| Zeitschrift: | Helvetica Physica Acta |
|--------------|---|
| Band: | 50 (1977) |
| Heft: | 1 |
| Artikel: | Untersuchungen zur Bildung von Tracks in Kristaller |
| Autor: | Sigrist, A. / Balzer, R. |
| DOI: | https://doi.org/10.5169/seals-114847 |

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. <u>Mehr erfahren</u>

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. <u>En savoir plus</u>

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. <u>Find out more</u>

Download PDF: 08.08.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

Untersuchungen zur Bildung von Tracks in Kristallen

von A. Sigrist und R. Balzer

Laboratorium für Kernphysik, ETH, 8093 Zürich

(28. V. 1976)

Abstract. The minimal energy loss $(dE/d\xi)_k$ [MeV \cdot cm² \cdot mg⁻¹] for the formation of a track in an insulator has been determined for mica, tourmaline, quartz glass, quartz crystal, lithium niobate and beryl. The investigations show that the $(dE/d\xi)_k$ -value of a track detector can be roughly estimated from the thermal conductivity of the given material.

1. Einleitung

Festkörperspurdetektoren (solid state nuclear track detectors) – kurz Trackdetektoren genannt – werden zum Nachweis von schweren geladenen Teilchen gebraucht. Jeder Trackdetektor besitzt eine materialabhängige Schwelle für den Teilchennachweis. Diese Ansprechschwelle entspricht einer minimalen Energiedichte, die vom einfallenden Teilchen im Detektormaterial erzeugt werden muss; sie wird im folgenden als kritische spezifische Energiedichte $(dE/d\xi)_k$ bezeichnet. Nur ein Teilchen, dessen spezifischer Energieverlust grösser als $(dE/d\xi)_k$ ist, wird vom Trackdetektor registriert. Längs der Teilchenbahn im Detektor entsteht ein sogenannter Track, der durch Aetzen zu einer mikroskopisch sichtbaren Spur entwickelt werden kann. Die Schwelle $(dE/d\xi)_k$ ist für einen einzelnen homogenen Trackdetektor scharf definiert und die Registrierfähigkeit sinkt in einem engen Bereich von 1 auf 0. Materialien, die sich als Trackdetektoren eignen, sind Kristalle, Gläser und Plasten. Für Kristalle z.B. ist $(dE/d\xi)_k$ von der Grössenordnung von 20 MeV/(mg/cm²); als trackbildende Teilchen kommen deshalb Ionen mit $Z \ge 17$ und vor allem Spaltfragmente in Frage.

Es ist versucht worden Modelle zu entwickeln (Fleischer *et al.* [1] und Blanc [2]), welche die Trackbildung erklären sollten. Einerseits wird die Entstehung eines Tracks auf die elektrostatische Abstossung der vom einfallenden Teilchen ionisierten Gitteratome zurückgeführt, andrerseits auf Kaskadenprozesse, die auf Stösse mit den Gitteratomen oder Hüllenelektronen folgen. Diese Modelle machen zwar verständlich, dass Tracks in Isolatoren und nicht in Metallen gebildet werden, sie erlauben aber nicht die Beschreibung folgender experimenteller Tatsachen:

- In dünnen Metallschichten (Kelsch *et al.* [3]) und gewissen Halbleitern (Morgan & van Vliet [4]) sind Tracks nachgewiesen worden.

- In den Isolatoren Saphir und Spinell konnten mit Spaltfragmenten keine Tracks erzeugt werden (Perelygin & Shadieva [5], Balzer & Sigrist [6]).

- Verschiedene Materialien weisen recht unterschiedliche Nachweisschwellen $(dE/d\xi)_k$ auf.

Es sei an dieser Stelle besonders darauf hingewiesen, dass in den bisher publizierten Arbeiten weder die Frage nach Grössen und Ursache der Schwelle $(dE/d\xi)_k$ gestellt noch das Problem der Schärfe der Diskriminierung von Ionen mit unterschiedlichem $dE/d\xi$ erörtert worden ist. Dabei ist es doch unerlässlich, die Nachweisgrenze und die damit verbundenen Bedingungen genau zu kennen, sofern man Trackdetektoren bei anspruchsvolleren Experimenten einsetzen oder die Vorgänge bei der Trackbildung beschreiben will.

