

## Zum Szintillationsprozeß in CsJ/Tl

WILHELM REHMANN und ARTHUR SCHARMANN

I. Physikalisches Institut der Universität Gießen

(Z. Naturforschg. 21 a, 1684—1689 [1966]; eingegangen am 23. Juni 1966)

Luminescence decay times of CsJ- and CsJ/Tl-crystals with different Tl-concentrations have been measured after excitation with UV-light, electron- and ion-pulses.

Taking the model of BONANOMI and ROSEL as a basis the results are explained by two energy transfer mechanisms: the fast one is caused by excitons, the slow one by electron-hole-pairs.

Seit etwa 15 Jahren befaßt sich eine große Zahl von Arbeiten über den Lumineszenzprozeß in reinen und Tl-aktivierten Alkalihalogeniden mit der Zuordnung der verschiedenen Emissionsbanden zu bestimmten Lumineszenzzentren im Kristallgitter, sowie mit den Vorgängen innerhalb dieser Zentren bei der Absorption und Emission von Licht. Für diese Leuchtstoffklasse wurde bereits 1952 von BONANOMI und ROSEL ein Konfigurations-Koordinaten-Modell entwickelt<sup>1</sup>, das in seinen wesentlichen Grundzügen, bestätigt durch eine Reihe experimenteller Ergebnisse<sup>1-6</sup>, bis heute seine Gültigkeit bewahrt hat. Der Emissionsprozeß im Tl-Zentrum wird in diesem Modell mit Hilfe zweier möglicher Übergänge des Systems aus einem angeregten (metastabilen) Niveau beschrieben; dabei wird entweder nach Aufnahme der Aktivierungsenergie  $E_1$  ein Lichtquant emittiert, oder der Übergang erfolgt nach Aufnahme einer (größeren) Aktivierungsenergie  $E_2$  strahlunglos.

Da diese Leuchtstoffe eine verbreitete Anwendung als Szintillationskristalle gefunden haben, gewinnt in neuerer Zeit die Frage nach dem Energieübertragungs-Mechanismus an Bedeutung, der im Szintillator den Transport der im Ionisierungskanal eines energiereichen Teilchens absorbierten Energie zu den Lumineszenzzentren übernimmt. MURRAY und Mitarbeiter<sup>7-10</sup> lieferen hierzu mit einer Reihe von Arbeiten über den Einfluß des differentiellen Energieverlustes der anregenden Strahlung auf die Lumineszenzeigenschaften Tl-dotierter Alkalihalogenide grundlegende Beiträge. Nach BIRKS<sup>11</sup> kommen für die Energieübertragung im wesentlichen folgende Prozesse in Frage:

1. Übertragung durch Elektron-Loch-Paare mit Rekombination der Ladungsträger im Zentrum, gegebenen-

falls nach — zeitweiligem — Einfang der Ladungsträger an Haftstellen.

2. Exciton-Übertragung.

3. Übertragung durch Licht, z. B. durch Absorption der Excitonenemissionsbande des Grundgitters durch die Aktivatorzentren.

Es darf angenommen werden, daß der letzte Prozeß nur geringfügig zur Energieübertragung beiträgt.

Im Jahre 1960 publizierten LOMONOSOV und NEMILOV<sup>12</sup> Lumineszenzmessungen an CsJ/Tl im elektrischen Feld, die folgende Rückschlüsse zulassen:

1. Am Übertragungsprozeß sind sowohl Excitonen als auch Ladungsträgerpaare beteiligt; die Excitonen übernehmen hierbei den schnellen Energietransport, während die langsame Energieleitung, die zur Phosphoreszenz mit langer Lebensdauer führt, mit Elektron-Loch-Übertragung gekoppelt ist.

2. Mit steigendem differentiellen Energieverlust der anregenden Strahlung wächst der Anteil der Excitonen an der Energieleitung.

Die Untersuchungen von MURRAY und KELLER<sup>10</sup> an KJ und KJ/Tl weisen auf eine Energieübertragung durch Ladungsträger unter Beteiligung von F- und V-Zentren als Haftstellen für den langsamen Energietransport hin.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, auf Grund von Untersuchungen der Temperaturabhängigkeit des Abklingens speziell von CsJ/Tl bei Variation der Anregungsart und des Tl-Gehaltes zur Klärung der Energietransportprobleme beizutragen.

