

Токовый отклик детектора PbVg в поле источника γ -излучения ^{137}Cs

© И.М. Газизов[¶], В.М. Залетин*, В.М. Кукушкин, В.С. Хрунов

Институт физико-технических проблем,

141980 Дубна, Россия

* Университет „Дубна“,

141980 Дубна, Россия

(Получена 20 октября 2010 г. Принята к печати 22 октября 2010 г.)

На чистых и легированных кристаллах PbVg , выращенных методом направленной кристаллизации расплава по Бриджмену–Стокбаргеру, измерялся токовый отклик в поле источника γ -излучения ^{137}Cs мощностью поглощенной дозы от 0.033 до 3.84 Гр/мин в диапазоне напряжений 1–300 В. Весовая доля вносимой примеси Pb в кристаллах PbVg составляла 1–10 млн⁻¹, а примеси Ca — 150 млн⁻¹. На номинально чистых образцах PbVg отклик фототока достаточно линеен в исследованном диапазоне мощностей доз. Глубокие дырочные уровни, связанные с катионными вакансиями V_c^- , определяли зависимость токового отклика от напряжения фототока в больших электрических полях. Были рассчитаны параметры переноса носителей тока $\mu\tau$ для кристаллов PbVg , выращенных в вакууме и в атмосфере брома, произведения $\mu\tau$ составили $4.3 \cdot 10^{-4}$ и $6.4 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2\text{В}^{-1}$ соответственно. На примесных кристаллах, легированных двухвалентным катионом, величина $\mu\tau$ была в пределах $(4-9) \cdot 10^{-5} \text{ см}^2\text{В}^{-1}$.

1. Введение

В последнее время возрос интерес к PbVg как перспективному (с точки зрения создания детекторов для спектрометрии γ - и рентгеновского излучения при комнатной температуре), широкозонному (энергия запрещенной зоны 2.68 эВ) полупроводнику [1]. Одним из достоинств таких приборов является значительная эффективность регистрации фотонов вследствие высоких атомных номеров составляющих элементов полупроводника (Pb : 81; Vg : 35) и его плотности (7.56 г/см^3). Совершенствование методов синтеза и очистки исходных элементов, оптимизация процессов выращивания позволяют получать кристаллы PbVg детекторного качества для спектрометрии рентгеновского и γ -излучения. Например, было получено энергетическое разрешение на полувысоте (ПШПВ), равное 1.41 и 7.7 кэВ при температуре 5–10°C для энергий γ -квантов 59.6 (^{241}Am) и 662 кэВ (^{137}Cs) соответственно [2]. Измерение транспортных характеристик неравновесных зарядов $\mu\tau_e$ и $\mu\tau_p$ в детекторах PbVg проводится обычно на основе зависимости эффективности сбора носителей от приложенного напряжения (уравнения Гехта). Лучшая величина произведения подвижности на время жизни носителя в кристаллах PbVg была достигнута в работе [3]. Сообщалось, что были получены величины $\mu\tau_e$ и $\mu\tau_p$ для электронов и дырок, равные 10^{-3} и $3 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2\text{В}^{-1}$ соответственно. Данные результаты были получены на детекторах, изготовленных из кристаллов PbVg , выращенных методом зонной плавки. Широкому применению детекторов PbVg в настоящее время мешает сравнительно быстрая деградация во времени, особенно при комнатной температуре. В то же время недавнее сообщение Хитоми [4] о создании детекторов PbVg , стабильно работающих в течение десятков часов, позволяет надеяться на прогресс в этом направлении.

Если счетные и спектрометрические характеристики детекторов γ -излучения на основе PbVg , работающих в импульсном режиме, изучаются достаточно широко, то свойства детекторов, работающих в токовом режиме регистрации фотонного излучения, исследованы гораздо меньше. В данной работе представлены результаты исследования токового отклика детекторов PbVg к γ -излучению источника ^{137}Cs при комнатной температуре.

