



LATVIJAS UNIVERSITĀTE
FIZIKAS UN MATEMĀTIKAS FAKULTĀTE

Mihails Šorohovs

Promocijas darba kopsavilkums

TIBr KRISTĀLU OPTISKO, ELEKTRISKO UN
VIRSMAS ĪPAŠĪBU IZPĒTE; RENTGENA UN
GAMMA - STARU DETEKTORU IZSTRĀDE

Darba vadītāja *Dr. habil. phys.* **Larisa Grigorjeva**

Rīga, 2010

Promocijas darbs izstrādāts no 2004 līdz 2010 gadam Latvijas Universitātes Cietvielu fizikas institūtā.

Promocijas darba vadītāja: *Dr. habil. phys.* **Larisa Grigorjeva**, LU Cietvielu fizikas institūta vadošais pētnieks.

Recenzenti:

Dr. habil. phys., profesors

Dr. habil. phys., profesors

Dr. habil. phys., profesors

Rīgas Tehniskā Universitāte

Promocijas darbs tiks aizstāvēts atklātā sesijā LU Fizikas, astronomijas un mehānikas specializētajā promocijas padomes sēdē, kas notiks 20 . gada
plkst.

Ar darbu un tā kopsavilkumu var iepazīties Latvijas Universitātes Bibliotēkā, Rīgā, Kalpaka bulv. 4 un Latvijas Akadēmiskajā bibliotēkā, Rīgā, Rūpniecības ielā 10.

LU Fizikas un astronomijas zinātnes nozares specializētās promocijas padomes priekšsēdētājs: *Dr. habil. phys.*

© Latvijas Universitāte, 2010

© Mihails Šorohovs, 2010

Anotācija

TlBr kristālus lieto jonizējošā starojuma detektoros X- un γ - starojumu reģistrēšanai enerģiju diapazonā no 10 keV līdz 1 MeV pie istabas temperatūras. Minētos detektorus izmanto kosmosā, medicīnā un arī radionuklīdu analīzē. Neskatoties uz progresu detektoru īpašību uzlabošanā un izgatavošanas procesa pilnveidošanā, šobrīd vēl ir neatrisinātas problēmas, kas neļauj izvērst detektoru sērijveida ražošanu. Pašreiz vairākas firmas, kuras audzē kristālus, attīsta audzēšanas tehnoloģijas, lai iegūtu ļoti kvalitatīvus TlBr kristālus gan optiskām detaļām infrasarkanajā spektrā rajonā, gan jonizējošā starojuma detektoru izgatavošanai. Taču elektroniskie procesi, elektronisko ierosinājumu mijiedarbība ar kristāliskā režģa defektiem, ir izpētīta nepilnīgi. Tāpēc, lai iegūtu kvalitatīvus TlBr kristālus radiācijas detektoriem, vienlaicīgi ar šo kristālu audzēšanas tehnoloģijas attīstīšanu jāveic šo kristālu elektronisko īpašību pētījumi.

Šobrīd vēl nav skaidrs, kāpēc dažkārt no TlBr kristāliem izgatavotie radiācijas detektori ir ar sliktām spektrometriskām īpašībām, kādēļ dažiem detektoriem šīs īpašības mainās ekspluatācijas laikā. Pētījumos ir jānoskaidro radiācijas detektoru īpašību nestabilitātes iemesli un jāizstrādā rekomendācijas nestabilitātes novēršanai. Darba vispārējais mērķis ir iegūt un apkopot informāciju, kas būtu izmantojama veicot kvalitatīvu jonizējoša starojuma detektoru izgatavošanu no TlBr. Promocijas darbs ietver rezultātus, kuri iegūti veicot TlBr kristālu optisko, elektrisko un virsmas īpašību izpēti, kā arī rentgena un gamma staru detektoru izstrādē iegūtos rezultātus.

Saturs

1. Ievads	5
1.1 Darba motivācija.....	6
1.2 Darba mērķi	7
1.3 Autora ieguldījums	8
1.4 Darba zinātniskā novitāte	8
2. Literatūras pārskats	9
2.1 Defekti, elektroniskie ierosinājumi, luminiscences mehānismi un fundamentālas absorbcijas mala tallija halogenīdos	9
2.2 Jonizējoša starojuma pusvadītāju detektora darbības princips.....	12
3. Eksperimentu metodika	15
4. Pētījumos izmantotie paraugi.....	15
5. Rezultāti un diskusija.....	16
5.1 Elektronu kūļa ierosinātā luminiscence un īsi dzīvojošā absorbcija TlBr kristālos.....	16
5.2 Rentgena staru ierosinātā luminiscence TlBr	18
5.3 Fundamentālā absorbcijas mala pie istabas temperatūras.....	20
5.4 Fotoluminiscence pie šķidra hēlija temperatūras	21
5.5 TlBr kristāla virsmas īpašības.....	23
5.6 TlBr kristāla elektriskās īpašības	26
6. Jonizējošā starojuma detektoru izgatavošana	28
6.1 Gamma staru detektoru, izgatavotiem no ar Bridžmena-Stokbargera metodi audzētiem kristāliem, spektrometriskās īpašības	28
6.2 Gamma staru detektoru, izgatavotu no ar izkausētās kustīgās zonas metodi audzēta TlBr kristāla, spektrometriskās īpašības	29
7. Optisko un elektrisko īpašību korelācija ar detektoru raksturīpašībām.....	30
8. Aizstāvamās tēzes	31
9. Literatūras saraksts.....	32
10. Autora publikāciju saraksts.....	35
10.1 Raksti tieši saistīti ar promocijas darba tēzēm:	35
10.2 Ar aizstāvamajām tēzēm nesaistītas publikācijas:.....	37

1. Ievads

Rentgena un gamma staru reģistrācijai galvenokārt izmanto divu veidu ierīces: (I) scintilāciju detektorus, kuri jonizējošā starojuma enerģiju vispirms transformē par redzamās gaismas signālu (scintilāciju), kas fotouztvērējā tiek pārvērsta elektriskajā signālā un (II) detektorus, kuri jonizējošā starojuma enerģiju tieši pārvērš elektriskajā signālā. Otra veida detektoriem ir dažas priekšrocības salīdzinot ar pirmā veida detektoriem. Pirmā veida detektoru optiskais signāls jāpārvērš elektriskajā un ierīces ātrdarbību principiāli ierobežo par scintilācijām atbilstīgo luminiscences centru ierosinātā stāvokļa dzīves laiks. Otra veida detektoros uzreiz tiek iegūts elektriskais signāls, iespējama liela ātrdarbība, jo izmantojot cietvielu kristālus, tajos tiek radīti lādiņnesēji vadāmības un valentajā zonā un šo lādiņnesēju dzīves laiki zonās ir ļoti īsi. Šī iemesla dēļ otra veida detektori ir plaši izplatīti un pašreiz tajos izmantojamie materiāli ir ģermānija, vai silīcija, vai kadmija-cinka telurīda kristāli. Taču visiem minētajiem materiāliem ir relatīvi mazs aizliegtās zonas platums (0.67 eV Ge, 1.12 eV Si un 2 eV CdZnTe), kādēļ pie istabas temperatūras tajos ir salīdzinoši lielas brīvo lādiņnesēju koncentrācijas, kas aprūtina radiācijas inducēto signālu reģistrāciju. Minētā iemesla dēļ šos detektorus ir jādzesē, bieži pat līdz šķidrā slāpekļa temperatūrai. Tādēļ tiek intensīvi meklēti materiāli, no kuriem varētu izgatavot nedzesējamus detektorus. Tādam materiālam aizliegtās zonas platumam jābūt lielākam par to, kāds ir pašreiz izmantojamiem materiāliem, taču ne pārāk lielam lai elektronu un caurumu ģenerācija jonizējošā starojuma iespaidā būtu pietiekami efektīva.

Tallija bromīda (TlBr) kristāli labi atbilst minētajām prasībām un ir daudzsološs materiāls nedzesējamu rentgenstaru un gamma staru detekcijai. No šiem kristāliem dažos gadījumos ir izdevies izgatavot jonizējošā starojuma detektorus rentgenstaru un gamma staru reģistrācijai diapazonā no 5 keV līdz 1 MeV. Taču detektoru izgatavošana ar labām spektroskopiskām īpašībām

(enerģētisko izšķirtspēju) un nemainīgām īpašībām ekspluatācijas laikā joprojām ir problemātiska.

