

СРАВНИТЕЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ МОНОКРИСТАЛЛОВ LiInSe_2 ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ

© 2022 г. О. Даулбаев^{1,2}, Л. И. Исаенко^{3,4}, А. А. Богдзель¹, С. И. Лобанов^{3,4}, П. Г. Криницын^{3,4},
В. М. Милков¹, А. В. Белушкин^{1,5,6,*}

¹ Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, Россия

² Институт ядерной физики, Алматы, Казахстан

³ Новосибирский государственный университет, Новосибирск, Россия

⁴ Институт геологии и минералогии СО РАН, Новосибирск, Россия

⁵ Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, Россия

⁶ Институт физики, Казанский федеральный университет, Казань, Россия

*E-mail: belushk@nf.jinr.ru

Поступила в редакцию 22.11.2021 г.

После доработки 09.12.2021 г.

Принята к публикации 09.12.2021 г.

Проведены исследования двух монокристаллов LiInSe_2 , выращенных при различных условиях. Исследованы сравнительные характеристики указанных кристаллов для регистрации нейтронов методами регистрации сцинтилляции вследствие захвата нейтрона ядрами лития и последующего испускания заряженных частиц, а также традиционным методом съема заряда с поверхностей монокристаллов за счет той же ядерной реакции. Представлены выводы о перспективах использования монокристаллов LiInSe_2 для различных типов нейтронных детекторов.

DOI: 10.31857/S0023476122030067

ВВЕДЕНИЕ

Нейтроны, будучи частицами с нулевым электрическим зарядом, при взаимодействии с веществом не вызывают непосредственной ионизации. Данный факт делает их гораздо более сложным типом излучения для регистрации, мониторинга и точного определения характеристик. Механизм регистрации тепловых (с энергиями менее 1 эВ) нейтронов является непрямым и основан на их взаимодействии с ядрами, обладающими большими сечениями захвата нейтронов. В результате этого взаимодействия рождаются вторичные ионизирующие частицы, которые могут быть зарегистрированы по ионизации или по вызываемой ими сцинтилляции. На сегодня для регистрации тепловых нейтронов в качестве их конвертеров в ионизирующие частицы наиболее широко используются ^3He , ^6Li и ^{10}B , чьи сечения захвата нейтронов с энергией 25 мэВ составляют 5300, 940 и 3800 барн соответственно ($1 \text{ барн} = 10^{-24} \text{ см}^2$).

Качество нейтронного детектора определяется его эффективностью регистрации нейтронов, низкой чувствительностью к гамма-излучению, пространственным разрешением и минимальным мертвым временем (максимально возмож-

ной скоростью счета нейтронов). Относительная значимость каждой из указанных характеристик зависит от конкретных задач, в которых используется детектор. В ряде случаев играют роль и практические аспекты использования детектора, такие как его стоимость, отсутствие необходимости (или редкая необходимость) профилактического обслуживания, долговременная стабильность характеристик в различных режимах эксплуатации, низкое энергопотребление, простота использования и компактность детектора. В зависимости от предъявляемых требований к настоящему времени разработан достаточно обширный, но тем не менее намного меньший, чем для регистрации гамма-излучения и заряженных частиц, набор различных типов нейтронных детекторов.

Полупроводниковые детекторы нейтронов привлекают специалистов возможностью обеспечить высокую скорость счета, низкой чувствительностью к гамма-излучению и особенно возможностью добиться сверхвысокого пространственного разрешения (определения координат попадания нейтронов в детектор), что исключительно актуально для создания новых типов приборов для нейтронной радиографии и томографии. Полупроводниковые детекторы могут быть

исключительно компактными (в тех применениях, где это необходимо), работают при достаточно низких приложенных напряжениях, стабильны и могут быть интегрированы в систему сбора данных, обеспечивая регистрацию данных в режиме онлайн. Нерешенная до сих пор проблема касается низкой эффективности регистрации нейтронов. Подходы к решению проблем, связанных с использованием полупроводников для создания оптимизированных детекторов нейтронов, можно найти, например, в [1].

