$$

Man kann bei Kenntnis der Driftspannung  $U$  und der Drifttemperatur  $T$  die Driftbeweglichkeit  $\mu_d$  bzw. den Driftparameter  $2\mu_d U$  aus dem Nomogramm in Abb. 15.8 entnehmen und mit Hilfe des Diagramms Abb. 15.9 für eine bestimmte

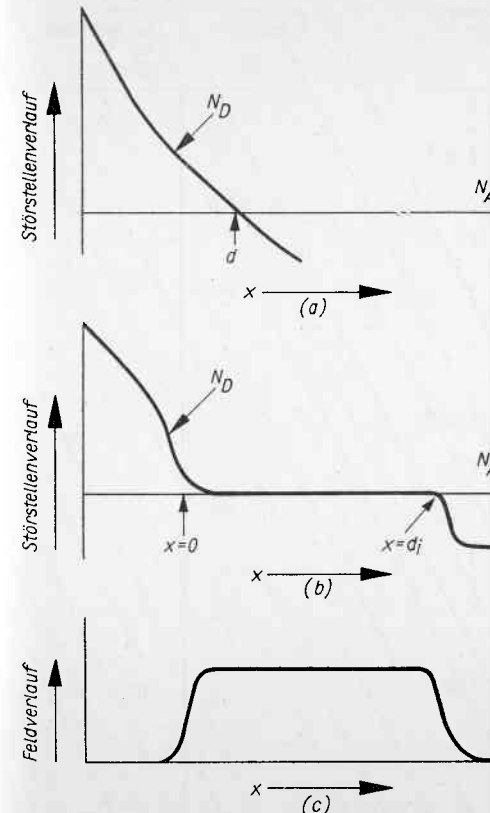


Abb. 15.7. Zum p-i-n-Zähler. a: Störstellenverlauf nach Li-Diffusion; b: Störstellenverlauf nach beendeter Drift; c: Feldverlauf im Zähler nach beendeter Drift

Driftdicke  $d_i$  bei bekanntem Driftparameter die Driftdauer bzw. bei bekanntem Driftparameter und bekannter Driftdauer die Driftdicke bestimmen.

Die p-i-n-Zähler arbeiten schon bei niedrigen Arbeitsspannungen befriedigend, ihre Impulsanstiegszeit bewegt sich bei Spannungen unter 10 V um 0,3 bis 0,5  $\mu\text{s}$ . Es können Werte von  $d_i$  bis 6 mm erzielt werden.

Aus diesen Gründen werden die p-i-n-Zähler in Zukunft viele Anwendungen erfahren, wie zur  $\beta$ - und  $\gamma$ -Spektroskopie und zum technischen Strahlungsnachweis.

