

V14 - Tomographie mit Gammastrahlung

Michael Gutnikov
michael.gutnikov@udo.edu

Lasse Sternemann
lasse.sternemann@udo.edu

Abgegeben am 10.12.2021

Inhaltsverzeichnis

1 Ziel	3
2 Theoretische Grundlagen	3
2.1 Herstellung	3
2.2 Elektronische Eigenschaften	4
2.2.1 Photolumineszenz	4
3 Versuchsaufbau und -durchführung	6
4 Auswertung	7
5 Diskussion	9

1 Ziel

Ziel dieses Versuches ist es Halbleiter-Nanokristall-Quantenpunkte auf ihre elektronischen Eigenschaften zu untersuchen. Dazu wird ihre Emissionsenergie bestimmt und die Abhängigkeit ihrer Photolumineszenzspektren von der Polarisierung, Wellenlänge und Leistung des Lichtes betrachtet.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Herstellung

Die Synthese der Nanokristalle kann in eine Nuklidbildung und das anschließende Wachstum der Nuklide unterteilt werden.

Im ersten Schritt wird ein Lösungsmittel, welches ebenfalls als Stabilisator dient, auf ca. 330°C erhitzt und darin Cadmiumdimethyl und Hexadecylamin bei einer Temperatur von etwa 20°C injiziert. Dabei kommt es zur Bildung von $(Cd^{2+}, Se^{2-})_3$ Monomeren, welche sich zu Kristallisationskeimen entwickeln. Diese Reaktion hat eine Senkung der Temperatur zur Folge, welche den Prozess der Nuklidbildung beendet. Bei einer Temperatur von ca. 290°C werden die Keime auf den gewünschten Durchmesser wachsen gelassen. Bei hoher Temperatur und damit ebenfalls hoher Monomerkonzentration wird von kinetischem Wachstum gesprochen, wohingegen bei kleinerer Temperatur bzw. Monomerkonzentration das thermodynamische Wachstum dominiert, welches versucht die Oberflächenenergie zu minimieren. Durch Abkühlen kann die Herstellung des Kerns der Nanokristalle abgeschlossen werden.

Anschließend wird Zinksulfid in die Lösung gegeben, sodass der CdSe-Kern durch die ZnS-Schale isoliert wird. Die entstehenden Nanokristalle sind nahezu kugelförmig (*siehe 1 links*) und können durch die Länge der Wachstumsphase in ihrer Größe variiert werden. Typischerweise befinden sich Nanokristalle in der Größenordnung von $\sim 1 - 100$ nm.

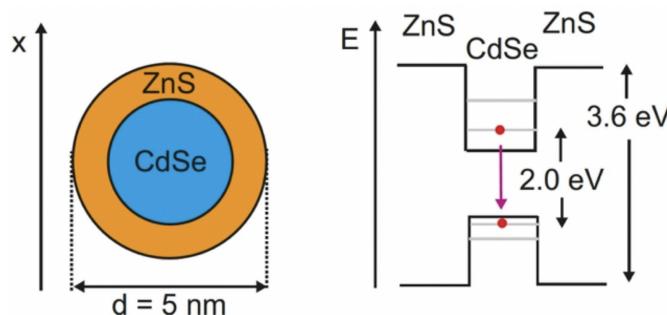


Abbildung 1: Schematische Darstellung des Aufbaus und der Ausmaße eines CdSe/ZnS Quantenpunktes und seiner Energiestruktur. Entnommen aus [1]

2.2 Elektronische Eigenschaften

Da die Bandlücke des *CdSe*-Kerns kleiner ist als die der *ZnS*-Schale erfährt die Wellenfunktion dadurch eine Einschränkung in allen drei Raumrichtungen durch die so entstehende Potentialbarriere. Diese ist in Abbildung 1 zu sehen. Aufgrund der kleinen Größe der Nanokristalle führt das zu einer Quantisierung der Energiezustände, wie es bei einzelnen Atomen der Fall ist.