1.1 Darba motivācija

TlBr piemērotību radiācijas detektoru izgatavošanai nosaka tā īpašības – samērā liels blīvums (7.56 g/cm^3) un liels vidējais atomsvars nodrošina elektromagnētiskā jonizējošā starojuma efektīvu bremsēšanos materiālā un līdz ar to arī efektīvu elektronu un caurumu ģenerāciju. Savukārt pie istabas temperatūras termodinamiski līdzsvaroto lādiņnesēju koncentrācijas vadāmības un valentajā zonā ir mazas, jo materiālam ir relatīvi plata aizliegtā zona (2.68 eV). Taču materiāls vēl pilnībā nav apgūts jonizējošā starojuma detektoru izgatavošanai, ir vairākas neatrisinātas problēmas, kuru dēļ nevar atīstīt jonizējošā starojuma detektoru sērijveida izgatavošanu no šī materiāla. Viena no problēmām ir, ka dažkārt no TlBr izdodas izgatavot labus radiācijas detektorus, kuriem ir augsta jutība un laba enerģētiskā izšķirtspēja, taču citos gadījumos izgatavotie detektori vispār nav darbaspējīgi. Ir aizdomas, ka tas saistīts ar TlBr kristālu kvalitāti – tīrību, iespējams arī ar dislokāciju klātbūtni vai monokristāla morfoloģiju – tas var sastāvēt no kristāliskiem blokiem. Sistemātisku pētījumu rezultātus par šo problēmu neizdevās atrast, tādēļ viens no šī pētījuma virzieniem ir saistīts ar minētās problēmas risināšanu. Otra svarīga problēma ir kvalitatīva elektriskā kontakta nodrošināšana ar TlBr virsmu, no šī kontakta ir atkarīga detektora darbība. Šīs problēmas risināšanai tika veikti kristāla apstrādes iespaida pētījumi. Savukārt lādiņnesēju ģenerāciju un šo lādiņnesēju savākšanas efektivitāti nosaka materiālā notiekošie elektroniskie procesi – lādiņnesēju saķeršana līmeņos aizliegtajā zonā, lādiņnesēju izkliede uz defektiem, lādiņnesēju savstarpējā rekombinācija. Kvalitatīva detektora izveidei ir nepieciešams izziņāt kā un kādi elektroniskie procesi notiek materiālā, tādēļ pievērsamies arī šīs problēmas izpētei.

Minēto triju problēmu risināšana ir ļoti svarīga, lai attīstītu no TlBr izgatavotu kvalitatīvu jonizējošās radiācijas detektoru ražošanu.

1.2 Darba mērķi

Darba vispārējais mērķis ir iegūt un apkopot informāciju, kas būtu izmantojama veicot kvalitatīvu jonizējošā starojuma detektoru izgatavošanu no TlBr.

Darbam ir trīs specifiskie mērķi:

1. Noskaidrot vismaz dažus kritērijus, kas ļautu novērtēt konkrētā TlBr kristāla piemērotību labu radiācijas detektoru izgatavošanai.
2. Izstrādāt paņēmieni TlBr monokristāla virsmas sagatavošanai, lai varētu nodrošināt kvalitatīva elektriskā kontakta izveidi.
3. Noskaidrot kādas TlBr kristāla elektroniskās īpašības korelē ar no šī kristāla izgatavota radiācijas detektora spektroskopiskajām īpašībām.

Darba mērķu sasniegšanai tika risināti sekojoši uzdevumi:

1. TlBr kristālu optisko īpašību izpēte (fundamentālās absorbcijas malas novietojums, luminiscences spektri un kinētikas, inducētā īsi dzīvojošā absorbcija).
2. TlBr kristālu virsmas īpašību izpēte (virsmas kodināšana, mikrociētības noteikšana, optiskā mikroskopija).
3. Elektrisko īpašību izpēte (voltampēru raksturlīknes, īpatnējā pretestība).
4. Jonizējošā starojuma detektoru izgatavošana no TlBr un šo detektoru spektroskopisko īpašību noteikšana.

1.3 Autora ieguldījums

Darbā gaitā darba autors kopā ar ražošanas uzņēmumu SIA BSI piedalījās TlBr kristālu audzēšanas iniciēšanā un organizēšanā kā Maskavas institūtā GIREDMET, tā arī Vācijas Korth Crystal uzņēmumā. Tika realizēta atgriezeniskā saite starp kristālu audzēšanas uzņēmumiem un pētniekiem, kas ļāva modificēt kristālu audzēšanu, lai iegūtu kristālus ar prognozējamām optiskajām un spektrometriskajām īpašībām. Darba autors ir veicis paraugu sagatavošanu eksperimentiem (paraugu griešana un virsmas apstrāde), veicis eksperimentus (luminiscences un absorbcijas spektru reģistrācija, optisko attēlu iegūšana un voltampēru raksturlīkņu reģistrācija). Ražošanas uzņēmumā SIA BSI autors testēja no TlBr kristāliem izgatavotos detektorus. Iegūtie eksperimentālie rezultāti tika apspriesti kopīgi ar kolēģiem CFI Cietvielu radiācijas fizikas laboratorijā, kā arī ar vadošajiem speciālistiem SIA BSI uzņēmumā. Darba rezultāti ir prezentēti vairākās starptautiskās konferencēs, piedaloties tajās kā ar stenda, tā arī ar mutiskiem referātiem. Darba rezultāti ir publicēti 11 zinātniskajos žurnālos, tai skaitā 10 starptautiskos žurnālos.

1.4 Darba zinātniskā novitāte

Galvenā zinātniskā novitāte šajā darbā ir tā, ka pirmo reizi tika salīdzināti rezultāti, kuri iegūti TlBr kristālu optisko īpašību pētījumos ar to radiācijas detektoru īpašībām, kuri izgatavoti no šiem kristāliem. Atrastas korelācijas starp TlBr optiskajām un radiācijas detektoru spektrometriskajām īpašībām.

Darbam ir arī nozīme radiācijas detektoru ražošanas tehnoloģiju uzlabošanā. Detektoru izgatavošanas tehnoloģiskajam ciklam ir ieteikta un tiek pielietota jauna virsmas apstrādes tehnoloģija un arī metodes šīs apstrādes kvalitātes kontrolei (mikrocietības metode un vizuāla kontrole izmantojot optisko mikroskopiju). Dotas arī rekomendācijas TlBr kristālu ražotājiem, lai uzlabotu detektoru izgatavošanai paredzēto kristālu kvalitāti (spektrometriskos parametrus).

2. Literatūras pārskats

2.1 Defekti, elektroniskie ierosinājumi, luminiscences mehānismi un fundamentālas absorbcijas mala tallija halogenīdos

Tallija halogenīdu kristālus izmanto infrasarkanajā spektroskopijā, optiskās šķiedras veidā gaismas vadiem infrasarkanajam spektra rajonam [3] un arī jonizējošās radiācijas detektoru izgatavošanai [4].

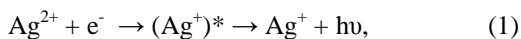
Visos tallija halogenīdu praktiskās pielietošanas virzienos ļoti svarīgs ir jautājums par pašvielas struktūras, piemaisījumu un radiācijas inducētiem defektiem, kā arī par dažādas dabas elektroniskiem ierosinājumiem un to mijiedarbību ar minētajiem defektiem. Tas ir saistīts ar optiskās absorbcijas, luminiscences, elektriskās vadāmības un elektronisko ierosinājumu relaksācijas laiku būtiskām izmaiņām defektu klātbūtnē.

Piemaisījumi tallija halogenīdos var aizņemt katjonu vai anjonu mezglus, aizvietojojot tallija vai halogēna jonu. TlBr ir iespējami homoloģisko halogēna jonu Cl un I piemaisījumi. Tā kā TlCl un TlBr kristāliem ir vienādas kristāliskās struktūras tad ir iespējama nepārtraukta TlCl-TlBr cieta šķīdumu rinda. Savukārt TlBr un TlI kristāliem ir atšķirīgas kristāliskās struktūras un tādēļ iespējama tikai daļēja Br jonu aizvietošana ar I joniem, pēdējo koncentrācija TlBr kristālos nevar pārsniegt 10%.

Radiācijas defektu un arī kristālā notiekošo procesu izpētei tallija halogenīdos ir veikti eksperimenti un šo eksperimentu rezultātu interpretācijai izmanto analogiju ar sudraba halogenīdiem, kuros defektu veidošanās ir plašāk pētīta un par to ir atrodams vairāk datu zinātniskajā literatūrā. Ir zināms, ka punktveida struktūras defekti – vakances un starpmezglu joni – tallija halogenīdos pārsvarā veidojas katjonu apakšrežģī ($Tl^{++}V_c^-$ un Tl_i^0) [5]. Radiācijas inducēto primāro defektu (Frenkeļa pāra), modelis un to iespējama veidošanās mehānisms

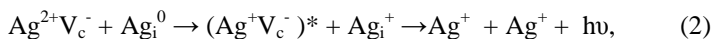
ir aprakstīti [6], kur parādīts, ka primāro defektu pāri veido starpmezgla tallija atoms un uz tallija vakancei tuvākā kristāliskā mezglā esoša tallija jona lokalizēts caurums. Izteikta hipotēze, ka minētais defektu pāris varētu veidoties elektroniskā ierosinājuma – eksitona – bezizstarojuma sabrukšanas procesā. Līdzīgi procesi notiek un primārie defekti veidojas sudraba halogenīdos. Galvenais arguments tam, ka defektu pāris veidojas sabrūkot elektroniskam ierosinājumam, ir eksperimentos novērotā koloidālā sudraba vai tallija veidošanās sudraba un tallija halogenīdos ultravioletās vai pat redzamās gaismas iedarbības rezultātā. Ir zināms, ka koloidālie centri efektīvi veidojas uz sudraba halogenīdu graudu virsmām un to veidošanos veicina speciāli ievadīti piemaisījumi – sensibilizatori [7].