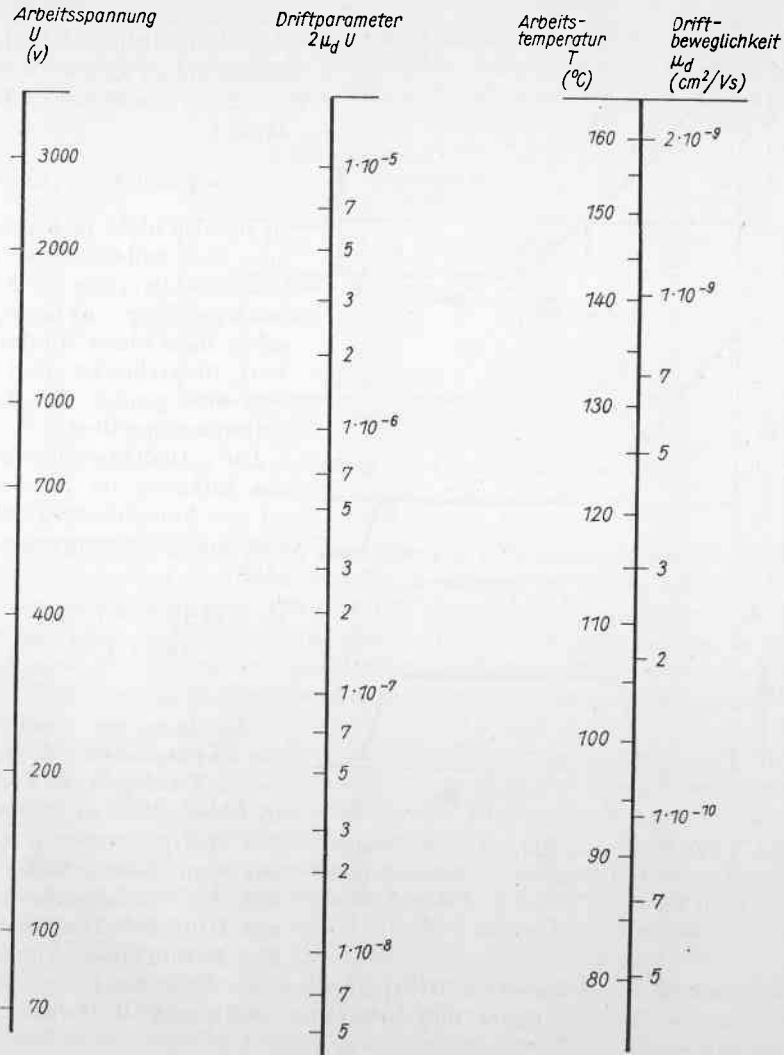


Abb. 15.8. Nomogramm zur Bestimmung der Driftbeweglichkeit  $\mu_d$  und des Driftparameters  $2\mu_d U$  von Lithium in Silizium bei niedriger Sauerstoffkonzentration nach BLANKENSHIP und BORKOWSKI [108]