2.2.1 Photolumineszenz

Wird Licht mit einer genügend hohen Energie eingestrahlt, so kann ein Elektron in der *ZnS* Barriere aus dem Valenzband in das Leitungsband angeregt werden. Es entsteht ein Elektron-Loch-Paar, auch Exziton genannt. Dieses kann von dem Quantenpunkt eingefangen und lokalisiert werden. Dort relaxieren das Elektron und das Loch jeweils über nicht-strahlende Streuprozesse an Phononen und Defekten zu den Kanten des Leitungs bzw. Valenzbands, wo sie unter Emission eines Photons rekombinieren. Dieser Vorgang ist in Abbildung 2 dargestellt. Die Rekombinationsenergie, also die Energie des

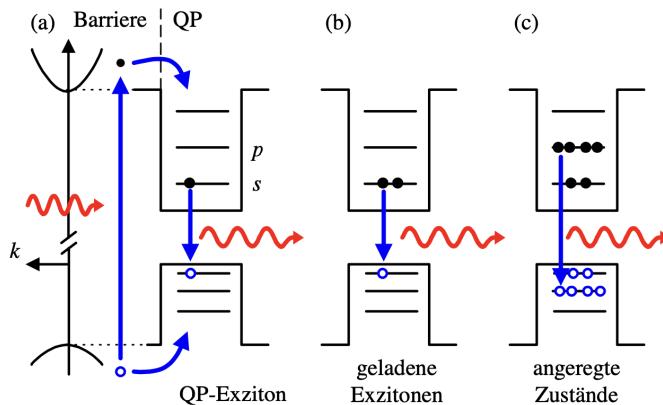


Abbildung 2: a) Photolumineszenz durch Einfangen von Exzitonen durch den Quantenpunkt. b) Geladene Exzitonen durch Anwesenheit einer weiteren Ladung an der Bandlücke. c) Rekombination aus angeregten Zuständen durch das Einfangen mehrerer Exzitonen bei hohen Anregungsdichten. Entnommen aus [1]

ausgesendeten Photons

$$E_R = E_g + \frac{\pi^2 \hbar^2}{2a^2} \left(\frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*} \right) - \frac{\mu e^4}{32\pi^2 \varepsilon_0^2 \varepsilon_r^2 \hbar^2} - 1.786 \cdot \frac{e^2}{4\pi \varepsilon_r \varepsilon_0 a}. \quad (1)$$

berechnet sich aus der Bandlücke E_g über welche das Elektron-Loch-Paar relaxiert, also der quantisierten Zustände. Der zweite Summand beschreibt jeweils die Energie des Elektrons bzw. des Lochs und der dritte Summand die Exzitonenbindungsenergie, welche

durch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Loch gegeben ist. Der letzte Term berücksichtigt räumliche Einschränkung, die sowohl das Elektron als auch das Loch erfährt. $m_{e \text{ bzw. } h}^*$ ist dabei die effektive Masse der rekombinierenden Teilchen, ϵ_0 und ϵ_r die Permeabilitäten, $\mu = \frac{m_e^* \cdot m_h^*}{m_e^* + m_h^*}$ die sogenannte reduzierte Masse und a die Größe der Nanokristalle.

Somit lässt sich die Farbe des ausgestrahlten Lichtes über die Größe der Nanokristalle a , wie in Abbildung 3 zu erkennen einstellen. Befinden sich bereits Elektronen im