2. Grundlagen

Der Wunsch, ein einfaches Modell über den Trackbildungsmechanismus aufzubauen, mit dem der Wert $(dE/d\xi)_k$ eines Materials grob abgeschätzt werden kann, führte zu den folgenden Ueberlegungen: Wenn ein Teilchen, gleich welcher Art, in einen Festkörper eindringt, entstehen Strahlenschäden. Modelle über durch Elektronen und Neutronen erzeugte Strahlenschäden (Seitz & Koehler [7]) lassen sich nicht für schwere Ionen verwenden, da deren Energieverluste längs der Teilchenbahnen um Grössenordnungen höher sind: Ein Spaltfragment mit 100 MeV Energie gibt im Mittel einen Energiebetrag von 10^3 eV pro Å an den Festkörper ab, ein Elektron von 5 MeV verliert nur etwa $5 \cdot 10^{-2}$ eV pro Å. Diese grosse, in etwa 10^{-13} s an den Festkörper abgegebene Energiemenge bewirkt eine lokal extrem hohe Energiedichte. Wenn diese – anfänglich auf ein kleines Zylindervolumen von wenigen Å Radius konzentrierte – Energie nicht genügend rasch über die Umgebung verteilt wird, ist die Strukturänderung im Material so gross, dass ein Track entsteht. Auf Grund elektronenmikroskopischer Untersuchungen von Silk & Barnes [8] wird als Durchmesser eines Spaltfragmenttracks 50-100 Å angenommen. Mit andern Worten ausgedrückt bedeutet dies, dass das Produkt $P = \Delta e \cdot \Delta t$ – pro Längeneinheit vom Gitter aufgenommene Energie multipliziert mit einer für Wechselwirkungsprozesse im Detektormaterial charakteristischen Zeit – einen gewissen Wert P_0 überschreiten muss, damit ein ätzbarer Track gebildet wird. Es ist jedoch sehr schwierig, die willkürlich gewählte Grösse $P_0 = \Delta e_0 \cdot \Delta t_0$ genau zu erfassen: Δe_0 dürfte von der mittleren Bindungsenergie eines Atoms in Detektormaterial abhängen und Δt_0 wird vom Wert $\Delta t_0 = \hbar/(k_B \cdot \theta)$ bestimmt sein. Da für die untersuchten Trackdetektoren die Bindungsenergien und die Debyetemperaturen θ nicht bekannt sind, aber auch nicht allzu verschieden sein sollten, darf in grober Näherung Po als materialunabhängige Grösse betrachtet werden. Mit diesem Annahmen wird die Entstehung eines Tracks auf ein Transportphänomen zurückgeführt: Kann sich die vom Festkörper aufgenommene Energie rasch ausbreiten, so erreicht P den Wert P_0 nicht; ist der Energietransport langsamer, so wird P grösser als P_0 und ein Track kann nachgewiesen werden. Als weitere Näherung wird angenommen, dass der Energietransport durch die Wärmeleitzahl, resp. thermische Diffusivität, gegeben ist. Dieses Postulat ist natürlich problematisch, da eine makroskopisch geltende Grösse auf einen mikroskopischen Effekt angewendet wird. Ein Vergleich der Nachweisgrenze $(dE/d\xi)_k$ mit der Wärmeleitzahl bei verschiedenen Trackdetektoren zeigt aber, dass obige Vorstellungen qualitativ richtig sein könnten. Es wird auch leicht verständlich, dass in Metallen keine Tracks gefunden werden, da der Abbau des Energiedichtepoles durch die grosse Zahl der Leitungselektronen sehr schnell geschieht. In dünnen Metallschichten mit nur schwach zusammenhängenden Kristalliten - und deshalb wesentlich kleinerer elektrischer Leitfähigkeit – sind dagegen von Kelsch et al. [3] Tracks nachgewiesen worden. Aehnliche Verhältnisse liegen in Halbleitern vor: Es sind von Morgan & van Vliet [4] Tracks beobachtet worden in den Fällen, wo die elektrische Leitfähigkeit unter $10^4 \Omega \cdot m$ sinkt. In Isolatoren wird der Energietransport in Ermangelung freier Elektronen vom Gitter übernommen und ist im allgemeinen viel geringer als in Metallen: Die Bedingungen zur Bildung eines Tracks sind meistens erfüllt. Die Unterschiede in der thermischen Leitfähigkeit, d.h. der Fähigkeit des Gitters, Energie zu transportieren, sind aber unter den Isolatoren ganz beträchtlich: Glimmer als typischer Trackdetektor hat eine Wärmeleitzahl von $4 \cdot 10^{-3}$ W/(cm·K) bei Zimmertemperatur, während Saphir eine solche von $5 \cdot 10^{-1}$ W/(cm·K) aufweist. In diesem Material sind bisher keine Tracks gefunden worden. Die vorliegende Arbeit befasste sich deshalb mit der genaueren Messung von $(dE/d\xi)_k$ für einige ausgewählte Detektormaterialien. Die Absicht lag darin, einerseits Trackdetektoren mit stark verschiedenen, aber wohlbekannten Ansprechschwellen zu finden und anderseits Daten zur Ueberprüfung des skizzierten Modelles der Trackbildung zu erhalten.

3. Experimente

Die Messungen wurden mit dem EN-Tandem-Van-de-Graaff-Beschleuniger am Laboratorium für Kernphysik der ETH Zürich ausgeführt. Mit schweren monoenergetischen Ionen (Chlor, Nickel und Iod) und mit Spaltfragmenten (spontane Spaltung von Californium und protoneninduzierte Spaltung von Thorium) liess sich das Ansprechvermögen von verschiedenen Trackdetektoren ermitteln. Das für die $(dE/d\xi)_k$ -Bestimmung gewählte Messverfahren sei kurz erläutert: Falls die Energie eines Teilchens gegeben ist, ist auch der Energieverlust im betreffenden Material bekannt und zeigt den in Figur 1 gezeichneten Verlauf. Die Schwelle $(dE/d\xi)_k$ eines Trackdetektors ist derjenige Energieverlust $dE/d\xi$, bei dem keine Tracks mehr auftreten. Um diesen zu finden, wurden die Energien der einfallenden Ionen variiert.



Figur 1

Energieverlust $dE/d\xi$ für verschiedene Ionen in Aluminium als Funktion der Energie. Die Werte sind den Tabellen von Northcliffe & Schilling [9] entnommen.

Als Fehlerquellen für $(dE/d\xi)_k$ kommen nur die Energieunschärfe der trackbildenden Ionen und die Berechnung des Energieverlustes für das Detektormaterial aus den tabellierten Werten in Frage. Pro Kristallprobe ist der relative Fehler für $(dE/d\xi)_k$ nicht grösser als 5%.

Die allgemeine Messanordnung bei den Trackdetektoruntersuchungen ist in Figur 2 skizziert.



Figur 2 Schematische Uebersicht über die Messanordnung.

Als Ionenstrahlen wurden

 $^{35}Cl (Strom \sim 50 nA)$ $^{58}Ni (Strom \sim 100 nA)$ $^{127}I (Strom \sim 20 nA)$

mit Energien zwischen 10 MeV und 40 MeV gewählt.

Die Intensitäten waren so gross, dass die Kristalle durch eine direkte Bestrahlung zerstört wurden. Deshalb benützte man die in einem Winkel von 20° zur Strahlachse elastisch gestreuten Ionen, als Streuzentrum diente eine Goldfolie von 150 μ g/cm² oder 300 μ g/cm² Dicke. Der vom Trackdetektor bedeckte Raumwinkel war 5 \cdot 10⁻⁵ sr, um die Energieverschmierung der trackbildenden Ionen möglichst klein zu halten. Kristalloberfläche und Einfallsrichtung der Teilchen bildeten einen 45° Winkel. Auf diese Weise entstanden längliche Tracks, die bedeutend besser zu identifizieren sind als diejenigen von senkrecht einfallenden Ionen. Die für die Beobachtung ideale Trackdichte liegt zwischen 10⁵ und 10⁶ Tracks pro cm²; sie wurde mit einem Halbleiterdetektor kontrolliert, der die elastisch gestreuten Ionen unter einem kleinen Winkel in Vorwärtsrichtung registrierte.

