

С 344.1
Р- 952

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

13 - 4427

Э.З.Рындина

Ge (Li) -ДЕТЕКТОРЫ γ -ИЗЛУЧЕНИЙ

Специальность 260 - приборы экспериментальной физики

Автореферат диссертации на соискание учёной
степени кандидата технических наук

Дубна 1969

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики Объединенного института ядерных исследований

13 - 4427

Научный руководитель:

член-корреспондент АН СССР, профессор Ф.Л.Шапиро

Э.З.Рындина

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник

Б.М.Головин

кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник

А.В. Давыдов

Ge (Li) -ДЕТЕКТОРЫ γ -ИЗЛУЧЕНИЙ

Ведущее предприятие:

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе, филиал

Специальность 260 - приборы экспериментальной физики

Автореферат разослан " " 1969 г.

Защита диссертации состоится " " 1969 г. на заседании Объединенного Ученого совета Лаборатории нейтронной физики и Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Адрес: Дубна, Московской области, конференц-зал ЛЯР.

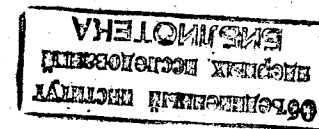
С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ

Учёный секретарь Совета

Ю.Т.Чубурков

611/69

Автореферат диссертации на соискание учёной степени кандидата технических наук



Ge(Li) - детекторы γ -излучений находят все более широкое применение в экспериментальной ядерной физике. Разрешающая способность Ge(Li) -детекторов более чем на порядок превышает разрешающую способность сцинтилляционных счётчиков NaJ(Tl) , а быстрдействие и возможность одновременного получения полного спектра энергий γ -квантов от нескольких десятков кэв до десятка мэв определяет преимущества германиевых спектрометров по сравнению с прецизионными магнитными и дифракционными спектрометрами. Целый ряд γ -спектров, исследованных с помощью Ge(Li) - детекторов, оказался гораздо сложнее, чем это предполагалось ранее: обнаружены неизвестные переходы и даже целые ротационные полосы, с гораздо большей точностью измерены интенсивности переходов.

Исследование γ -спектров из реакций с захватом тепловых и резонансных нейтронов, изучение γ -излучения осколков деления, измерение времени жизни возбужденных состояний ядер по Допплер-эффекту, исследование рентгеновского излучения μ -мезоатомов, идентификация примеси в нейтронно-активационном анализе - таков далеко не полный перечень задач, в которых с успехом используются Ge(Li) - детекторы.

Необходимость перехода от ранее разработанных кремниевых p-i-n - детекторов к детекторам из материала с более высоким атомным номером (Z) вызвана тем, что сечение поглощения за счёт фотоэффекта растет как Z^5 и как Z^2 - за счёт рождения электронно-позитронных пар. Использование

германия ($Z = 32$) вместо кремния ($Z = 14$) дает возможность усилить фотопроект по сравнению с Комптоном-эффектом в 27 раз и процесс рождения пар в 2,4 раза. Помимо этого переход к германиевым детекторам дает возможность несколько повысить предельное энергетическое разрешение прибора за счет уменьшения энергии образования электронно-дырочной пары ($\epsilon_{Si} = 3,6$ эв и $\epsilon_{Ge} = 2,98$ эв).

С другой стороны, переход к германию - полупроводнику с меньшей, чем у кремния, шириной запрещенной зоны - обуславливает необходимость снижения рабочей температуры от комнатной до температуры жидкого азота, а особенности, связанные с поведением лития в германии, приводят к необходимости не только использования, но и хранения детекторов при пониженной температуре. С этим же связаны технологические трудности при изготовлении детекторов, возникающие из-за распада пересыщенного твердого раствора Ge - Li, непрерывно происходящего при комнатной температуре и температуре дрейфа. С целью преодолеть эти трудности и получить γ -детекторы с высоким энергетическим разрешением в ряде физических лабораторий в Советском Союзе и за рубежом начиная с 1963 года ведутся работы по разработке технологии и изготовлению Ge(Li)-детекторов [1-3]. Поскольку изготовление высококачественных γ -спектрометров является достаточно тонкой и сложной технологической задачей, в каждой из лабораторий существует индивидуальная технология, приспособленная к конкретным условиям и исходному материалу.

Основной задачей начатых в 1964 году в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ работ явилась разработка технологии и изготовление Ge(Li)-детекторов с высоким энергетическим разрешением и большими чувствительными объемами, а также исследование и сравнение поведения лития в исходном материале с целью получить рекомендации для отбора слитков германия, поскольку до настоящего времени не существует парамет-

ров, определяющих пригодность материала для изготовления Ge(Li)-детекторов с высоким энергетическим разрешением. Настоящая диссертация посвящена этим вопросам.

Диссертация подразделяется на пять глав и заключительную часть.

