

Zur Eignung von Edelgas- bzw. Edelgas-Stickstoff-Gemischen als Detektionsgase in Proportional-Szintillations-Detektoren

G. Brunner und P. Morgenstern

Zentralinstitut für Isotopen- und Strahlenforschung, Leipzig, DDR

Z. Naturforsch. **33a**, 347–352 (1978); eingegangen am 11. Januar 1978

Suitability of Noble Gases and their Mixtures, Partly with Nitrogen, as Detection Gases in Proportional Scintillation Counters

Ar, Ar/N₂, Ar/Xe, Kr and Kr/Xe were tested in a spherical gas scintillation counter. The examinations led to the conclusion that only the four lowest lying states ³P₂, ³P₁, ³P₀, ¹P₁ of the noble gas atoms in the luminescence process are involved. From a practical point of view, the best energy resolution could be reached by Xe. We got a full width at half maximum of 83 eV for boron X-rays (183 eV).

1. Einleitung

Die meßtechnische Erschließung des analytisch sehr bedeutsamen Photonen-Energiebereiches von ca. 200 eV bis 2000 eV mit den Mitteln der energie-dispersiven Spektrometrie stößt insofern auf Schwierigkeiten, da man mit dem Halbleiterdetektor zwar ein relativ hochauflösendes Nachweisinstrument in der Hand hat, dessen Einsatz aber mit einem hohen apparativen Aufwand und vielen technischen Schwierigkeiten verbunden ist und mit dem Proportionalzählrohr (PZ) eine sehr einfache Detektor-variante besitzt, deren Anwendbarkeit aber durch das schlechtere Energieauflösungsvermögen stark eingeschränkt ist.

Hinsichtlich einer Verbesserung des Energieauflösungsvermögens der Gasdetektoren wurde von Pollicarpo u. Mitarb. [1] als erste ein auf der Basis der Gaslumineszenz arbeitender Röntgen-Detektor entwickelt. Dieser Proportional-Szintillations-Detektor (PS-D) zeichnet sich gegenüber dem PZ durch ein um etwa den Faktor 2 besseres Energieauflösungsvermögen aus und ist damit bezüglich dieses Parameters den Halbleiterdetektoren im ultraweichen Röntgen-Gebiet mindestens gleichwertig.

Wie schon viele ältere Arbeiten über Gasszintillatoren ganz allgemein gezeigt haben (vgl. Birks [2]), ist die Auswahl von Lumineszenzgasen hinsichtlich Art, Reinheit usw. recht kritisch. Es ist daher das Ziel dieser Arbeit, bezüglich dieser Gasbedingungen einen Beitrag zur optimalen Gasauswahl und zur Kenntnis der im Gas ablaufenden Energieübertragungen zu leisten.

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. G. Brunner, Zentralinstitut für Isotopen- und Strahlenforschung, Permoserstraße 15, DDR-705 Leipzig

2. Zur Problemstellung bei der Realisierung des Prinzips des PS-D

Die infolge des statistischen Charakters des Detektionsmechanismus in einem PS-D bedingte Linienvorbreiterung (bei Einstrahlung einer mono-energetischen Röntgenlinie) berechnet sich unter Verwendung einer Gleichung von Breitenberger [3] zu

$$V_{PS-D} = V_T + (1 + V_T) \left(\frac{F + V_P}{\bar{N}} - \frac{1}{\bar{N} \bar{P}} \right) + \frac{1 + V_M}{\bar{N} \bar{P} \bar{T}},$$

V_{PS-D} = relative Varianz der Impulshöhenverteilung,

\bar{N} = mittlere Anzahl der Ladungsträgerpaare pro Röntgen(X)-Quant,

F = Fano-Faktor,

\bar{T} = mittlere Überführungswahrscheinlichkeit von Photonen in Photoelektronen,

V_T = relative Varianz von \bar{T} ,

\bar{P} = Mittelwert des Lumineszenzverstärkungsfaktors,

V_P = relative Varianz von \bar{P} ,

V_M = relative Varianz des Verstärkungsprozesses im SEV,

d.h. neben der Realisierung großer Lichtüberführungsfaktoren T kommt es bei der Verwirklichung des Prinzips des PS-D vor allem darauf an, große Lumineszenzverstärkungsfaktoren P zu erzielen. Die hierfür relevanten Teilespekte sind der „Energieübertragungsprozeß“ und die „Lumineszenzausbeute“ im PS-D.