Im undotierten und Tl-dotierten CsJ treten unter verschiedenen Anregungsbedingungen insgesamt 3 Emissionsbanden auf: eine Aktivatorbande im gelben Spektralbereich um 550 nm, die durch den Einbau von Tl<sup>+</sup>-Ionen im Grundgitter verursacht wird, eine blaue Emissionsbande um 430 nm im undotier-

- <sup>1</sup> J. BONANOMI u. J. ROSEL, Helv. Phys. Acta **25**, 725 [1952].
- <sup>2</sup> H. ENZ u. J. ROSEL, Helv. Phys. Acta **31**, 25 [1958].
- <sup>3</sup> H. BLUME, P. BRAUER u. K. WESTERMANN, Z. Naturforschg. **17 a**, 662 [1962].
- <sup>4</sup> F. E. SENTLE, P. MARTINEZ u. V. P. ALEKNA, Rev. Sci. Instr. **33**, 819 [1962].
- <sup>5</sup> W. REHMANN, K. REIBER u. A. SCHARMANN, Z. Naturforschg. **18 a**, 1139 [1963].

- <sup>6</sup> M. AEGERTER u. J. ROSEL, Helv. Phys. Acta **37**, 206 [1964].
- <sup>7</sup> R. B. MURRAY u. A. MEYER, Phys. Rev. **122**, 815 [1961].
- <sup>8</sup> A. MEYER u. R. B. MURRAY, Phys. Rev. **128**, 98 [1962].
- <sup>9</sup> R. GWIN u. R. B. MURRAY, Phys. Rev. **131**, 501, 508 [1963].
- <sup>10</sup> R. B. MURRAY u. F. J. KELLER, Phys. Rev. **137**, A 942 [1965].
- <sup>11</sup> J. B. BIRKS, IEEE Trans. Nucl. Sci. **11**, 3, 4 [1964].
- <sup>12</sup> I. I. LOMONOSOV u. Yu. A. NEMILOV, Soviet Phys.—Solid State **2**, 1476 [1961].



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

ten Kristall, sowie bei tiefen Temperaturen eine Emissionsbande im ultravioletten Spektralbereich bei  $310 - 350 \text{ nm}$ <sup>13</sup>.

Neben einer Reihe einzelner Meßwerte für die Abklingzeit von CsJ und CsJ/Tl, die zumeist bei Zimmertemperatur aufgenommen wurden, liegen auch eine Reihe von Arbeiten über ihren Temperaturgang vor<sup>1-6, 14-18</sup>. Insbesondere die Meßergebnisse für die Aktivatorbande von CsJ/Tl weisen, je nach Anregungsbedingungen, beträchtliche Unterschiede auf, die bei der Auswertung zu unterschiedlichen Werten für die Aktivierungsenergie  $E_1$  für den Lumineszenz-Übergang im Tl-Zentrum führen<sup>5, 18</sup>. Ein Teil der Arbeiten berücksichtigt dabei nur die kurze Komponente des Abklingens<sup>4, 5, 15-17</sup>; von STOREY, JACK und WARD<sup>19</sup> wurde der Abklingvorgang in exponentielle Komponenten zerlegt, deren Temperaturgang von ROBERTSON, LYNCH und JACK<sup>18</sup> über einen größeren Temperaturbereich verfolgt wurde. Dieses Verfahren läßt sich auch auf die UV-Bande des reinen CsJ anwenden<sup>4, 6</sup>.

Die Messungen über den Einfluß des differentiellen Energieverlustes der anregenden Strahlung auf die Abklingzeit, die bei Zimmertemperatur durchgeführt wurden, ergeben ein eindeutiges Bild: Mit wachsenden  $dE/dx$  verkürzt sich die Abklingzeit<sup>18-23</sup>; der Einfluß der Aktivatorkonzentration ist umstritten<sup>22, 24-26</sup>.

In einer früheren Arbeit der Verfasser wurde gezeigt, daß sich im Bereich tieferer Temperaturen deutliche Unterschiede des Abklingens bei Anregung mit einem UV-Blitz und  $\alpha$ -Teilchen ergeben<sup>5</sup>; zu ähnlichen Ergebnissen gelangt auch PLIAVIN' bei UV- und  $\gamma$ -Anregung<sup>17</sup>. Die geringe Intensität der Szintillationen bei Anregung mit einzelnen  $\alpha$ -Teilchen ließ es wünschenswert erscheinen, ähnliche Untersuchungen bei Anregung mit gepulsten Teilchenstrahlen vorzunehmen. Vergleichende Messungen wurden bei UV-Anregung, d. h. bei direkter Anregung der Tl-Zentren unternommen. Zusätzlich wurden Messungen der Thermolumineszenz und der thermisch stimulierten elektrischen Leitfähigkeit durchgeführt.

<sup>13</sup> W. REHMANN u. A. SCHARMANN, Z. Naturforschg. **21a**, 666 [1966].

<sup>14</sup> B. HÄHN u. J. ROSSEL, Helv. Phys. Acta **26**, 271, 803 [1953].