Первая глава носит вводный характер, в ней кратко рассматриваются основные принципы работы полупроводниковых детекторов ядерных излучений, основные характеристики γ -спектрометров (энергетическое разрешение, эффективность, время собирания заряда). Описываются различные конфигурации Ge(Li)-детекторов (коаксиальные с одним открытым торцом (ОЕ), коаксиальные с двумя открытыми торцами (ДОЕ) и плоские детекторы U типа). Обсуждаются их достоинства и недостатки.

Методика изготовления детекторов сводится к следующим основным процессам:

1. Изготовление n - r перехода на r -германии нанесением и диффузией лития.
2. Получение i -слоя методом дрейфа ионов лития в электрическом поле n - r перехода.
3. Низкотемпературное выравнивание градиента концентрации лития.
4. Упаковка детектора в криостат.

Для изготовления n - r перехода использовались напыление и диффузия лития в вакууме, диффузия из литиевой пасты (суспензия лития в минеральном масле), электролитическое нанесение из расплава солей LiCl - KCl и нанесение лития из раствора алюминидрида лития в эфире. Как основной метод использовалось напыление в вакууме, так как оно гарантировало чистоту поверхности и отсутствие повреждений на поверхности n -слоя [4,6].

Дрейф ионов лития проводился в кипящей жидкости, поскольку в этих условиях возрастает эффективность отвода тепла

и облегчается задача стабилизации температуры при дрейфе. В качестве жидкости для дрейфа был выбран фреон 113 с температурой кипения 47,5°C/5/.

Глубина, на которую прошел дрейф, экспериментально определялась по электролитическому осаждению меди из раствора $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$, а также контролировалась по распределению фотоэда и термоэда и по распределению потенциала.

Низкотемпературный дрейф, необходимый для выравнивания градиентов концентрации лития, проводился при температуре -10°C в течение нескольких суток при токах 1-5 ма и напряжениях 100-400 в. Окончательное выравнивание осуществлялось в герметичной камере при температуре -22°C + -25°C в течение двух - нескольких десятков часов при токах 0,3 - 0,5 ма и напряжениях 1000-1500 в и контролировалось по вольт-емкостным характеристикам.

Сразу после выравнивания детектор травился в обычном травителе (смесь 70%-ной азотной и 42%-ной плавиковой кислот особой чистоты в соотношении 3 : 1), промывался деионизованной водой, сушился дважды перегнанным ацетоном и монтировался в вакуумный криостат. Безмасляная откачка осуществлялась двумя сорбционными насосами на специально сконструированной установке. После достижения вакуума 10^{-5} - $8 \cdot 10^{-6}$ мм рт. ст. холодопровод криостата погружался в дьюар с жидким азотом, и детектор охлаждался до рабочей температуры без напряжения.

В таблице приведены параметры некоторых из полученных нами детекторов.

Таблица

Наименование детектора x/	Тип детектора	Чувствительный объем в см ³	Емкость в пФ	Время дрейфа в мм в час.	Число диффузий	Рабочее смещение в в	Обратные токи в А
1. HD-42	OE	30	44,1	8-9	1	1150	2·10 ⁻⁹
2. HB-61A	OE	33	46,0	9-10	4	960	2·10 ⁻⁹
3. HB-61C	OE	6	7,4	5-5,5	1	1200	3·10 ⁻⁹
4. HB-61B	OE	16	32,9	6-6,5	2	1400	1·10 ⁻⁹
5. HA-68I	OE	50	83,8	7-9	4	560	1·10 ⁻⁹
6. Г II54	OE	14	41	5	2	850	6·10 ⁻⁹
7. Г I-2	П	1,1	9,2	4	3	600	2·10 ⁻⁹
8. КГ 239	DOE	17	60,4	6	2	750	6·10 ⁻⁹
9. HA-32I	У	18	12	10-12	3	200	5·10 ⁻⁹

(Г - германий для детекторов и H - бельгийский германий Хобокен).

x/ Названия детекторам присвоены в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

В третьей главе приведены результаты испытаний детекторов, исследования их структуры и примеры использования детекторов для изучения γ -спектров, полученных из реакций с захватом резонансных нейтронов, и γ -спектров от ряда изотопов.

Энергетическое разрешение без вычета шумов аппаратуры составило на детекторе НД-42 (30 см^3) 2,6 кэВ при энергии 122 кэВ; 3,2 кэВ при энергии 1333 кэВ; 7,05 кэВ при энергии 6621 кэВ; для детектора НВ-61А (33 см^3) 3,8 кэВ при энергии 1333 кэВ; для детектора НВ-61С (16 см^3) 2,5 кэВ при энергии 122 кэВ; для детектора НВ-61В (6 см^3) 2,5 кэВ при энергии 352 кэВ.

Шумы аппаратуры составляли $1,7 \text{ кэВ} + 0,020 \text{ кэВ/пф С д}$, где С д - емкость детектора.

