

Anfang beeinflussen, das langlebige Isomer zerfällt nur zu etwa 5% mit γ -Strahlung. Unterdrückt man durch eine passende Meßanordnung die γ -Energien unter 0,2 MeV, so sollte man das Sn-127 allein messen können, falls es höhere γ -Energien aussendet.

Eine mit einem Szintillationszähler und einfachem Diskriminator durchgeführte Messung der Zinnfraktion des bestrahlten Tellurs, bei der nur Photonen über 0,2 MeV gemessen wurden, gab eine mit 123 ± 3 Min. abfallende Aktivität und eine Restaktivität von 5%, die mit etwa 4 Tagen abfiel. Bei der Bestrahlung von Tellur mit Neutronen bilden sich mit hohem Wirkungsgrad eine Reihe von Antimon- und Tellurisotopen, die Photonen mit mehr als 0,2 MeV Energie ausstrahlen, z. B. Sb-126, Sb-128, Sb-129, Sb-130, Te-129, Te-131. Da keines dieser Isotope in der Abfallkurve nachzuweisen war, kann man annehmen, daß die 4-Tagesaktivität nicht von einer Verunreinigung stammt, sondern von der sich aus dem Zinn während des Zerfalls bildenden Tochtersubstanz Sb-127. Man kann daher dem 123 ± 3 -Minuten-Zinn die Massenzahl 127 zuschreiben.

Die Neutronenbestrahlungen wurden mit dem Philips-Synchrozyklotron der argentinischen Atomkommission unter Verwendung eines Berylliumtargets durchgeführt. Die Deuteronenenergie beträgt 28 MeV, die Stromstärke betrug $15 \mu\text{A}$.

Das bestrahlte Natriumtellurit wurde in konzentrierter Salpetersäure gelöst, und nach Zugabe von Sb^{III} und

rauchender Salpetersäure wurden die Antimonoxyside in der Hitze gefällt und nach dem Abkühlen durch Kolloidfilter filtriert. Der Niederschlag, der neben Antimon etwas Tellur und die trägerlosen Zinnaktivitäten enthält, wurde in heißer konzentrierter Salzsäure gelöst. Nach Zugabe von Sn^{IV} und Te^{VI} wurde in 2-n-Salzsäure in der Hitze metallisches Tellur durch Hydrazinchlorid gefällt. Die Tellurfällung wurde unter erneuter Zugabe von Tellurat zweimal wiederholt. Dann wurde H_2F_2 zugegeben und Sb_2S_3 in 1-n-Lösung durch Schwefelwasserstoff gefällt. Da durch die dreimalige Reduktion mit Hydrazinchlorid alles Antimon reduziert wird, kann kein 5-wertiges Antimon komplex in Lösung bleiben. Die Antimonfällung wurde zweimal nach Zugabe von Sb^{III} wiederholt. Schließlich wurde der Zinnkomplex durch Zugabe von Borax zerstört, und das Zinn wurde als Sulfid gefällt und gemessen. Eine weitere Methode besteht in der Lösung des Tellurits in HClO_4 und Destillation des Zinntetrachlorids. Dabei erhält man das 4-wertige Zinn schon fast frei von Antimon- und Telluraktivitäten.

Für die Durchführung der Bestrahlungen mit dem Synchrozyklotron des Institutes möchten wir Herrn E. GALLONI und seinen Mitarbeitern herzlich danken.

Die vollständige Arbeit erscheint in Kürze in den „Publicaciones de la Comisión Nacional de la Energía Atómica de la República Argentina, Serie Química“.