Пластины бромида таллия, использованные в исследованных структурах, были вырезаны из кристаллов, выращенных в разных условиях процесса (атмосфера, режимы, легирование). Изучались также примесные кристаллы, полученные легированием двухвалентным катионом Pb или Ca . Как было показано ранее [5,6], легирование кристаллов Pb позволяет повысить удельное сопротивление чистых кристаллов более чем на порядок, до величины $2 \cdot 10^{11} \text{ Ом} \cdot \text{см}$.

2. Описание исходных кристаллов и методики измерений

Кристаллы PbVg выращивались методом направленной кристаллизации по Бриджмену–Стокбаргеру. Очистку солей проводили обычными методами вакуумной дистилляции и направленной кристаллизации, выполняя их поочередно несколько раз. Рост кристаллов PbVg в данной работе проводился в вакууме и в парах брома. Различные условия роста кристаллов обуславливают особенности системы собственных дефектов в них [5], что в свою очередь должно влиять на рекомбинацию и захват носителей в детекторах PbVg . Уровень остаточного загрязнения примесями определялся масс-спектральным анализом и составлял менее 0.1–1 весовых ppm для большинства элементов. Дальнейшие операции, включающие резку, шлифовку, полировку, напыление контактов, проводили при одинаковых условиях и

[¶] E-mail: gazizov@isotop.dubna.ru

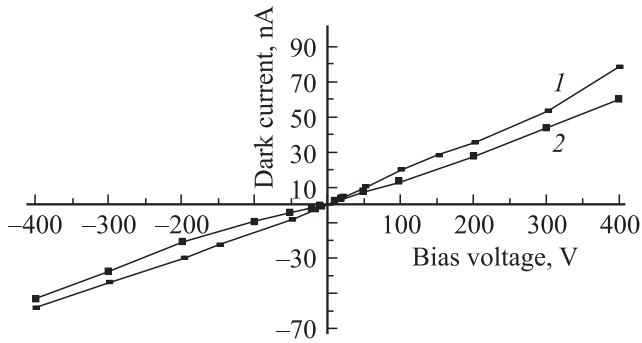


Рис. 1. Темновые токи образцов ТlBr в зависимости от напряжения. Образцы: 1 — Lis1-10(Au), 2 — Lis3-17(In). Здесь в скобках после номера образца указан материал контакта.

режимах. Пластины ТlBr имели размер приблизительно от 3×3 до 5×5 мм. Толщина кристаллов составляла 0.4–1.0 мм. Контакты формировались вакуумным напылением Au или In с двух сторон. Площадь контактов составляла от 3 до 10 мм^2 .

Также исследовались легированные кристаллы, в которые вносился Pb или Ca, эти кристаллы обозначены как Lis9 и Lis18 соответственно. Весовая доля внесенной примеси Pb в кристалл Lis9 во время роста составляло 10 млн^{-1} , а примеси Ca в кристалл Lis18 — 150 млн^{-1} . Легированные кристаллы выращивались в вакууме. Особенности получения чистых и примесных кристаллов ТlBr описаны в работе [6].

Выращенные кристаллы имели удельное сопротивление $0.8 \cdot 10^{10}$ – $2.0 \cdot 10^{11} \text{ Ом} \cdot \text{см}$. Вольт-амперные характеристики (ВАХ) измеренных образцов были линейные в диапазоне от 0 до 300 В. На рис. 1 представлены ВАХ образцов Lis1-10 и Lis3-17, выращенных в вакууме и в парах брома при остаточном давлении 10^{-2} мм. рт. ст. и $1.0 \cdot 10^{-2}$ – $3.0 \cdot 10^{-2}$ атм соответственно.