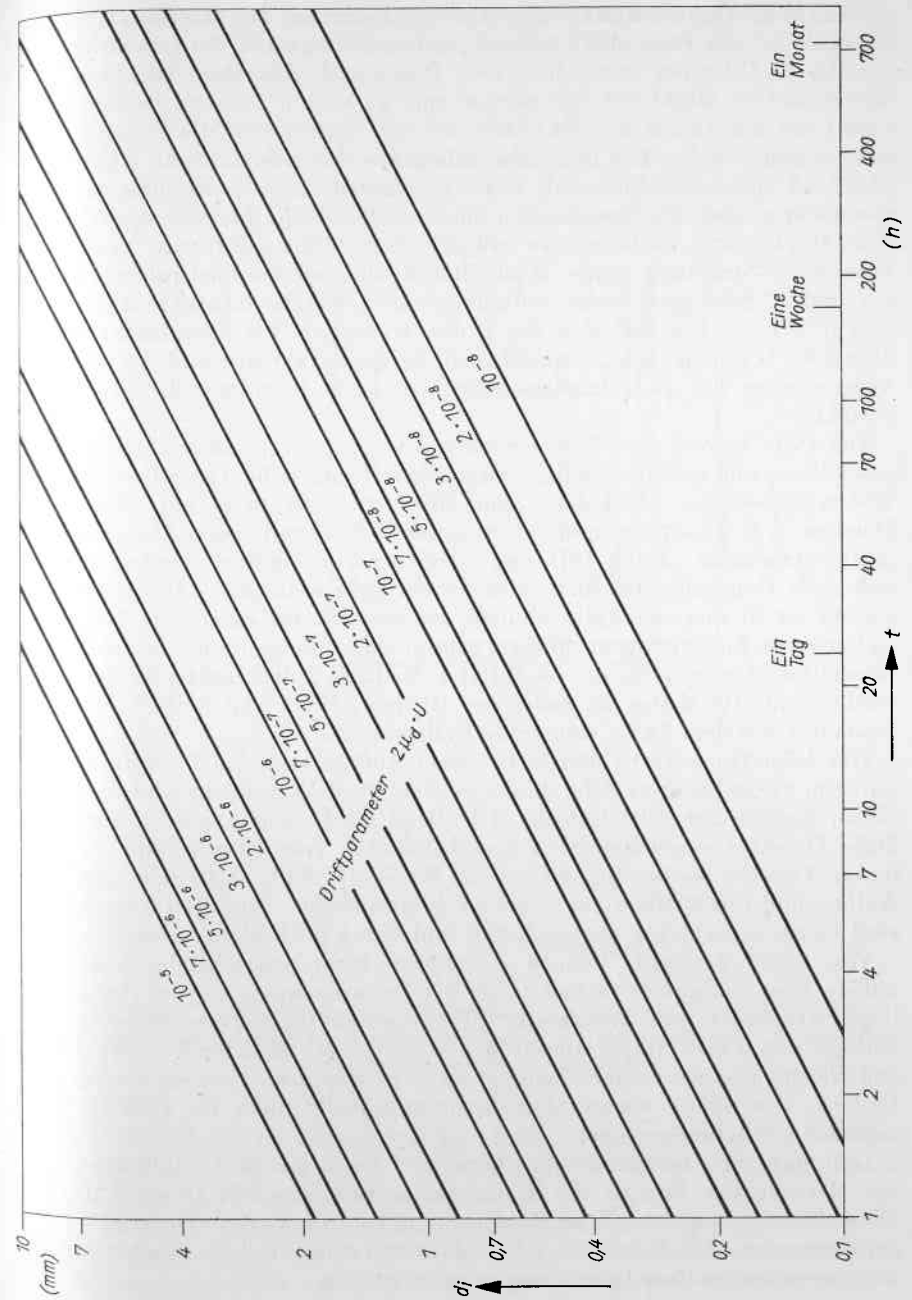


Abb. 15.9. Diagramm zur Bestimmung von  $d_t$  für Driftparameter von  $10^{-5}$  bis  $10^{-8}$  nach BLANKENSHIP und BORKOWSKI [108]

BLANKENSHIP und BORKOWSKI [108] verbesserten die ursprüngliche Technologie von PELL [107] dadurch, daß sie die p- und die n-Schicht vor der Li-Diffusion stark dotierten. Diese stark dotierten Schichten sind entartete Halbleiter, sie werden mit  $n^+$  und  $p^+$  gekennzeichnet. Somit hat der Zähler von BLANKENSHIP und BORKOWSKI die Bezeichnung  $p^+i-n^+$ -Zähler. Die Dotierung erfolgte in der n-Schicht mit Phosphor und in der p-Schicht mit Bor. Der Vorteil ihrer Technologie bestand darin, daß die Totschicht (von der Oberfläche bis  $x = 0$  nach Abb. 15.7b) nur  $7 \mu\text{m}$  betrug, so daß sich diese Zähler selbst zum Nachweis von  $\alpha$ -Strahlung eignen. Außerdem können an den niederohmigen  $p^+$ - und  $n^+$ -Schichten leicht und zuverlässig OHMSche Kontakte angebracht werden. Die Diffusion des P und B verläuft bei Temperaturen über  $1000^\circ\text{C}$ ; sie ist sehr anspruchsvoll, da die Gefahr der Bildung von Versetzungen bei zu schnellem Abkühlen nach beendeter Diffusion besteht.

Die n-i-p- bzw.  $n^+i-p^+$ -Zähler werden derart erzeugt, daß orientierte, geschliffene und geätzte n-Siliziumkristalle mit sehr hohem spezifischem Widerstand (höher als  $10000 \Omega \text{ cm}$ ) auf der einen Seite mit einem Donator (z. B. Phosphor) und auf der anderen Seite mit einem Akzeptor (z. B. Aluminium) durch Diffusion oder Legierung dotiert werden, so daß beide Randschichten niederohmig sind, siehe z. B. [124]. Der Feldverlauf ist in diesem Zähler ähnlich wie in Abb. 15.7c. Da die Herstellung von hochohmigem Silizium schwer und kostspielig ist, hat sich dieser Detektortyp nicht sehr verbreitet. Er kann jedoch später in Verbindung mit Halbleitermaterialien der Gruppe  $A^{III}B^V$  und  $A^{II}B^VI$ , insbesondere mit dem ZnSe, eine große Rolle spielen.

Die Zählertransistoren ähneln in ihrem Aufbau sehr den Phototransistoren, sie haben eine sehr dünne vordere Kollektorschicht und eine dicke, hochohmige Mittelschicht. Die Basis wird nicht angeschlossen. Diese Detektoren arbeiten nach dem bekannten Transistorprinzip; die innere Verstärkung des Signals beträgt bis 40 dB. Abb. 15.10 zeigt den Aufbau und Potentialverlauf in einem Zähltransistor. Diese Detektoren sind technologisch sehr anspruchsvoll und daher noch nicht verbreitet.