Nachweis von Neutronen mit einem Indiumphosphid-p-n-Element

Von R. GREMMELMAIER und H. WELKER

Forschungslaboratorium der Siemens-Schuckertwerke AG, Erlangen

(Z. Naturforschg. 11 a, 420—422 [1956]; eingegangen am 30. April 1956)

Die Wirkung von Neutronen auf Halbleiter wurde schon in zahlreichen Arbeiten untersucht. Hervorzuheben sind vor allem die grundlegenden Arbeiten von LARK-HOROVITZ und Mitarbeitern¹. Bei diesen Untersuchungen richtete sich das Interesse hauptsächlich auf die Störstellen, welche die Neutronen in dem Halbleiter erzeugen, und die Änderungen der elektrischen Eigenschaften, die durch diese Störstellen verursacht werden. Schnelle Neutronen erzeugen durch Stöße mit den Gitterbausteinen im wesentlichen FRENKEL-Defekte, langsame Neutronen können durch Kernumwandlungen Fremdstörstellen im Halbleitergitter hervorrufen. Diese Störstellen beeinflussen die Leitfähigkeit des Halbleiters, wenn ihre Konzentration mit der Konzentration der ursprünglich vorhandenen Störstellen vergleichbar wird. Im allgemeinen treten gut meßbare Leitfähigkeitsänderungen erst bei einem Gesamtneutronenfluß von $10^{14} - 10^{16}/\text{cm}^2$ auf.

¹ R. E. DAVIS, W. E. JOHNSON, K. LARK-HOROVITZ u. S. SIEGEL, Phys. Rev. 74, 1255 [1948]. — K. LARK-HOROVITZ, Semiconducting Materials, Butterworth's Scientific Publications Ltd., London 1951, S. 47.

Die hier skizzierte Erzeugung zusätzlicher Störstellen ist jedoch nicht die einzige Wirkung der Neutronen. Bei den durch Neutronen hervorgerufenen Kernumwandlungen wird meist ein ionisierendes Teilchen oder ein γ -Quant ausgesandt, und zwar unmittelbar bei einem (n, α) -, (n, p) - oder (n, γ) -Prozeß oder in der Folgezeit, wenn durch die Kernumwandlung ein radioaktives Isotop entsteht. Diese ionisierenden Strahlen erzeugen in dem Halbleiter Elektron-Lochpaare, die vorübergehend die Leitfähigkeit erhöhen, im Gegensatz zur bleibenden Leitfähigkeitsänderung durch die oben erwähnten, von den Neutronen hervorgerufenen Störstellen. Die vorübergehende Leitfähigkeitserhöhung klingt genau so mit der Lebensdauer der Elektron-Lochpaare ab wie z. B. die Leitfähigkeitserhöhung bei Lichteinstrahlung, wenn die zusätzliche Erzeugung durch die Strahlung aufhört.

Enthält der Halbleiterkristall einen p-n-Übergang², so wird die Charakteristik dieses p-n-Überganges durch die ionisierende Strahlung, die bei der Kernumwandlung auftritt, in der gleichen Weise beeinflusst, wie durch Lichteinstrahlung bzw. von außen eindringende ionisierende Strahlung: Die zusätzliche Erzeugung von Elektron-Lochpaaren erhöht die Konzentration der Minoritätsträger und damit den Sperrstrom über den p-n-Übergang. Liegt keine äußere Spannung an dem Kristall, dann arbeitet er als „Strahlungs-

² W. SHOCKLEY, Bell System Tech. J. 28, 435 [1949]. — W. SHOCKLEY, Electrons and Holes in Semiconductors, D. Van Nostrand Company, Inc., New York 1950.



element“ analog dem p-n-Photoelement, der Kristall liefert unter der Einwirkung einer Neutronenstrahlung einen Strom bzw. eine Spannung. Ein derartiges p-n-Element kann also zum Nachweis von Neutronenstrahlung verwendet werden.

Im folgenden wird über Versuche berichtet, die mit p-n-Elementen aus Indiumphosphid durchgeführt wurden. Diese Elemente wurden mit langsamen Neutronen bestrahlt, und während und nach der Bestrahlung wurde die von den Elementen gelieferte Spannung gemessen.