На исследуемых образцах ТlBr измерялись фототоки на стенде в поле источника γ -излучения ^{137}Cs . Мощность поглощенной дозы γ -излучения ^{137}Cs варьировалась изменением расстояния от источника до кристалла и составляла от 0.033 до 3.84 Гр/мин. Калибровка поля осуществлялась с помощью дозиметра на основе детектора, изготовленного из природного алмаза гр. ПА. Дозиметр был предварительно аттестован на вторичном эталоне поглощенной дозы в воде от источника γ -излучения ^{60}Co (РНЦ РХТ, г. Санкт-Петербург). Вместе с образцами ТlBr измерение фототока проводилось также на контрольном образце природного алмаза гр. ПА. Показание фототока на контрольном образце, находящемся в идентичных условиях с образцами ТlBr, использовалось для корректировки калибровки мощности поглощенной дозы.

Измерение тока при напряжении 10 В проводилось с помощью универсального дозиметра PTW-Unidos E. Время интегрирования тока составляло 0.5 с. Считывалось каждое двадцатое значение измеренного тока,

т.е. временной шаг измерения тока был выбран равным 10 с. Обычное время измерений образцов составляло 80 мин. Измерение зависимости фототока от напряжения в диапазоне напряжений 1–300 В на образцах ТlBr проводилось при максимальной мощности поглощенной дозы γ -излучения 3.84 Гр/мин.

3. Экспериментальные результаты

Наблюдалось медленное нарастание или спад токовых характеристик в течение минут и даже часов. При этом токи на некоторых кристаллах могли изменяться в несколько раз. Обнаружены определенные закономерности изменения токовых характеристик на кристаллах, выращенных при разных условиях. На рис. 2 показана характерная временная зависимость фототока, полученная на образце ТlBr Lis1-15 при напряжении 10 В и при облучении γ -источником ^{137}Cs мощностью дозы 3.84 Гр/мин. Нулевой отсчет времени совпадает с началом облучения образца. Кристалл Lis1 был выращен в вакууме. Как

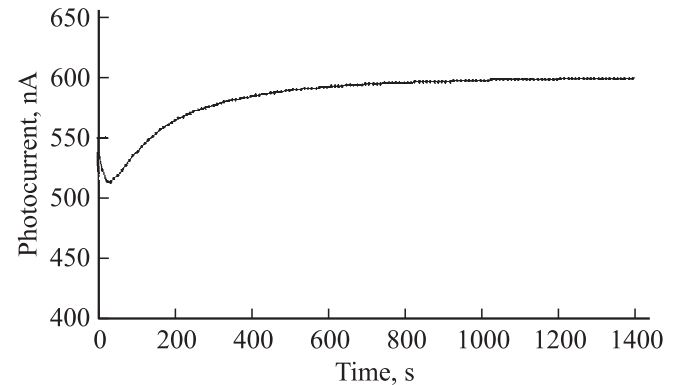


Рис. 2. Зависимость фототока образца ТlBr Lis1-15 от времени при облучении γ -источником ^{137}Cs мощностью дозы 3.84 Гр/мин.

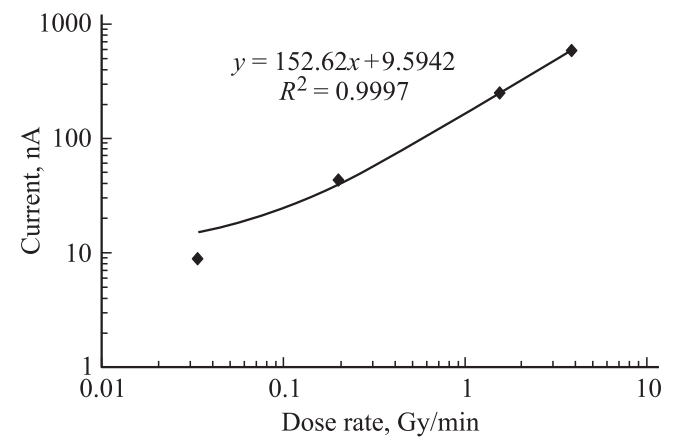


Рис. 3. Зависимость фототока образца ТlBr Lis1-15 от мощности поглощенной дозы излучения γ -источника ^{137}Cs . На рисунке указаны параметры сплошной кривой, подогнанной к экспериментальным данным.