На рис. 1 представлен спектр ^{60}Co , полученный с помощью детектора НД-42 (30 см^3). Собственное разрешение детектора (за вычетом шумов аппаратуры) составляет 1,89 кэВ, что близко к пределу энергетического разрешения, которое определяется статистическими флуктуациями и составляет для $E_\gamma = 1333 \text{ кэВ}$

$$\Delta = 2,35 \sqrt{F \epsilon E_\gamma} = 1,68,$$

где ϵ - энергия образования электронно-дырочной пары в германии, равная 2,98 эВ, F - фактор Фано, равный 0,128.

Эффективность детекторов и зависимость эффективности от энергии измерялась с помощью калиброванных источников и γ -спектра ^{226}Ra с известными интенсивностями линий. На рис. 2 представлена зависимость абсолютной эффективности (отношение числа импульсов в фотопике к числу распадов в источнике в 4π) от энергии для детекторов с чувствительными объемами 16 и 30 см^3 .

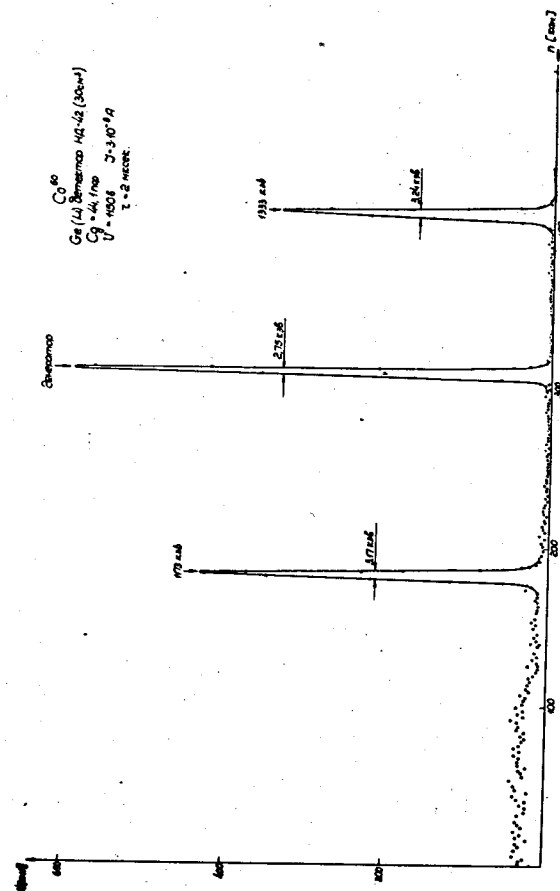


Рис. 1.

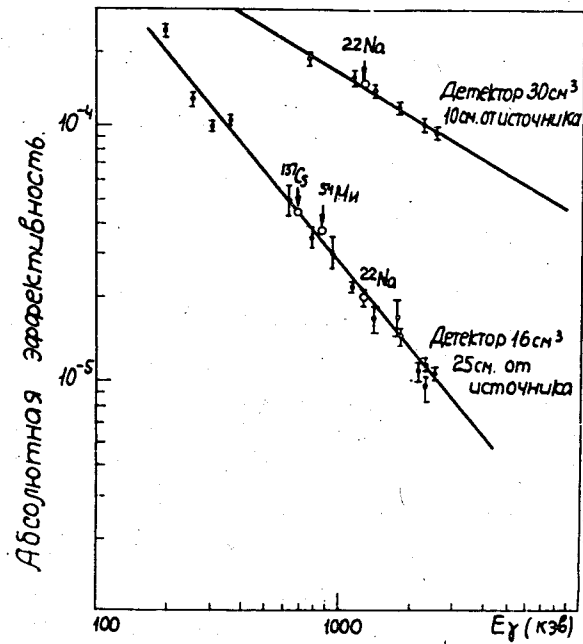


Рис. 2.

Для исследования внутренней структуры детектора были проведены измерения с помощью узкоколлимированного пучка γ -квантов/ ^{137}Cs . Схема и результаты измерений представлены на рис. 3. Для детектора 33 см^3 результаты соответствовали ожидаемым: эффективность счёта уменьшалась, когда пучок захватывал нечувствительный ρ -слой. По измеренным данным величина чувствительного слоя вблизи закрытого торца детектора оказалась на 1-1,5 мм больше, чем на поверхности, т.е. чувствительный объем детектора несколько больше, чем это было рассчитано по осажденной на открытом переходе меди.