Vor dem Kristall befand sich eine 1 mm breite, drehbare Schlitzblende, so waren pro Detektorprobe etwa 6 Bestrahlungen mit verschiedenen Energien möglich. Bei den Messungen mit den Spaltfragmenten legte man direkt auf die Kristalle unterschiedlich dicke Aluminiumabsorber, um die Energien abzustufen. Eine Bestrahlung dauerte im Mittel nur einige Minuten, innerhalb von 24 Stunden nach dem Experiment wurden die Kristalle geätzt und ausgewertet. Als Trackdetektormaterialien dienten für die Untersuchungen mehrere anorganische Kristalle und eine Glasart:

Natürliche Mineralien - Glimmer, Turmalin und Beryll.

Synthetische Kristalle – Lithiumniobat, Spinell, Fluorit, Saphir, Lithiumfluorid, Natriumchlorid und Quarzkristall.

Glas – Quarzglas (homosile und ultrasile Qualität).

Auf Plastikdetektoren wurde aus folgenden Gründen verzichtet: Plasten sind organische Polymerisate und Bestrahlungen mit schweren Ionen bewirken strukturelle und chemische Veränderungen. Dabei überwiegen die chemischen Probleme und drängen die physikalischen in den Hintergrund. Weiter sind Plastikdetektoren im Gegensatz zu Glas- und Kristalldetektoren sehr empfindlich auf Trackfading. (Unter Trackfading versteht man das Ausheilen des ursprünglichen Tracks mit der Zeit in Abhängigkeit von Temperatur und anderen Umweltseinflüssen.)

Die Wahl der Trackdetektoren wurde durch die folgenden Forderungen stark eingeschränkt:

- Ein Aetzverfahren, um die Tracks zu entwickeln, sollte bekannt sein.

- Es werden einwandfreie Oberflächen benötigt, um die Spuren gut identifizieren zu können.
- Nur bei durchsichtigen Materialien lassen sich die Spuren in einfacher Weise mit einem Mikroskop nachweisen.
- Reproduzierbare Resultate sind nur zu erwarten, falls genügend Materialproben zur Verfügung stehen.

Wohlbekannte chemische Zusammensetzungen, thermische und weitere physikalische Grössen sind notwendig, um eventuelle Aussagen über den Mechanismus der Trackbildung machen zu können.

Die Kristalle waren etwa 1 cm² gross und 0,5–1,5 mm dick. Da der optischen Auswertung grosse Bedeutung zukommt, sollten die Trackdetektoren eine möglichst fehlerlose Oberfläche aufweisen. Günstig sind solche Kristalle, die wie Glimmer gespalten und direkt bestrahlt werden können. Andernfalls müssen die Kristallstücke mit einer Diamantscheibensäge oder besser mit einer Drahtsäge geschnitten, nachher geschliffen und poliert werden, bis sie vollständig kratzerfrei sind. Polierpasten mit Diamantsplittern von 20, 9, 1 und $\frac{1}{4} \mu$ Korngrösse ergeben die besten Oberflächen, als Polierunterlagen dienen Zinnscheiben und für die feinsten Polituren Kunstleder. Einmal bestrahlte und geätzte Kristalle lassen sich wieder benützen, wenn die Detektionsoberfläche genügend abgeschliffen wird.

Der ursprüngliche Track ist auf ein relativ scharf begrenztes, zylinderförmiges Volumen mit einem Durchmesser von 50–100 Å und einer Länge, die kleiner oder gleich der Teilchenreichweite ist, beschränkt. Für die Trackbeobachtung sind Elektronenmikroskope nicht sehr gut geeignet, da der Elektronenstrahl die Proben erwärmt und damit die Tracks ausheilen kann. Weiter sollten dünne Schichten oder geeignet präparierte Oberflächenabzüge vorhanden sein, die bei den üblichen Trackdetektoren kaum hergestellt werden können. Man ist auf eine Vergrösserung der ursprünglichen Tracks angewiesen, um sie in einem Lichtmikroskop sichtbar zu machen. Die Tracks lassen sich durch chemische Behandlung mit Säuren oder Basen zu gut identifizierbaren Aetzspuren entwickeln, da das Aetzmittel in den submikroskopischen Track eindringen kann. Für die mikroskopische Auswertung der geätzten Kristalle wurde je nach Bedarf ein Auflicht- oder ein Durchsichtmikroskop mit Polarisations-, Phasenkontrast- und Dunkelfeldeinrichtungen verwendet, die Vergrösserungen lagen zwischen 60 und 600. Es erfordert einige Uebung, um einzelne Tracks von den Kristallfehlern zu unterscheiden. Besonders im Gebiet der Nachweisgrenze $(dE/d\xi)_k$ ist die Identifikation der kurzen und schwachen Tracks nicht immer eindeutig und natürlich mit einer gewissen Subjektivität verbunden. Für die $(dE/d\xi)_k$ -Bestimmung wurde deshalb eine Trackdichte gewählt, bei der die Bestrahlungsstreifen schon von blossem Auge als matte Bereiche auf dem Kristall zu erkennen waren. Dazu mussten die Tracks aber auch als Einzelereignisse sichtbar sein. Die Beobachtung der Tracks in einem Lichtmikroskop setzt eine geeignete und reproduzierbare Aetzung voraus. Die grundlegende Schwierigkeit bei diesem Verfahren liegt allerdings darin, dass nicht abgeklärt werden kann, ob das Teilchen einen Track erzeugt hat, der aber wegen der Aetzverhältnisse im Material nicht zu einer sichtbaren Spur entwickelt wird, oder ob überhaupt kein Track vorhanden war.