<sup>15</sup> H. KNOEPFEL, E. LOEPFE u. P. STOLL, Z. Naturforschg. **12a**, 348 [1957].

<sup>16</sup> Z. L. MORGESTERN, Opt. Spectr. USSR **7**, 146 [1959].

<sup>17</sup> I. K. PLIAVIN', Opt. Spectr. USSR **7**, 41 [1959].

<sup>18</sup> J. C. ROBERTSON, J. G. LYNCH u. W. JACK, Proc. Phys. Soc. London **78**, 1188 [1961].

<sup>19</sup> R. S. STOREY, W. JACK u. A. WARD, Proc. Phys. Soc. London **72**, 463 [1958].

<sup>20</sup> A. SCHARMANN, Z. Phys. **157**, 301 [1959].

<sup>21</sup> M. BORMANN, G. ANDERSSON-LINDSTRÖM, H. NEUERT u. H. POLLEHN, Z. Naturforschg. **14a**, 681 [1959].

## Experimentelles

Die Untersuchungen wurden an CsJ/Tl-Kristallen durchgeführt, die im Kristall-Laboratorium der Firma E. Leitz nach dem BRIDGEMAN-STOCKBARGER-Verfahren hergestellt worden waren. Die Tl-Konzentration der Kristallproben wurde flammenphotometrisch mit Hilfe der Tl-Linie bei 377,57 nm bestimmt; dazu wurde ein Zeiss-Spektralphotometer PMQ II mit einem Flammenzusatz benutzt. Die Messungen wurden wegen einer eindeutigen Temperaturfestlegung an 0,5 mm starken Kristalldünnenschliffen durchgeführt. Diese wurden in einer evakuierbaren Meßvorrichtung auf einem Kupferblock befestigt, der mit Hilfe von flüssiger Luft und einer elektrischen Heizung auf die gewünschte Temperatur zwischen  $-180^\circ\text{C}$  und  $+250^\circ\text{C}$  gebracht werden konnte. Zur Temperaturmessung diente ein am Kupferblock angebrachtes Thermoelement.

Zur Messung der Lumineszenzabklingzeiten nach UV-Anregung wurde eine Luftfunkens-Blitzlampe mit einer Blitzdauer von 30 ns benutzt<sup>27</sup>. Ein Schott-Absorptionsfilter UG 11 begrenzte das breite Emissionsspektrum des Funkens auf den Bereich zwischen 260 und 390 nm. Für die Abklingzeitmessungen bei Elektronen-anregung stand eine gepulste Elektronenstrahlapparatur zur Verfügung<sup>28</sup>. Die Elektronenenergie betrug 15 keV bei einer Stromstärke von rund 5  $\mu\text{A}$ . Um auch längere Abklingkomponenten genügend stark anzuregen, betrug die Impulsdauer 100  $\mu\text{s}$ ; die Abfallzeit der Impulse lag bei 15 ns.

Die Messungen bei Ionenanregung wurden an einem 1,3 MeV-VANDEGRAAFF-Ionenbeschleuniger durchgeführt, dessen Strahl mit einem für diesen Zweck entwickelten, im Hochspannungs-Terminal untergebrachten Impuls-generator gepulst wurde. Dazu wurde das Ionen-Extraktionsfeld an einer speziellen Impulselektrode vor dem Absaugkanal der Ionenquelle hellgetastet. Die für die Abklingzeitmessung entscheidende Abfallzeit der Impulse betrug 25 ns<sup>29</sup>. Bei den hier beschriebenen Messungen wurde mit einer Impulsfolgefrequenz von 20 Hz gearbeitet; die Stromdichte am Target lag bei  $10^{-7} \text{ A/cm}^2$ . Sie wurde mit einem in den Strahlweg schwenkbaren FARADAY-Käfig bestimmt. Die Energie der anregenden Protonen betrug 1 MeV bei einer Impulsdauer von wahlweise 1  $\mu\text{s}$  bzw. 20  $\mu\text{s}$ . Bei der Anregung mit Ar<sup>+</sup>-Ionen ließ die begrenzte Feldstärke des Analysiermagneten des Beschleunigers nur eine Teilchenenergie von 300 keV

<sup>22</sup> J. C. ROBERTSON u. J. G. LYNCH, Proc. Phys. Soc. London **77**, 751 [1961].

<sup>23</sup> M. BORMANN, R. LANGKAU, G. LINDSTRÖM, H. NEUERT u. J. WARNECKE, Nukleonik **3**, 85 [1961].

<sup>24</sup> Iu. A. TSIRLIN, S. N. KOMNIK u. L. M. SOIFER, Opt. Spectr. USSR **6**, 265 [1959].