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.

2.1. Zum Energieübertragungsprozeß

Im PS-D, wie in anderen Gasdetektoren, überträgt jedes Primärelektron die von ihm beim Durchlauf einer Potentialdifferenz im Detektorfeld gewonnene kinetische Energie in Form von Anregungsenergie auf die Atome des Detektionsgases. Die Feldverhältnisse bzw. freien Weglängen werden so eingestellt, daß man mit Sicherheit unter der Ionisationsschwelle bleibt. Man erhält auf diese Weise pro X-Quant N optische Signale, wenn N die Anzahl der Primärelektronen bedeutet. Andresen u. Mitarb. [4], die die Zeitstruktur eines Xe-PS-D-Impulses untersuchten, konnten unter Verwendung schnellerer Verstärker den von einem X-Quant verursachten Impuls, der eine Länge von ca. 10^{-6} s hat, in Einzelimpulse auflösen, deren Anzahl tatsächlich mit der Zahl der pro-X-Quant erzeugten Primärelektronen korreliert. Die besondere Stellung der Edelgase im Hinblick auf den Energieübertragungsprozeß im PS-D erklärt sich vor allem daraus, daß die Übertragung von Energie auf ein Edelgas (durch Elektronenstoß) nahezu ausschließlich auf dem Wege der Anregung der Elektronenterme des Edelgasatoms geschieht. Im Gegensatz dazu wird von allen Molekülgasen infolge der Vielfalt an Rotations- und Schwingungsniveaus die Elektronentemperatur stark abgesenkt und damit ein erheblicher nicht detektierbarer Energieverlust bewirkt.

2.2. Zur Lumineszenzausbeute

Der Prozeß der Konvertierung der auf ein Edelgas übertragenen Anregungsenergie in optische Strahlung kann generell auf zwei Wegen erfolgen. Eine Möglichkeit besteht in der bekannten stufenweisen Abregung der höher angeregten Energieniveaus auf die untersten Anregungsniveaus. Im Verlaufe dieses Prozesses wird das für jede Atomart charakteristische Bogenlinienspektrum emittiert. Der andere Weg steht mit der speziell bei Edelgasen bekannten Bildung von im angeregten Zustand existenzfähigen Dimeren in Verbindung. Die bezüglich dieses Prozesses von Mulliken [5] berechneten Potentialkurven geben eine plausible Erklärung für die Existenz der im Vakuum UV-Gebiet emittierten Spektrumanteile. Nach Mulliken besitzen nur die in den vier untersten Niveaus angeregten Edelgasatome (1P_1 , 3P_0 , 3P_1 , 3P_2) Potentialkurven mit negativen Energiewerten, d.h. nur die in diesen Niveaus angeregten Atome sind befähigt, mit Atomen im Grundzustand Moleküle zu bilden. Prä-

destiniert sind dabei vor allem das 3P_1 - und 3P_2 -Niveau.

3. Detektor

Auf der Basis der oben erörterten Problemstellung wurde von uns ein PS-D (sphärischer Geometrie) aufgebaut (Abb. 1), der den entsprechenden An-

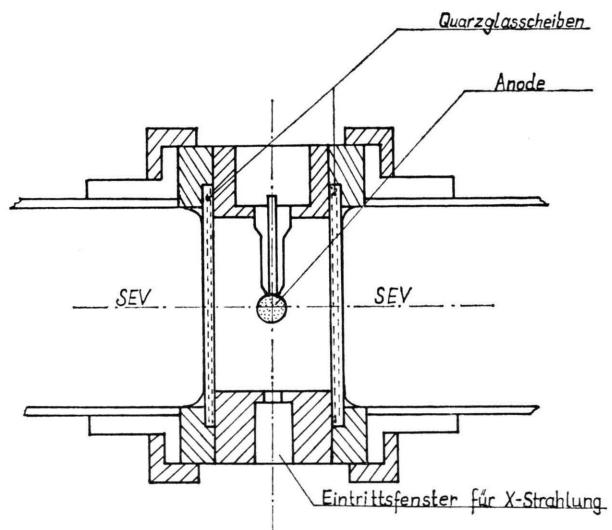


Abb. 1. Aufbau des Detektors.