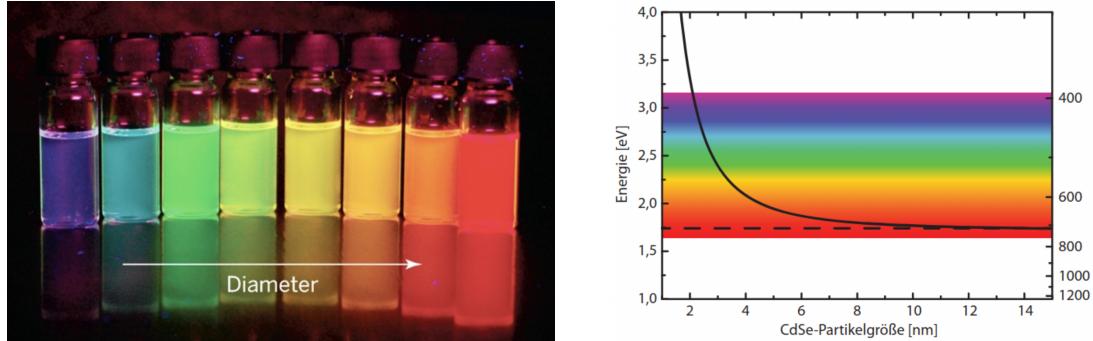


Abbildung 3: Photolumineszenz von verschiedenen großen $CdSe$ Nanokristallen. (links) Abhängigkeit der Wellenlänge bzw. Energie von der Größe der Quantenpunkte. (rechts) Entnommen aus [1]

Leitungsband und/oder Löcher im Valenzband, so kann es zu sogenannten geladenen Exzitonen kommen. Dabei entstehen kleine Verschiebungen in der Energie im Vergleich zum regulären Exziton. Falls weitere Exzitonen vom Quantenpunkt eingefangen werden, so entstehen z.B. Biexzitonen im Falle von zwei Exzitonen kommen. Bei besonders hohen Anregungsdichten können so viele Exzitonen in den Quantenpunkt geraten, dass eine Rekombination nicht mehr nur aus dem Grundzustand, sondern auch aus den angeregten Zuständen beobachtet werden kann, was zu einer noch größeren Abweichung in der Rekombinationsenergie führt. Diese Prozesse sind ebenfalls in Abbildung 2 graphisch dargestellt.

3 Versuchsaufbau und -durchführung

Der Aufbau des Versuches ist in Abbildung 4 zu sehen. Ein ^{137}Cs -Strahler sendet aus

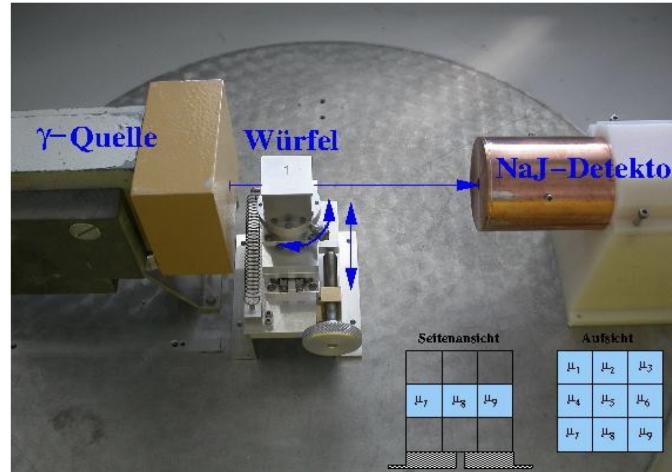


Abbildung 4: Der Aufbau zur Vermessung der Absorptionskoeffizienten unbekannter Materialien. Entnommen aus [1]

einer kleinen Öffnung kollimierte γ -Strahlung aus. Diese passiert eine Halterung in der die zu untersuchenden Würfel eingebaut, bewegt und rotiert werden können. Diese Würfel bestehen aus $3 \times 3 \times 3$ Elementarwürfeln mit je 1 cm Kantenlänge in einer dünnen Aluminiumhülle. Im Rahmen dieses Versuches wird nur die mittlere 3×3 Schicht der Würfel untersucht. Um die übriggebliebene Intensität, nach Durchqueren des Würfels, zu messen, trifft die Strahlung daraufhin auf einen anorganischen Szintillationsdetektor. Dabei werden die Atome des Szintillatormaterials angeregt, welche sich durch Emission eines Photons wieder abregen. Diese Photonen treffen auf einen Photomultiplier, welcher an einen Multichannelanalyser angeschlossen ist, der die gemessenen Impulse der Größe nach in ein Histogramm einsortiert und dieses auf dem Computer ausgibt. Der gesamte Aufbau ist zusätzlich mit einer Wand aus Blei-Blöcken abgeschirmt.