Типичный полупроводниковый детектор состоит из тонкого слоя поглощающего нейтроны материала, нанесенного на полупроводниковый диод. Обычно в качестве поглощающего слоя используют ^{10}B или ^6LiF благодаря их большому сечению поглощения тепловых нейтронов, стабильности характеристик и типу генерируемых в результате реакции захвата нейтронов ионизирующих частиц. Регистрация нейтронов происходит, когда генерируемые продукты ядерной реакции достигают активной области полупроводника, формируя электрон-дырочные пары, обеспечивающие электрический ток к электродам на поверхности детектора. Для обеспечения оптимальной эффективности регистрации нейтронов толщина поглощающего нейтроны слоя материала должна быть достаточно большой, чтобы максимальное количество нейтронов было захвачено ядрами материала. Но при этом толщина должна быть и достаточно малой, чтобы продукты ядерной реакции могли достичь активной области полупроводника. Для стандартного плоского кремниевого диода максимальная эффективность регистрации нейтронов составляет $\sim 5\%$ при однослойном покрытии [2]. При использовании двойного поглощающего слоя ($^6\text{Li}/^{10}\text{B}$) и оптимизации геометрии детектора эффективность может быть увеличена до 25% [2]. Ключевой проблемой таких детекторов остается потеря эффективности регистрации нейтронов при увеличении толщины поглощающего нейтроны слоя, несмотря на рост полного числа актов поглощения в слое и числа заряженных продуктов ядерной реакции.

Альтернативный подход для получения высокого пространственного разрешения в сочетании с высокой эффективностью регистрации состоит в использовании гомогенного полупроводникового материала, в котором поглощающие нейтроны ядра являются элементами структуры кристалла. В этом случае поглощение нейтронов и их конверсия в ионизирующие продукты ядерной реакции, которые и регистрируются в итоге, происходит во всем объеме полупроводника. Это позволяет существенно увеличить эффективность регистрации нейтронов, сохраняя все другие преимущества полупроводникового детектора.

В последние годы большое внимание уделяется литийсодержащим полупроводникам, среди которых монокристаллы $^6\text{LiInSe}_2$ рассматриваются как один из наиболее перспективных материалов. Данный полупроводник обладает подходящей шириной запрещенной зоны (~ 2.9 эВ при комнатной температуре) и хорошими характеристиками транспорта электронов [3].

Регистрация нейтронов кристаллом $^6\text{LiInSe}_2$ базируется на ядерной реакции $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$, и большое энерговыделение в данной реакции (~ 4.78 МэВ) потенциально может обеспечить исключительно хорошую дискриминацию сигналов от нейтронов и гамма-квантов. Более того, средняя длина пробега тепловых нейтронов в $^6\text{LiInSe}_2$ составляет 920 мкм, что позволяет обеспечить высокую эффективность регистрации нейтронов (более 50%) при достаточно малой толщине монокристаллов, что дополнительно снижает чувствительность к гамма-излучению.

Цель данной работы — сравнительное исследование применимости монокристаллов LiInSe_2 для регистрации тепловых нейтронов в качестве сцинтилляционного и полупроводникового детекторов и оценка эффективности регистрации нейтронов.

ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ МОНОКРИСТАЛЛЫ И МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЙ

Ввиду отсутствия возможности использования для выращивания монокристаллов изотопа ^6Li , имеющего максимальное сечение захвата нейтронов, в данной работе использовалась естественная смесь изотопов, в которой концентрация ^6Li составляет 7.5% . В [4] теоретическая эффективность регистрации нейтронов с длиной волны ~ 4 Å оценивалась примерно в 60% для обогащенных до 95% изотопом ^6Li монокристаллов $^6\text{LiInSe}_2$. Экспериментальные значения эффективности были получены в диапазоне $35\text{--}55\%$. Соответственно, для использованных в настоящей работе кристаллов можно ожидать максимальную теоретическую эффективность регистрации нейтронов на уровне около 1% для длин волн нейтронов 1 Å и около 3.5% для 4 Å. С учетом максвелловского распределения нейтронов по длинам волн после замедлителя с максимумом ~ 1.8 Å ожидаемая эффективность регистрации может быть в диапазоне $1.5\text{--}2\%$.