Wie schon bemerkt, können die Sperrschicht-Kristallzähler ohne äußere Spannungsquelle arbeiten, da die Diffusionsspannung an ihnen liegt. VITOVSKIJ und Mitarbeiter [94] konnten für  $\alpha$ -Teilchen einer Energie von 5 MeV Impulsamplituden von  $2 \dots 3 \text{ mV}$  nachweisen, wobei das Wärmerauschen vernachlässigbar war. Die Impulsanstiegszeit betrug  $1 \dots 5 \mu\text{s}$ . Die Zähler waren ohne Spannungsquelle nicht für spektrometrische Arbeiten geeignet.

DEUCHARS und LAWRENCE [95] benutzten einen p-n-Si-Kristallzähler zur Messung der Energie der Kernreaktionsprodukte  $^{28}\text{Si} (n, p) ^{28}\text{Al}$ . Diese Kernreaktion wurde im Zählmaterial durch 14-MeV-Neutronen hervorgerufen. Si-Kristallzähler können somit zum direkten Nachweis energiereicher Neutronenstrahlung benutzt werden.

Es sei noch auf die Arbeiten [81] und [96] über die Anwendung dieser Zähler in der Kernspektrometrie, für Reaktormessungen [97] und als Teilchenzähler [98] verwiesen.

### Germanium

Mit Germanium-Einkristallen wurden die ersten p-n-Kristallzähler gebaut. Die Ge-Kristallzähler müssen stets mit flüssigem Stickstoff gekühlt werden. Die Technologie der Oberflächensperrschicht n-p

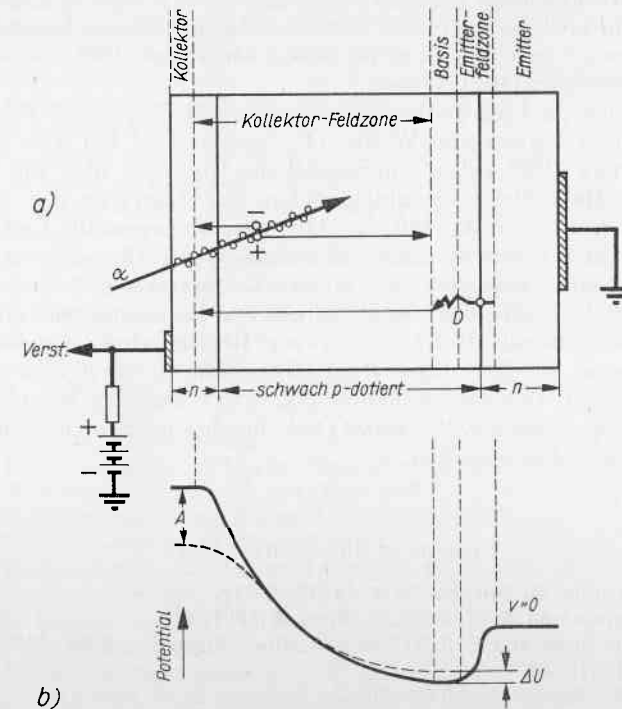


Abb. 15.10. Zähltransistor. a: Schematische Darstellung ( $D$  = Diffusion bzw. Injektion in die Basis); b: Potentialverlauf ( $A$  = Impulsamplitude,  $U$  = Potentialanhebung der Basis) nach [109]

(n-Ge-O-Au) beim Germanium ist ähnlich der entsprechenden Technologie für das Silizium. Nach DEARNALEY und WHITEHEAD [85] sind jedoch folgende Abweichungen zu beachten:

Die Ätzung (siehe 6., Seite 282) erfolgt bei Zimmertemperatur, da sie bedeutend langsamer verläuft als beim Si. Zur Befestigung der Zuleitungen (siehe 11. und 12.) kann keine Silberpaste benutzt werden, da



diese bei niedrigen Temperaturen spröde wird und bricht. Der Ge-Kristall wird daher mit Indium an die Grundplatte gelötet (Schmelzpunkt 155 °C), ebenfalls die Zuleitung zur Au-Elektrode. Bei beiden Operationen muß das Anwärmen und Abkühlen der Kristalle sehr langsam erfolgen.