<sup>25</sup> D. A. JONES u. A. WARD, Proc. Phys. Soc. London **75**, 931 [1960].

<sup>26</sup> N. N. VASILEVA, Opt. Spectr. USSR **16**, 462 [1964].

<sup>27</sup> P. BRÄUNLICH, K. REIBER u. A. SCHARMANN, Z. Phys. **183**, 431 [1965].

<sup>28</sup> V. SCHÄFER, Z. Phys. **166**, 429 [1962].

<sup>29</sup> K. SCHMIDT, Diplomarbeit, Universität Gießen 1964.

zu. Wegen der starken Lumineszenzzerstörung durch die  $\text{Ar}^+$ -Bestrahlung mußte hier die Impulsdauer auf  $1 \mu\text{s}$  beschränkt bleiben. Abb. 1 gibt schematisch die Anordnung des Beschleuniger-Targets wieder.

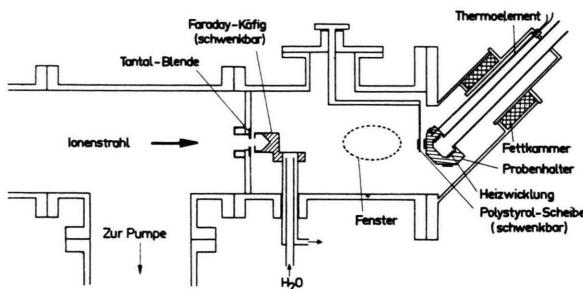


Abb. 1. Targetkammer mit Probenträger.

In allen Fällen wurde das Lumineszenzlicht mit einem Photomultiplier EMI 6255 SA registriert. Zur Trennung der einzelnen Emissionsbanden waren geeignete optische Filter vorgeschaltet: die gelbe Aktivatorbande wurde mit einer Kombination der Schott-Absorptionsfilter GG 4 und GG 14 ausgefiltert, die UV-Emissionsbande, die nur bei Teilchenanregung auftrat, mit einem Filter UG 11. Der Arbeitswiderstand am Multiplier war jeweils so eingestellt, daß die Zeitkonstante der Schaltung klein gegen die kürzeste Lumineszenz-Abklingzeit blieb. Zur Wiedergabe des Multiplier-Signals diente ein 100 MHz-Oszillograph Tektronix 585 A. Nach Übertragung in eine einfach-logarithmische Darstellung wurden die Abklingkurven, soweit notwendig, durch Subtraktion in ihre einzelnen exponentiellen Komponenten zerlegt. In dem benutzten Diagramm erscheinen diese als Geraden, aus deren Neigung die zugehörige Abklingkonstante  $\tau$  bestimmt wird.

Die Messungen der Thermolumineszenz und der thermisch stimulierten Leitfähigkeit wurden mit einer an anderer Stelle ausführlich beschriebenen Apparatur durchgeführt<sup>30</sup>. Der mit Goldelektroden versehene Kristall war hierbei in einer Vakuumkammer auf einem Kupferblock festgeklemmt, von dem er durch eine dünne Teflonschicht elektrisch isoliert war; an den Elektroden lag während der Messung eine Gleichspannung von 200 V. Nachdem der Kristall bei  $-180^\circ\text{C}$  50 min lang einer 50 keV-RÖNTGEN-Strahlung ausgesetzt worden war, wurde er mit einer Aufheizgeschwindigkeit von 3 Grad pro min bis auf etwa  $+50^\circ\text{C}$  erwärmt. Die dabei auftretende Thermolumineszenz registrierte ein Photomultiplier R C A 6217, der durch die thermisch gestimulierte Leitfähigkeit hervorgerufene Strom wurde mit einem Schwingkondensator-Elektrometer FH 56 (Fa. Frieske u. Höpfer) gemessen.

### Meßergebnisse

Die Abklingzeiten der gelben Emissionsbande nach UV-Anregung wurden an 3 CsJ-Kristallen gemessen,

deren Tl-Dotierung sich jeweils um rund eine Größenordnung unterschied (Abb. 2). Der Abklingvorgang verläuft fast im gesamten untersuchten Temperaturbereich rein exponentiell:  $I(t) = I_0 \cdot \exp(-t/\tau_0)$ . Lediglich im Bereich tiefer Temperaturen tritt neben