Монокристаллы LiInSe_2 выращивали в вертикальной модификации метода Бриджмена—Стокбаргера [5]. Структура кристалла относится к типу $\beta\text{-NaFeO}_2$ (пр. гр. $Pna2_1$ или C_{2v}^9) [6].

Из выращенных кристаллов были вырезаны две пластинки размером 5×5 мм² и толщиной 1.5 мм. Одна из пластинок не подвергалась допол-

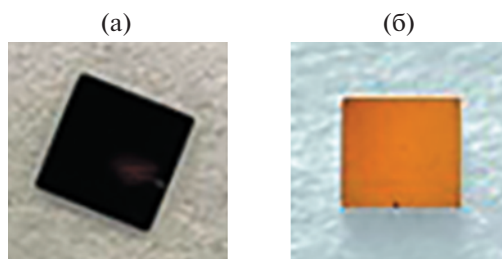


Рис. 1. Кристаллы LiInSe_2 : а – с областями красного и зеленого цвета, б – желтого цвета.

нительной обработке и имела неоднородную окраску с областями зеленоватого и светло-красного цвета, аналогично кристаллу, исследованному в [7]. Вторую отжигали в атмосфере селена при температуре, близкой к 800°C , что приводило к однородной темно-желтой окраске. Желтый кристалл оказался оптически прозрачным в видимом свете и очень схожим с кристаллом, изученным в [8]. В [9] показано, что вариации цвета связаны с появлением точечных дефектов в кристалле. Ширина запрещенной зоны различна для выращенных и отожженных образцов LiInSe_2 в зависимости от типа и концентрации точечных дефектов. Фотографии кристаллов приведены на рис. 1.

Аппаратура и сцинтилляционный метод регистрации. Для исследования чувствительности кристаллов LiInSe_2 к нейтронам использовали систему регистрации, представленную на рис. 2.

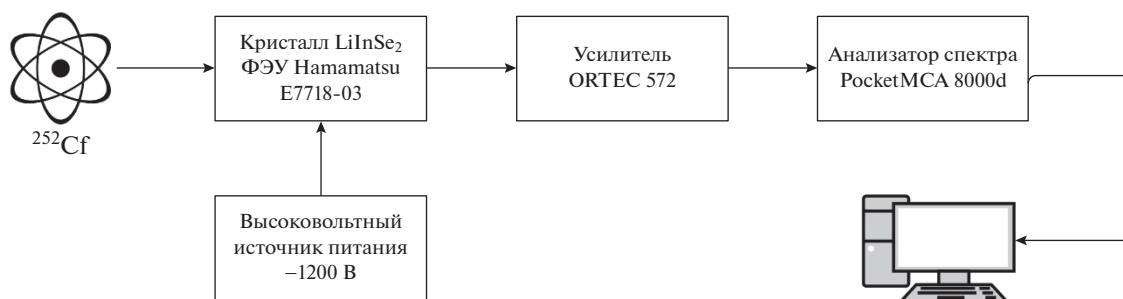


Рис. 2. Схема системы сцинтилляционного метода регистрации.

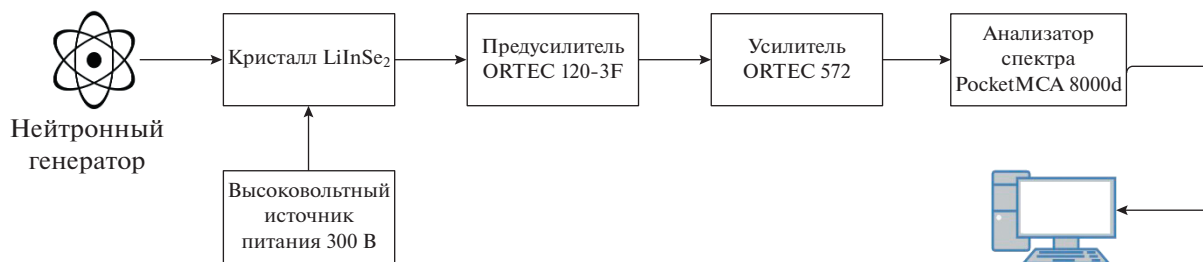


Рис. 3. Схема зарядового метода регистрации.