InP gehört zur Gruppe der III-V-Verbindungen^{3, 4}. Ähnlich wie in GaAs⁵ kann auch in InP durch Diffusion ein p-n-Übergang hergestellt werden. Für den Nachweis von Neutronen ist wesentlich, daß das Indium einen großen Wirkungsquerschnitt gegenüber thermischen Neutronen hat. In Tab. 1 sind die Kernreaktio-

$\text{In}^{113}(\text{n}, \gamma)\text{In}^{114} \xrightarrow[1,2 \text{ min}]{\beta^-} \text{Sn}^{114}$	$\sigma = 2,0 \text{ barn}$
$\text{In}^{113}(\text{n}, \gamma)\text{In}^{114*} \xrightarrow[50 \text{ d}]{\text{I. Ü., } \beta^-} \text{Sn}^{114}$	56
$\text{In}^{115}(\text{n}, \gamma)\text{In}^{116*} \xrightarrow[54,3 \text{ min}]{\beta^-} \text{Sn}^{116}$	145
$\text{In}^{115}(\text{n}, \gamma)\text{In}^{116} \xrightarrow[13 \text{ sec}]{\beta^-} \text{Sn}^{116}$	52

Tab. 1. Reaktionen des Indiums mit thermischen Neutronen.

nen zusammengestellt, die durch thermische Neutronen im Indium hervorgerufen werden. Der Wirkungsquerschnitt in barn ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$) ist bei den einzelnen Reaktionen angegeben. Das natürliche Indium besteht zu 4,20% aus In^{113} und zu 95,80% aus In^{115} . Bei den Messungen werden sich daher von allem die Reaktionen des In^{115} bemerkbar machen. Der Wirkungsquerschnitt des Phosphors gegenüber thermischen Neutronen beträgt nur 0,19 barn, er ist gegenüber dem des Indiums vernachlässigbar klein. Der Gesamtwirkungsquerschnitt des Indiums beträgt 190 barn, die mittlere Eindringtiefe der Neutronen im InP errechnet sich daraus zu ungefähr 1,3 mm.

Wird ein InP-Element mit thermischen Neutronen bestrahlt, so erzeugen sowohl die γ -Strahlen, die von dem (n, γ) -Prozeß herrühren, als auch die β - und γ -Strahlen, die beim Zerfall des In^{116} ausgesandt werden, im InP Elektron-Lochpaare. Man hat demgemäß folgenden zeitlichen Verlauf des Kurzschlußstromes bzw. der Leerlaufspannung des Elementes zu erwarten: Zu Beginn der Bestrahlung liefert das Element eine Spannung, die im wesentlichen von den γ -Strahlen des (n, γ) -Prozesses hervorgerufen wird. Die Spannung steigt jedoch mit der Zeit an, entsprechend der wachsenden Anzahl radioaktiver In-Kerne, bis die Zahl der pro Zeiteinheit

zerfallenden Kerne gleich der Zahl der pro Zeiteinheit durch die Neutronen erzeugten Kerne ist. Dieser Gleichgewichtswert wird nach ungefähr 4 Halbwertszeiten nahezu erreicht. Bei konstanter Neutronenstrahlung ist daher der Beitrag der 13 sec-Aktivität des In^{116} zur Spannung des Elementes nach ungefähr 1 min konstant, der Beitrag der 54 min-Aktivität dagegen erst nach ungefähr 4 Stunden. Nach der Bestrahlung durch Neutronen geht die Spannung nicht sofort auf Null zurück, sondern klingt mit der Radioaktivität des Indiums ab.

Die Versuche wurden am Neutronengenerator des Max-Planck-Instituts für Chemie in Mainz durchgeführt. In dieser Anlage steht ein maximaler Neutronenfluß von etwa 10^9 Neutronen/cm² sec zur Verfügung. Eine $\text{Be}^9(\text{d}, \text{n})\text{B}^{10}$ -Reaktion liefert die Neutronen. Abb. 1 zeigt schematisch die Versuchsanordnung.

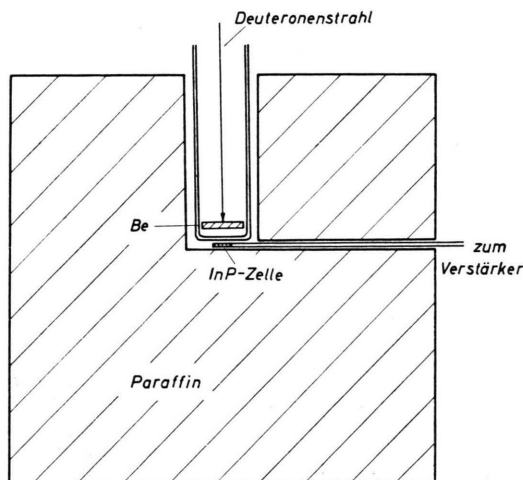


Abb. 1. Bestrahlung eines InP-Elementes mit Neutronen. Versuchsanordnung.