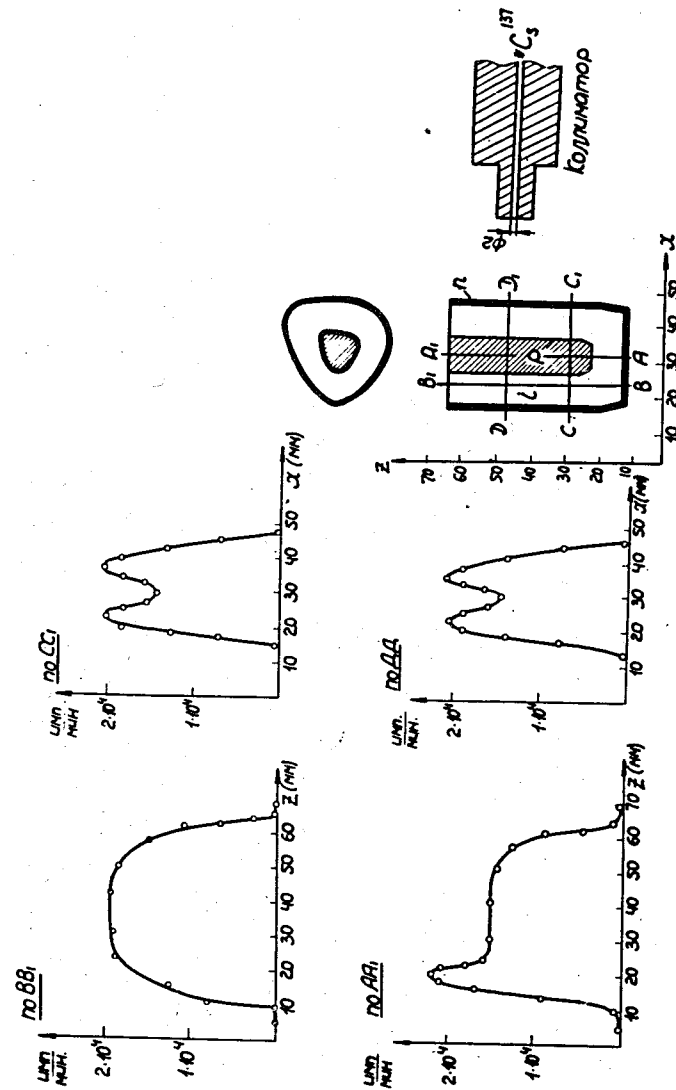


Рис. 3. Измерения с узкоколлимированным пучком ^{137}Cs на детекторе НВ-61-А (33 см^3). Коллиматор передвигался по оси X и оси Z по обозначенным на чертеже направлениям.

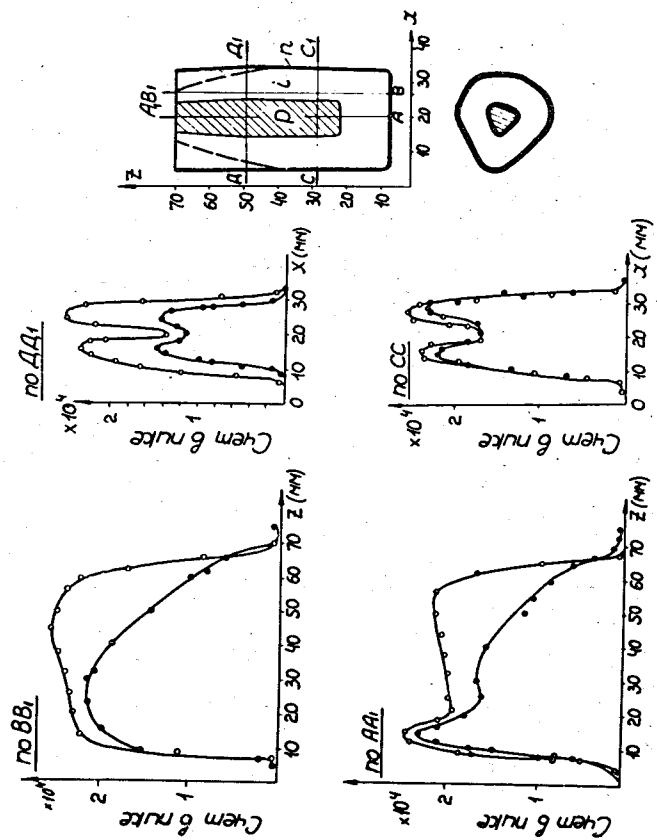


Рис. 4. Измерения с коллимированным пучком на детекторе НД-42 (30 см³). Пунктирные линии на схематическом разрезе детектора соответствуют кривым с темными кружками.

На детекторе НД-42 (30 см³) эффективность регистрации плавно падала при приближении пучка к открытому торцу (кривые с темными кружками, рис. 4). Размеры чувствительного слоя, полученные из этих кривых вблизи открытого торца, оказались уменьшенными по сравнению с реальными размерами детектора. Эффект сужения чувствительного слоя был приписан диффузии лития к поверхности и выпадению на ней в электрически нейтральное состояние. Подобное явление наблюдалось на германии в [11]. Эта гипотеза подтвердилась, так как проведенные измерения с коллимированным пучком после добавочного подпыления и диффузии лития (кривые со светлыми кружками) показали, что размеры чувствительного слоя соответствуют реальным размерам детектора. Был сделан вывод о необходимости проведения повторного подпыления и диффузии лития даже в тех случаях, когда вольт-амперные характеристики остаются хорошими к концу дрейфа, и несмотря на то, что детектор при температуре жидкого азота дает достаточно высокое энергетическое разрешение.