Die Vorgänge in Ge-Kristallzählern wurden von AJRAPETANC und RYVKIN [54] verfolgt. PARKINSON und BILANIUK [96] benutzten p-n-Ge-Zähler für Kernspektrometrie. MCKENZIE und BROMLEY [99] fanden für 5-MeV- $\alpha$ -Teilchen ein Energie-Auflösungsvermögen von 3%, die Impulsanstiegszeit war kleiner als 3  $\mu$ s.

Man kann viele Si- oder Ge-Transistoren direkt als p-n-Kristallzähler zum Nachweis von  $\alpha$ -Strahlung benutzen, wie YAVIN [100] und ANANIANDES und DEWDNEY [101] zeigten.

Übersichtsartikel wurden von SALZBERGER [56], CRAWFORD [60], JONES [102] sowie WILLIAMS und WEBB [111] geschrieben. CZULIUS, ENGLER und KUCKUCK [109] geben eine gründliche Übersicht über die Problematik der Halbleiter-Sperrschichtzähler. Die Literatur der Kristalldetektoren wurde bis Mai 1962 in [110] zusammengestellt. Es sei noch auf neuere interessante Spezialveröffentlichungen [112–156] verwiesen.

Abschließend sei noch kurz auf das Gallium-Arsenid hingewiesen. PFISTER [103] befaßte sich eingehend mit den Eigenschaften von Sperrschichtelementen aus GaAs, die er zur Registrierung von Röntgenreflexen benutzte. Der unter Röntgenbestrahlung entstehende Kurzschlußstrom ist temperaturunabhängig, er ist von der Röntgendosisleistung linear abhängig. WICKHAM [104] beschrieb einen Ofen zur Züchtung von GaAs-Einkristallen.

#### Literatur zum Kapitel 15

- [1] R. FRERICHS, J. Opt. Soc. Am. **40** (1950) 219.
- [2] B. GUDDEN und R. W. POHL, Z. Phys. **5** (1921) 176.
- [3] J. H. DE BOËR and E. J. V. VERWEY, Proc. Phys. Soc. B **63** (1950) 167; A **64** (1951) 590.
- [4] F. SEITZ, Phys. Rev. **73** (1947) 549.
- [5] F. STÖCKMANN, Naturwiss. (1949) 82.
- [6] R. HOFSTADTER, Proc. I. R. E. (1950) 726.
- [7] A. C. CHYNOWETH, Phys. Rev. **76** (1949) 310.
- [8] B. GUDDEN und R. W. POHL, Z. Phys. **2** (1920) 361; **3** (1920) 98 u. 123; **4** (1921) 206.
- [9] R. HILSCH und R. W. POHL, Gött. Nachr. (1937) 45.
- [10] H. LENZ, Ann. Phys. **77** (1925) 471; **82** (1927) 775.
- [11] G. STETTER, Verh. dt. phys. Ges. **22** (1941) 13.
- [12] P. J. VAN HEERDEN, Dissertation, Utrecht 1945.
- [13] R. HOFSTADTER, J. C. D. MILLEN and S. C. RIDGWAY, Phys. Rev. **72** (1947) 977.
- [14] R. HOFSTADTER, Phys. Rev. **72** (1947) 1120.

