

文章编号: 0253-2239(2009)11-3072-06

CdZnTe 平面探测器对低能 X/ γ 射线的光谱响应

徐亚东^{1,2} 介万奇¹ 查刚强¹ 高俊宁¹ 王涛¹ 傅莉¹ Paul Sellin²

(¹ 西北工业大学材料学院, 陕西 西安 710072
² Department of Physics, University of Surrey, Guildford, GU2 7XH, UK)

摘要 基于 3 片不同条件下生长的 CdZnTe 晶片制备出平面电极 (Planar) 探测器 CZT1、CZT2 及 CZT3。分析室温下 3 个探测器在不同场强作用下对低能 X/ γ 射线的光谱响应, 并结合相应晶体材料的载流子迁移特性和掺杂剂的浓度以及存在状态, 归纳影响探测器分辨率的原因。掺杂 In 浓度高的探测器 CZT1, 由于材料中存在的深能级缺陷 Cd²⁺, 作为电子的俘获中心, 影响了载流子的收集效率, 进而降低了探测器的能量分辨率; 掺杂 In 浓度低的探测器 CZT2 对不同能量 X/ γ 射线均具有较好的能量分辨率; 而 Al 掺杂探测器 CZT3, 由于 Al 间隙原子 Al_i 的存在作为电子的散射中心, 最终影响了收集效率及能量分辨率。

关键词 CdZnTe 平面探测器; X/ γ 射线; 能量分辨率; 载流子迁移特性; 散射

中图分类号 TN304 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20092911.3072

A Study on the Low Energy X/ γ -ray Spectral Response of CdZnTe Planar Detectors

Xu Yadong^{1,2} Jie Wanqi¹ Zha Gangqiang¹ Gao Junning¹ Wang Tao¹

Fu li¹ Paul Sellin²

(¹ School of Material Science, Northwestern Polytechnical University, Xi'an, Shaanxi 710072, China)
² Department of Physics, University of Surrey, Guildford, GU2 7XH, UK)

Abstract Three CdZnTe planar detectors, named CZT1, CZT2 and CZT3 respectively, were fabricated based on the as-grown CdZnTe wafers grown with different dopant conditions. The low energy X/ γ -ray spectral responses of the detectors were obtained under various electrical field strengths at room temperature. The energy resolution of the detectors was evaluated by combining the charge transport properties of the materials and the dopant behaviors. The deep level trapping centers of Cd²⁺ have been tentatively recognized as the electron trapping centers, hence deteriorating the resolution. Low In concentration doped CZT2 exhibits excellent X/ γ -ray spectral resolution and charge transport properties, which implies a lower density of trapping centers in the crystal. In Al doped CZT3, however, a critically uncompleted charge carrier collection and in turn the reduced energy resolution is likely attributed to the scattering of the ionized aluminum interstitial Al_i.

Key words CdZnTe planar detector; X/ γ -ray; energy resolution; charge transport property; scattering

1 引 言

CdZnTe (CZT) 探测器因其在室温下对 X/ γ 射线具有较高的空间和能量分辨率, 且响应速度快、灵敏度高, 而成为化合物半导体探测器研究人员的关

注焦点^[1~3]。其优异的探测性能, 使得 CZT 探测器能应用于安全检查、医学诊断、工业监控和天体物理等方面的研究, 成为替代目前广泛使用的传统闪烁体探测器的升级换代产品^[4~7]。本实验采用改进的

收稿日期: 2008-12-20; 收到修改稿日期: 2009-02-19

基金项目: 国家自然科学基金(50772091)和教育部“新世纪人才支持计划”(NCET-07-0689)资助课题。

作者简介: 徐亚东(1982-), 男, 博士研究生, 主要从事 CdZnTe 晶体性能表征及探测器的制备等方面研究。

E-mail: dd220@mail.nwpu.edu.cn

导师简介: 介万奇(1959-), 教授, 主要从事 II-VI 族化合物光电子材料及其晶体生长技术, 金属凝固过程基本原理与制造技术等方面的研究。E-mail: jwq@nwpu.edu.cn