In Tabelle 1 sind diejenigen Trackdetektormaterialien, bei denen Tracks eindeutig nachgewiesen werden konnten, und ihre Aetzmethoden aufgeführt.

| Material | Aetzflüssigkeit | Aetzdauer [min] | Aetztemperatur [°C] | |
|---------------|--|--------------------|------------------------|--|
| Glimmer | 40% Flusssäure | 20 | 20 | |
| Turmalin | 5 m Kalilauge | 20 | 220 | |
| Beryll | 5 m Kalilauge | 450 | 150 | |
| Lithiumniobat | 3 g KHF ₂ in 30 ml HNO ₃ | 15 | 100 | |
| Quarzkristall | 6 m Natronlauge | 90 | 160 | |
| Quarzglas | 40% Flusssäure | 5 | 20 | |

Tabelle 1 Trackdetektoren und ihre Aetzmethoden

4. Resultate

Glimmer ist der in der vorliegenden Arbeit untersuchte Trackdetektor mit der niedrigsten Nachweisgrenze $(dE/d\xi)_k$, d.h. mit der grössten Empfindlichkeit. Die Proben zeichnen sich durch problemlose Präparation (Spaltung) und Aetzung aus. Vor dem Gebrauch müssen sie allerdings während einer Stunde bei 600° ausgeheizt werden, um den natürlich vorhandenen Untergrund von Spaltfragmenttracks auszuheilen (Glimmer enthält kleine Mengen Uran). Glimmer ergab sehr gut reproduzierbare Resultate und diente deshalb als Kontrollmaterial für alle Messungen mit noch unbekannten Trackdetektormaterialien. Jedoch ist Glimmer nicht zur Identifikation von einzelnen Tracks geeignet; die Tracks sind sehr schlecht zu finden, ausser wenn die Teilchen unter einem relativ flachen Winkel zur Oberfläche einfallen (Figur 3).



Figur 3 Geätzte Tracks von Spaltfragmenten in Glimmer (Einfallswinkel 45° zur Oberfläche).

Turmalin ist ein natürlicher Kristall mit komplizierter chemischer Zusammensetzung. Der zur Verfügung stehende Turmalin war sehr uneinheitlich im Kristallwachstum und wies häufige Versetzungen auf. Es wurden deshalb nur wenige Proben untersucht. Da Turmalin ein piezo- und pyroelektrischer Kristall ist, treten je nach Polarisation an der Oberfläche Ladungen auf, welche die chemischen Reaktionen bei der Aetzung stark beeinflussen. Eine Oberfläche, die beim Erwärmen des Kristalls negative Ladung zeigt, wird von der Aetzflüssigkeit so angegriffen, dass Tracks nicht mehr beobachtet werden können.

Lithiumniobat ist ein synthetischer Kristall mit gut bekannten festkörperphysikalischen Eigenschaften. Da Lithiumniobat ein piezoelektrischer Kristall ist, zeigt er das gleiche Aetzverhalten wie Turmalin. Erschwerend wirkt sich auf die Beobachtung der Tracks aus, dass nicht eine ganze Detektoroberfläche gleich polarisiert ist, sondern dass pro Oberfläche beide Ladungen in beliebig geformten Domänen auftreten (Figur 4). Dadurch sind die Kristalle zum grossen Teil als Trackdetektoren unbrauchbar.



Figur 4

Unbestrahltes und geätztes Gebiet in Lithiumniobat. Die Aetzbarkeit der beim Wachsen entstandenen Domänen bestimmt die Sichtbarmachung der Tracks. Nur im Bereich auf der rechten Seite können Tracks gefunden werden.

Beryll ist ein natürliches Mineral, das eine hohe Nachweisgrenze besitzt. Nur Ionen, die schwerer als Chlor sind, hinterlassen Tracks. Da diese sehr scharf begrenzt und gut erkennbar sind, ist Beryll ein günstiges Detektormaterial (Figur 5).

Quarzglas und Quarzkristall weisen erstaunlicherweise nicht die gleiche Nachweisfähigkeit auf, obwohl die chemische Zusammensetzung für beide identisch ist. Die Schwelle $(dE/d\xi)_k$ für Quarzkristall scheint höher als diejenige für Quarzglas zu sein. Dieses Resultat würde mit dem vermuteten Zusammenhang zwischen Nachweisgrenze und Wärmeleitzahl übereinstimmen, da Quarzkristall die bessere Wärmeleitfähigkeit besitzt.

Beide Materialien eignen sich gut als Trackdetektoren, zudem lassen sich mit Quarzkristall einzelne Tracks ausserordentlich gut identifizieren (Figur 6). Bei Quarzkristall ist zu beachten, dass nur auf Oberflächen, die parallel zur optischen Achse orientiert sind, Tracks sichtbar gemacht werden können (Figur 7).

Bei den übrigen Kristallen Saphir, Spinell, Fluorit, Natriumchlorid und Lithiumfluorid konnten keine Tracks gefunden werden.



Figur 5 Geätzte Spaltfragmenttracks in Beryll (Einfallswinkel 45°).



Figur 6 Geätzte Tracks von senkrecht einfallenden Spaltfragmenten in Quarzkristall (anisotropes Medium).

Zusammenfassend sind in Tabelle 2 die Nachweisgrenzen $(dE/d\xi)_k$ derjenigen Materialien angegeben, bei welchen sich Tracks entwickeln liessen.

Figur 8 illustriert diesen Sachverhalt für Quarzkristall, Figuren 9 und 10 zeigen ihn für Quarzglas. In allen drei Darstellungen ist als Abszisse die Grösse der Schwelle der Trackdetektoren $[\equiv (dE/d\xi)_k]$ aufgetragen; als Ordinate die Anzahl Track-



Figur 7

Unbestrahltes und geätztes Gebiet in Quarzkristall, der senkrecht zur optischen Achse (c-Achse) geschnitten wurde.