Defektu izpētei izmanto gan luminiscento, gan absorbcijas spektroskopiju. Piemēram, sudraba hlorīdā ir plaši pētīta fotoluminiscence 2.5 – 2.6 eV spektrālajā apgabalā [6, 8] un ir parādīts, ka šī luminiscence rodas autolokalizēta eksitona radiatīvas sabrukšanas rezultātā. Process ir aprakstāms ar reakciju:



kur Ag^{2+} ir autolokalizēts caurums un $(\text{Ag}^+)^*$ autolokalizēts eksitons. Autolokalizēts caurums AgCl kristālā veido kompleksu $\text{Ag}^{2+}\text{Cl}_6^-$ un šī centra eksistence ir pētīta ar elektronu paramagnētiskā rezonanses (EPR) un optiski detektējama magnētiskā rezonanses (ODMR) metodēm. Centram atbilstošā absorbcijas josla ir pie 1.2 eV [9]. Tallija halogenīdos EPR signāls Tl^{2+} līdz šim nav novērots, bet īsi dzīvojoša absorbcija tiek novērota spektrālajā apgabalā, kurš ir tuvs 1 eV [5] un ir secināts, ka arī tallija halogenīdos caurums var lokalizēties uz tallija jona.

AgCl kristālā luminiscences dzišanas kinētiku skaidro izmantojot difūzijas kontrolēta rekombinācijas procesa modeli, kurš teorētiski aprakstīts [7]. Saskaņā ar šo aprakstu process ir sekojošs:



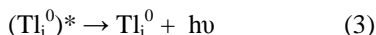
Tiek uzskatīts, ka tallija bromīdā primārā defektu pāra veidošanās un eksitona anihilācija notiek līdzīgi aprakstītajai reakcijai (2), tikai sudraba vietā ir tallijs. Diffūzijas kontrolētās rekombinācijas modeļa teorētiskais apraksts TlBr kristālam joprojām vēl nav izstrādāts.

Tallija halogenīdu luminiscences pētījumiem ir veltīti vairāki darbi [5, 10, 11]. Pie zemām temperatūrām, kā arī pie impulsa ierosināšanas novērota plata luminiscences josla 2.2 – 2.5 eV apgabalā. Joslas maksimums luminiscences spektrā nobīdās uz augsto enerģiju pusi cieto šķīdumu rindā TlI – TlBr – TlCl. Visiem tallija halogenīdiem luminiscences daba ir līdzīga (eksitona anihilācija) un luminiscences joslas maksimuma nobīdi izsauc. Tl jona apkārtnes maiņa – vienu halogēna jonu aizvietošana ar citiem.

Stacionārās luminiscences pētījumos TlBr kristālos ir labi novērojama josla pie 1.8 eV, kura saskaņā ar esošajiem uzskatiem ir saistīta ar starpmezgla Tl joniem vai to agregātiem [7]. Līdzīga luminiscences josla novērota TlCl kristālā pie 1.9 eV un ir secināts, ka tā varētu būt saistīta ar nestehiometrisku Tl jonu pārākumu kristālā [12], savukārt [13] secināts, ka šī luminiscence rodas elektronu un caurumu rekombinācijā pie centriem, kuru sastāvā ir katjonu vakance. Darbā [14] secināts, ka 1.9 eV josla ir saistīta ar tallija koloidālo daļiņu veidošanu tallija hlorīdā. Pārākuma tallija atomi var tikt jonizēti gaismas absorbcijas rezultātā un vadāmības zonas elektroniem rekombinējot ar šiem centriem novērojama luminiscence.

Apkopojot iepriekšējo aprakstu, varam secināt, ka luminiscence 1.8 – 1.9 eV spektrālā rajonā TlBr kristālos, iespējams, ir saistīta ar tallija starpmezgla atomu, vai arī ar šo atomu agregātiem, jo eksperimenti izmantojot ar talliju bagātinātus kristālus padara mazvarbūtīgu iespēju, ka luminiscences centra sastāvā varētu būt katjona vakance. Augstāk minētā iespēja, ka tallija atomu agregātā kāds no atomiem tiek jonizēts un tā rekombinācija ar elektronu ir novērotās luminiscences cēlonis nav vienīgā. Ir otra iespēja: ja kristālā ir tallija koloīdi, vai

mazāka izmēra agregāti, tad ir iespēja, ka kristālā ir arī lielāka atsevišķu, agregātos neesošu, tallija starpmezglu atomu koncentrācija un uz tallija starpmezgla atoma var tikt lokalizēts caurums, kurš saķerot elektronu veido savdabīgu starpmezglos esošu eksitonu $(\text{TI}_i^0)^*$. Šāda eksitona sabrukšana arī var notikt izstarojot fotonu:



Tallija bromīda zonu struktūras pētījumi [15, 16] rāda, ka par fundamentālās absorbcijas malu ir atbildīgas elektronu slīpās parējas (~ 2.67 eV), kaut gan to apgabals spektrā daļēji pārklājas ar taisno pāreju apgabalu (~ 3.02 eV). Šī iemesla dēļ fundamentālās absorbcijas malas apgabala spektrā ir novērojams pakāpiens [17]. Absorbcijas malas apgabalā ierosināto luminiscenci nosaka gan netiešo eksitonu veidošanās (~ 2.67 eV), gan tiešo eksitonu veidošanās (~ 3.02 eV).

Fundamentālās absorbcijas malas nobīdi apraksta Urbaha likums [18], kurš ir universāls likums dažādam vielām, neatkarīgi no saites tipa (jonu, kovalentā), un struktūras sakārtotības (stikls, kristāls). Parasti palielinoties temperatūrai, fundamentālās absorbcijas mala nobīdās uz zemo enerģiju pusi (aizliegtās zonas platums samazinās). Tallija halogenīdiem šis likums neizpildās. TlBr kristālos temperatūrai palielinoties eksitonu absorbcijas maksimums nobīdās uz augsto enerģiju pusi. Minēta efekta cēlonis nav skaidrs, taču tas varētu būt eksitonu-fononu īpašas sadarbības procesu dēļ.

2.2 Jonizējošā starojuma pusvadītāju detektora darbības princips

Pusvadītāji stabili ieņem vadošo vietu kodolu fizikas aparātu arsenālā un to loma elementāro daļiņu (kvantu) fizikā pieaug. Pusvadītāju detektoru principiālās priekšrocības ir sekojošas:

- 1) Enerģija, kas nepieciešama viena elektronu-cauruma pāra veidošanai ir neliela (silīcijam, ģermānijam ~ 3 eV, TlBr ~ 9 eV).

- 2) Jonizējošo starojumu bremsējošās īpašības cietvielu detektoriem ir ievērojami augstākas nekā gāzes pildītos.
- 3) Pusvadītāju detektoros lādiņnesēju – elektronu un caurumu – kustīgumam jābūt apmēram vienādam, tas nozīmē, ka lādiņu savākšanas laiks uz elektrodiem maz atšķiras un rezultātā nerodas nopietnas grūtības to daļiņu (kvantu) reģistrācijai, kuras detektorā iespiežas dažādos dziļumos.
- 4) Neskatoties uz to, ka pusvadītāju detektoru izšķiršanas spēja atpaliek no magnētiskiem detektoriem, tie ļauj reģistrēt visu spektru vienlaicīgi.

Lai veidotu elektronu-caurumu pāri, ir nepieciešama enerģija (E), kura pārsniedz aizliegtās zonas platumu (E_g). Ja aizliegtās zonas platumš ir pietiekami liels, tad neliels elektriskais lauks neizsauc elektriskās strāvas detektorā. Savukārt, ja aizliegtās zonas platumš ir mazs, tad daļa no valentās zonas elektroniem siltuma fluktuāciju dēļ var pāriet vadāmības zonā un parādās strāva, kuru sauc par noplūdes strāvu vai arī par tumsas strāvu.

Jonizējošā starojuma iedarbībā pusvadītājā valentās zonas elektronus vai elektronus no enerģētiski dziļākiem stāvokļiem pārceļ vadāmības zonā vai augstākās neaizpildītās zonās. Rezultātā sākumā neaizpildītās zonās parādās elektroni, bet sākumā aizpildītajā valentajā zonā – caurumi. Pēc sekundārām mijiedarbībām un enerģijas disipācijas ar fononu izstarošanu ļoti īsā laikā ($\sim 10^{-12}$ s) visi elektroni relaksē līdz vadāmības zonas apakšai, bet caurumi līdz valentās zonas augšai. Sakarā ar to, ka enerģija daļēji tiek tērēta fononu ierosināšanai, ierosināšanas procesā enerģija, kura nepieciešama elektronu-caurumu pāra veidošanai pārsniedz aizliegtās zonas platumu ($2 - 3 E_g$).