Nun werden der Reihe nach vier verschiedene Würfel in der Halterung befestigt und nach der in Abbildung ?? gezeigten Projektion bestrahlt. Bei dem ersten Würfel handelt es sich lediglich um eine Hülle aus Aluminium. Die nächsten zwei Würfel sind zusätzlich homogen gefüllt. Diese werden jeweils aus sechs Richtungen (I_1, \dots, I_6) bestrahlt und die entsprechenden Absorptionsspektren aufgenommen. Als letztes wird ein Würfel unbekannter Zusammensetzung untersucht, indem dieser aus allen 12 Richtungen der Projektion aus Abbildung ?? bestrahlt wird.

4 Auswertung

Die im Folgenden genannten Intensitäten ergeben sich aus dem Flächeninhalt des Peaks bei einer Energie von 661,7 eV im Absorptionsspektrum, da es sich dabei um die Energie der verwendeten Cs-Lampe handelt [2].

Die gemessenen Intensitäten für die vier ausgemessenen Würfel sind in Tabelle 1 aufgetragen. Dabei beschreiben die Intensitäten für den ersten Würfel, also nur die Aluminium-Hülle, die Grundintensität I_0 .

Tabelle 1: Messwerte der Absorptionsmessungen für eine Messzeit von jeweils $\Delta t = 300$ s.
 i beschreibt die in Abbildung ?? gezeigten Bestrahlungsrichtungen.

i	I_0 (Al-Hülle)	I_i (Würfel 2)	I_i (Würfel 3)	I_i (Würfel 4)
1	(56088±279)	(47413±251)	(1800±21)	(46723±254)
2	(55842±282)	(47567±265)	(1033±51)	(184±31)
3	(56650±292)	(47079±268)	(1346±60)	(44259±264)
4	(55866±290)	(47204±266)	(2670±70)	(12147±130)
5	(55383±284)	(44569±252)	(612±13)	(9232±116)
6	(54930±275)	(46910±253)	(2257±60)	(11316±129)
7				(11028±158)
8				(15401±148)
9				(15514±150)
10				(12527±135)
11				(8965±120)
12				(10907±127)

Um die Absorptionskoeffizienten der verschiedenen Würfelmaterialeien bestimmen zu können, muss für die drei Messreihen der Intensität I_i das Gleichungssystem ?? gelöst werden. Dabei handelt es sich in der Regel um ein nicht-quadratisches lineares Gleichungssystem. Dieses wird mit der Methode kleinster Quadrate auf eine quadratische Form angenähert und dann nach den Absorptionskoeffizienten μ_j gelöst.

Das Ergebnis dieses Verfahrens für die beiden homogen gefüllten Würfel ist in Tabelle 2 zu sehen. Da es sich eben um homogene Würfel handelt und diese lediglich mit den Projektionen $i = 1, \dots, 6$ vermessen wurden (siehe Tabelle 1), wird die Geometriematrix

aus Gleichung ?? in diesem Fall wie folgt vereinfacht.

$$\left(\begin{array}{cccccccc} 1 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 \\ \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & \sqrt{2} \\ 0 & 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 & \sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 & \sqrt{2} & 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{2} & 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{array} \right) \Rightarrow \left(\begin{array}{c} 3 \\ 3 \\ 3 \\ 2\sqrt{2} \\ 3\sqrt{2} \\ 2\sqrt{2} \end{array} \right) \quad (2)$$

Tabelle 2: Berechnete Absorptionskoeffizienten für die neun Teilwürfel der zwei homogenen Würfel.