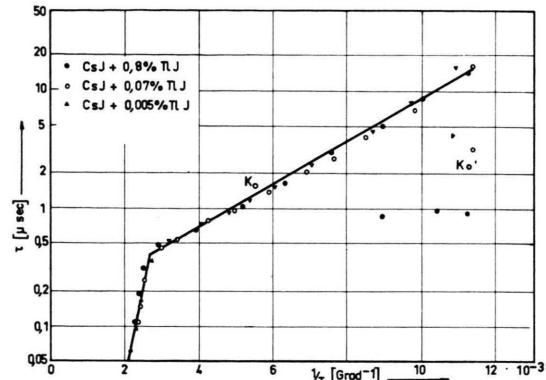


Abb. 2. Temperaturabhängigkeit der Abklingzeiten der gelben Emissionsbande von CsJ/Tl nach UV-Anregung.

diesem exponentiellen Vorgang  $K_0$  noch eine zweite, kürzere Komponente  $K_0'$  auf:

$$I(t) = I_0 \cdot \exp(-t/\tau_0) + I_0' \cdot \exp(-t/\tau_0')$$

Wegen der besseren Übersichtlichkeit wurde einheitlich für dieses sowie alle weiteren Abklingzeit-Diagramme die logarithmische Darstellung der Abklingzeit über der reziproken absoluten Temperatur gewählt. Die Werte für  $\tau_0$  liegen hierbei auf einer Kurve, die durch zwei Geraden verschiedener Steigung angenähert werden kann. Ein Einfluß der Aktivatorkonzentration ist nicht festzustellen. Die „schnelle“ Komponente  $K_0'$  dagegen läßt bei hoher Tl-Konzentration eine deutliche Verkürzung von  $\tau_0$  erkennen.

Das Abklingen der Aktivatorbande nach Anregung mit Teilchenimpulsen wurde an den gleichen Kristallen gemessen, die für die oben beschriebenen UV-Messungen benutzt worden waren. Hier läßt sich zunächst ganz allgemein feststellen, daß das Lumineszenzabklingen einen wesentlich komplizierteren Verlauf zeigt: Die Abklingkurve setzt sich fast im gesamten Temperaturbereich aus mehreren exponentiellen Komponenten zusammen (Abb. 3).

Die bei UV-Anregung gemessenen Komponenten  $K_0$  und  $K_0'$  findet man, obwohl oft nur schwach ausgeprägt, auch bei Teilchenanregung wieder. Daneben wurden bis zu drei Komponenten  $K_1$ ,  $K_2$ ,  $K_3$  mit längerer Lebensdauer gefunden, die bei tiefen Tem-

<sup>30</sup> P. BRÄUNLICH u. A. SCHARMANN, Z. Phys. 177, 320 [1964].

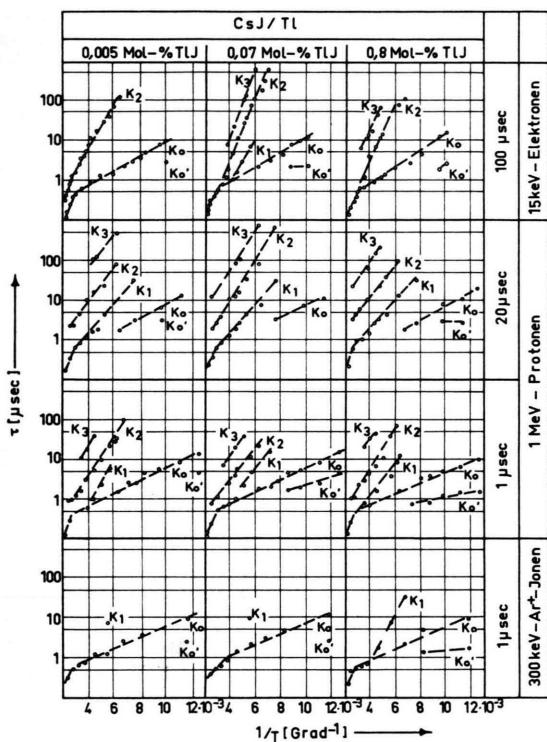


Abb. 3. Temperaturabhängigkeit der Abklingzeiten der gelben Emissionsbande von CsJ/Tl nach Anregung mit Elektronen- und Ionenimpulsen.

peraturen einige hundert Mikrosekunden betragen kann. Ihre Abklingkonstanten  $\tau_1$ ,  $\tau_2$ ,  $\tau_3$  nehmen mit steigender Temperatur ab, bis sie sich, etwa bei Zimmertemperatur, nicht mehr eindeutig von  $K_0$  unterscheiden lassen.