Tabelle 2 Untere und obere Schranken für die Ansprechschwellen $(dE/d\xi)_k$ der Trackdetektoren

| Material | $(dE/d\xi)_k$ [MeV/(mg/cm ²)] | | | |
|---------------|--|--|--|--|
| Glimmer | 10,9–12,3 | | | |
| Turmalin | 16,1-17,6 | | | |
| Quarzglas | 15,5-18,7 | | | |
| Lithiumniobat | 17,5-19,4 | | | |
| Quarzkristall | 17,3-27 | | | |
| Beryll | 25,6-30,8 | | | |

detektoren, bei denen für den entsprechenden Energieverlust der einfallenden Teilchen noch Tracks auftraten, dividiert durch die totale Anzahl der untersuchten Trackdetektoren des gleichen Materials $[\equiv n]$. Es bedeutet:

n = 1: Alle Proben weisen Ionen mit dem entsprechenden $dE/d\xi$ nach; obere Schranke für $(dE/d\xi)_k$.

n = 0: Keine Probe weist Ionen mit dem entsprechenden $dE/d\xi$ nach; untere Schranke für $(dE/d\xi)_k$.

Wenn die Schwelle $(dE/d\xi)_k$ eines Trackdetektors mit verschiedenen Ionensorten gemessen wird, sind für die untere Schranke diejenigen Ionen verantwortlich, welche die grössere Reichweite haben (Figuren 9 und 10). Es ist plausibel, dass die Sichtbarmachung, resp. Aetzbarkeit, der Tracks durch eine minimale Reichweite begrenzt wird, aber nicht davon abhängt.

Der angegebene Bereich für $(dE/d\xi)_k$ hat nichts mit der Ansprechwahrscheinlichkeit eines Trackdetektors zu tun. Unter der Ansprechwahrscheinlichkeit versteht man das Verhältnis der Anzahl Teilchen, die einen Track bilden, zur totalen Anzahl Teilchen, die auf den Detektor auftreffen. Im Experiment wird sie im Vergleich mit



Figur 8 Ansprechvermögen von Quarzkristall, gemessen mit Iodionen.



Figur 9 Ansprechvermögen von Quarzglas, gemessen mit Chlorionen.



Figur 10 Ansprechvermögen von Quarzglas, gemessen mit Iodionen.

den elastisch gestreuten Ionen ermittelt: Für Quarzkristall ist die Ansprechwahrscheinlichkeit 98–100% (Sowinski *et al.* [10]), für Glimmer 100% (Blok *et al.* [11]) und für Glas 100% (Lecerf & Péter [12]), wenn der Einfallswinkel der Teilchen nicht zu flach ist.

5. Diskussion

Mit den Messresultaten der verschiedenen Trackdetektoren wurde das eingangs skizzierte Modell diskutiert. Die Nachweisgrenze $(dE/d\xi)_k$ ist in Figur 11, resp. Figur 12, gegenüber Wärmeleitzahl k, resp. thermischer Diffusivität D, aufgezeichnet. Als Abszisse (linearer Massstab) ist $(dE/d\xi)_k$ aufgetragen, als Ordinate (logarithmischer Massstab) k oder D. Für eine Kristallsorte sind die möglichen Gebiete, in denen die interessanten Grössen liegen, schraffiert; experimentelle Fehler von einzelnen Messungen anzugeben, ist bei diesen grossen Unsicherheiten nicht vernünftig. Die $(dE/d\xi)_k$ -Werte für Zirkon und Olivin sind der Arbeit von Fleischer *et al.* [1] entnommen worden, derjenige für Topas der Arbeit von Perelygin & Shadieva [5]. Bei Spinell und Saphir wird vermutet, dass der Energieverlust der Spaltfragmente zu klein ist, um Tracks bilden zu können. Die Angaben für Wärmeleitzahl und thermische Diffusivität stammen aus dem Werk Thermophysical Properties of Matter [13].

Obwohl sich alle Trackdetektoren gut in diese Darstellungen einordnen lassen, sind die Fehler, welche wohl den unbekannten Unterschieden des Detektormaterials zugeschrieben werden müssen, zu gross, um auf empirischem Weg eine Gesetzmässigkeit zwischen Wärmeleitzahl, resp. thermischer Diffusivität, und der Schwelle $(dE/d\xi)_k$ zu finden. Die beiden Figuren sind vor allem in dem Sinne zu interpretieren, dass für einen bestimmten Trackdetektor dann Tracks erzeugt werden, wenn der









Thermische Diffusivität D der als Trackdetektoren verwendeten Kristalle, aufgetragen gegenüber der kristschen Nachweisgrenze $(dE/d\xi)_k$.

Energieverlust der einfallenden Teilchen rechts des markierten Gebietes einzuordnen ist. Damit ist auch ein nützlicher Hinweis für die Auswahl von neuen Detektormaterialien gegeben: Falls das Wertepaar (Wärmeleitzahl oder Diffusivität/Energieverlust der zu registrierenden Teilchen) auf die linke Seite der gekennzeichneten Bereiche fällt, enstehen keine Tracks; für Punkte auf der rechten Seite hingegen sind mit Sicherheit Tracks zu erwarten.

Aus den zwei graphischen Darstellungen ist ersichtlich, dass im Gebiet für $(dE/d\xi)_k$ -Werte oberhalb von 30 MeV/(mg/cm²) keine Messresultate vorhanden sind. (Die Werte für Spinell und Saphir sind Vermutungen.) Es wurden deshalb grosse Anstrengungen gemacht, Tracks in einem Kristall zu entwickeln, der gemäss seiner Wärmeleitzahl in diesen Bereich einzuordnen wäre. Doch konnten in Natriumchlorid, Fluorit, Spinell und Saphir auch mit Spaltfragmenten keine Tracks gefunden werden. Bei Lithiumfluorid zeigte nur ein kleiner Teil der untersuchten Proben trackähnliche Ereignisse (in einer Arbeit von Young [14] sind in Lithiumfluorid Tracks beobachtet worden). Die Aussage, dass in einem Material keine Tracks gefunden wurden, bedeutet aber nicht, dass keine Tracks entstanden sind. Man kann nicht ohne weiteres zwischen den folgenden drei Möglichkeiten unterscheiden:

- 1. Es entstehen keine Tracks, da die einfallenden Teilchen keinen genügend grossen Energieverlust erleiden.
- 2. Es entstehen Tracks, die aber nicht zu sichtbaren Spuren ausgebildet werden, da die Aetzmethode ungeeignet ist.
- 3. Es entstehen Tracks, die aber so schnell ausheilen, dass sie nicht entwickelt werden können.