垂直布里奇曼法, 获得了 Al/In 掺杂的高电阻率 ($\rho > 10^{10} \Omega \cdot \text{cm}$) CZT 晶体, 并基于生长态的 CZT 晶片制备出大面积平面 (Planar) 电极探测器, 对比分析了探测器对能量在 20~60 keV 范围内的低能 X/γ 射线的光谱响应。

2 CZT 平面探测器工作原理

一般来说, 对于结构简单的平面电极探测器 (电极尺寸较大), 在 X/γ 射线辐照下, 受激光谱的实际半峰全宽 (FWHM) 的变化量 σ_{tot}^2 , 可以采用如下公式近似表示^[8]:

$$\sigma_{\text{tot}}^2 = \sigma_{\text{f}}^2 + \sigma_{\text{el}}^2 + \sigma_{\text{c}}^2, \quad (1)$$

其中, σ_{f}^2 是由 Fano 噪声引入的峰宽, σ_{el}^2 反映了漏电流及前置放大器的噪声对收集信号的影响, σ_{c}^2 是由载流子的不完全吸收导致的本征峰宽。有研究表明^[9, 10], 造成 CZT 平面探测器载流子不完全吸收的主要原因是由于晶体中存在一定量的俘获缺陷或散射中心。本文通过结合 α 粒子能谱所测相应 CZT 晶体载流子传输特性, 着重分析掺杂浓度以及掺杂剂状态对 CZT 平面探测器载流子收集效率 (Charge Collection Efficiency, CCE) 以及能量分辨率的影响, 进而确定出合适的掺杂以及生长条件, 以制备出性能优异的探测器用 CZT 晶体。

CZT 平面探测器工作时, 原理如图 1 所示。X/γ 射线穿透 CZT 探测器表面极薄的金属电极后, 在 CZT 晶体内部感应出相应数量的电子-空穴对。在探测器外加电场的作用下, 电子和空穴将分别向探测器不同极板漂移, 进而积累形成电荷脉冲。该电荷脉冲经过前置放大器后转变成电压脉冲, 其高度和入射光子的能量成正比。这些脉冲信号再经成形

放大器整形为标准的微分脉冲, 并被再次放大。最终通过标准的计数器来识别或者用多道分析器形成入射光子的光谱曲线。

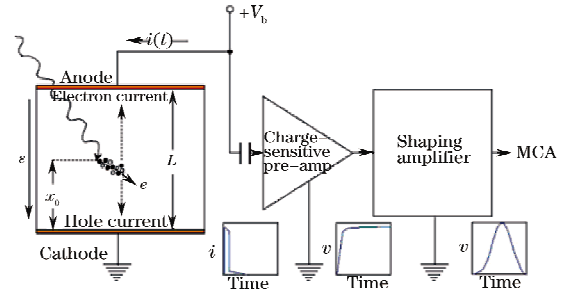


图 1 CZT 平面探测器工作原理示意图

Fig. 1 Schematic of a CZT planar detector detection system

3 CZT 平面探测器的制备及测试

实验选用 3 片生长态高电阻率 $\text{Cd}_{0.9}\text{Zn}_{0.1}\text{Te}$ 晶片, 分别命名为 CZT1, CZT2 和 CZT3, 其晶面均为 {111} 面, 取自于采用改进的垂直布里奇曼法在不同掺杂条件下生长的 3 根晶锭的中部, 具体生长工艺参考 Li 等^[11] 及 Yang 等^[12] 的研究。晶片先后经不同等级的磨料 ($3 \mu\text{m SiC}$, $0.3 \mu\text{m Al}_2\text{O}_3$, $0.05 \mu\text{m Al}_2\text{O}_3$) 水溶液机械抛光后, 经 Dektak 表面光度仪测试的表面粗糙度约为 6 nm。采用 2% 的 Br-甲醇溶液对晶片化学抛光 1 min, 之后氮气吹干, 然后在晶片两个表面分别蒸镀厚约 70 nm 的 Au 电极, 其尺寸见表 1。随即采用 30% 的 H_2O_2 溶液对裸露出的 CZT 表面进行钝化, 时间 2 min。使用石墨导电胶将一侧电极与印有电路的陶瓷基板粘贴, 另一侧采用 Au 导电胶与从基板引出的 Ag 导线相连, 制备的大面积 CZT 平面探测器如图 2 所示。