Pusvadītāju detektori, pēc būtības ir gāzes jonizāciju kameru analogs, kuros darba vide – gāze ir aizvietota ar cietvielas vidi. Kā jebkurā ierīcē, balstītā uz jonizācijas principa, informāciju par krītošās daļiņas (kvanta) enerģiju nes elektriskais lādiņš, kurš tiek radīts daļiņas (kvanta) un detektora materiāla sadarbības rezultātā – jo lielāka daļiņas (kvanta) enerģija, jo lielāks lādiņš tiek

radīts detektora materiālā. Lai nodrošinātu spektrometriskos režīmus, ir jāizpildās sekojošiem noteikumiem:

- 1) krītošā kvanta enerģijai jābūt detektora jutības apgabalā (t.i. stiprā lauka apgabalā);
- 2) lai nodrošinātu elektriskā signālā proporcionalitāti absorbētā kvanta enerģijai, kvanta radītie elektronu-caurumu pāri pilnībā jāsavāc uz elektrodiem;
- 3) izejas signāla trokšņiem jābūt minimāliem, lai nodrošinātu pietiekamu enerģētisko izšķiršanas spēju.

Izskatīsim kādām īpašībām jāatbilst materiālam, kurš tiek lietots jonizējošā starojuma cietvielu (pusvadītāju) detektora izgatavošanā.

Pirmkārt, ir nepieciešams, lai augstas enerģijas daļiņas vai fotoni, mijiedarbojas ar vielu veidojot daudz elektronu-caurumu pāru. Elektronu-caurumu pāru koncentrācija pusvadītājos ir lineāri saistīta ar kvanta enerģiju, kura tiek absorbēta vielā, tātad, jo elektronu-caurumu pāru veidošanas enerģija ir mazāka, jo vieglāk ir reģistrēt kvantus ar zemu enerģiju.

Otrkārt, lai detektora ārējā ķēdē parādītos strāvas signāls, lādiņesēju kustīgumam ārējā laukā jābūt pietiekami lielam. Lai izpildītos linearitāte starp absorbētā kvanta enerģiju un strāvas impulsa amplitūdu, lādiņesējiem nevēlams tikt saķertiem uz lamatām. Tas nozīmē, ka lādiņesēju saķeršanas varbūtībai uz lamatām jābūt minimālai, kas iespējams, ja lamatu koncentrācija ir maza un gan elektroniem, gan caurumiem ir liels kustīgums.

Treškārt, lai detektors reģistrētu vājus signālus, ir nepieciešams, lai detektora noplūdes (tumsas) strāva būtu minimāla pie detektoram pielikta liela elektriskā sprieguma, kas nepieciešams detektora darbībai.

Un beidzot, materiālam jābūt tādām, lai samērā neliela izmēra detektorā jonizējošā starojuma daļiņa vai starojuma kvants tiktu pilnīgi absorbēts. Noskrējiena garums savukārt ir atkarīgs no vielas īpašībām: jo viela ir blīvāka un lielāks Z , jo mazāka izmēra detektoru var izmantot [19].

Detektora enerģētiskā izšķirtspēja ir viena no svarīgākām detektora raksturīpašībām. Enerģētisko izšķiršanu pirmkārt nosaka jonizācijas zudumu statistiskās fluktuācijas. Šīs fluktuācijas ir iemesls tam, ka enerģijas pīķis, kurš atbilst krītošam monoenerģētiskam kūlim, tiek izsmērēts. Enerģētisko izšķiršanu nosaka kā vidējo kvadrātisko amplitūdas nobīdi no maksimālās amplitūdas vērtības. Citiem vārdiem, enerģētiskā izšķiršana tiek noteikta kā attiecīgā pīķa (kurš atbilst enerģijai E) pusplatums (ΔE).

3. Eksperimentu metodika

Veiktajos pētījumos tika izmantotas optiskās spektroskopijas metodes – tika reģistrēti luminiscences spektri un dzišanas kinētikas, absorbcijas spektri un inducētās absorbcijas relaksācijas kinētikas; parauga virsmas cietības noteikšana, optiskā mikroskopija un radiācijas detektoru enerģētiskās izšķirtspējas noteikšana.

4. Pētījumos izmantotie paraugi

Pētījumos izmantojamus paraugus izgriezta plāksnīšu veidā no lieliem masīviem monokristāliem, kurus piegādāja divas organizācijas, kas audzē TlBr monokristālus. Viena no organizācijām ir Krievijā, Maskavā (GIREDMET), kurā ir ilggadīga pieredze tallija halogenīdu attīrīšanā no piemaisījumiem un šo monokristālu audzēšanā. Attīrīts TlBr tiek lietots lielu, masīvu monokristālu audzēšanai ar Bridžmena-Stokbargera metodi. Otra organizācija ir Vācijā (uzņēmums Korth Crystal), TlBr kristālu audzēšana šajā organizācijā ir uzsākta nesen un to realizē ar kustīgas izkausētās zonas metodi, tādejādi vienlaicīgi TlBr attīrot un iegūstot masīvu monokristālu. Šajā darbā aprakstītajos pētījumos izmantoto paraugu apzīmējumi un izcelsmes avots ir apkopoti zemāk, kaut gan reāli pētīto paraugu skaits bija lielāks.

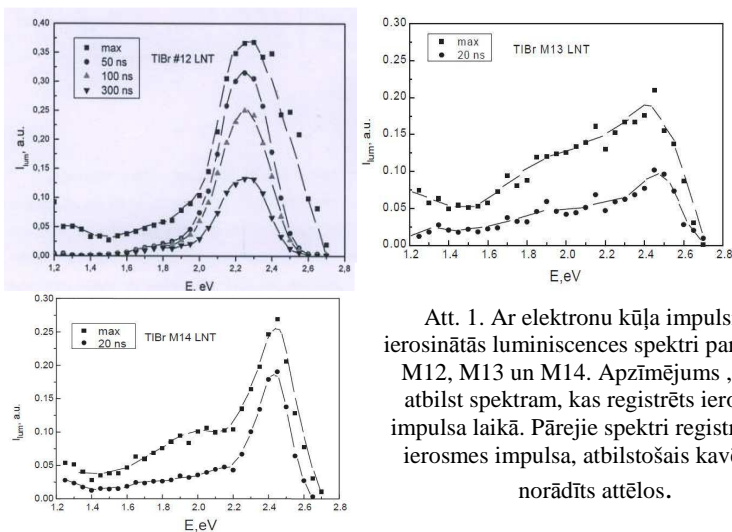
Pētījumos izmantotie kristāli:

- ar Bridžmena-Stokbargera metodi audzēti: M12, M13, M14, A8a, A8b, A8c, Z3a, Z3b, Z4a, Z4b, A1(B1), L, S, L, S;
- ar izkausētās kustīgās zonas metodi audzēti: 4R, 4RB1

5. Rezultāti un diskusija

5.1 Elektronu kūļa ierosinātā luminiscence un īsi dzīvojošā absorbcija TlBr kristālos

Ar elektronu kūļi inducētā absorbcija un luminiscence pētīta trijos TlBr paraugos, (M12, M13 un M14), kuri sagatavoti no lieliem, masīviem monokristāliem, kas audzēti ar Bridžmena-Stokbargera metodi. Rezultāti par šiem eksperimentiem un to analīzi ir publicēti {1}¹. Luminiscences spektri reģistrēti pie šķidrā slāpekļa temperatūras ierosinot paraugus ar elektronu kūļi un minētie luminiscences spektri redzami 1. attēlā.



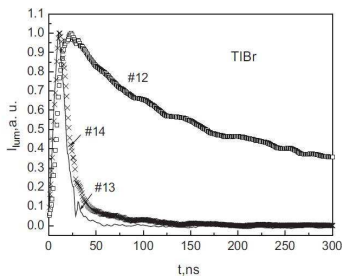
Att. 1. Ar elektronu kūļa impulsiem ierosinātās luminiscences spektri paraugiem M12, M13 un M14. Apzīmējums „max” atbilst spektram, kas reģistrēts ierosmes impulsa laikā. Pārejie spektri reģistrēti pēc ierosmes impulsa, atbilstošais kavējums norādīts attēlos.

Analizējot spektrus varam izdalīt divus luminiscences spektra apgabali - pie 1.8 eV un 2.2 – 2.4 eV. Salīdzinot spektrus ir redzams, ka paraugiem M13 un M14 luminiscences joslas novietojums spektra augsto enerģiju apgabalā ir pie ~2.45 eV un luminiscences joslu forma un novietojums laikā mainās maz. Paraugam M12 luminiscences josla spektra augsto enerģiju apgabalā ir atšķirīga –

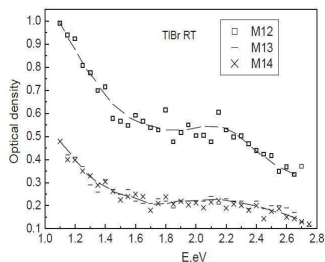
¹ Turpmākā tekstā šī darba autora publikācijas citējot izmantots apzīmējums { }

joslas maksimums ir pie ~ 2.25 eV un pirmajās 50 ns pēc ierosmes impulsa šīs joslas forma mainās, izzūd daļa no luminiscences joslas augsto enerģiju puses. Atšķirības luminiscences spektros rāda, ka paraugos ir atšķirīgi luminiscences centri, tātad paraugos ir dažādi gadījuma piemaisījumi vai arī atšķirīgi pašvielas defekti. Pabaudot paraugu sastāvu tika konstatēts, ka paraugs M12 satur paaugstinātu joda koncentrāciju. Var secināt, ka liela joda koncentrācija ir atbildīga par luminiscences joslas nobīdi uz zemo enerģiju pusi paraugam M12.