- [15] L. F. WOUTERS and R. S. CHRISTIAN, Phys. Rev. **72** (1947) 1127.
- [16] R. FRERICHS, Phys. Rev. **72** (1947) 594.
- [17] S. J. CZYZAK, D. J. CRAIG and C. E. MCCAIN, Rev. Sci. Instr. **23** (1952) 932.
- [18] R. FRERICHS und R. WARMINSKY, Naturwiss. **33** (1946) 251.
- [19] H. KALLMANN und R. WARMINSKY, Ann. Phys. **4** (1948) 69.
- [20] R. FRERICHS, Phys. Rev. **76** (1949) 1869.
- [21] S. G. ZIZRO and J. R. PLATT, Phys. Rev. **76** (1949) 704.
- [22] S. V. SVIETSCHNIKOV, J. T. F. UdSSR **22** (1952) 1305.
- [23] H. SIMON, Ann. Phys. **12** (1953) 45.
- [24] H. SIMON und H. THIEL, Ann. Phys. **14** (1954) 54.
- [25] L. GILDART and A. W. EWALD, Bull. Amer. Phys. Soc. **25** (1950) paper 12.
- [26] B. GUDDEN und R. W. POHL, Z. Phys. **17** (1923) 331.
- [27] A. J. AHEARN, Phys. Rev. **75** (1949) 1966.
- [28] D. C. REYNOLDS and S. J. CZYZAK, Phys. Rev. **79** (1950) 543.
- [29] M. GEORGESCU, Compt. Rend. **228** (1949) 383.
- [30] A. J. AHEARN, Phys. Rev. **73** (1948) 1113.
- [31] L. F. CURTISS and B. W. BROWN, Phys. Rev. **72** (1948) 643.
- [32] K. ACHYNTAN, Proc. Ind. Acad. Sci. A **27** (1948) 171.
- [33] ROBERTSON, MARTIN and FOX, Phil. Trans. Roy. Soc. London, **232 A** (1934) 463.
- [34] K. G. MACKEY, Phys. Rev. **74** (1948) 1606.
- [35] R. K. WILLARDSON and C. G. DANIELSON, Phys. Rev. **77** (1950) 300.
- [36] K. G. MACKEY, Phys. Rev. **76** (1949) 1536.
- [37] C. ORMAN, H. Y. FAN, G. J. GOLDSMITH and K. LARK-HOROWITZ, Bull. Amer. Phys. Soc. **25** (1950) paper 18.
- [38] K. A. YAMAKAWA, Silver Bromide Crystal-Counter, Dissertation Princeton University 1949.
- [39] R. HOFSTADTER, Nucleonics **4** H. 4 (1949) 2; **4** H. 5 (1949) 29.
- [40] N. DAVIDSON and A. E. LARSH, Phys. Rev. **74** (1948) 220.
- [41] A. W. HUTCHINSON, Nature **162** (1948) 610.
- [42] D. T. WILLIAMS, Electr. Engng. **74** (1955) 595–598.
- [43] L. RUBY, Nucleonics **14** (1956) H. 5/101.
- [44] L. E. HOLLANDER, Nucleonics **14** (1956) H. 10/68, 70 u. 71.
- [45] S. V. SVIETSCHNIKOV, J. Techn. Fiz. **26** (1956) 1646–50.
- [46] L. E. HOLLANDER, Rev. Sci. Instr. **28** (1957) 322–323.
- [47] S. V. SVIETSCHNIKOV, J. Techn. Fiz. **27** (1957) 2492–2506.
- [48] L. E. HOLLANDER, Atomics **9** (1958) 231–3, 245.
- [49] Y. T. SILVONEN, D. R. BOYD, J. Appl. Phys. **29** (1958) 85–88.
- [50] W. F. COTTY, Industr. Diamond Rev. **16** (1956).
- [51] A. V. AJRAPETANC, S. M. RYVKIN, J. Techn. Fiz. **27** (1957) 95–105.
- [52] W. D. DAVIS, J. Appl. Phys. **29** (1958) 231–2.
- [53] B. SALZBERGER and K. SIEGEL, Proc. Inst. Radio Engrs. **46** (1958) 1536.
- [54] S. M. RYVKIN, J. Techn. Fiz. **26** (1956) 2667–2683.
- [55] S. M. RYVKIN, Dokl. Akad. Nauk UdSSR **24** (1956) 250–53.
- [56] J. SHARPE, Nuclear Engng. **2** (1957) 190–97.
- [57] J. CRAWFORD, Nuclear Power **4** (1959) H. 40/84.
- [58] R. H. BUBE, Photoconductivity of Solids, J. Wiley & Sons, New York 1960.
- [59] A. ROSE, Helvet. Phys. Acta **30** (1957) 242.
- [60] R. W. SMITH, Phys. Rev. **105** (1957) 900; RCA Rev. **20** (1959) 69.
- [61] H. B. DE VORE, RCA Rev. **20** (1959) 79.