Изготовленные детекторы использовались в ряде физических экспериментов. Так, например, с участием автора были проведены работы по изучению γ -спектров ¹³⁷Pu, ¹³⁸Pu, получен спектр ¹⁵⁵Dy (рис. 5), уточнены энергии γ -переходов в спектре ¹⁵¹Pm ($T_{1/2} = 28,4$ часа) и других изотопов. Изучался радиационный захват нейтронов ядрами ¹²⁷I.

С помощью детектора НВ-61А (33 см³) измерены парциальные радиационные сечения захвата нейтрона ядром ¹⁴⁹Sm с возбуждением уровней ядра ¹⁵⁰Sm $E = 5,53$ и $7,21$ Мэв в интервале энергий нейтронов от 0,12 до 1,5 эв. Наблюдалась положительная (конструктивная) интерференция между первыми двумя резонансными уровнями.

Четвертая глава посвящена применению светового зонда для исследования $p-i-n$ структуры в германии. Известные методы определения i -области либо недостаточно точны

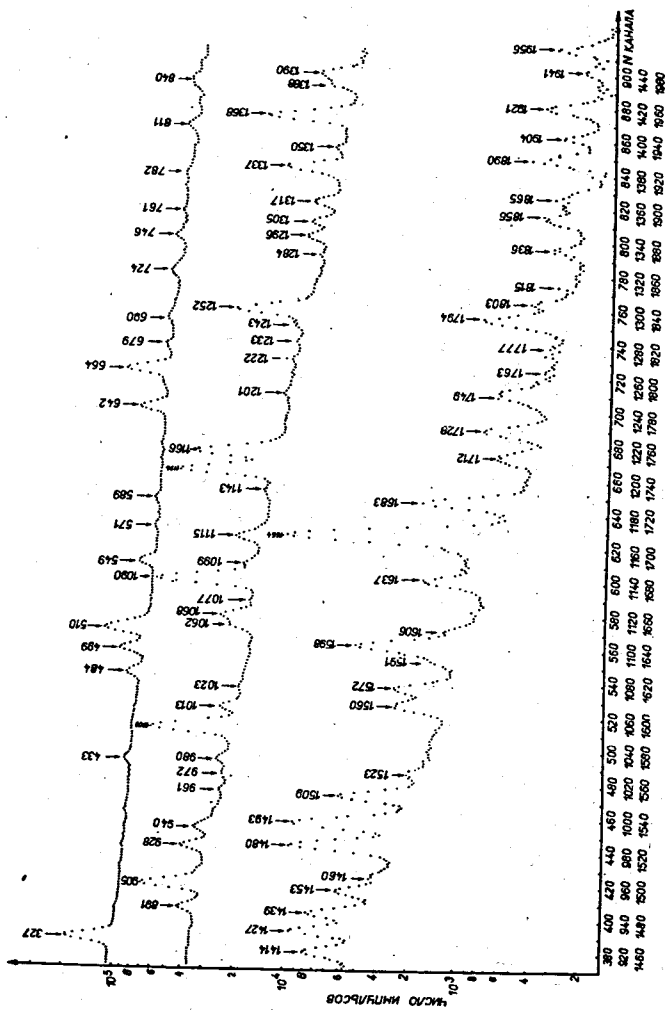


Рис. 5. γ - спектр ^{155}Dy , полученный с помощью детектора НД-42 (30 см^3).

Фото-эдс,
произв единицы

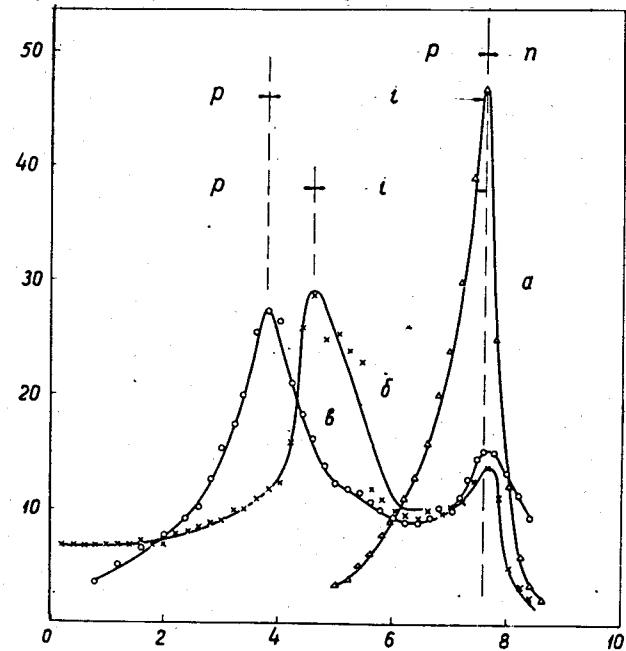


Рис. 6. Распределение фотоэдс на плоском $p-i-n$ детекторе а) сразу после диффузии, б) после дрейфа в течение 4-х суток во фреоне 113, в) после низкотемпературного дрейфа при -10°C в течение 22-х суток.