Luminiscences dzišanas kinētikas reģistrētas pie 2.3 eV, paraugiem M13 un M14 ir ļoti tuvas, kamēr paraugam M12 luminiscences dzišanas kinētika ir stipri atšķirīga, kā tas redzams 2. attēlā



Att. 2. Paraugu M12, M13 un M14 2,3 eV luminiscences dzišanas kinētikas



Att. 3. Inducētās absorbcijas spektri pie istabas temperatūras

Atšķirības luminiscences spektros un tās dzišanas kinētikās norāda, ka iespējams, paraugā M12 ir papildus luminiscences josla un līdz ar to papildus iespēja lādiņnesēju saķeršanai. Lādiņnesēju saķeršana var notikt ne tikai luminiscences centros, bet arī uz defektiem, kuri luminiscencē nepiedalās. Šī iemesla dēļ tika veikta inducētās īsi dzīvojošās absorbcijas reģistrācija, šīs absorbcijas spektri ir 3. attēlā. Inducētās īsi dzīvojošās absorbcijas reģistrācija veikta tā, lai zondējošās gaismas optiskai ceļš paraugos būtu vienāds. Tādēļ inducētā optiskā blīvuma vērtības paraugos var savstarpēji salīdzināt.

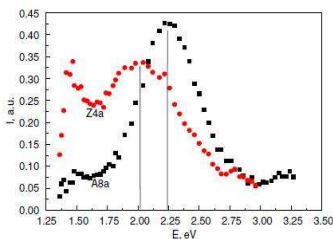
Novērotas absorbcijas joslas divos spektrālajos apgabalos. (<1.1 eV un pie 2.2 eV). Paraugiem M13 un M14 īsi dzīvojošās absorbcijas spektri sakrīt, taču paraugam M12 īsi dzīvojošās absorbcijas izsauktais optiskais blīvums ir vismaz

divas reizes lielāks visā spektrā. Varam secināt, ka īsi dzīvojošie radiācijas defekti efektīvāk veidojas paraugā M12. Iespējamais iemesls ir īsi dzīvojošo defektu stabilizācija pie kristālā esošiem piemaisījumiem. Ņemot vērā, ka paraugā M12 ir liela joda koncentrācija, nav izslēgts, ka arī citu defektu koncentrācija šajā paraugā ir paaugstināta. Konkrēto defektu veidu, kuri ir atbildīgi ar īsi dzīvojošās absorbcijas palielināto līmeni paraugā M12, neizdevās noskaidrot. Detektors, izgatavots no parauga M12 vispār nedarbojas – nebija iespējams lādiņnesēju savākt uz elektrodiem. Acīmredzot joda piejaukums, kas ir vislielākajā koncentrācijā M12 paraugā, rada labvēlīgus apstākļus lādiņnesēju saķeršanai un tādejādi detektorā tiek traucēta lādiņnesēju savākšana uz elektrodiem.

5.2 Rentgena staru ierosinātā luminiscence TlBr

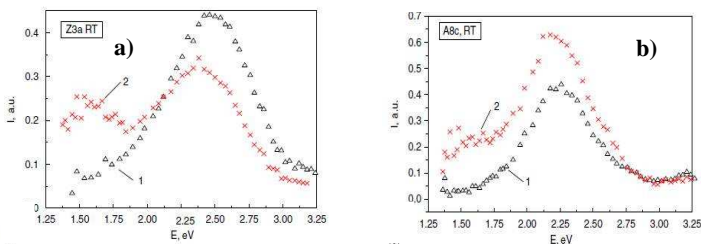
Gaismas iespaidā tallija halogenīdos var veidoties koloīdi [7], kuru klātbūtne kristālā var atstāt iespaidu uz lādiņnesēju savākšanas efektivitāti no kristāla izgatavotajā radiācijas detektorā. Šī iemesla dēļ virknei ar Bridžmena-Stokbargera metodi audzētiem paraugiem pārbaudījām vai ar luminiscento metodi var konstatēt paaugstinātu koloīdu koncentrāciju TlBr kristālos. Šo pētījumu rezultāti ir publicēti [2]. Koloīdu radīšanai TlBr kristālus apstaroja ar dzīvsudraba lampas nefiltrētu gaismu. Daļai paraugiem vēl pirms apstarošanas ar gaismu no dzīvsudraba lampas ir atšķirīgi luminiscences spektri, kas norāda uz atšķirīgu defektu saturu kristālos. Lielākās atšķirības novērojam paraugiem A8a un Z4a. Sākotnējie luminiscences spektri šiem paraugiem ir 12. attēlā un tie ir atšķirīgi, parauga A8a galvenā luminiscences josla ir pie 2,25 eV un mazas intensitātes josla pie ~ 1.5 eV, savukārt paraugā Z4a ir divas apmēram vienādas intensitātes luminiscences joslas, kuru maksimumi ir pie ~ 2.0 eV un 1.5 eV. Abos paraugos novērotā luminiscence ir saistīta ar defektiem. Eksperimentu apstākļu novērtējums un iegūto rezultātu analīze rāda, ka paraugā A8a ir mazāks struktūras defektu saturs nekā paraugā Z4a, tāpēc ir iespējams, ka defektu veidi abos paraugos ir

līdzīgi vai pat vienādi un atšķirības spektros saistītas ar atšķirīgu dažādu defektu koncentrāciju šajos paraugos.



Att. 4. Stacionārās luminiscences spektri paraugiem A8a un Z4a ierosinot tos ar rentgenstariem pie istabas temperatūras

Lai pārbaudītu iespējamo koloīdu iespaidu uz paraugu luminiscenci tika izvēlētas divi dažādi paraugi Z3a un A8c. Pēc sakotnējā rentgenluminiscences spektra reģistrācijas, paraugus, neizņemot tos no iekārtas, apgaismoja četras stundas ar nefiltrētu gaismu no dzīvsudraba lampas un atkārtoti reģistrēja luminiscences spektrus.

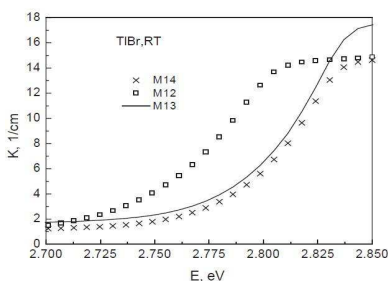


Att. 5. Luminiscences spektri TlBr kristāliem ierosinot ar rentgenstariem līdz (1) un pēc (2) apstarošanas ar gaismu no dzīvsudraba lampas; a) Z3a un b) A8c paraugam

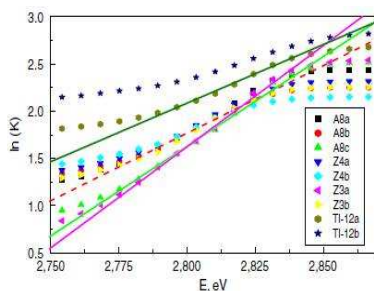
Paraugā Z3a gaismas radītie defekti veidojas efektīvā, nekā paraugā A8c. Paraugā Z3a neliela luminiscences josla pie $\sim 1,5$ eV ir jau pirms tā apstarošanas ar gaismu no dzīvsudraba lampas. Šīs josla ir saistīta ar koloīdu klātbūtni kristālā un joslas intensitātes ievērojams pieaugums paraugu apstarojot ar gaismu no dzīvsudraba lampas, liek secināt, ka šajā paraugā ir labvēlīgi koloīdu veidošanās apstākļi.

5.3 Fundamentālā absorbcijas mala pie istabas temperatūras

Fundamentālās absorbcijas mala ir ļoti jutīga pret kristāla sastāvu un homologiskiem piemaisījumiem. Piemēram, TlBr-I gadījumā, mala nobīdās uz zemo enerģiju pusi, bet TlBr-Cl – uz augsto enerģiju pusi. Tāpēc fundamentālās absorbcijas malas novietojums un forma var sniegt informāciju par piemaisījumu un citu struktūras defektu saturu kristālā. Mūsu veikto pētījumu rezultāti par fundamentālās absorbcijas malu TlBr kristālos ir publikācijās {1,2}, kurās ir parādīta arī saistība starp fundamentālās absorbcijas malas novietojumu (arī formu) un no šiem kristāliem izgatavoto radiācijas detektoru īpašībām. Absorbcijas reģistrācija fundamentālās absorbcijas malas apgabalā pētītajiem paraugiem tika veikta pie istabas temperatūras. 6. attēlā ir parādīti TlBr paraugu M12, M13 un M14 absorbcijas malas spektri.