Ein systematischer Gang der Abklingkonstanten mit der Tl-Konzentration der Proben konnte nicht festgestellt werden. Durch eine Verlängerung der Dauer der Anregungsimpulse treten, wie die Messungen bei Protonenanregung zeigen, die Komponenten mit langer Lebensdauer erwartungsgemäß gegenüber den kurzen Komponenten stärker hervor. Eine Variation des differentiellen Energieverlustes, d. h. der Art der anregenden Teilchen, verursacht keine deutliche Veränderung der Abklingkonstanten, die über die bei derartigen Messungen naturgemäß große Fehlerbreite hinausginge; jedoch werden die Intensitätsverhältnisse der einzelnen Komponenten beeinflußt. Während die längeren Komponenten des Abklingens bei Anregung mit einem  $1 \mu\text{sec}$ -Protonenimpuls noch deutlich ausgeprägt sind, ist ihre Intensität im Vergleich zur kurzen Komponente  $K_0$  bei  $\text{Ar}^+$ -Anregung

so gering, daß sie nur in einzelnen Fällen noch meßtechnisch erfaßt werden konnten.

Zur genaueren Prüfung dieser Beobachtung wurde ein CsJ/Tl-Kristall mit einer Dotierung von 0,07 Mol-Proz. TlJ bei  $-50^\circ\text{C}$  mit einem Elektronen-, Protonen- und  $\text{Ar}^+$ -Ionen-Impuls von  $1 \mu\text{sec}$  Dauer angeregt. Die Abklingkurven sind in Abb. 4 in logarith-

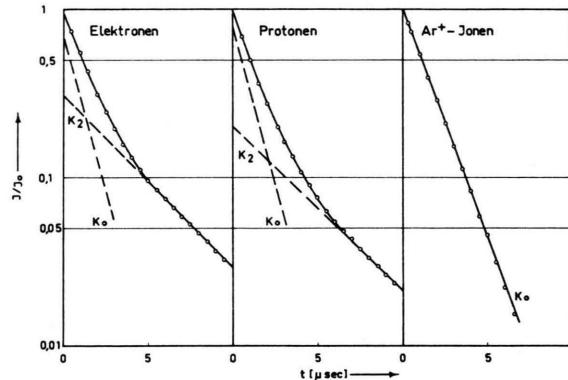


Abb. 4. Das Lumineszenzabklingen von CsJ/Tl nach Anregung mit Elektronen-, Protonen- und  $\text{Ar}^+$ -Ionen-Impulsen von  $1 \mu\text{sec}$  Impulsdauer.

mischer Darstellung wiedergegeben. Man erkennt hier deutlich, daß nicht die Abklingkonstanten der einzelnen Komponenten, wohl aber ihre Intensitätsverhältnisse von der Anregungsart abhängen: Bei Elektronen- und Protonenanregung läßt sich das Abklingen in die Komponenten  $K_0$  und  $K_2$  zerlegen; im letzteren Fall steigt das Verhältnis  $I_0/I_2$  gegenüber der Elektronenanregung um den Faktor 1,7. Bei  $\text{Ar}^+$ -Anregung wird schließlich das Abklingen allein von der Komponente  $K_0$  bestimmt.

Von einem undotierten und den 3 Tl-dotierten CsJ-Kristallen wurde außerdem das Abklingen der UV-Bande (Elektronenemission) aufgenommen, die nur bei tiefen Temperaturen mit nennenswerter Intensität auftritt (Abb. 5). Diese Lumineszenzbande klingt schneller ab als alle Komponenten der gelben Aktivatorbande. Heizt man die Proben von der Temperatur der flüssigen Luft an langsam auf, so bleibt die Abklingzeit zunächst fast konstant; ab etwa  $-160^\circ\text{C}$  ( $1/T = 9 \cdot 10^{-3} \text{ Grad}^{-1}$ ) nimmt sie ab. Bei ungefähr  $-100^\circ\text{C}$  ( $1/T = 5,8 \cdot 10^{-3} \text{ Grad}^{-1}$ ) wird die UV-Bande gelöscht. Ein deutlicher Einfluß der Aktivatorkonzentration ist auch hier nicht festzustellen.

Die Glowkurven der Thermolumineszenz und der thermisch stimulierten Leitfähigkeit zeigen eine verhältnismäßig komplizierte Struktur. Die in Abb. 6