видно из рис. 2, за непродолжительным начальным спадом фототока на образце происходит нарастание и насыщение сигнала. Подробно кинетика отклика фототока в ТlВг в поле γ -источника ^{137}Cs будет рассмотрена в другой статье.

Исследовалась зависимость тока от мощности поглощенной дозы в диапазоне от 0.033 до 3.84 Гр/мин. На исследованных чистых образцах ТlВг отклик фототока достаточно линеен. В то же время на легированных образцах линейность оказалась хуже. На рис. 3 представлена зависимость фототока от мощности дозы γ -излучения, полученная на образце Lis-15. Темновой ток образца при напряжении 10 В составлял 5 нА.

3.1. Зависимость отклика фототока детектора от напряжения

Влияние напряжения на величину фотоионизационного тока в поле γ -источника ^{137}Cs мощностью дозы 3.84 Гр/мин исследовалось на чистых и примесных образцах ТlВг. Фототок фиксировался после установления стационарного значения. На рис. 4 показана зависимость фототока образцов Lis1-13 и Lis8-5 от величины электрического поля. Кристалл Lis8 был выращен в парах брома при остаточном давлении $3.0 \cdot 10^{-2}$ атм. Зависимости фототока легированных образцов Lis9-5, Lis18-10 и Lis18-5 от величины электрического поля представлены на рис. 5. Отклик тока облучаемых образцов близок к линейному при слабых электрических полях. При увеличении электрического поля более $5 \cdot 10^2$ В/см токовые зависимости отклоняются от линейного вида и в некоторых случаях могут иметь тенденцию к насыщению. Такое поведение было более свойственно исследованным чистым кристаллам ТlВг. Это ясно видно на зависимости тока для образца Lis8-5.

При очень слабых электрических полях (менее 10^2 В/см) на токовых зависимостях исследованных образцов, вырезанных из чистых кристаллов Lis1 и Lis8, видно отклонение от линейности (рис. 4). На примесных образцах ТlВг такой закономерности обнаружено не было.

Рассмотрим установившийся фототок в исследованных образцах ТlВг, возникающий в результате дрейфа неравновесных носителей заряда при облучении образцов. Предполагаем, что параметры дрейфа и захвата носителей на ловушки не изменяются внутри кристалла и во времени. Считаем, что при облучении образцов ТlВг γ -квантами источника ^{137}Cs происходит квазиоднородное поглощение ионизирующего излучения в объеме. Электрическое поле в кристалле предполагаем однородным. Насыщение скорости носителей тока не происходит, поскольку электрические поля, при которых измерялись кристаллы, сравнительно невелики. В слабых электрических полях ($\mu\tau E \ll L$) справедливо следующее уравнение для фототока в полупроводнике

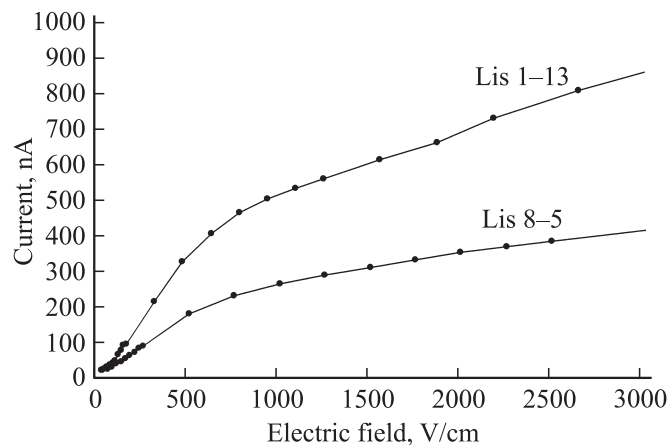


Рис. 4. Фототок образцов ТlВг Lis1-13 и Lis8-5 в зависимости от напряженности электрического поля при облучении γ -источником ^{137}Cs мощностью дозы 3.84 Гр/мин.