Att. 6. Fundamentālās absorbcijas mala trim dažādiem TlBr kristāliem



Att. 7. Fundamentālā absorbcijas mala vairākiem TlBr kristāliem

Kā redzams 6. attēlā, parauga M12 fundamentālās absorbcijas mala ir nobīdīta uz zemo enerģiju pusi salīdzinot ar paraugiem M13 un M14. Kā jau tika parādīts iepriekš, paraugam M12 ir palielināta joda koncentrācija, kas ir iemesls fundamentālās absorbcijas malas nobīdei. Fundamentālās absorbcijas malas novietojums tika analizēts reģistrēts virknei TlBr paraugu un iegūtie rezultāti tika attēloti puslogaritmiskajās koordinātēs, jo tajās ir iespējams samērā plašs apgabals, kurā fundamentālās absorbcijas mala ir aproksimējama ar taisni. Šīs taisnes

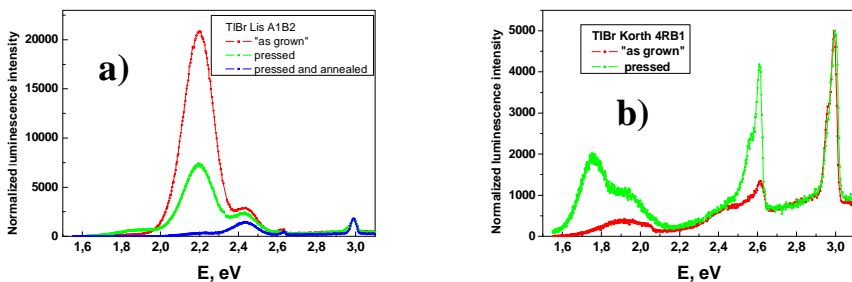
novietojums un slīpums ļauj vieglāk salīdzināt rezultātus, kas iegūti dažādiem paraugiem. 7.attēlā ir rezultāti par 9 paraugu fundamentālās absorbcijas malu.

Pamatojoties uz eksperimentāliem rezultātiem, varam secināt, ka pieciem paraugiem, kuriem fundamentālās absorbcijas malas novietojums sakrīt ar pārtraukto sarkano līniju, sastāvs un struktūras defekti ir apmēram vienādi un varam pieņemt, ka tas ir TlBr sastāvam atbilstošs. Paraugiem A8c un Z3a slīpumi nesakrīt ar sarkano līniju un tas nozīmē, ka šo paraugu sastāvs atšķiras no TlBr sastāva. Paraugi A8c un Z3a ir izgriezti no tām pašām A8 un Z3 monokristāliskām sagatavēm, kurām ir TlBr sastāvs, bet homoloģisko piemaisījumu koncentrācija var mainīties monokristāla sagataves galos. Pieļaujam, ka paraugiem ir neliels homoloģisko jonu, piemēram, hlora piemaisījums. Paraugam TL-12a ir apmēram tāds pats fundamentālas absorbcijas malas slīpums, kāds novērots pārējiem TlBr kristāliem, bet ir papildus absorbcija pie enerģijām zemākām par 2.7 eV. Šī absorbcija var būt saistīta 1) ar koloīdu centru platu joslu 2) ar struktūras defektiem, kuri izsauc zondējošas gaismas izkliedi, piemēram, bloku struktūru, līdz ar to var secināt, ka paraugs ir mazāk kvalitatīvs. Tas vēlreiz apstiprina, ka pat paraugos, kuri izgatavoti no vienas monokristāliskas sagataves, var būt dažāds piemaisījumu un citu struktūras defektu saturs.

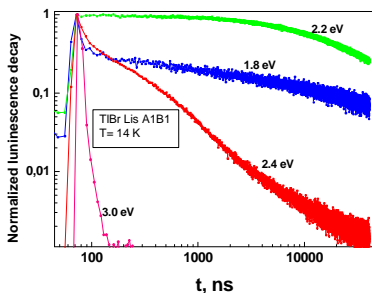
5.4 Fotoluminiscence pie šķidrā hēlija temperatūras

TlBr eksitonu luminiscences dzēšana ir novērota pie temperatūras, kas ir zemāka par šķidrā slāpekļa temperatūru. Taču eksitonu luminiscence ir ļoti atkarīga no kristāla kvalitātes – kristāliem ar lielu defektu saturu eksitonu luminiscence ir mazāk intensīva nekā kristāliem ar mazu defektu saturu. Lai iegūtu precīzāku informāciju par TlBr luminiscences spektriem (tiešie un netiešie eksitoni), šo spektru reģistrācijai izmantojam iekārtu ar iespēju dzesēt paraugu gandrīz līdz šķidrā hēlija temperatūrai (~14 K).

Luminiscences spektri tika reģistrēti TlBr kristāliem pēc dažādiem apstrādes etapiem. Vispirms spektri tika reģistrēti pēc parauga nogriešanas - „as grown” (Att. 8.), tad pēc parauga presēšanas un kodināšanas - „pressed”. Paraugam Lis A1B2 spektrs tika reģistrēts arī pēc parauga atkvēlināšanas - „pressed and annealed”. Presēšana tika izvēlēta vadoties no apsvērumiem, ka TlBr ir ļoti plastisks materiāls, kuram pēc presēšanas iespējams iegūt gludu virsmu, taču presēšanas laikā kristāls tiek deformēts un tajā mainās defektu saturs.



Att. 8. Luminiscences spektri pie šķidra hēlija temperatūras a) ar Bridžmena–Stokbargera, b) izkausētās kustīgās zonas metodi audzētiem TlBr kristāliem



Att. 9. Luminiscences dzišanas kinētikas pie šķidra hēlija temperatūras Bridžmena–Stokbargera metodi audzētam paraugam A1B1

8. attēlā luminiscences spektri normēti eksitonu luminiscences joslā, kas dod iespēju vērtēt defektu luminiscences relatīvo ieguldījumu. Spektros varam izdalīt dažas luminiscences pamatjoslas: 1) josla pie 3.0 eV ir tiešo (taisnās pārejas) eksitonu luminiscence; 2) josla pie 2.6 eV ir netiešo (slīpās pārejas) eksitonu luminiscence; 3) josla pie 2.4 eV ir ar defektiem saistīta luminiscence; 4)

josla pie 2.2 eV – piemaisījumu luminiscence un 5) josla pie 1.8 eV saistīta ar tallija koloīdu centriem.

Pētījumu rezultāti parāda, ka pēc deformācijas koloīdu centru koncentrācija palielinās, bet kristālu atkvēlinot šo centru koncentrāciju izdodas ievērojami samazināt. Ir zināms, ka koloīdu centri veidojas pie dislokācijām un uz graudu robežām. Deformācija būtiski palielina dislokāciju skaitu un attiecīgi arī koloīdu veidošanās efektivitāti. Pēc atkvēlināšanas koloīdu joslas intensitāte samazinās, kas nozīmē, ka atkvēlināšana noved pie dislokāciju (iespējams arī citu defektu) daudzuma samazināšanās.

9. attēlā ir parādītas luminiscences dzišanas kinētikas paraugam A1B1. Attēlā ir redzams, ka eksitonu luminiscences kinētikas (3.0 eV) ir ātras (<20 ns), bet defektu joslās kinētikas (1.8, 2.2, 2.4 eV) ir neeksponenciālas un lēnākas. Kinētiku neeksponencialitāte nozīmē, ka luminiscence ir rekombinatīva, iespējams, tās dzišanu nosaka lādiņnesēju migrācija, lēna dzišana rāda, ka lādiņnesēju migrācija tiek kavēta, kā rezultātā jonizējošā starojuma detektoru darbības kvalitāte pasliktinās, jo lādiņnesēju savākšanas laiks palielinās un pasliktinās detektora izšķiršanas spēja – vismaz daļu no radionuklīdiem nevar detektēt.

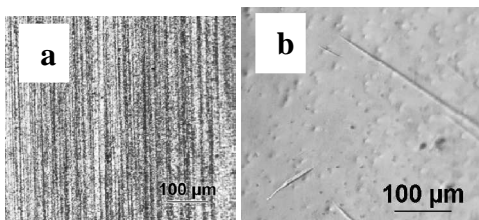
5.5 TlBr kristāla virsmas īpašības

Lai no TlBr izgatavotu radiācijas detektoru materiālu nepieciešams mehāniski apstrādāt. Šīs sadaļas rezultāti ir publicēti rakstos {3, 4, 5,10}. TlBr ir mīksts materiāls, tādēļ mehāniskās apstrādes laikā materiālā ir iespējamas ievērojamas deformācijas un materiālā tiek ģenerēti dažādi virsmas un tilpuma struktūras defekti - dislokācijas, vakances un citi. Atkarībā no apstrādes tehnoloģijas, stipri defektētā virsmas slāņa dziļums var mainīties no 10 mikrometriem līdz vienam milimetram, vai pat dziļāk. Tādēļ viens no darba specifiskajiem mērķiem bija izstrādāt tādu virsmas apstrādes tehnoloģiju, kura ļautu iegūt bezdefektu virsmu, kas ir ļoti aktuāla problēma detektoru kristālu

sagatavošanā. Virsmas kvalitātes kontrolei izvēlējāmos mikrociētības mērijumus (pēc Vikersa) un optiskas mikroskopijas metodi. Mikrociētība ir struktūrijutīga metode, kas jūt defektu klātbūtni.