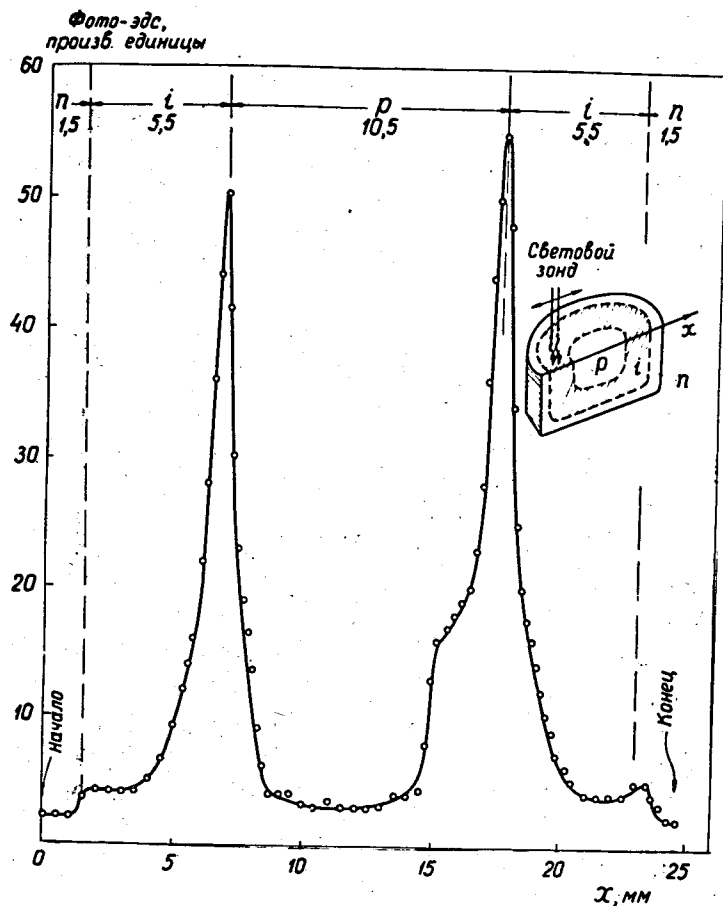


Рис. 7. Распределение фотоэдс на коаксиальном р-і-п образце.

(измерение емкости), либо приводят к повреждению и загрязнению поверхности образца (осаждение меди, измерение распределения потенциала). Метод светового зонда позволил достаточно быстро и точно без загрязнения поверхности определять положение n -, i - и p -областей в германии при комнатной температуре. Метод основан на том эффекте, что при перемещении светового зонда вдоль боковой поверхности образца возникает фотоэдс, причем в местах, где световой зонд пересекает n - i и i - p переходы, наблюдаются резкие пики фотоэдс. Это связано с наиболее благоприятными условиями сбора носителей в местах переходов. По относительному изменению фотоэдс можно судить об изменении концентрации носителей в областях. На рис. 6 представлены результаты измерений с помощью светового зонда на плоском p - i - n образце сразу после диффузии и в разные моменты в процессе дрейфа, а на рис. 7 - распределение фотоэдс на коаксиальном p - i - n образце. Метод светового зонда использовался нами для контроля толщины i -области как один из методов контроля за процессом выравнивания градиентов концентрации лития и для наблюдения за процессами релаксации, происходящими в i -слое, оставленном без смещения при комнатной температуре.

В пятой и последней главе приведены результаты исследования исходного германия, использовавшегося для изготовления Ge(Li) -детекторов. Нами использовался p -германий для детекторов и бельгийский германий фирмы Хобокен. Параметры материала (удельное сопротивление, время жизни неосновных носителей тока, плотность дислокаций) хотя и характеризуют качество материала, но не определяют его пригодности для изготовления детектора. Поведение образцов во время дрейфа очень различается. Так, образцы из которых получают высококачественные детекторы как правило позволяют вести длительный