Bei Spinell und Saphir lässt sich die erste Möglichkeit nicht ausschliessen, da bei beiden die geätzten Oberflächen sehr schön blieben, zugleich aber die Strukturlinien sauber herausgeätzt wurden. Bei Saphir wird die Annahme, dass das maximale $dE/d\xi$ der Spaltfragmente zu klein ist, um Tracks zu bilden, durch die Arbeit von Perelygin & Shadieva [5] bestätigt. Bei Fluorit und Natriumchlorid hingegen könnte die dritte Möglichkeit zutreffen. Bei beiden Kristallen heilen zudem durch γ -Bestrahlung erzeugte Farbzentren sehr rasch aus, was bei Spinell nicht der Fall ist. Auch in Kaliumchlorid konnten von Morgan & van Vliet [4] mit dem Elektronenmikroskop trackähnliche Ereignisse beobachtet werden, die aber in kürzester Zeit ausheilten und verschwanden.

Es wurde ferner versucht, den Zusammenhang zwischen der Wärmeleitzahl und der Temperatur auszunützen, um $(dE/d\xi)_k$ -Werte in diesem Zwischengebiet zu messen. Nach der erwähnten Modellvorstellung sollten in erster Näherung Wärmeleitzahl und $(dE/d\xi)_k$ proportional zueinander sein. Die Wärmeleitzahl eines kristallinen Isolators ist jedoch eine (wohlbekannte) Funktion der Temperatur (Figur 13).



Figur 13

Wärmeleitzahl k in Funktion der Temperatur T für Quarzkristall. Die Kurven stammen aus dem Werk Thermophysical Properties of Matter [12].

Bei tiefen Temperaturen geht die Wärmeleitzahl proportional zu T^3 gegen 0, die kurzwelligen Gitterschwingungen werden eingefroren. Sie erreicht zwischen 10 K und 20 K ein Maximum und nimmt mit höheren Temperaturen einem 1/T-Gesetz folgend ab, indem sich der Wärmewiderstand des Gitters vergrössert. Erst bei Temperaturen im Bereich von einigen 100 K steigt die Wärmeleitung wieder an, da nun Elektronen frei werden und zum Wärmetransport beitragen können.

Entsprechend diesem Verhalten wäre zu erwarten, dass die Schwelle $(dE/d\xi)_k$ ebenfalls eine Funktion der Temperatur ist. Deshalb wurden die $(dE/d\xi)_k$ nicht nur bei Zimmertemperatur gemessen, sondern bei Materialien mit bekanntem Temperaturverlauf auch zwischen 77–500 K bestimmt. Diese Experimente ergaben aber keine Abhängigkeit der Nachweisgrenze $(dE/d\xi)_k$ von der Temperatur T. So erfreulich diese Tatsache bei der praktischen Verwendung von Trackdetektoren sein kann, so schwierig ist es zu erklären, weshalb $(dE/d\xi)_k$ wohl von der, bei gleicher Temperatur, von Material zu Material verschiedenen Wärmeleitzahl abhängt, nicht aber vom Verlauf mit der Temperatur. Die bei der Beschreibung unseres Modelles geäusserten Bedenken, die Wärmeleitzahl für die Vorgänge in den kleinen Dimensionen eines Tracks uneingeschränkt zu verwenden, scheinen deshalb berechtigt zu sein.

Es galt weiter abzuklären, ob nicht andere Materialkonstanten der Trackdetektoren für die Trackbildung entscheidend sein könnten. Die Eigenschaften der Trackdetektormaterialen sind in den Tabellen 3, 4 und 5 zusammengestellt. Die

| Material | Tracks | Formel | Struktur | Formelge- wicht M | Mittleres Z | Dichte ρ [g/cm ³] |
|----------------|---------------------|--|----------------|----------------------|----------------|------------------------------------|
| Glimmer | ja | $KMg_{3}[AlSi_{3}O_{10}](OH)_{2}^{7})$ | monoklin | 417,35 | 9,5 | 2,6 |
| Turmalin | ja | $NaFe_3Al_6B_3Si_6O_{27}(OH)_4^7$ | hexagonal | 1053,23 | 9,6 | 3,14 |
| Quarzglas | ja | SiO ₂ | amorph | 60,08 | 10 | 2,2 |
| Lithiumniobat | ja | LiNbO ₃ | hexagonal | 147,85 | 13,6 | 4,67 |
| Zirkon | ja ¹) | ZrSiO | tetraedrisch | 183,3 | 14,3 | 4,65 |
| Olivin | ja ¹) | $Mg_2SiO_4^{7}$ | rhombisch | 140,69 | 10 | 3,21 |
| Quarzkristall | ja | SiO ₂ | hexagonal | 60,08 | 10 | 2,65 |
| Topas | ja ²) | $Al_2 \tilde{SiO}_4 F_2$ | orthorhombisch | 184,06 | 10 | 3,53 |
| Beryll | ja | $Be_3Al_2Si_6O_{18}$ | hexagonal | 537,51 | 9,2 | 2,75 |
| Lithiumfluorid | $(ja)^{3}$) | LiF | kubisch | 25,94 | 6 | 2,64 |
| Kaliumchlorid | $(ja)^4$) | KCl | kubisch | 74,56 | 18 | 1,98 |
| Spinell | nein ⁵) | MgAl ₂ O ₄ | kubisch | 142,27 | 10 | 3,55 |
| Saphir | nein ⁵) | Al ₂ O ₃ | hexagonal | 101,96 | 10 | 4,02 |
| Fluorit | $(nein)^6$ | CaF ₂ | kubisch | 78,08 | 12,7 | 3,18 |
| Natriumchlorid | $(nein)^6$ | NaCl | kubisch | 58,44 | 14 | 2,16 |

| Tabelle 3 | | | |
|-------------------------------|-----------------|-------------|-----------|
| Materialeigenschaften der als | Trackdetektoren | verwendeten | Kristalle |

Angaben über Zirkon und Olivin als Trackdetektoren stammen aus der Arbeit von Fleischer et al. [1].

 $\binom{1}{2}{3}{4}{5}$ Topas wurde von Perelygin & Shadieva [5] als Trackdetektor verwendet.