表 1 探测器 CZT1, CZT2 和 CZT3 室温下的物理性能

Table 1 Properties of the planar detectors CZT1, CZT2 and CZT3 at room temperature

Detectors	Dimension / mm ³	Electrode areas / mm ²	Dopant conditions	$\langle \mu \tau \rangle_e / (10^{-8} \text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1})$	$\mu_e / (\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$
CZT1	8×8×3.5	5×5	Heavily doped with In	0.6	690
CZT2	10×10×2	6.5×6.5	Lightly doped with In	2.3	1000
CZT3	10×10×1.2	6.5×6.5	Al doped	0.5	200

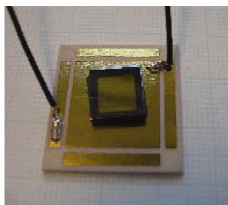


图 2 制备的大面积 CZT 平面探测器

Fig. 2 The photo of a completed CZT planar detector

实验采用未经准直, 能量为 59.54 keV 的 ^{241}Am γ 射线源, 能量为 22.10 keV 的 Ag K_α , 32.06 keV 的 Ba K_α 以及 44.23 keV 的 Tb K_α X 射线源作为放射源。室温下测试探测器 CZT1, CZT2 及 CZT3 在不同外加电场作用下的光谱响应。实验采用 ORTEC 710 电压源, eV-products (eV-550) 前置放大器, ORTEC 570 成形放大器, 成形时间为 $1 \mu\text{s}$, 信号最后通过 CANBERRA Multiport II 型多

道分析器收集形成入射光子的光谱。

4 结果分析及讨论

4.1 $^{241}\text{Am}(59.54\text{ keV})\gamma$ 射线响应光谱

不同电场强度作用下,探测器 CZT1, CZT2 以及 CZT3 对未经准直的 $^{241}\text{Am}(59.54\text{ keV})\gamma$ 射线的响应光谱如图 3(a), (b), (c)所示,对于同一探测器,不同场强下的测试,其计数时间相同。可以观察到光谱曲线理想,分辨率良好。通常将探测器收集到的光谱中特征光峰的半峰全宽(Full width at half maximum, FWHM)与放射源的能量之比定义为其能量分辨率。一般来说,相同的测试条件下,响应特征光峰的位置反应了探测器的收集效率的高低。

对于探测器 CZT1,从图 3(d)中可以发现,光谱中 $^{241}\text{Am} 59.54\text{ keV}$ 峰的半峰全宽随电场强度的增大而减小,光谱的峰值向高道数方向近似线性地漂

移且未达饱和,低能边由 ^{241}Am 衰减而产生的 ^{237}Np 峰仅能在高偏压下可分辨。根据(1)式,随着外加电场的增强,载流子的收集效率增大,但由于材料中电子迁移率寿命积($\mu\tau$)。较低(见表 1),使得 CCE 达到饱和和所需的电场强度较大,随之产生的电子学以及系统噪声也一定程度地增强。目前,对于 CZT 晶体,由于空穴的迁移率寿命积较电子一般低约 2 个数量级,探测器的应用主要针对电子的特性,本文对空穴的性能未做详细讨论。由表 1 发现电子的寿命 τ 。较小,主要说明晶体中存在相当数量作为电子俘获中心的深能级缺陷,使得探测器的 CCE 饱和值较低,分辨率不能达到最佳。Xu 等的研究^[13]表明,高 In 掺杂(16×10^{-6})的 CZT1 晶体中,存在的深能级 Cd^{2+} 缺陷作为受主,可能是光生电子俘获中心的一个主要来源。