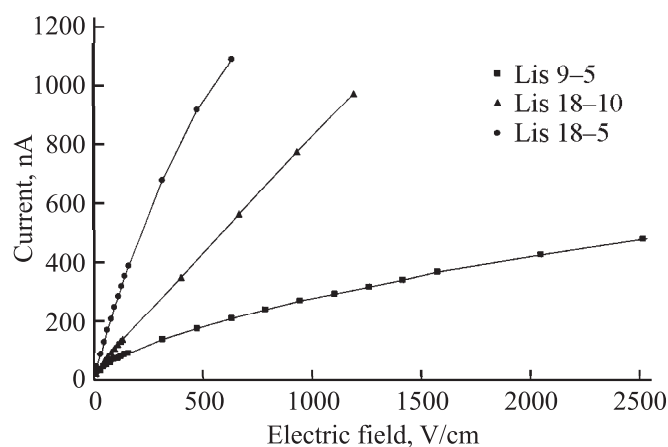


Рис. 5. Фототок образцов Lis9-5, Lis18-10 и Lis18-5 в зависимости от напряженности электрического поля при облучении γ -источником ^{137}Cs мощностью дозы 3.84 Гр/мин.

с омическими контактами [7]:

$$I = eGV \frac{(\mu_n \tau_n + \mu_p \tau_p)E}{L}, \quad (1)$$

где G — темп генерации электронно-дырочных пар в объеме образца, V и L — объем и толщина образца соответственно, E — электрическое поле в образце, τ_n и τ_p — время жизни свободных электронов и дырок соответственно, μ_n и μ_p — подвижности свободных электронов и дырок соответственно.

На величину установившегося фототока в полупроводнике и, в частности, на зависимость фототока от электрического поля большое влияние оказывают контакты к полупроводнику и захват носителей.

ВАХ исследованных образцов ТlВг была линейной (рис. 1). Контакты к ТlВг, по-видимому, близки к омическим. Омичность золотых контактов к ТlВг подтверждается также литературными данными [8].

Поскольку контакты на исследованных образцах ТlBr имеют характеристики, близкие к омическим, нелинейность фототока может быть связана с захватом носителей на глубокие уровни. При облучении неравновесные дырки захватываются глубокими центрами. Для компенсации заряда из контактов поступают электроны, обуславливая преимущественно электронный фототок в кристаллах ТlBr. При больших электрических полях время переноса дырок меньше времени захвата дырок на центры. Доля электронного тока уменьшается, приводя к отклонению фототока от линейной зависимости. Аналогичная ситуация имеет место в кристаллах CdTe, легированных In или Cl [9].

Центры захвата и рекомбинации в ТlBr связаны главным образом с собственными дефектами и различными комплексами с их участием. Глубокие дырочные уровни, которые влияют на насыщение фототока в чистых кристаллах ТlBr, по-видимому, связаны с катионными вакансиями V_c^- . В статье [10] утверждается, что вакансии V_c^- ответственны за рекомбинацию носителей в ТlBr при низких температурах. В примесных кристаллах ТlBr катионная вакансия может входить в состав комплекса $\{Me^{+2}V_c^-\}^0$, где Me^{+2} — двухвалентный катион металла, компенсированный катионной вакансией. Сечение захвата дырки вакансией при этом уменьшается. Это должно приводить к более линейной зависимости фототока от напряжения на исследованных примесных кристаллах.

Поведение фототока в чистых кристаллах ТlBr в слабых электрических полях (менее 10^2 В/см) может свидетельствовать о наличии довольно большого количества мелких электронных уровней прилипания и рекомбинации, расположенных вблизи поверхности. В работе [11] было показано, что фототок при малых электрических полях отклоняется от линейной зависимости из-за рекомбинации на поверхностных дефектах высокой плотности. В чистых кристаллах ТlBr присутствуют большое количество анионных вакансий и межузельных ионов Tl_i^+ , которые, видимо, ведут себя как мелкие уровни прилипания для электронов [5]. В легированных кристаллах количество таких дефектов гораздо меньше.