forderungen Rechnung trägt. Um definierte Bedingungen bezüglich der Gasreinheit zu erhalten, wurde der Detektor in Zusammenhang mit einem Gaskreislauf betrieben, innerhalb dessen eine kontinuierliche Reinigung des Zählgases erfolgt. Die spektrometrische Leistungsfähigkeit dieses Detektors wird z.B. in Abb. 2 demonstriert. Hier ist die Impulshöhenverteilung der Bor-K-Linie (183 eV), erhalten durch Anregung eines Borsäuretargets mit einer Am-241 Alpha-Strahlen-Quelle, dargestellt. Das erzielte Auflösungsvermögen von 83 eV HWB wird von keinem derzeit handelsüblichen Halbleiterdetektor erreicht. Der Detektor wird mit Spannungen zwischen 3000 und 6000 V betrieben, so daß beim Energieübertragungsprozeß insgesamt einige keV pro Primärelektron auf das Detektionsgas überführt werden.

Infolge der Tatsache, daß ein wesentlicher Teil des Lumineszenzlichtes, vor allem der leichten Edelgase Kr und Ar, im UV- bzw. fernen UV-Gebiet liegt, werden Energietransportprozesse benutzt, um die Konvertierung der Anregungsenergie

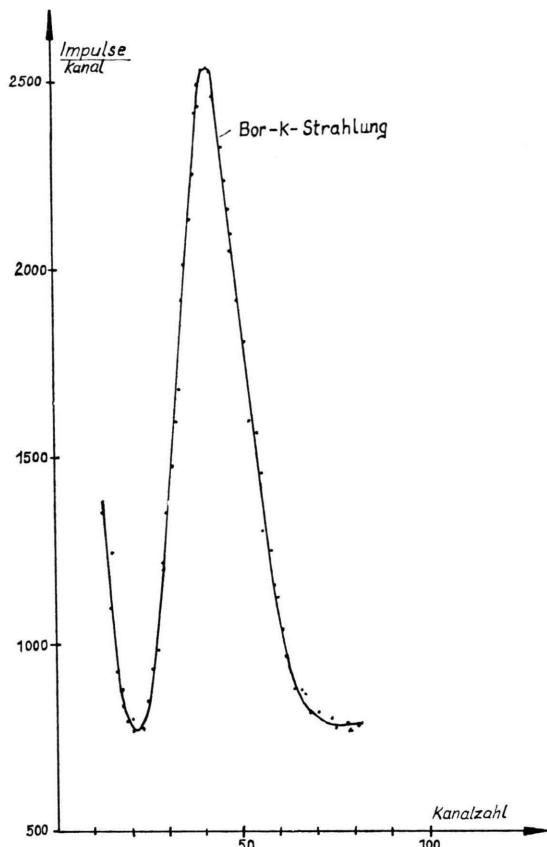


Abb. 2. Impulshöhenverteilung der Bor-K-Strahlung (Xe-PS-D, Anodendurchmesser 16 mm).

in optische Strahlung effektiver zu gestalten. Das Detektionsgas fungiert dann nur als Zwischenspeicher für die in optische Strahlung zu überführende Anregungsenergie. Der von Conde u. Mitarb. [6] ermittelte relativ hohe Wert von 200 eV für die Erzeugung eines Photons in einem Xe-PS-D muß in Übereinstimmung damit darauf zurückgeführt werden, daß auch noch ein bedeutender Anteil des Lumineszenzlichtes von Xe im fernen UV-Gebiet liegt.

4. Experimentelle Ergebnisse

4.1. Ar bzw. Ar/N₂ als Detektionsgas

Mit reinem Argon wird selbst bei maximaler Energieübertragung von ca. 6 keV pro Primärelektron keine auswertbare Lichtkomponente erhalten. Dies erklärt sich zum einen daraus, daß das Dimerenlicht bei 1080 Å und 2200 Å — also außerhalb des Empfindlichkeitsbereiches der eingesetzten