Die verwendeten InP-Elemente hatten eine Fläche von 24 mm^2 und waren ungefähr 1 mm dick. Der p-n-Übergang war durch Diffusion hergestellt worden. Um Störungen durch Lichteinstrahlung zu vermeiden, wurden die Elemente in dünne Aluminiumhüllen gesteckt. Die Leerlaufspannung, die die Elemente lieferten, wurde verstärkt und mit einem Tintenschreiber registriert. Bei den während der Versuche auftretenden Intensitäten ist die Leerlaufspannung noch proportional der Zahl der erzeugten Elektron-Lochpaare und damit der Strahlungsintensität. Zur Verstärkung wurden vorhandene Geräte benutzt. Als erste Verstärkerstufe diente ein Schwingkondensatorverstärker, als zweite Stufe – zur Anpassung an den Tintenschreiber – ein lichtelektrischer Verstärker.

Die Elemente wurden mehrfach mit Neutronen bestrahlt, dabei wurde jeweils der Deuteronenstrom und damit der Neutronenfluß für eine bestimmte Zeit eingeschaltet. Während der Bestrahlung lieferten die Elemente eine Leerlaufspannung von 2–4 mV. Ein Teil dieser Spannung wird von γ -Strahlung hervorgerufen,

³ H. WELKER, Z. Naturforschg. 7 a, 744 [1952].

H. WELKER, J. Electronics 1, 181 [1955].

⁴ O. G. FOLBERTH u. H. WEISS, Z. Naturforschg. 10 a, 615 [1955].

⁵ R. GREMMELMAIER, Z. Naturforschg. 10 a, 501 [1955].

die von außen in die Elemente eindringt. Dieser Anteil verschwindet jedoch sofort, wenn der Deuteronenstrom abgeschaltet wird, ebenso der Anteil der γ -Strahlen des (n, γ) -Prozesses. Übrig bleibt die Spannung, die auf den β -Zerfall des In^{116} zurückzuführen ist. Abb. 2 zeigt die Spannung an einem InP-Element nach zwei Bestrahlungen von je ungefähr 2 Minuten Dauer. Die Spannung ist logarithmisch gegen die Zeit aufgetragen.

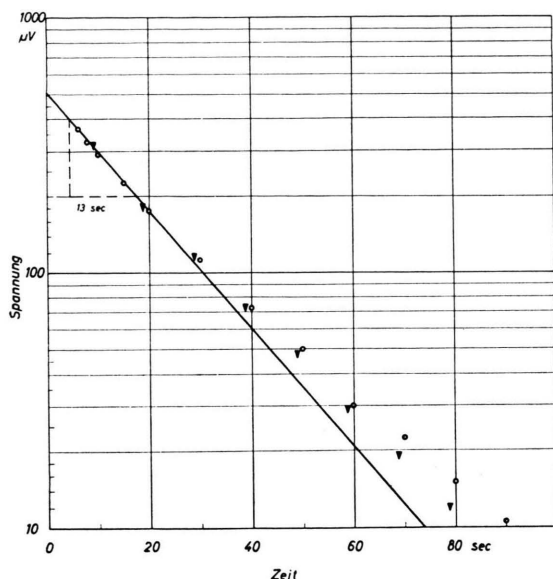


Abb. 2. Spannung an einem InP-Element nach einer Neutronenbestrahlung von 2 Minuten Dauer.