Кристаллы помещали на окно фотоэлектронного умножителя Hamamatsu E7718-03. Сцинтилляционный отклик, преобразованный в электрический сигнал, формировался усилителем Ortec 572 и далее подавался на амплитудный анализатор. Накопленные данные считывали по интерфейсу USB-2 в память компьютера.

Измерения проводили при комнатной температуре в течение 2 ч. Источник нейтронов ^{252}Cf помещали в шарообразный полиэтиленовый замедлитель диаметром 30 см, расстояние от кристалла до замедлителя 2 см. Дополнительно были проведены измерения с использованием свинцового и кадмиевого фильтра, так как источник ^{252}Cf обладает большим гамма-фоном.

Аппаратура и зарядовый метод регистрации. Для зарядового метода регистрации использована система, представленная на рис. 3. На золотое покрытие кристалла наклеены электрические контакты с помощью клея высокой электропроводности КОНТАКТОЛ (рис. 4), выход подключен к зарядочувствительному предусилителю ORTEC 120-3F. Выходной сигнал формируется усилителем ORTEC 572 и подается на анализатор, накопленные спектры сохраняются в памяти компьютера.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Сцинтилляционные характеристики. Амплитудные спектры желтого и красного кристаллов

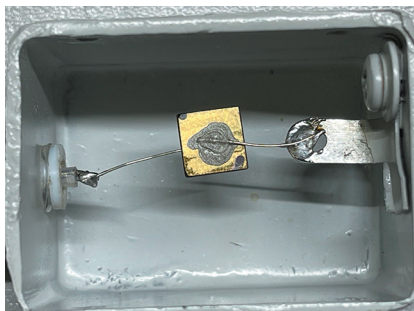


Рис. 4. Кристалл с золотым покрытием с наклеенными электрическими контактами.

LiInSe_2 , полученные при облучении источником нейтронов ^{252}Cf , представлены на рис. 5.

Амплитудные спектры с использованием свинцового и кадмиевого фильтров представлены на рис. 6. Кадмиевый фильтр поглощает тепловые нейтроны, гамма-фон при этом регистрируется. Свинцовый фильтр ослабляет гамма-излучение и пропускает нейтроны. Полученные данные согласуются с результатами [10], где применяли аналогичный источник ^{252}Cf . Из рис. 6 видно, что амплитудные спектры с кадмиевым и свинцовым фильтрами почти не различаются. Это означает, что использовать амплитудную дискриминацию для подавления регистрации гамма-квантов затруднительно для сцинтилляционного метода. Следует учитывать, что в представленных спектрах присутствует гамма-излучение от кадмиевого фильтра при поглощении нейтронов, а также доля гамма-квантов от активации In в кристалле при облучении.

Зарядовый метод регистрации. На рис. 7 представлены амплитудные спектры, полученные при измерении зарядовым методом. Ввиду малой эффективности регистрации нейтронов изучаемыми кристаллами источник нейтронов ^{252}Cf ($10^5 \text{ н}/(\text{см}^2 \text{ с})$) не обеспечивал необходимую скорость набора спектра. Поэтому использовали нейтронный генератор ИНГ-07 с энергией нейтронов 2.45 МэВ и интенсивностью $10^7 \text{ н}/(\text{см}^2 \text{ с})$ [11]. Для получения тепловых нейтронов применяли плоский полиэтиленовый замедлитель толщиной 10 см. Расстояние от замедлителя до кристалла 3 см. Желтый кристалл показал заметно более высокую эффективность регистрации нейтронов по сравнению с красным.

На красном кристалле проведены измерения амплитудных и времяпролетных спектров на канале 6А [12] импульсного реактора ИБР-2 [13]. Результаты показаны рис. 8.