μ / cm^{-1} (Würfel 2)	Abw. / % (Delrin)	μ / cm^{-1} (Würfel 3)	Abw. / % (Blei)
$(0,055 \pm 0,003)$	52,16	$(1,152 \pm 0,010)$	7,85

Von den uns gegebenen möglichen Materialien, ähnelt Würfel 2 vom Absorptionskoeffizienten her Delrin ($\mu_{\text{Delrin}} = 0.116 \text{ cm}^{-1}$) und Würfel 3 dem von Blei ($\mu_{\text{Blei}} = 1.2497 \text{ cm}^{-1}$). Die Abweichungen der Absorptionskoeffizienten sind ebenfalls in der Tabelle ablesbar.

Da im Falle des letzten Würfels in allen 12 Orientierungen gemessen wurde ($i = 1, \dots, 12$), die Grundintensität I_0 jedoch lediglich in 6 Richtungen ($i = 1, \dots, 6$) (siehe Tabelle 1) gemessen wurde, wurden die Messwerte für die fehlenden 6 Orientierungen ($i = 6, \dots, 12$) beim leeren Würfel von den ersten 6 übernommen. Diese Einzelmessungen sind daher nicht mehr unabhängig voneinander. Unter Beachtung der Korrelation dieser Einzelmessungen, wurde die Lösung für die Absorptionskoeffizienten mittels der Methode kleinster Quadrate gefunden und ist in Tabelle 3 aufgetragen.

Tabelle 3: Berechnete Absorptionskoeffizienten für den inhomogen gefüllten Würfel.

j	μ_j / cm^{-1} (Würfel 4)	Material	Abweichung / %
1	(-0,17±0,08)	/	/
2	(-0,28±0,08)	/	/
3	(0,04±0,08)	Delrin	68,97
4	(1,63±0,10)	Blei	30,40
5	(1,64±0,11)	Blei	31,56
6	(1,57±0,10)	Blei	25,43
7	(-0,12±0,08)	/	/
8	(-0,30±0,08)	/	/
9	(0,07±0,08)	Delrin	39,91

Den negativen Lösungen für die Absorptionskoeffizienten werden keine Materialien zugeordnet. Auf mögliche Gründe dafür wird in der Diskussion eingegangen. Die Materialien und die Abweichungen für die restlichen Absorptionskoeffizienten sind in Tabelle 3 eingetragen.

5 Diskussion

Die besonders großen Abweichungen beim ersten Würfel, können darauf zurückzuführen sein, dass es sich bei dem Material um keines der uns gegeben Materialien handelt, sondern um eines mit einem noch geringeren Absorptionskoeffizienten, wie z.B. Holz. Das würde die Vielzahl an Lösungen erklären mit einem $\mu < 0.1 \text{ cm}^{-1}$.

Bei der Messung beim zweiten Würfel konnte mit einer Messzeit von 300 s nicht auf eine Intensität von über 10000 Counts gestoßen werden. Deswegen weißt diese Messung eine deutlich schlechtere Statistik auf als die Messung davor. Dennoch liegen die Messwerte erstaunlich nahe beieinander und die Abweichung zum Absorptionskoeffizienten von Blei ist nicht allzu hoch.

Beim zusammengesetzten Würfel ist erkennlich, dass dieser aus zwei verschiedenen Materialien zusammengebaut ist. Die Teilwürfel 4,5,6 und 3,9 bestehen jeweils aus dem selben Material und diese passen in etwa mit den Materialien der homogenen Würfel zusammen. Die teilweise negativen Absorptionskoeffizienten lassen auf Leerstellen im letzten Würfel zurückführen.

Im Allgemeinen konnte der Strahlengang lediglich per Augenmaß justiert werden und die Position des Würfels in dem Strahlengang konnte dementsprechend nicht exakt eingestellt werden, was zu systematischen Abweichungen führen konnte.

Literatur

- [1] TU Dortmund. *Versuchsanleitung V14 - Tomographie mit Gamma-Strahlung*. 2021.
- [2] Gordon R. Gilmore. *Practical Gamma-Ray Spectrometry*. Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd, 18. Apr. 2008. doi: 10.1002/9780470861981.