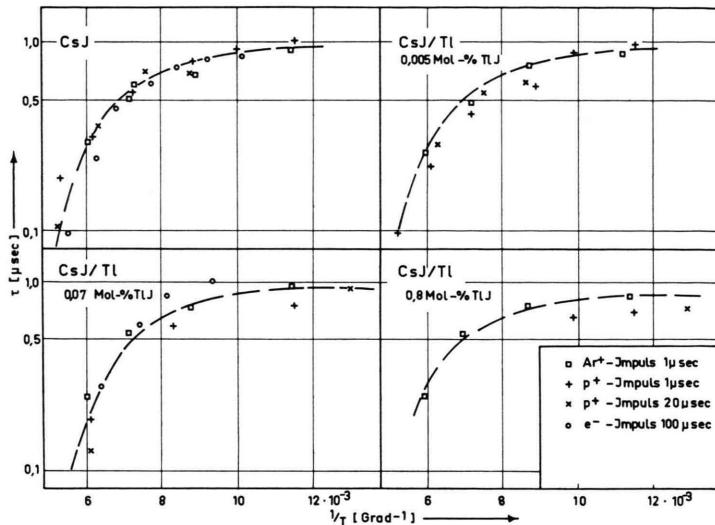
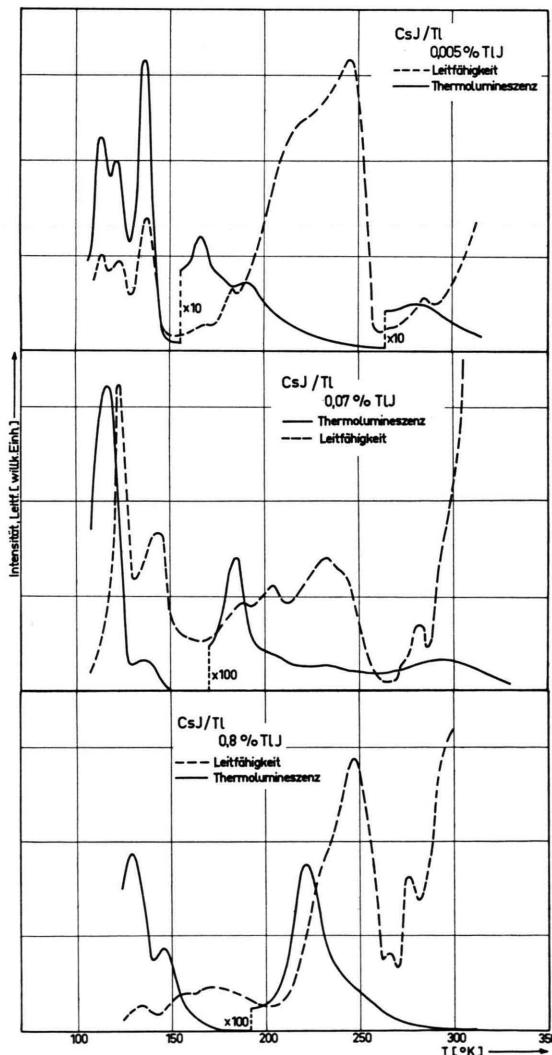


Abb. 5. Temperaturabhängigkeit der Abklingzeiten der UV-Emissionsbande von CsJ und CsJ/Tl nach Anregung mit Elektronen- und Ionenimpulsen.



wiedergegebenen Kurvenpaare sind nur hinsichtlich der Lage der Maxima, nicht bezüglich ihrer Absolutwerte untereinander vergleichbar, da zwischen den einzelnen Kristallproben die Empfindlichkeit der Meßeinrichtungen geändert wurde. Mit zunehmender Tl-Dotierung wächst die Intensität der beiden thermisch stimulierten Prozesse, insbesondere die der Thermolumineszenz. Zwischen den Glowpeaks der Thermolumineszenz und denen der thermisch stimulierten Leitfähigkeit lässt sich eine eindeutige Zuordnung finden, wobei die Leitfähigkeitsmaxima erwartungsgemäß leicht nach höheren Temperaturen verschoben sind<sup>30</sup>. Die Intensität der Thermolumineszenz nimmt mit wachsender Temperatur im Gegensatz zur thermisch stimulierten Leitfähigkeit stark ab. Bei etwa 300 °K setzt die beginnende Ionenleitfähigkeit der Kristalle der Messung der Leitfähigkeits-Glowkurven ein Ende.

## Diskussion

Der Temperaturverlauf des Abklingens der gelben Bande nach UV-Anregung, d. h. nach direkter Anregung der Aktivatorzentren, entspricht dem im BONANOMI-ROSELL-Modell geforderten Verlauf

$$\tau = 1 / \{ s_1 \cdot \exp(-E_1/k T) + s_2 \cdot \exp(-E_2/k T) \}$$

mit den Werten  $E_1 = 0,036$  eV und  $s_1 = 8 \cdot 10^6$  sec<sup>-1</sup> für den Lumineszenz-Übergang, sowie  $E_2 = 0,31$  eV und  $s_2 = 4 \cdot 10^{10}$  sec<sup>-1</sup> für den strahlunglosen Über-

Abb. 6. Glow-Kurven der Thermolumineszenz und der thermisch stimulierten elektrischen Leitfähigkeit von CsJ/Tl nach Anregung mit 50 keV-RÖNTGEN-Strahlen.

gang. Die im Bereich tiefer Temperaturen andeutungsweise auftretende Komponente  $K_0'$  weist darauf hin, daß hier im Lumineszenzzentrum ein komplizierterer Prozeß abläuft.