СРАВНИТЕЛЬНОЕ ИЗМЕРЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ РЕГИСТРАЦИИ НЕЙТРОНОВ

Для оценки эффективности регистрации нейтронов кристаллами использовали газонаполненный гелиевый нейтронный детектор “Гелий-18/190-8.0/ОЦ” [14], эффективность регистрации которого оценивалась в 80%. Измерения проводили с нейтронным генератором, обеспечивающим отсутствие гамма-фона и более высокий нейтронный поток. Перед гелиевым детектором устанавливали кадмиевый фильтр с вырезанным окном размером $5 \times 5 \text{ мм}^2$, равным площади изучаемых кристаллов. Измерения проводили одновременно для кристаллов и гелиевой трубки.

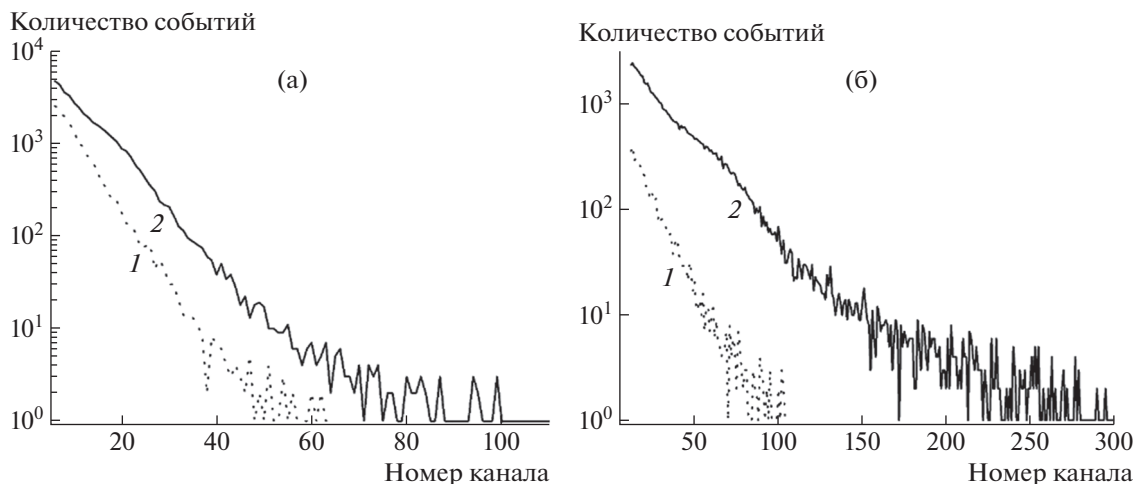


Рис. 5. Амплитудные спектры красного (а) и желтого (б) кристаллов (1 – фон, 2 – источник ^{252}Cf ; время измерения – 3600 с, напряжение – 1200 В, усиление – 1500, время формирования – 6 мкс).

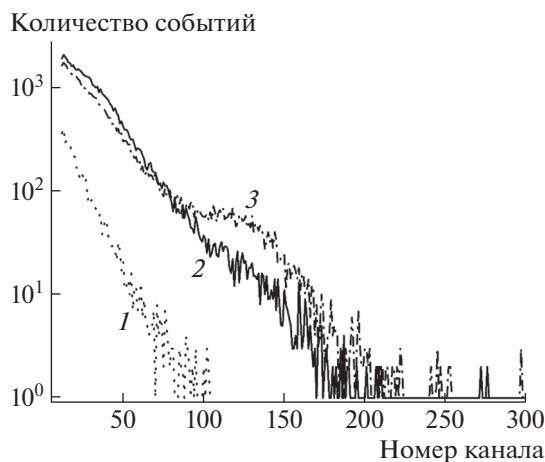


Рис. 6. Амплитудные спектры кристалла желтого цвета, полученные с использованием кадмиевого и свинцового фильтров (1 – фон, 2 – источник ^{252}Cf с кадмиевым фильтром перед кристаллом, 3 – источник ^{252}Cf со свинцовым фильтром перед кристаллом; время измерения – 3600 с, высокое напряжение – 1200 В, усиление – 1500, время формирования – 6 мкс).