дрейф при больших напряжениях и малых токах и требуют меньшего числа повторных диффузий лития. Для сравнения материала на шайбах, отрезанных от слитков, был измерен температурный ход подвижности и электропроводности, который практически совпадал у хороших и средних образцов в интервале температур от 77°K до 300°K. Исследование процесса распада пересыщенного твердого раствора Ge-Li и изучение кинетики преципитации лития позволило обнаружить разницу в образцах и измерить содержание кислорода в германии. Испытуемые образцы насыщались литием при температуре 400°С в течение 20 часов, а затем измерялось удельное сопротивление ρ четырехзондовым методом при комнатной температуре в течение нескольких суток. Концентрация оставшегося ионизованного лития N_D в момент времени t рассчитывалась по формуле

$$N_D = \frac{1}{\rho e \mu}$$

с учётом того, что μ - подвижность электронов зависит от N_D по закону Дебая-Конуэлла. Кривые преципитации для различных образцов представлены на рис. 6. По точкам излома была оценена концентрация кислорода N_0 в образцах германия, и по наклону на начальных участках кривых рассчитана концентрация центров преципитации /12, 13/. Кинетика распада описывается уравнением

$$\frac{N_D - N_f}{N_{D_0} - N_f} = \exp(\alpha t^{3/2}),$$

где N_{D_0} - концентрация доноров в начальный момент времени, а N_f - равновесная концентрация доноров при температуре преципитации и

$$\alpha = \frac{4}{3} \pi N_p [(N_D - N_f) v]^{1/2} (2D_{Li})^{3/2},$$

откуда может быть рассчитана концентрация центров преципитации N_p , v - приращение объема центра преципитации на один атом лития - принималось равным $2,2 \cdot 10^{-23}$ см³. Полученная концентрация центров преципитации оказалась в хороших образцах на порядок меньше, чем в средних.

Наряду с измерением преципитации в образцах, равномерно насыщенных литием, было проведено измерение преципитации в n -слое, полученном в обычных технологических условиях. Характер выпадения лития сохранился. Кроме того эти образцы (после того как на них измерялась преципитация в n -слое в течение ≈ 160 часов) были поставлены на дрейф без дополнительного подпыления или прогрева. На хороших образцах дрейф происходил с нормальной скоростью, на средних - с значительным замедлением, а на плохом литий продвинулся всего на глубину 1,5 мм. Поэтому целесообразно испытывать шайбы при отборе слитков в наименее благоприятных условиях, а именно: после получения n - p перехода напылением и диффузией лития выдерживать образец в комнатных условиях без смещения в течение ≈ 150 часов с одновременным наблюдением за скоростью процесса преципитации, а затем без дополнительного прогрева провести дрейф, определяя подвижность ионов лития. Для изготовления детекторов следует отобрать те слитки, в которых сохранилась нормальная для данной температуры скорость дрейфа и в которых наиболее медленно происходил процесс преципитации.

Концентрация кислорода в образцах определялась нами также и по скорости дрейфа, однако эти данные менее достоверны, чем данные по преципитации, так как заключают в себе погрешность определения константы диссоциации образовавшихся комплексов $[LiO]^+$.

В этой же главе описаны процессы релаксации, происходящие в i -слое в различных образцах, составленных без смещения при комнатной температуре. Контроль за этими про-

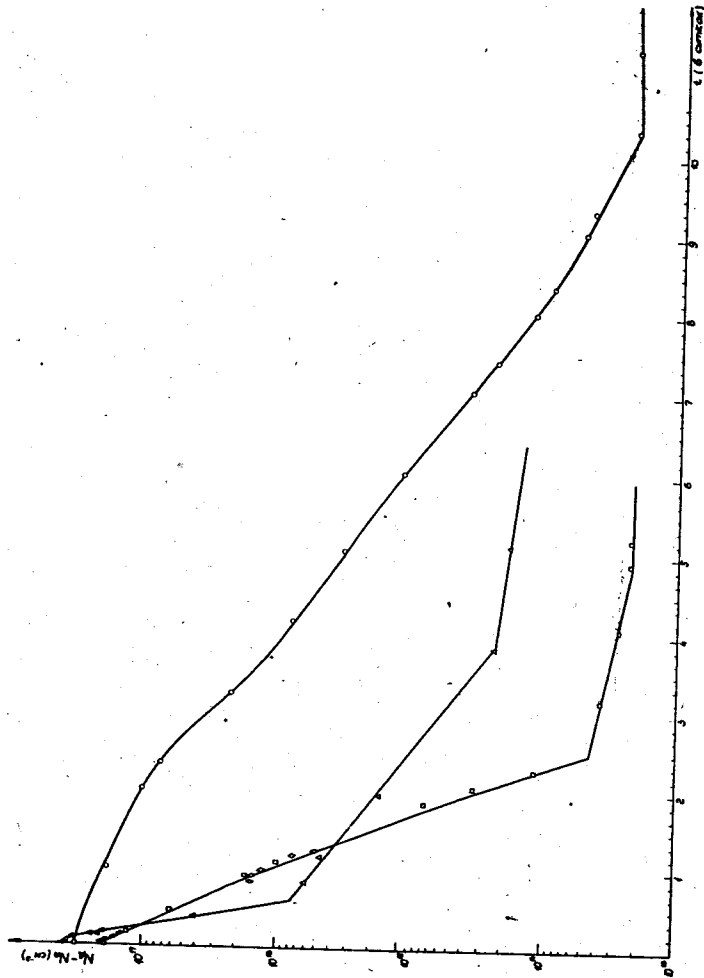


Рис. 8. Изменение концентрации ионизованного лития при $T = 21^\circ\text{C}$ в образцах (\square - Г-1-2, Δ - НД-42; \diamond - Г-1-27), насыщающихся литием в течение 20 часов при 400°C .