SEV-Typen — liegt und zum anderen aus der Abwesenheit eines effektiven Bogenlinienspektrums. Durch Einsatz eines Ar + 1% N₂-Gemisches konnte die Lumineszenzausbeute um einen Faktor 5 gesteigert werden. Teyssier u. Mitarb. [7] geben für ein derartiges Gemisch einen Energietransportprozeß von Ar (³P₂) auf die 2. positive Gruppe des Stickstoffs an. In Abb. 3 ist das für ein Ar + 1% N₂-Gemisch erhaltene Energieauflösungsvermögen als Funktion der Impulsgröße dargestellt. Bedingt

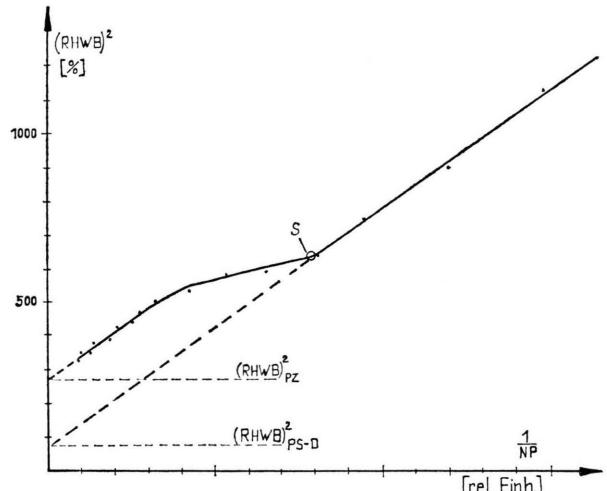
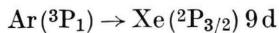


Abb. 3. Experimentell ermittelter Zusammenhang zwischen $(RHWB)^2$ und $\frac{1}{PN}$ für Ar + 1% N₂ (Anodendurchmesser 8 mm), Mn-K-Serie.

durch den N₂-Anteil steigt die Elektronentemperatur nur so langsam an, daß im Ar/N₂-Detektor sowohl das Arbeitsgebiet des PS-D als auch das des PZ überstrichen wird. Der Übergang vom PS-D zum PZ-Bereich erfolgt bei ca. 24% RHWB, also noch oberhalb der typischen Werte für ein PZ. Eine Verschiebung des Übergangspunktes „S“ zu kleinen Werten für die RHWB kann nur noch durch Anstrengungen seitens des Energieübertragungsprozesses erreicht werden. Die Realisierung des Prinzips des PS-D mit Ar/N₂-Gemischen ist demzufolge nur mittels sehr großer Detektoren möglich, da im Energieübertragungsprozeß ca. 30 bis 40 keV pro Primärelektron auf das Detektionsgas unter der Nebenbedingung überführt werden müssen, daß die reduzierte Feldstärke im Detektor einen Wert von 10 V/cm Torr nicht übersteigt. Ansonsten würde wiederum Ladungsvervielfachung einsetzen und damit der PS-D-Bereich verlassen.

4.2. Ar/Xe als Detektionsgas

Eine wesentlich größere Effektivität für die Konvertierung der auf Argon übertragenen Anregungsenergie in optische Strahlung erfolgt in einem Ar/Xe-Gemisch. Bourene und Calve [8] geben hierfür einen Energietransportprozeß der Art



an.

Mittels eines Ar + 5% Xe-Gemisches konnte im PS-D eine gegenüber reinem Argon um den Faktor 20 größere Lumineszenzausbeute erhalten werden.

In Abb. 4 ist der entsprechende funktionelle Zusammenhang zwischen $(\text{RHWB})^2$ und $1/\bar{N}P$ dargestellt. Es wird ein Auflösungsvermögen erhalten, das dem theoretischen Wert für einen PS-D nahe kommt und bereits deutlich unterhalb der typischen Werte eines PZ liegt. Im Gegensatz zum Ar/N₂-Gemisch findet hier, wie erwartet, kein Übergang zum PZ-Bereich statt — unmittelbar nach Verlassen des PS-D-Bereiches treten Hochspannungsüberschläge auf.