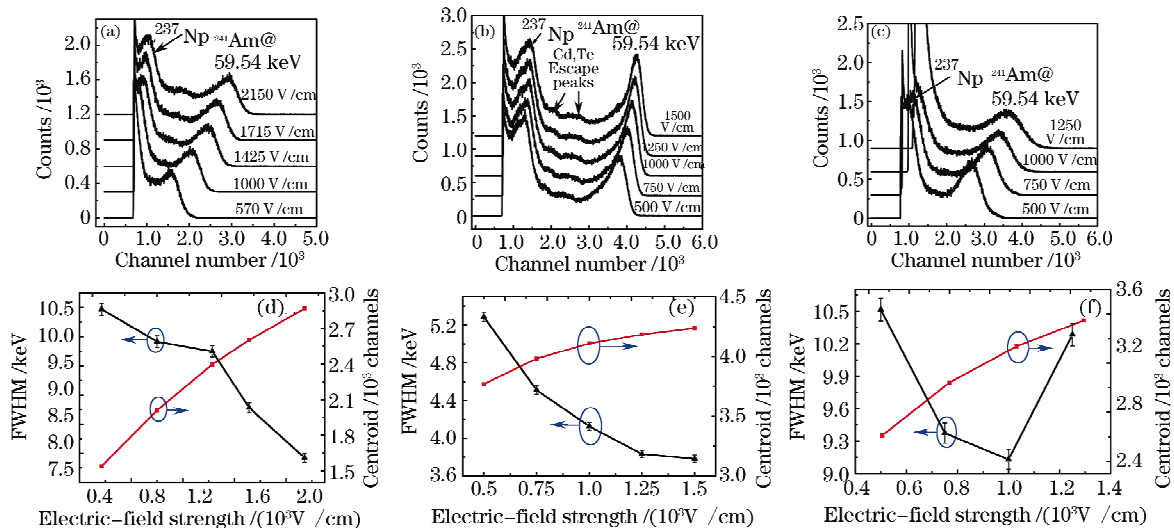


图 3 CZT 平面探测器对未经准直的 $^{241}\text{Am}(59.54\text{ keV})\gamma$ 射线,在不同场强下的响应光谱,(a)CZT1,(b)CZT2,(c)CZT3。受激光峰中心位置及其半峰全宽随电场强度的变化曲线,对应从(d)到(f)

Fig. 3 γ -ray spectroscopy response of the CZT planar detectors at various electrical field strengths using an un-collimated ^{241}Am radioactive source with the energy of 59.54 keV, (a) CZT1, (b) CZT2, (c) CZT3. The centroid and FWHM values of the photo-peaks are plotted for each of the detectors in (d) to (f), respectively

对于探测器 CZT2,由图 3(e)发现,光谱中 $^{241}\text{Am} 59.54\text{ keV}$ 峰的半峰全宽随电场强度的增大而迅速减小并趋于恒定,光谱的位置也急剧增大并趋向饱和,低能 ^{237}Np 峰在不同电场强度下均可见。而探测器 CZT2 具有较高的 CCE,反映在该材料的电子迁移率寿命积($\mu\tau$)。值较高(如表 1),晶体中存在较少的电子俘获中心和散射中心。同时由于 Cd、Te 逸出峰清晰可辨,表明晶体的结晶质量较高。

对于探测器 CZT3,由图 3(f)发现,光谱中 $^{241}\text{Am} 59.54\text{ keV}$ 峰值随电场强度的增大向高道数逐渐偏移,说明 CCE 在逐渐增高,但未能达饱和。

半峰全宽随电场强度的增大先减小,在场强为 1000 V/cm 时达到最佳,后随场强的增大转而增大。这是由于探测器的漏电流增大,产生的电子学噪声不断增强而造成的结果。此外,还可以发现在较小场强作用下,低能 ^{237}Np 峰可以分辨,后被噪声所淹没。根据表 1 所示结果可以发现,材料的($\mu\tau$)。较低反映在 μ_e 较低上。散射被认为是影响载流子迁移率的主要原因,对于 Al 掺杂 CZT 晶体,Al 元素一方面弥补了 Cd 空位,但有限的掺杂效率,富余的 Al 可能会在晶体中产生一定数量的 Al_i 间隙,由于热激发或受载流子碰撞而电离形成相当数量的散射

中心,成为降低 μ_e 的一个主要原因。

此外材料中存在的其他类型的空位、间隙原子以及位错、电离杂质等也会成为电荷的俘获中心或散射源,进而影响探测器中电场的分布以及载流子的传输特性。一定程度降低探测器的收集效率和能量分辨率。对于结晶质量优异,电阻率高的 CZT 晶体,上述因素的影响较弱。