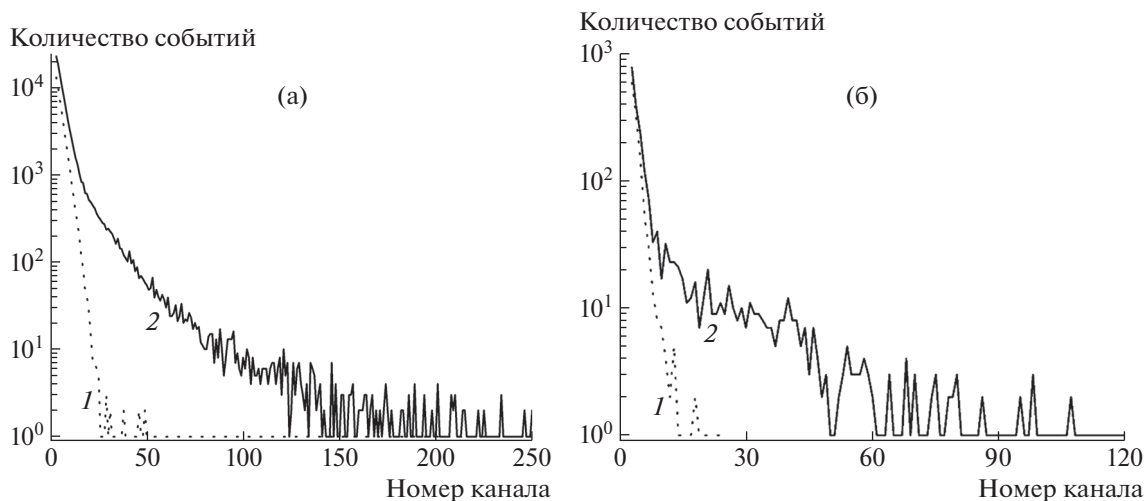


Рис. 7. Амплитудные спектры желтого (а) и красного (б) кристаллов (1 – фон, 2 – нейтронный генератор; время измерения – 3600 с, высокое напряжение – 300 В, усиление – 160, время формирования – 6 мкс).

Полученная в результате эффективность регистрации нейтронов для желтого и красного кристаллов составила 0.7 и 0.2% соответственно.

ВЫВОДЫ

Проведенные исследования подтверждают перспективность использования желтого и красного кристаллов LiInSe_2 в качестве детекторов нейтронов. Вместе с тем сравнительный анализ указывает на то, что желтый кристалл имеет лучшие характеристики, чем красный, что определено условиями выращивания кристаллов и более высокой степенью совершенства желтого кристалла. Так, сравнительная эффективность реги-

страции нейтронов для желтого и красного кристаллов составляет 0.7 и 0.2% соответственно. Расхождение между оценочной величиной эффективности регистрации нейтронов 1.5–2% и полученными экспериментально результатами является удовлетворительным. На таком низком уровне эффективности, что также означает невысокую статистическую точность данных, трудно ожидать более точного согласия. Одной из возможных причин низкой эффективности является недостаточное качество электрических контактов кристалла, в данном случае созданных с использованием токопроводящего клея. В дальнейшей работе для создания контактов планируется применять ультразвуковую сварку.