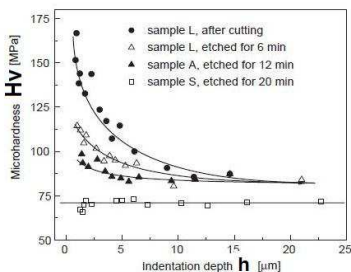
Eksperimentos izmantoja A, L un S sērijas monokristāliskus TlBr paraugus. Visu paraugu biezums bija 2 mm un laukums 5x5 mm². Mikrociētības mērijumiem par indentoru izmantoja Vikersa piramīdu. Pētāmie kristāli tika griezti izmantojot dimanta stiepli. Parauga virsma pēc griešanas ir attēlota Att. 10 a, kur ir redzamas griešanas pēdas švīku veidā. Virsmas mikrociētības mērijumi pēc griešanas parādīja, ka virsmas mikrociētība grieztam paraugam ir paaugstināta un sasniedz 160 Mpa salīdzinājumā ar 75 – 80 MPa nedeformētam paraugam (Att. 11.). Rezultāti rāda, ka pēc griešanas cietinātā slāņa dziļums ir vismaz 20µm, bet ar defektiem bagātā slāņa dziļums ir vēl lielāks.

Mūsu eksperimentos defektētais slānis tika novākts ar ķīmisku kodināšanu. Tika sagatavots kodinātājs, kas sastāv no etilspirta un broma proporcijā 10:1

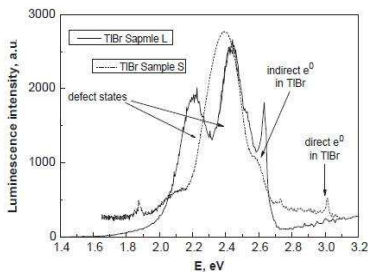


Att. 10. TlBr attēli optiskajā mikroskopā pēc griešanas (a) un pēc 20min ķīmiskas kodināšanas.

Rezultāti par cietinātā slāņa biezumu atkarībā no ķīmiskās kodināšanas etapiem redzami 19. attēlā. 6 un 12 minūšu ilga kodināšana samazināja mikrociētību, tomēr pēc šīm kodināšanām kristāla virsmas defektētais slānis pilnībā vēl nav aizvākts. Pilnīgi defektēta slāņa aizvākšana prasa 20 minūšu ilgu kodināšanu. Kodinātā virsma ir gluda un tikai ar dažiem mikroskopā pamanāmiem defektiem (Att. 10 b). Iegūtie rezultāti parādīja, ka piedāvātais virsmas apstrādes paņēmiens dažādu sēriju paraugiem (A, L un S) ļauj iegūt topogrāfiski kvalitatīvu virsmu, kā arī homogēnu mikrociētību ar labu virsmu kvalitātes atkārtojamību.



Att. 11. TlBr virsmas mikrociētība atkarībā no indētēšanas dziļuma pēc dažādām virsmas apstrādēm.



Att. 12. Luminiscences spektri paraugam L - pēc 12 min. un, paraugam S – pēc 20 min. ilgā ķīmiskās kodināšanas

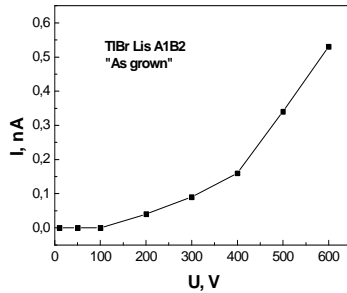
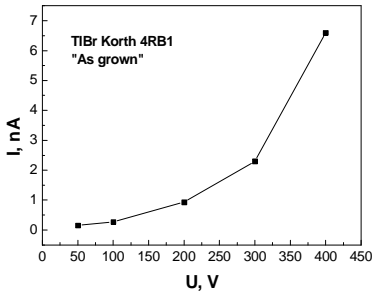
Kā ir zināms, luminiscētā metode ir jutīga un tiek lietota dažādu tipu defektu noteikšanai [10]. 12 un 20 minūtes ilgi ķīmiski kodinātu TlBr kristālu luminiscences spektri ir redzami 12. attēlā. Spektri tika reģistrēti pie 14 K temperatūras paraugu ierosinot ar lāzeru (4.66 eV). No spektriem ir redzams, ka paraugā S ir tiešā eksitona luminiscence (3 eV), kamēr paraugā L tā nav, kas ir skaidrojams ar to, ka paraugam L nav pilnībā nokodināts defektētais virsmas slānis un eksitoni nokļūstot šajā slānī rekombinē bezizstarojuma procesā.

Pētījuma praktiskais rezultāts ir TlBr kristālu virsmas apstrādes tehnoloģija, kura ļauj sagatavot kristālu ar topoloģiski labām virsmām detektora izgatavošanai. Mehāniski defektēto slāni var gandrīz pilnībā aizvākt ar ķīmisko kodināšanu, virsmas kvalitātes kontrolei izmantojot mikrociētības un optiskās mikroskopijas metodi. Dažādu paraugu (A, L un S) salīdzinājums rāda, ka atšķirībām mikrociētības vērtībās dažādām monokristālu sērijām nav noteicošā loma detektoru raksturīpašībās. Taču defektētā paaugstinātas cietības virsmas slāņa aizvākšana ir nepieciešams sagatavošanas etaps radiācijas detektoru ražošanas tehnoloģijā. Piemēram, lai uzputinātu kvalitatīvus zelta kontaktus, virsmas kvalitāte ir ļoti svarīgs parametrs. Lai nodrošinātu omiskus kontaktus ar labu adhēziju nepieciešams, lai uz virsmas nebūtu piesārņojumu un lai tā būtu optiski gluda. Šīs prasības izpildās izmantojot aprakstīto TlBr ķīmisko kodināšanu.

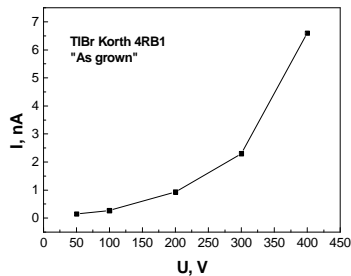
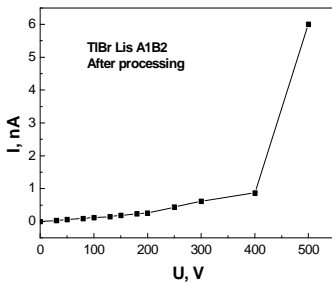
5.6 TlBr kristāla elektriskās īpašības

Materiāla elektriskās īpašības ir ļoti svarīgas detektoru darbībā. Pētot TlBr elektriskās īpašības tika izmantoti ar Bridžmena–Stokbargera metodi audzētu kristālu paraugi, ka arī paraugi, kuri audzēti ar izkausētās kustīgās zonas metodi. Pirms zelta kontaktu uzklāšanas notika parauga virsmas apstrāde – paraugs vispirms tika presēts un pēc tam tā virsmas tika kodinātas. Parauga atkvēlināšanu veica pirms kontaktu uzputināšanas. Pirms presēšanas paraugu biezums bija 2 mm, bet presēšanas rezultātā tas samazinājās līdz 0.5 mm un bija visiem paraugiem vienāds. Taču katras sērijas vienam nepresētam paraugam arī tika uzputināti kontakti, lai varētu salīdzināt īpašības paraugiem pirms un pēc to presēšanas. Pirms un pēc presēšanas paraugiem tika nomērītas voltampēru raksturlieknes pie istabas temperatūras. Voltampēru raksturliekņu uzņemšanai paraugam tika uzputināti zelta kontakti, un pie tiem ar zelta zondēm tika pielikts spriegums. Visa mērīšanas procedūra tika realizēta „melnajā kastē” – mērīšanas laikā paraugs atradās tumsā, lai novērstu fotostrāvas ieguldījumu. Attēlos 13, 14 ir parādīta radiācijas detektoru izgatavošanai sagatavoto TlBr kristālu voltampēru raksturlieknes.

Līdz presēšanai visiem paraugiem voltampēru raksturlieknes nebija lineāras (Att. 13a, 14a), bet pēc presēšanas, atkvēlināšanas un kodināšanas voltampēru raksturliekne visiem paraugiem ir lineāra (Att. 13b, 14b). Tomēr paraugam 4R raksturliekne ir stāvāka un caursites spriegums ir 170 V, tajā laikā, kad paraugam A1B2 pie tā paša biezuma caursites spriegums ir 400 V. Lai novērtētu kā presēšana ietekmē paraugu elektriskās īpašības, no iegūtām voltampēru raksturlieknēm tika aprēķināta detektoru kristālu īpatnēja pretestība, aprēķinu rezultāti ir Tabulā 1.