4.2 Ag、Ba、Tb 元素 X 射线响应

对于低能 X 射线 Ag K_α @ 22.10 keV, Ba K_α @ 32.06 keV, Tb K_α @ 44.23 keV, 选择合适的工作电

场,探测器 CZT1, CZT2 及 CZT3 均获得了良好的响应光谱,且能量分辨率较高,结果如图 4, 图 5 及图 6(a), (b), (c)。光谱峰位与对应辐射源能量的数据拟合误差较小,说明所制备的 CZT 探测器对能量在 20~60 keV 范围内的低能 X/ γ 射线响应线性较好,其线性偏差分别为 2.6%, 0.5% 和 3.0% 如图 4, 图 5 及图 6(d)。此外不同计数时间所测光谱的峰位及半峰全宽波动较小。放置一段时间后,所测光谱峰位变化较小,能量分辨率恒定,说明探测器具有较高的稳定性。

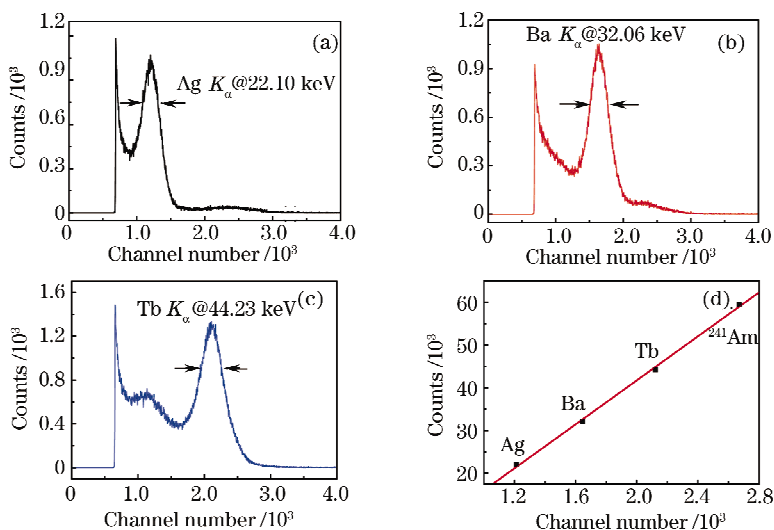


图 4 探测器 CZT1 响应光谱(a) Ag K_α @ 22.10 keV, (b) Ba K_α @ 32.06 keV 光谱, (c) Tb K_α @ 44.23 keV 光谱, (d) 光谱线性拟合结果

Fig. 4 Detector CZT1 response spectra. (a) Ag K_α @ 22.10 keV, (b) Ba K_α @ 32.06 keV, (c) Tb K_α @ 44.23 keV, (d) linear fitting result

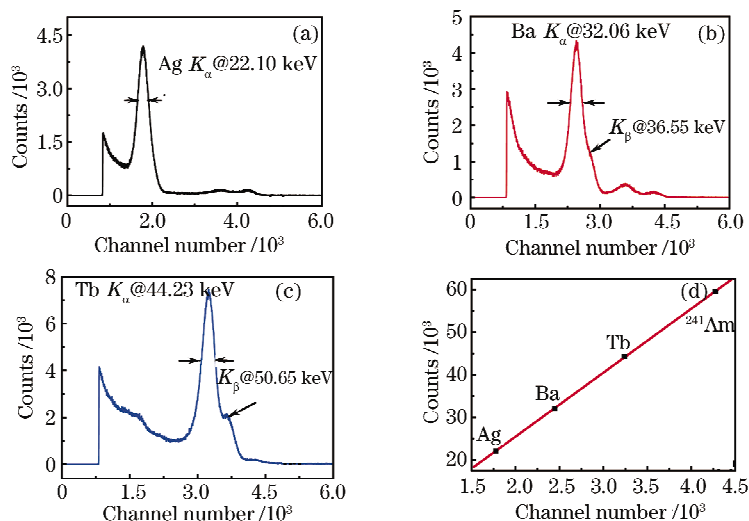


图 5 探测器 CZT2 响应光谱(a) Ag K_α @ 22.10 keV, (b) Ba K_α @ 32.06 keV 光谱, (c) Tb K_α @ 44.23 keV 光谱, (d) 光谱线性拟合结果