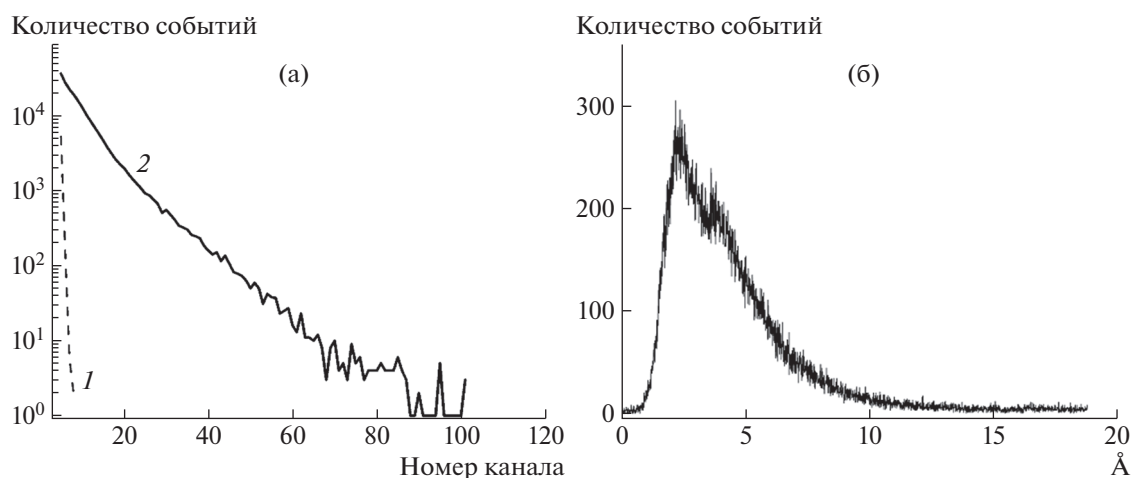


Рис. 8. Спектры красного кристалла, полученные на реакторе ИБР-2: а – амплитудные спектры (1 – фон, 2 – нейтроны ИБР-2, канал 6А, время измерения – 600 с, высокое напряжение – 300 В, усиление – 250, время формирования – 6 мкс), б – времяпролетный спектр (ИБР-2, канал 6А, время измерения – 1000 с).

Для повышения эффективности регистрации нейтронов планируется исследование кристаллов LiInSe_2 , выращенных с использованием изотопа ^6Li высокого уровня обогащения. Также необходимо провести оптимизацию процессов выращивания кристаллов высокой степени совершенства, однородной окраски и с высокой подвижностью носителей заряда.

Рост кристаллов выполнен в рамках государственного задания ИГМ СО РАН. Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, соглашение № 075-10-2021-115 от 13 октября 2021 г. (внутренний номер 15.СИН.21.0021).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Nikolic R.J., Cheung C.L., Reinhardt C.E., Wang T.F.* // Future of Semiconductor Based Thermal Neutron Detectors. 2006. Barry Chin Li Cheung Publications. 14. <https://digitalcommons.unl.edu/chemistrycheung/14>
2. *McGregor D.S., Hammig M.D., Yang Y.-H. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 2003. V. 500. № 1–3. P. 272. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(02\)02078-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(02)02078-8)
3. *Tupitsyn E., Bhattacharya P., Rowett E. et al.* // Appl. Phys. Lett. 2012. V. 101. P. 202101. <https://doi.org/10.1063/1.4762002>
4. *Herrera E., Hamm D., Wiggins B. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A. 2016. V. 833. P. 142. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2016.07.035>
5. *Isaenko L., Yelisseyev A., Lobanov S. et al.* // J. Appl. Phys. 2002. V. 91. № 12. P. 9475. <https://doi.org/10.1063/1.1478139>
6. *Hönle W., Kühn G., Neumann H.Z.* // Z. Anorg. Allg. Chem. 1986. B. 532. S. 150. <https://doi.org/10.1002/zaac.19865320121>
7. *Lukosi E., Onken D., Hamm D. et al.* // J. Lumin. 2019. V. 205. P. 346. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2018.09.023>
8. *Lukosi E.D., Herrera E.H., Hamm D.S. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A. 2017. V. 872. P. 181. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.08.028>
9. *Siemek K., Yelisseyev A.P., Horodek P. et al.* // Opt. Mater. 2020. V. 109. P. 110202. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2020.110262>
10. *Bell J.E., Stowe A.C., Burger A., Stassun K.G.* // Opt. Mater. 2021. V. 112. P. 110798. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2020.110798>
11. http://www.vniia.ru/production/incl/prospekt_element.pdf
12. *Балагуров А.М., Бескровный А.И., Журавлев В.В. и др.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтр. исследования. 2016. № 5. С. 3. <https://doi.org/10.7868/S0207352816050048>
13. *Драгунов Ю.Г., Третьяков И.Т., Лопаткин А.В. и др.* // Атомная энергия. 2012. Т. 113. Вып. 1. С. 29. <https://doi.org/10.1007/S10512-012-9591-9>
14. <https://consensus-group.ru/katalog/neutron-counters/proportional/63-gelij-18190-80oc>