цессами велся по изменению вольт-емкостных характеристик, по изменению фото- и термоэдс. Установлено, что в средних образцах происходит непрерывное увеличение концентрации носителей в i - слое за счёт изменения уровня компенсации. В хороших образцах i - слой обладает проводимостью n - типа, и в начале процесса в нем происходит уменьшение концентрации, переход в p - тип проводимости и затем увеличение концентрации носителей.

В заключительной части приводятся основные результаты диссертации.

1. Налажена технология изготовления плоских коаксиальных детекторов с одним и двумя открытыми торцами и U - детекторов плоского типа.

2. Изготовлены γ - спектрометры с чувствительными объемами от 6 до 50 см^3 . Наилучшее разрешение на детекторе большого объема (30 см^3) составило 3,2 кэВ при 1333 кэВ и 7,05 кэВ - при 6,621 МэВ.

3. Измерена абсолютная эффективность детекторов и ее зависимость от энергии.

4. Проведены исследования внутренней структуры детекторов с помощью узкоколлимированного пучка γ - квантов.

5. Применен метод светового зонда для определения ширины компенсированного слоя и для контроля за относительным изменением концентрации и распределением лития в i - слое в германии.

6. Проведено исследование и сравнение свойств исходного германия, полученного из различных источников. Установлено, что в материале, из которого были получены высококачественные γ - спектрометры, преципитация лития идет существенно медленнее, чем в остальных образцах. Измеренная концентрация центров преципитации в нем на порядок меньше, чем в остальных образцах.

7. Оценена концентрация кислорода в материале по преципитации лития и по скорости дрейфа. Установлено, что дрейф ионов лития происходит с нормальной скоростью в материале с концентрацией кислорода $2-5 \cdot 10^{13}$ см³, с пониженной скоростью в материале с концентрацией $5 \cdot 10^{14}$ см⁻³ и практически не идет в материале с концентрацией кислорода $8 \cdot 10^{15}$ см⁻³.

8. С помощью изготовленных детекторов большого объема получены γ -спектры ¹⁵⁵Dy, ¹⁵¹Pm, изучался распад ¹³⁸Pr, ¹³⁹Pr, ⁹⁷Rh, ⁹⁸Rh, уточнены интенсивности линий в их γ -спектрах; получены спектры γ -лучей из реакции ¹²⁷I(n, γ) ¹²⁸I; обнаружены интерференционные эффекты (конструктивная интерференция) в сечении радиационного захвата нейтрона ядром ¹⁴⁹Sm.

Основные результаты диссертации опубликованы в [4-10] и докладывались на Международном рабочем совещании по полупроводниковым детекторам ядерных излучений, Дубна, июнь 1966 г. и на Ежегодном совещании по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра, Ереван, январь 1969 г.

Л и т е р а т у р а

1. A.J.Tavendale. IEEE Trans. NS-11, N 3, 191 (1964).
2. О.А.Матвеев. Атомная энергия, 16, 362 (1964).
3. L.Stab, R.Henck, P.Siffert, A.Coche. Nucl. Instr. Meth., 35, 113 (1965).
4. В.А.Дидоренко, Ю.Д.Мареев, Э.З.Рындина, Б.Савицка, Ю.С.Язвицкий. Препринт ОИЯИ 2575, Дубна 1966.
5. Э.З.Рындина, Я.Ухрин. Atomki Közlemehyek, 8, N3, 238(1966).
6. Э.В.Васильева, Э.З.Рындина. Препринт ОИЯИ 13-3566, Дубна 1967.
7. Э.З.Рындина. Атомная энергия 27, №1 (1969).
8. В.Василев, Э.З.Рындина. ПТЭ, 4, 249 (1967).
9. И.В.Кирпичников, Э.З.Рындина, Я.Урбанец. Препринт ОИЯИ P15-4325 Дубна 1969.

10. Э.В.Васильева, Э.З.Рындина. Препринт ОИЯИ 13-4430, Дубна 1969.

11. H.Reiss, C.S.Fuller, F.J.Morin. Bell. Syst. Techn. J. 35, 535 (1956).

12. E. M.Pell. Solid State Physics in Electronics and Telecommunications, London (1958).

13. R.J.Fox, IEEE Trans. NS-13, N3, 367 (1968).

Рукопись поступила в издательский отдел
17 апреля 1969 года.