Ein den Energieübertragungsmechanismus betreffender interessanter Aspekt ergibt sich durch Vergleich der Charakteristika von Ar und Ar/Xe

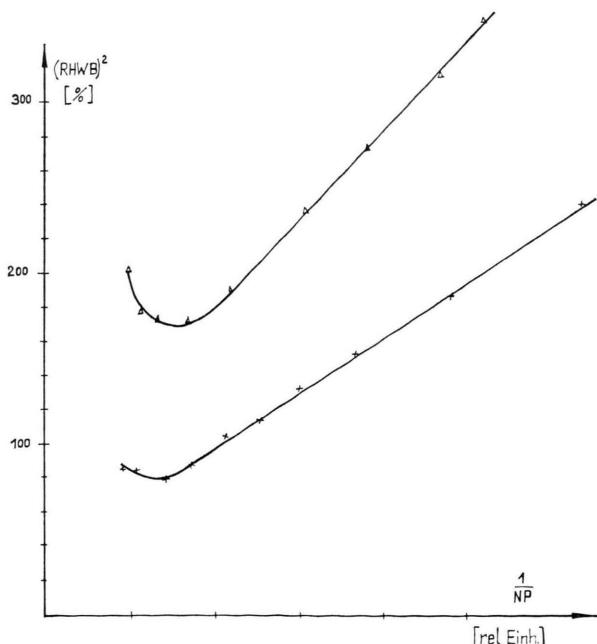


Abb. 4. Experimentell ermittelter Zusammenhang zwischen $(\text{RHWB})^2$ und $1/\bar{N}P$: (△△△) Anodendurchmesser 8 mm (×××) Anodendurchmesser 16 mm, Mn-K-Serie.

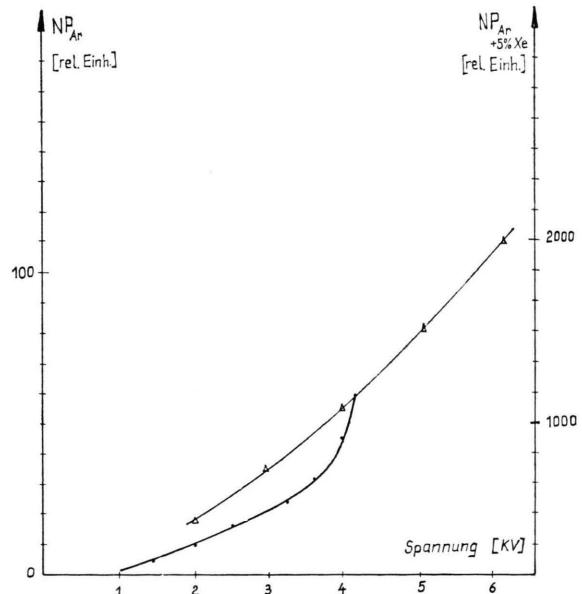


Abb. 5. PS-D Charakteristik: (△△△) Argon reinst, (.....) Ar + 5% Xe.

(Abbildung 5). Im Ar/Xe-Detektor wird demnach der PS-D-Bereich (linearer Teil der Charakteristik) wesentlich früher verlassen als im Ar-Detektor. Grund hierfür ist das relativ niedrige Ionisationspotential von Xe ($I_{\text{Xe}} = 12,1$ eV). Mittels des Xe-Anteiles ist es somit möglich, das Energiespektrum der anregenden Elektronen nach oben hin zu kontrollieren und Aufschluß zu erhalten über die am Energieübertragungsprozeß beteiligten Elektronenterme. Wegen $I_{\text{Xe}} = 12,1$ eV folgt hieraus, daß im Ar/Xe-Detektor nur die vier untersten Anregungsterme am Energieübertragungsprozeß beteiligt sein können (sie liegen bei ca. 11,6 eV).

Die in Abb. 5 gleichzeitig eingetragene Ar-Charakteristik sagt darüber hinaus aus, daß mit Erhöhung der Elektronentemperatur im Ar-Detektor keine effektive Anregung des Bogenlinienspektrums von Argon stattfindet.

Aus den oben erörterten Besonderheiten beim Energieübertragungsmechanismus in einem Ar/Xe-Gemisch folgt, daß in diesen Detektoren die reduzierte Feldstärke einen Wert von ca. 7 V/cm Torr nicht übersteigen darf, was auf die Forderung großer Detektorabmessungen hinausläuft. Wegen der hohen Lumineszenzausbeute eines Ar + 5% Xe-Gemisches reicht aber bereits die durch den Einsatz einer Anode von 16 mm Ø bedingte Verringerung der Feldinhomogenität aus, um hinreichend große

Lumineszenzverstärkungsfaktoren im PS-D-Bereich zu erzielen (Abbildung 4).