Fig. 5 Detector CZT2 response spectra. (a) Ag K_α @ 22.10 keV, (b) Ba K_α @ 32.06 keV, (c) Tb K_α @ 44.23 keV, (d) linear fitting result

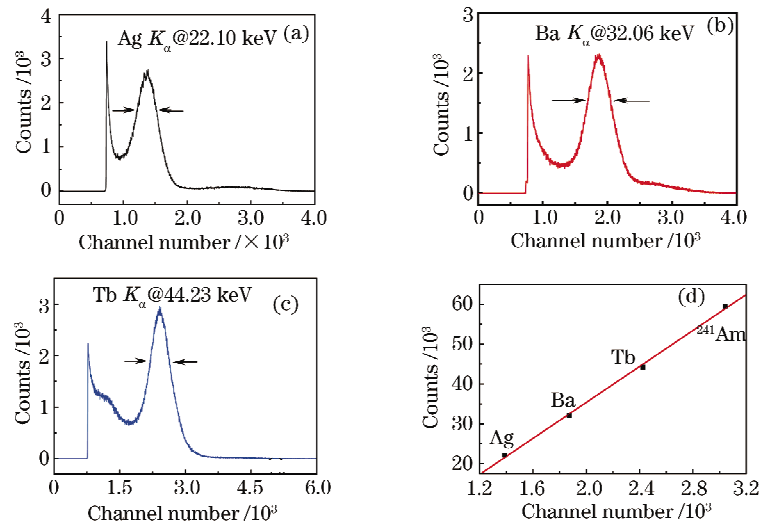


图 6 探测器 CZT3 响应光谱(a)Ag K_{α} @22.10 keV,(b)Ba K_{α} @32.06 keV 光谱,(c)Tb K_{α} @44.23 keV 光谱,
(d)光谱线性拟合结果

Fig. 6 Detector CZT3 response spectra. (a) Ag K_{α} @22.10 keV, (b) Ba K_{α} @32.06 keV, (c) Tb K_{α} @44.23 keV,
(d) linear fitting result

在对高能 γ 射线的测试过程中,由于光子的吸收主要发生在器件的深处,使得空穴形成的电荷脉冲对前置放大器产生的电压脉冲贡献较大^[14]。但是由于 CZT 晶体中空穴的迁移率寿命积较低,空穴的陷获效应明显^[15, 16]。收集过程中出现严重的空穴尾效应,使得特征光峰的强度较低,且低能侧被抬高并展宽,形成低能拖尾,严重影响了探测器的能量分辨率。由于目前制备的 CZT 材料空穴的迁移率寿命积不高,且所制探测器的厚度较薄,其本身对于高能 γ 射线的吸收效率也较低^[14]。因此,对高能 γ 射线未能获得优异的光谱响应。

5 结 论

采用改进的垂直布里奇曼法生长的 Al/In 掺杂高电阻率 CZT 晶体,制备出大面积平面电极探测器,测试了探测器对能量在 20~60 keV 范围内的低能 X/ γ 射线的光谱响应。分析表明低 In 掺杂的 CZT 晶体,载流子迁移率寿命积较高,所制探测器对未经准直的²⁴¹Am(59.54 keV) γ 射线的能量分辨率达到 6.4%,Tb K_{α} (44.23 keV)X 射线的能量分辨率达到 8.7%; In 掺杂浓度高的 CZT 晶体,材料中存在的深能级 Cd²⁺ 缺陷可能是电子的俘获中心,影响了载流子的收集效率,进而降低探测器的能量分辨率;而 Al 掺杂的 CZT 晶体,由于 Al_i 的存在,成为电子的散射中心,降低电子的迁移率 μ ,进而影响了收集效率以及能量分辨率。

为了能进一步提高 CZT 探测器对 X/ γ 射线的

能量分辨率,将尝试制备 CZT 共平面栅(Coplanar grid)、像素阵列(Pixelated array)以及电容弗里希栅(Frisch grid)探测器。同时设计合适的晶片退火工艺,进一步改进晶体中载流子的迁移特性,制备厚 5 mm 和 10 mm 的 CZT 探测器平面探测器,以满足对高能 γ 射线的探测要求。