Die Meßpunkte liegen — im Bereich der kürzeren Zeiten — auf einer Geraden, deren Steigung eine Halbwertszeit von 13 sec ergibt in Übereinstimmung mit der Halbwertszeit des In^{116} . In den Abweichungen bei größeren Zeiten macht sich die zweite, langlebige Aktivität des In^{116} bemerkbar. Dies wird deutlicher in Abb. 3. Abb. 3 zeigt den Verlauf der Spannung nach einer Bestrahlung von ungefähr $\frac{1}{2}$ Stunde Dauer. Nach einer oder zwei Minuten ist die 13 sec-Aktivität abgeklungen, die weiteren Meßpunkte liegen auf einer Geraden, deren Steigung eine Halbwertszeit von 54,2 min ergibt, in guter Übereinstimmung mit der Halbwertszeit des zweiten In^{116} -Zerfalls. Dieses Abklingen der Spannung an dem InP-Element ist ein sicherer Beweis dafür, daß bei diesen Versuchen eine Spannung gemessen wird, die durch die Neutronenstrahlung hervorgerufen wird. Die auf den Zeitnullpunkt, d. h. den Moment, in dem die Bestrahlung aufhört, extrapolierte Spannung ist ein Maß für den Neutronenfluß. Wenn der Neutronenfluß nicht konstant ist, erhält man aus

diesem Wert ein Mittel des Neutronenflusses über einen Zeitraum von einigen Lebensdauern, bei der Messung der 13 sec-Aktivität, also über den Zeitraum von ungefähr 1 min.

Aus Abb. 2 entnimmt man für den 13 sec-Zerfall eine Spannung von 0,5 mV beim Abschalten des Neutronenflusses. Aus der Kennlinie des Elementes erhält man den dieser Leerlaufspannung entsprechenden Kurzschlußstrom I_k von $5 \cdot 10^{-9}$ A. Dieser Strom wird durch $n = I_k/e \approx 3 \cdot 10^{10}$ pro Sekunde über den p-n-Übergang fließende Ladungsträger hervorgerufen, die im radioaktiven Gleichgewicht von den β -Strahlen der 13 sec-Aktivität in der Nähe des Übergangs erzeugt werden. Da der Neutronenfluß durch das Element höchstens $3 \cdot 10^8 \text{ sec}^{-1}$ beträgt und nur jedes vierte Neutron zu einem 13 sec-Zerfall führt, erhält man pro β -Teilchen im Mittel mindestens 400 wirksame Elektron-Lochpaare. Die InP-Elemente sind noch keineswegs

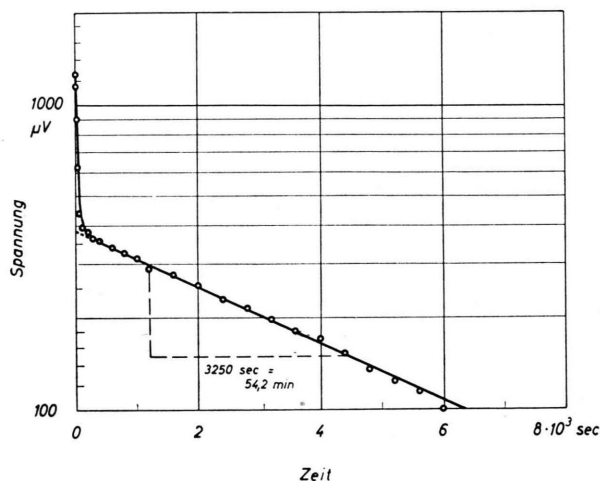


Abb. 3. Spannung an einem InP-Element nach einer Neutronenbestrahlung von $\frac{1}{2}$ Stunde Dauer.

optimal. Es ist zu erwarten, daß eine Verbesserung der elektrischen Eigenschaften der InP-Kristalle (Diffusionslänge der Ladungsträger) zu einer größeren Zahl wirksamer Elektron-Lochpaare pro β -Teilchen und damit zu einer größeren Empfindlichkeit führt.

Das Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz hat uns die Möglichkeit gegeben, die Bestrahlungsversuche an dem dortigen Neutronen-Generator durchzuführen. Wir schulden hierfür Herrn Prof. MATTAUCH und insbesondere auch den Herren Dr. HOFFMANN, KUHN und MAUERMANN für ihre persönliche Hilfe bei den Versuchen größten Dank; ebenso möchten wir Herrn Dr. KLEMM für seine wertvollen Beratungen danken.