3.2. Оценка параметров переноса носителей тока

Для оценки $\mu\tau$ фототок в области линейной зависимости от электрического поля можно представить в следующем виде:

$$I = eS\rho \frac{P_z}{\varepsilon} \mu\tau E, \quad (2)$$

где P_z — поглощенная доза в образце ТlBr, S — площадь контактов образца, ρ — плотность ТlBr, ε — энергия образования электронно-дырочных пар, $\mu\tau = \mu_n\tau_n + \mu_p\tau_p$.

Мощность поглощенной дозы в ТlBr рассчитывалась исходя из выражения, определяющего отношение поглощенных доз в ТlBr и в воде, пренебрегая ослаблением

γ -излучения в исследуемых образцах [12]:

$$\frac{P_z}{P_w} = \frac{\mu_{tz}}{\mu_{tw}}, \quad (3)$$

где μ_{tw} и μ_{tz} — коэффициенты передачи энергии γ -излучения ^{137}Cs в воде и в ТlBr соответственно, P_w — поглощенная доза γ -излучения в воде.

Расчет эффективной величины $\mu\tau = \mu_n\tau_n + \mu_p\tau_p$ производился по измеренным величинам установившегося фототока при напряжении 10 В. Коэффициенты передачи энергии в воде и в ТlBr определялись по методу [13]. Для кристаллов Lis1 и Lis8 величина $\mu\tau$ оказалась равной $4.3 \cdot 10^{-4}$ и $6.4 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2\text{В}^{-1}$ соответственно. Для исследованных примесных кристаллов, легированных двухвалентным катионом, величина $\mu\tau$ составила $(4-9) \cdot 10^{-5} \text{ см}^2\text{В}^{-1}$. Подвижность электронов в ТlBr при комнатной температуре почти на порядок превосходит подвижность дырок: $\mu_n = 30 \text{ см}^2\text{В}^{-1}\text{с}^{-1}$ и $\mu_p = 4 \text{ см}^2\text{В}^{-1}\text{с}^{-1}$ [1]. По-видимому, рассчитанные выше величины $\mu\tau$ определяются в основном электронным вкладом.

4. Заключение

Измерения фотоионизационного тока свидетельствуют о высокой токовой чувствительности кристаллов ТlBr в полях γ -источника ^{137}Cs . Одним из параметров, определяющих токовую чувствительность детекторов, является величина произведения подвижности на время жизни носителей заряда. В кристаллах Lis1, выращенных в вакууме, величина $\mu\tau$ оказалась равной $4.3 \cdot 10^{-4} \text{ см}^2\text{В}^{-1}$.

При регистрации высокоинтенсивных потоков рентгеновского и γ -излучения, когда детекторы в импульсном режиме их работы могут оказаться не способными детектировать высокий поток излучения, использование таких детекторов в токовом режиме может быть полезным. Высокая токовая чувствительность кристаллов ТlBr к рентгеновскому и γ -излучению при этом способна потенциально облегчить детектирование сигнала.

Сильная зависимость чувствительности исследованных кристаллов от среды их выращивания предполагает влияние собственных дефектов на фототок в образцах ТlBr. Зависимость фототока от напряжения свидетельствует о наличии в чистых кристаллах ТlBr глубоких дырочных ловушек. Показано, что на захват и рекомбинацию носителей в ТlBr оказывают большое влияние катионные вакансии V_c^- и комплексы с их участием, такие как $\{Me^{+2}V_c^-\}^0$.

Показано, что существенным недостатком, ограничивающим применение исследованных кристаллов ТlBr в области радиационной дозиметрии в настоящий момент, является временная нестабильность кристаллов и зависимость отклика тока детекторов от предыстории нахождения их в электрических и радиационных полях.