Die Tatsache, daß diese kurzen Komponenten auch bei Teilchenanregung zu beobachten sind, läßt darauf schließen, daß ein Teil der im Ionisierungskanal absorbierten Energie durch einen im Vergleich zur Abklingzeit schnellen Transportmechanismus zu den Aktivatorzentren gelangt. Daneben treten im Energieübertragungsprozeß auch langsamere Transportmechanismen auf, die die Abklingkomponenten mit längerer Lebensdauer  $K_1$ ,  $K_2$ ,  $K_3$  verursachen.

Zur Deutung dieser Vorgänge wird angenommen, daß die schnelle Energieübertragung mit Excitonewanderung gekoppelt ist, wie sie auch von LOMONOSOV und NEMILOV<sup>12</sup> zur Deutung ihrer Ergebnisse gefordert wird. Der Temperaturgang der Abklingkonstanten der langsamten Komponenten  $K_{1-3}$  läßt darauf schließen, daß in diesem Fall die Energieleitung durch Einfang der Energieträger an Haftstellen verschiedener Tiefe im Kristallgitter gebremst wird. Aus dem analogen Verlauf der Glowkurven für die Thermolumineszenz und die thermisch stimulierten Leitfähigkeit kann gefolgert werden, daß es sich bei den vorübergehend eingefangenen Energieträgern um Ladungsträger (Elektronen bzw. Defektelektronen) handelt, die nach thermischer Aktivierung über das Leitungs- bzw. Valenzband zu den Aktivatorzentren gelangen, um dort unter Lichtemission mit ihrem entgegengesetzt geladenen Partner zu rekombinieren.

Über die Natur der Haftstellen können, ebenso wie über die Polarität der Ladungsträger, auf Grund unserer Messungen keine detaillierten Aussagen gemacht werden; es darf jedoch angenommen werden, daß es sich hier um ähnliche Vorgänge handelt, wie sie vor kurzem von MURRAY und KELLER an KJ/Tl-

Kristallen genauer untersucht wurden, d. h. um Einfang an  $V_K$ -, F- und unterschiedlich geladenen Tl-Zentren<sup>10</sup>. Diese Interpretation der langsamten Transportprozesse steht ebenfalls im Einklang mit den Ergebnissen von LOMONOSOV und NEMILOV<sup>12</sup>.

Für die Intensitätsverschiebung der einzelnen Abklingkomponenten bei Änderung des  $dE/dx$  der anregenden Strahlung ergibt sich unter den obigen Voraussetzungen eine plausible Deutung: Mit wachsendem  $dE/dx$  wird wegen der steigenden Dichte der primär im Ionisierungskanal erzeugten Ladungsträger in erhöhtem Maße eine Bildung von Excitonen eintreten; damit wird der Anteil der an Excitonenergieübertragung gebundenen schnellen Komponente  $K_0$  größer. Ähnliche Annahmen werden von BIRKS<sup>31</sup> zur Erklärung der in einer Reihe von Experimenten festgestellten und zur Teilchendiskriminierung verwandten Abklingzeitänderungen bei unterschiedlicher Anregungsart gemacht<sup>18-23</sup>, sowie von LOMONOSOV und NEMILOV zur Diskussion ihrer Ergebnisse.

Das Abklingen der UV-Bande verläuft rein exponentiell; AEGERTER und ROSSEL<sup>6</sup> fanden im Gegensatz hierzu bei Anregung mit 1 MeV-Protonen-impulsen von 5 ns Dauer einen aus 2 exponentiellen Komponenten zusammengesetzten Abklingvorgang. Dieser Widerspruch läßt sich wahrscheinlich auf die längere Impulsdauer bei den hier beschriebenen Messungen zurückführen. Aus dem Temperaturverlauf der Abklingzeit der UV-Bande sind gemäß dem BONANOMI-ROSSEL-Modell die folgenden Parameter zu entnehmen:  $E_1 = 0$ ;  $s_1 = 10^6 \text{ sec}^{-1}$ ;  $E_2 = 0,1 \text{ eV}$ .

Herrn Prof. Dr. W. HANLE danken wir für stete Förderung, den Herren Dr. K. REIBER, Dipl.-Phys. H. DIEHL und Dr. NITSCHMANN, Wetzlar, für ihre Unterstützung und dem Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung, dem Hessischen Wirtschaftsministerium und der Firma Schunk & Ebe, Gießen, für Zuwendungen.

<sup>31</sup> J. B. BIRKS, The Theory and Practice of Scintillation Counting, Pergamon Press, Oxford 1964.