4.3. Kr bzw. Kr/Xe als Detektionsgas

Das von Kr emittierte Dimerenlicht liegt teilweise im Empfindlichkeitsbereich der eingesetzten SEV-Typen, so daß bereits mittels reinem Kr eine auswertbare Lichtkomponente erhalten wird. Im Gegensatz zum Ar wird für Kr eine bemerkenswerte Druckabhängigkeit der Lumineszenzausbeute beobachtet (Abbildung 6). Bei Erhöhung des Druckes von 0,7 auf 3 atü im PS-D steigt die Lumineszenzausbeute ca. um den Faktor 3 an. Dieser Sachverhalt ist nur über den Molekülbildungsmechanismus in Edelgasen erklärlich (die Wahrscheinlichkeit der für die Molekülbildung erforderlichen Dreierstöße nimmt bekanntlich $\sim p^2$ zu), d.h. auch für Kr ergibt sich demnach kein Hinweis für eine Beteiligung des Bogenlinienspektrums am Detektionsmechanismus im PS-D.

Gänzlich anders verläuft die Druckabhängigkeit der Lumineszenzausbeute in einem Kr + 10% Xe-Gemisch (Abbildung 6). Es wird hier der infolge Stoßlöschung erwartete Abfall der Lumineszenzausbeute mit steigendem Druck erhalten. Gleichzeitig wurde in diesem Gemisch ein Energietransport beobachtet, der in einer Erhöhung der Lumineszenzausbeute um einen Faktor 6–7 gegenüber reinem Krypton (2000 Torr) zum Ausdruck kommt. Die beobachtete Druckabhängigkeit der Lumineszenzausbeute des Kr/Xe-Gemisches sagt dabei aus, daß der Ausgangspunkt des stattfindenden Energietransportes nicht die Kr-Dimere sein können, sondern deren Vorstufen, die in den vier untersten Niveaus angeregten Atome. Dies steht in Einklang mit dem von Gedanken [9] in einem Kr + 0,1% Xe nachgewiesenen Atom-Atom-Energietransport von Kr

(3P_1) auf Xe (${}^5p^5{}^5d$), für den ein Wirkungsquerschnitt von 10^{-15} cm^2 angegeben wird. Eine weitere über die durch den Energietransport von Kr (3P_1) auf Xe (bzw. Kr₂) hinaus bedingte Steigerung der Lumineszenzausbeute durch Erhöhung der Elektronentemperatur im Detektor wurde nicht beobachtet, so daß auch hier wieder geschlußfolgert werden kann, daß am Energieübertragungsprozeß im PS-D im wesentlichen nur die vier untersten Elektronenterme beteiligt sind. Im Gegensatz zu Krypton, wo man infolge der speziellen Druckabhängigkeit der Lumineszenzausbeute nur für sehr hohe Drucke eine hinreichend große Lumineszenzausbeute erhält, kann für ein Kr + 10% Xe-Gemisch das Prinzip des PS-D auch in dem praktisch interessanten Druckbereich $\leq 800 \text{ Torr}$ realisiert werden.

5. Zur Interpretation der Meßergebnisse

Wie die experimentellen Ergebnisse mit Ar, Ar/Xe, Kr und Kr/Xe zeigen, sind am Lumineszenzmechanismus im PS-D nur die vier untersten Anregungsniveaus der Edelgasatome beteiligt. Auch die mit Xe aufgenommene Charakteristik zeigt keine Abhängigkeit des Lumineszenzmechanismus von der Meßkammerspannung an. Sie weicht bis zur Durchbruchspannung nur unwesentlich von einer Geraden ab und ihre Krümmung ist sogar geringer als die der Ar und Kr-Charakteristik, obwohl Xe bekanntlich das intensivste Bogenlinienspektrum der Edelgase besitzt. Eine Teilnahme des Bogenlinienspektrums im PS-D ist somit nicht anzunehmen. Unter den speziellen Anregungsbedingungen im PS-D ($E_{\text{kin}} \sim 10 \text{ eV}$) verläuft der Energieübertragungsprozeß demnach so, als ob mit Quantenstrahlung angeregt würde (der innere Drehimpulszustand des Atoms ändert sich lediglich um $\Delta l = 1$). Eine Erklärung dafür, daß Energieübertragung mit großen Drehimpulsanteilen unwahrscheinlich ist, liefert bereits eine einfache quantenmechanische Betrachtung des Energieübertragungsprozesses im PS-D. Das einfallende Elektron wird dabei als ebene Welle beschrieben, die sich bekanntlich nach Kugelwellen mit verschiedenen Drehimpulsanteilen entwickeln läßt. Eine halbklassische Betrachtung dieses Problems zeigt, daß jene Wellenanteile, die nicht-optische Anregung induzieren können, im Vergleich zur p-Welle, die optisch anregt ($\Delta l = 1$), nur mit vernachlässigbarer Amplitude über dem Gebiet, wo