Bei Lithiumfluorid konnten die Tracks nicht eindeutig identifiziert werden.

In Kaliumchlorid sind von Morgan & van Vliet [4] trackähnliche Ereignisse beobachtet worden.

Bei Spinell und Saphir wird vorausgesetzt, dass der Energieverlust $dE/d\xi$ der Spaltfragmente zu klein ist, um Tracks zu erzeugen.

6) Bei Fluorit und Natriumchlorid ist nicht bekannt, ob Tracks gebildet werden können.

7) Bei diesen Kristallen konnte die genaue chemische Zusammensetzung nicht ermittelt werden.

| | - | | | | | |
|----------------|--|--|---|--|--|--|
| Material | $\frac{(dE/d\xi)_k^{-1}}{[\text{MeV}/(\text{mg/cm}^2)]}$ | Härte ²) (Mohs'sche Skala) | Atomare Packungs- dichte ³) | Elastizitäts- modul E ⁴) [10 ¹¹ dyn/cm ²] | Dielektrische Suszeptibili- tät χ ⁴) | |
| Glimmer | 11,6 | 2,8 | 0,52 | 17,8 | 8 | |
| Turmalin | 16,9 | 7,2 | 0,59 | 27 | 7,2 | |
| Quarzglas | 17,1 | 4,9 | | ~ 7 | ~ 9 | |
| Lithiumniobat | 18,5 | 5 | 0,60 | 20,4 | 99,5 | |
| Zirkon | 19 | 7,5 | 0,63 | 7,35 | 11,8 | |
| Olivin | 20 | 6,7 | 0,57 | 32,4 | 20 | |
| Quarzkristall | 22,1 | 7 | 0,52 | 11 | 3,5 | |
| Topas | ~24 | 8 | 0,70 | 28,1 | ⁵) | |
| Beryll | 28,2 | 7,8 | 0,53 | 28,2 | 6,2 | |
| Lithiumfluorid | ? | 4 | 0,69 | 11,2 | 8 | |
| Kaliumchlorid | ? | 2 | 0,56 | 4,05 | 3,7 | |
| Spinell | >40 | 6,5 | 0,62 | 30 | 7,6 | |
| Saphir | >40 | 9 | 0,71 | 49,4 | 12,2 | |
| Fluorit | | 4 | 0,58 | 16,4 | 5,8 | |
| Natriumchlorid | | 2 | 0,64 | 4,85 | 4,9 | |
| | | | | | | |

Elastische und dielektrische Eigenschaften der als Trackdetektoren verwendeten Kristalle

 $\binom{1}{2}{3}$ Zum Vergleich sind gemittelte oder extrapolierte Werte für $(dE/d\xi)_k$ aufgeführt.

Die Angaben über die Härte sind mit einer Unsicherheit von über 20% behaftet.

Die atomare Packungsdichte ist das Verhältnis des Volumens, das von den Ionen in der Einheitszelle belegt wird, zum totalen Volumen der Einheitszelle.

4) Elastizitätsmodul E und dielektrische Suszeptibilität χ sind bei anisotropen Kristallen gerichtete Grössen. Falls die bestrahlte Kristallfläche nicht eindeutig orientiert war, wurde ein mittlerer Wert eingesetzt.

5) Für Topas war keine Angabe zu finden.

Tabelle 4

| Material | $\frac{(dE/d\xi)_k^{1}}{[\text{MeV}/(\text{mg/cm}^2)]}$ | Schmelz- punkt [°C] | Debye- temperatur θ ²) [K] | Spezifische Wärme C [cal/(g·K)] | Wärmeleitzahl k^{4}) $[10^{-3} \text{ W/(cm \cdot K)}]$ | Thermische Diffusivität D^{5}) $[10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}]$ |
|----------------|---|---------------------------|---|---------------------------------------|--|--|
| Glimmer | 11,6 | | | >0,2 ³) | 4,5 | 2 |
| Turmalin | 16,9 | | | $>0,2^{3}$) | 20 | 7 |
| Quarzglas | 17,1 | 1883 | | 0,18 | 14 | 8 |
| Lithiumniobat | 18,5 | 1253 | 450 | 0,16 | 47 | 15 |
| Zirkon | 19 | 2550 | | 0,13 | 61 | 23 |
| Olivin | 20 | | | $<0,2^{3}$) | 45 | 16 |
| Quarzkristall | 22,1 | 1883 | 290 | 0,18 | 104 | 51 |
| Topas | ~24 | 2153 | | $>0,2^{3})$ | 110 | 35 |
| Beryll | 28,2 | 1410 | | $>0,2^{3}$) | 70 | 27 |
| Lithiumfluorid | ? | 1121 | 690 | 0,39 | 160 | 36 |
| Kaliumchlorid | ? | 776 | 230 | 0,16 | 72 | 50 |
| Spinell | >40 | 2408 | | 0,19 | 200 | 68 |
| Saphir | >40 | 2323 | 980 | 0,18 | 460 | 145 |
| Fluorit | (| 1775 | 490 | 0,21 | 100 | 34 |
| Natriumchlorid | l — | 1074 | 300 | 0,21 | 70 | 35 |

Tabelle 5

Thermische Daten der als Trackdetektoren verwendeten Kristalle

Leere Stellen bedeuten, dass keine Angaben gefunden werden konnten.

¹) Zum Vergleich sind gemittelte oder extrapolierte Werte für $(dE/d\xi)_k$ aufgeführt.

²) Die Werte der Debyetemperaturen θ sind mit einem Fehler von über 30% behaftet.

³) Für diese Substanzen konnten keine Angaben über die spezifische Wärme C gefunden werden; für die Berechnung der thermischen Diffusivität D wurde deshalb ein wahrscheinlicher Wert von 0,2 cal/(g·K) angenommen.

⁴) Die Wärmeleitzahl k ist bei einem anisotropen Kristall eine gerichtete Grösse. Falls die bestrahlte Kristallfläche nicht eindeutig orientiert war, wurde ein mittlerer Wert eingesetzt.

⁵) Die thermische Diffusivität D wird folgendermassen berechnet: $D = k/(C \cdot \rho)$. Die Werte für k, C und D sind gültig für Raumtemperatur.