Отклик тока исследованных кристаллов при облучении источником γ -квантов ^{137}Cs характеризуется в целом сравнительно невысокой линейностью дозовой характеристики по сравнению с применяемыми в клинической дозиметрии твердотельными детекторами из природного и синтетического алмаза [14].

Исследования выполнены в рамках проекта МНТЦ № 2728.

Авторы выражают благодарность М.С. Кузнецову и И.С. Лисицкому за помощь в изготовлении кристаллов и подготовке образцов.

Список литературы

- [1] A. Owens, A. Peacock. NIM A, **531**, 18 (2004).
- [2] В.М. Залетин, И.П. Барков, И.М. Газизов, В.С.Хрунов, И.С. Лисицкий, М.С. Кузнецов. Атом. энергия, **106** (4), 214 (2009).
- [3] T. Onodera, K. Hitomi, T. Shoji, Y. Hiratate, H. Kitaguchi. IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-52, 1999 (2005).
- [4] K. Hitomi, T. Shoji, Y. Niizeki. NIM A, **585**, 102 (2008).
- [5] И.М. Газизов, М.С. Кузнецов, И.С. Лисицкий, В.М. Залетин. Направлена на публикацию.
- [6] И.С. Лисицкий, Н.Б. Смирнов, М.С. Кузнецов, А.В. Говорков, Е.А. Кожухова, В.М. Залетин. В сб. „Гиредмет“, 2007 (М., ЗАО „Принт“, 2007) с. 130.
- [7] Р. Бьюб. *Фотопроводимость твердых тел* (М., ИИЛ, 1962) с. 559.
- [8] K. Hitomi, T. Onodera, T. Shoji. NIM A, **579**, 153 (2007).
- [9] J. Franc, R. Grill, E. Belas, P. Hlidek, J. Kubat, P. Hoschl. IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-52, 1937 (2005).
- [10] L. Grigorjeva, D. Millers. NIM B, **191**, 134 (2002).
- [11] A. Many. J. Phys. Chem. Sol., **26**, 575 (1965).
- [12] А.Н. Кронгауз, В.К. Ляпидевский, Ю.Б. Мандельцвайг, В.Н. Подгорный. *Полупроводниковые детекторы в дозиметрии ионизирующих излучений*. (М., Атомиздат, 1973) с. 180.
- [13] О.Ф. Немец, Ю.В. Гофман. *Справочник по ядерной физике* (Киев, Наук. думка, 1975).
- [14] A. Brambilla, P. Bergonzo, F. Foulon, C. Jany, T. Pochet. NIM A, **380**, 446 (1996).

Редактор Т.А. Полянская

Current response of TlBr detector to ^{137}Cs γ -radiation

I.M. Gazizov, V.M. Zaletin*, V.M. Kukushkin, V.S. Khrunov

Institute of Physical-Technical Problems,
141980 Dubna, Russia
* Dubna University,
141980 Dubna, Russia

Abstract The current response of pure and doped TlBr detectors to ^{137}Cs γ -ray in dose rate range 0.033–3.84 Gy/min and voltage range 1–300 V was studied. The crystals grown by Bridgman–Stockbarger directional solidification technique. Mass fraction of Pb or Ca introduced in the doped TlBr crystals was 1–10 ppm and 150 ppm respectively. The current response of pure TlBr samples was fairly linear over two decades. The deep hole levels associated with cation vacancies V_c^- determined dependence of the current response on voltage in the high-voltage electric fields. The parameters of the carriers transport $\mu\tau$ have determined. The TlBr crystals grown in vacuum and in the vapor of bromine have exhibited large mobility-life time product of $4.3 \cdot 10^{-4}$ and $6.4 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2\text{V}^{-1}$ respectively. The value $\mu\tau$ of $(4-9) \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2\text{V}^{-1}$ have been measured for crystals doped by divalent cations.