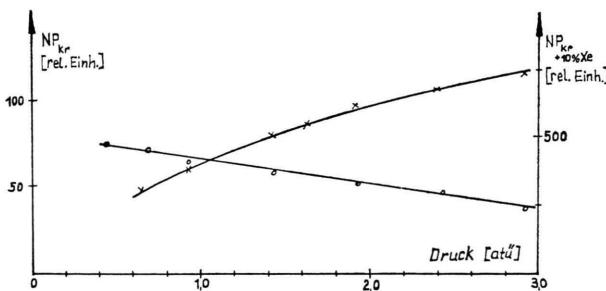


Abb. 6. Abhängigkeit der Lumineszenzausbeute vom Gasdruck im PS-D. (x-x-x) Krypton reinst (o-o-o) Kr + 10% Xe.

die äußeren p-Elektronen der Edelgase lokalisiert sind, auftreten. Es erscheint somit plausibel, daß unter den Anregungsbedingungen im PS-D der Energieübertragungsmechanismus bevorzugt über die Resonanzniveaus (3P_1 , 1P_1) erfolgt. Durch Stöße der in den Resonanzniveaus angeregten Edelgasatome mit anderen Atomen werden dann die energetisch dicht darunter liegenden metastabilen Niveaus (3P_2 , 3P_0) bevölkert (vgl. Teyssier u. Mitarb. [7]), so daß nach diesen Betrachtungen in der Tat die vier untersten Anregungs niveaus der Edelgasatome das eigentliche Energiereservoir bezüglich der optischen Ereignisse im PS-D darstellen.

Da die Niveaus 3P_2 , 3P_1 , 3P_0 , 1P_1 gleichzeitig die untersten Anregungs niveaus der Edelgasatome sind, ist für alle Edelgase gleichermaßen eine hohe Effektivität für den Energieübertragungsprozeß gewährleistet. Dagegen bestehen, wie die experimentellen Ergebnisse belegen, bedeutende Unterschiede bezüglich der Konvertierung dieser Anregungsenergien in optische Strahlung. Hinsichtlich einer energetisch gezielten Anregung dieser für den Lumineszenzmechanismus relevanten Niveaus eignen sich besonders die in der letzten Zeit von Palmer [10] und anderen konzipierten Detektoren, die mit einem homogenen Anregungsfeld arbeiten.

- [1] A. J. P. L. Policarpo u. Mitarb., Nucl. Instr. Meth. **102**, No. 2, 337 (1972).
- [2] I. B. Birks, The Theory and Practice of Szintillation Counting, Oxford, Pergamon Press 1964.
- [3] E. Breitenberger, Progr. Nucl. Phys. **4**, 56 (1955).
- [4] R. D. Andresen u. Mitarb., Nucl. Instr. Meth. **134**, 25 (1967).
- [5] R. S. Mulliken, J. Chem. Phys. **52**, 5170 (1970).
- [6] C. A. N. Conde u. Mitarb., IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. NS-24, **1**, 221 (1977).
- [7] J. L. Teyssier u. Mitarb., J. Physique **28**, 427 (1967).
- [8] M. Bouréne and J. Le Calvé, J. Chem. Phys. **58**, No. 4, 1452 (1973).
- [9] A. Gedanken u. Mitarb., J. Chem. Phys. **57**, No. 8, 3456 (1972).
- [10] H. E. Palmer, IEEE Trans. Nucl. Sci. **22**, Nr. 1, 100 (1975).