参 考 文 献

- Schlesinger. T, Toney. J, Yoon. H *et al.*. Cadmium zinc telluride and its use as a nuclear radiation detector material[J]. *Materials Science and Engineering R*, 2001, **32**: 103~189
- Li Guoqiang, Jie Wanqi, Hua Hui *et al.*. Cd_{1-x}Zn_xTe: Growth and characterization of crystals for X-ray and gamma-ray detectors [J]. *Prog. Crystal Growth and Charact.*, 2003, **46**: 85~104
- Li Xia, Chu Junhao, Li Longxia *et al.*. Investigation of room temperature nuclear radiation CdZnTe pixel array detector[J]. *Journal of Optoelectronics - Laser*, 2008, **19**(6): 751~753
李霞, 褚君浩, 李陇遐 等. 室温核辐射 CdZnTe 像素阵列探测器的研制[J]. *光电子·激光*, 2008, **19**(6): 751~753
- Eisen. Y, Shor. A. CdTe and CdZnTe materials for room-temperature X-ray and gamma ray detectors [J]. *J. Crystal Growth*, 1998, **184-185**: 1302~1312
- Sellin. P. Recent advances in compound semiconductor radiation detectors[J]. *Nucl. Instrum. Methods A*, 2003, **513**: 332~339
- Chen Xinwen, Yang Kuntao. Measuring technique of dual energy X-ray bone density based on CZT detector[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2006, **33**(11): 65~68
陈新文, 杨坤涛. 基于 CZT 探测器的双能 X 线骨密度测量技术 [J]. *光电工程*, 2006, **33**(11): 65~68
- Li Guoqiang, Jie Wanqi, Hua Hui. Deducing the properties of CdZnTe wafers by IR transmission [J]. *J. Infrared Millim. Waves*, 2003, **22**(6): 469~472
李国强, 介万奇, 华 慧. 根据红外透过率推断 CdZnTe 晶片的性能[J]. *红外与毫米波学报*, 2003, **22**(6): 469~472
- Owens. A, Peacock. A. Compound semiconductor radiation

- detectors[J]. *Nucl. Instrum. Methods. A*, 2004, **531**: 18~37
- 9 Kozorezov. A, Wigmore. J, Owens. A *et al.*. Resolution degradation of semiconductor detectors due to carrier trapping [J]. *Nucl. Instrum. Methods. A*, 2005, **546**: 209~212
- 10 H. Barrett, J Eskin, H Barber. Charge transport in arrays of semiconductor gamma-ray detectors[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **75**: 156~159
- 11 Li G, Zhang X Hua. *et al.*. A modified vertical bridgman method for growth of high-quality Cd_{1-x}Zn_xTe crystals[J]. *J. Electronic Materials*, 2005, **34**: 1215~1224
- 12 Yang G, Jie W, Li Q *et al.*. Effects of In doping on the properties of CdZnTe single crystals [J]. *J. Crystal Growth*, 2005, **283**: 431~437
- 13 Xu Yadong, Jie Wanqi, Sellin. P *et al.*. Study on temperature dependent resistivity of indium-doped cadmium zinc telluride[J]. *J. Phys. D Appl. Phys.*, 2009, **42**: 03505
- 14 Szeles C. CdZnTe and CdTe materials for X-ray and gamma ray radiation detector applications[J]. *Phys. Stat. Sol. (b)*, 2004, **241**(3): 783~790
- 15 Kargar. A, Jones. A, Mcneil. J *et al.*. CdZnTe Frisch collar detectors for g-ray spectroscopy[J]. *Nucl. Instrum Methods. A*, 2006, **558**: 497~503
- 16 Meng Xin, Ding Honglin, Hiao Xiaoyong *et al.*. Development of large area CdZnTe detector for satellite detection of X and γ-rays [J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2008, **42**(2): 149~154
- 孟欣, 丁洪林, 郝晓勇 等. 用于卫星探测 X、γ 射线的大灵敏面积 CdZnTe 探测器的研发[J]. *原子能科学技术*, 2008, **42**(2): 149~154