Angaben stammen zum grössten Teil aus den drei Werken Handbook of Chemistry and Physics [15], Landolt-Börnstein: Kristall- und Festkörperphysik [16] und Thermophysical Properties of Matter [13]. Keinen direkten Einfluss auf die Trackbildung bewirken Formelgewicht und Dichte. Mehr Bedeutung scheint die Struktur zu haben; doch gerade bei kubischen Kristallen, deren festkörperphysikalische Eigenschaften am besten bekannt sind, blieben die Verhältnisse unklar: Beim gleichen Strukturtyp ergaben die Experimente bei Lithiumfluorid zum Teil Tracks und bei Natriumchlorid überhaupt keine Tracks. In Kaliumchlorid sind hingegen trackähnliche Ereignisse beobachtet worden (Morgan & van Vliet [4]). Zwischen Härte und atomarer Packungsdichte und der Trackbildung besteht kein Zusammenhang. Es kommt nicht darauf an, wie eng die Ionen im Gitter gepackt sind und wievel leerer Raum zwischen den Ionen ist. Dies ist auch dadurch verständlich, dass in Metallen, bei denen verschiedene Härtegrade vorkommen, durchwegs keine Tracks gebildet werden. Wenn die Trackbildung durch das Verhältnis der elektrostatischen Kraft zur mechanischen Bindung erklärt würde (Fleischer et al. [1]), müssten nur in Kristallen mit niedrigem Elastizitätsmodul und kleiner dielektrischer Suszeptibilität Tracks entstehen. Diese Bedingungen sind bei Lithiumniobat ganz und gar nicht erfüllt. Der Schmelzpunkt des Materials hat keinen Einfluss auf die Trackbildung. Da die Debyetemperatur eine charakteristische Grösse bei der Beschreibung der thermischen Eigenschaften des Gitters ist, würde sie eine weitere

Präzisierung des eingangs skizzierten Modelles ermöglichen, doch fehlen Angaben über die als Trackdetektoren geeigneten Kristalle. Der Zusammenhang zwischen Wärmeleitzahl oder thermischer Diffusivität und der Trackdetektorschwelle wird wiederum bestätigt.

6. Schlussbetrachtung

Wie unsere Untersuchungen zeigen, besteht eine, wenn auch nur qualitative, Beziehung zwischen der Wärmeleitung und der Ansprechschwelle in einem Trackdetektor. Diese Beziehung erlaubt es immerhin, aus der Wärmeleitzahl eines Materials den Wert von $(dE/d\xi)_k$ in erster Näherung zu bestimmen. Anderseits ist es nicht möglich, damit ein ausführlicheres Modell aufzubauen; jedoch dürfte die Annahme gesichert sein, dass der Energietransport im Detektormaterial als wesentliche Grösse in jede Beschreibung der Vorgänge bei der Trackbildung eingehen muss.

Leider ist es auch sehr unsicher, eine Gesetzmässigkeit empirisch zu formulieren. Dazu liegen die bisher gemessenen $(dE/d\xi)_k$ -Werte in einem zu engen Bereich, ferner ist die Unsicherheit bezüglich der Wärmeleitzahl oder der thermischen Diffusivität des Detektormaterials recht gross. Der Vorschlag, für jede Trackdetektorprobe nach der Bestimmung von $(dE/d\xi)_k$ auch noch die Materialkonstanten zu ermitteln, erwies sich als zu zeitraubend und undurchführbar. Speziell betont sei, dass gerade die Messung der Wärmeleitzahl an kleinen Materialproben wie den Detektorkristallen äusserst heikel ist und einen ganz beträchtlichen Aufwand erfordert.

Schliesslich liegt der Gedanke nahe, sich zu fragen, ob nicht etwa die Messung der Trackdetektorschwelle $(dE/d\xi)_k$ ein guter und bequem gangbarer Weg sei, um andere, schwieriger zu erfassende Grössen aus der Festkörperphysik zu bestimmen. Leider muss diese Frage solange offen bleiben, bis der Mechanismus der Trackbildung quantitativ verstanden werden kann. Eine solche Möglichkeit gibt aber sicher einen neuen Anreiz, das Problem der Trackbildung weiter zu verfolgen.

Dem Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung sei für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit gedankt.

LITERATURVERZEICHNIS

- [1] R. L. FLEISCHER, P. B. PRICE und R. M. WALKER, Ann. Rev. Nucl. Science 15, 1 (1965).
- [2] D. BLANC, Radioprotection 5, 37, 115, 201 (1970).
- [3] J. J. KELSCH, A. N. GOLAND und A. PASKIN, J. Phys. Chem. Solids 26, 203 (1965).
- [4] D. V. MORGAN und D. VON VLIET, Contemp. Phys. 11, 173 (1970).
- [5] V. P. PERELYGIN und N. Kh. SHADIEVA, Pribory i Tekhnika Eksperimenta 4, 53 (1968).
- [6] R. BALZER und A. SIGRIST, HPA 45, 921 (1972).
- [7] F. SEITZ und J. S. KOEHLER, Solid State Phys. 2, 307 (1956).
- [8] E. C. H. SILK und R. S. BARNES, Phil. Mag. 4, 970 (1959).
- [9] L. C. NORTHCLIFFE und R. F. SCHILLING, Nucl. Data Tables A7, 233 (1970).
- [10] M. SOWINSKI, C. STÉPHAN, T. CZYZEWSKI und J. TYS, Nucl. Instr. Meth. 105, 317 (1972).
- [11] H. BLOK, F. M. KIELY und B. D. PATE, Nucl. Instr. Meth. 100, 403 (1972).
- [12] M. LECERF und J. PÉTER, Nucl. Instr. Meth. 104, 189 (1972).
- [13] Thermophysical Properties of Matter, Vol. 2 & 5 (1970).
- [14] D. A. YOUNG, Nature 182, 375 (1958).
- [15] Handbook of Chemistry and Physics, 53rd Edition 1972-1973.
- [16] LANDOLT-BÖRNSTEIN, Kristall- und Festkörperphysik, Band III/1 & 2 (1969).