Att. 13. Voltamperu raksturlienes Bridžmena-Stokbargera metodi audzētam TIBr kristālam: a) nepresētam un b) presētam



Att. 14. Voltampēru raksturlienes ar izkausētās kustīgās zonas metodi audzētam TIBr kristālam a) nepresētam un b) presētam

No tabulas 1 ir konstatējams, ka paraugam A1B2 īpatnējā pretestība praktiski neizmainījās pēc presēšanas, bet paraugam 4RB1 īpatnēja pretestība izmainījās par vienu decimālo kārtu. Varam pieļaut, ka paraugs 4RB1 satur struktūras defektus, tādus kā dislokācijas, plaisas, graudu robežas, kuras izraisa „melnās” strāvas noplūdi kā pirms apstrādes, tā arī pēc apstrādes.

Paraugs	A1B2	4RB1
Pirms apstrādes	$8,2 \times 10^{12}$	$3,7 \times 10^{11}$
Pēc apstrādes (presēšana, kodināšana)	2×10^{12}	$4,5 \times 10^{10}$

Tabula 1. Paraugu īpatnējā pretestība (ρ , $\Omega \cdot \text{cm}$)

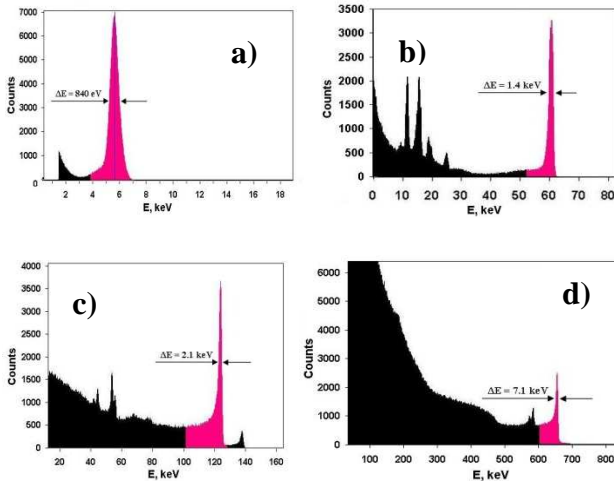
6. Jonizējošā starojuma detektoru izgatavošana

Detektoru īpašību testēšanai un to iespējamai izmantošanai veltīti daži publicētie darbi {8, 9, 11}, kuros izklāstīta detektoru izgatavošanas tehnoloģija un spektrometrisko parametru testēšanu.

6.1 Gamma staru detektoru, izgatavotu no ar Bridžmena-Stokbargera metodi audzētiem kristāliem, spektrometriskās īpašības

Jonizējošā starojuma detektors izgatavots no ar Bridžmena-Stokbargera metodi audzēta kristāla Al un reģistrētas tā spektrometriskās īpašības, kuras redzamas 15. attēlā.

Testēšanas laikā ir iegūti sekojoši rezultāti par detektora spektrometriskajām īpašībām – (detektoru izšķiršanas spēja): 0.8 (13.6%), 1.4 (2.3%), 2.1 (1.7%) un 7.1 keV (1.1%) pie enerģijas 59.6, 59.6, 122, un 662 keV attiecīgi. Detektora kontaktu platums 12.56 mm^2 un kristāla biezums ir 2 mm.



Att. 15. Jonizējošā starojuma spektri reģistrēti ar no TlBr izgatavotiem detektoriem, kuru kristāli audzēti Bridžmena-Stokbargera metodi a) Fe-55, b) Am-241, c) Co-57, d) Cs-137

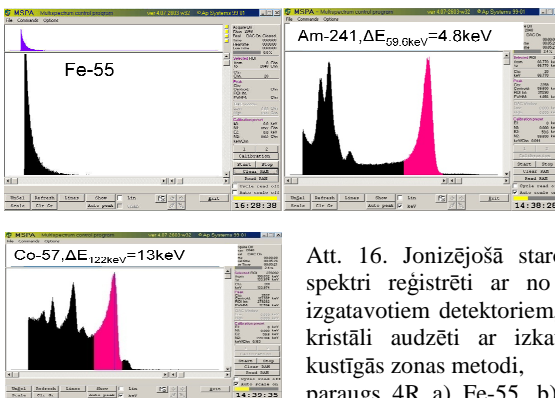
No kristāla A1 izgatavotā detektora spektrometriskie parametri apkopoti Tabulā 2. Pašlaik ir vislabākie rezultāti iegūti no kristāla A1 izgatavotajiem planāriem TlBr detektoriem [20 – 25]

Tabula 2. Dažu TlBr un CdZnTe jonizējoša starojuma detektoru spektromētrisko īpašību salīdzināšana

Kristāls	5.9 keV	59.6 keV	122 keV	662 keV
	FWHM, keV			
TL-1	0.5	2.7	4.4	29
Lis25	0.85	1.8	3.1	21.1
A1	0.8	1.4	2.1	7.1
4R		4.8	13	
CdZnTe	1.1	1.9	3	12

6.2 Gamma staru detektoru, izgatavotu no ar izkausētās kustīgās zonas metodi audzēta TlBr kristāla, spektrometriskās īpašības

No TlBr kristāliem, kas audzētiem izkausētās kustīgās zonas metodi arī tika izgatavoti jonizējošā starojuma detektoru un pārbaudītas to spektrometriskās īpašības. Iegūtie rezultāti ir parādīti 16. attēlā.



Att. 16. Jonizējošā starojuma spektri reģistrēti ar no TlBr izgatavotiem detektoriem, kuru kristāli audzēti ar izkausētas kustīgās zonas metodi, paraugs 4R a) Fe-55, b) Am-241, c) Co-57

Spektrometriskās raksturīpašības reģistrētas pie temperatūras -10°C , un pieliktais spriegums ir 580 V. Iegūtas sekojošas izšķiršanas spējas: 4.8 keV pie 59.6 keV un 13 keV pie 122 keV. Jā salīdzina ar detektoriem izgatavotiem no kristāliem audzētiem ar Bridžmena-Stokbargera metodi (Tab.2), varam secināt, ka detektora izšķirtspēja nav pietiekama, lai šo detektoru varētu plaši izmantot, tomēr kristāli uzrāda spektrometriskās īpašības. Šajā gadījumā noteicošā loma ir kristālu kvalitātei un tas nozīmē, ka jāturpina strādāt pie izkausētās kustīgās zonas metodes turpmākas attīstības TlBr kristālu audzēšanai.

7. Optisko un elektrisko īpašību korelācija ar detektoru raksturīpašībām

Darbā gaitā tika salīdzinātas TlBr kristālu optiskās īpašības ar jonizējošās radiācijas detektoru, kuri izgatavoti no šiem kristāliem, spektrometriskajām īpašībām. Salīdzināšanas rezultātā iegūti sekojoši secinājumi:

- Jods un citi homoloģiskie piemaisījumi pasliktina jonizējošā starojuma detektoru raksturīpašības un tādi kristāli nav pielietojami detektoru izgatavošanai. Homoloģiskos piemaisījumus var konstatēt pēc fundamentālās absorbcijas malas novietojuma un kristālu luminiscences.
- Detektori, kas izgatavoti no kristāliem, kuros efektīvi rodas koloīdi, ir ar īsu darba mūžu.
- Voltamperu raksturlīknes linearitāte un kristāla augsta īpatnējā pretestība ($\sim 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$) ir detektoru darbības nepieciešamie nosacījumi. Ar izkausētās kustīgās zonas metodi audzētiem TlBr kristāliem voltampēru raksturlīkne ir stāvāka un caursites spriegums ir mazāks nekā ar Bridžmena-Stokbargera metodi audzētiem TlBr kristāliem.

8. Aizstāvamas tēzes

1. Parādīts, ka TlBr kristālu dažas optiskās īpašības korelē ar no tiem izgatavoto jonizējošā starojuma detektoru spektrometriskām īpašībām, līdz ar to iespējama optisko īpašību izmantošana, lai noteiktu kristāla piemērotību jonizējošā starojuma detektora izgatavošanai.
2. Izstrādāta TlBr kristāla virsmas apstrādes metodika, kas nodrošina kvalitatīvas elektriskā kontakta īpašības sistēmā zelts-TlBr. Metodika ietver TlBr virsmas kodināšanu, kristāla atkvēlināšanu un apstrādes rezultātu kontroli izmantojot optisko mikroskopiju un mikrociētības noteikšanu.
3. Novērota TlBr kristālu voltampēru raksturlīknes atkarība no kristāla audzēšanas metodes. Materiāla augsta īpatnējā pretestība un voltampēru raksturlīknes linearitāte nosaka no kristāla izgatavotā jonizējošās radiācijas detektora parametrus.
4. No TlBr kristāliem, kas audzēti ar divām atšķirīgām metodēm, izgatavoti elektromagnētiskā jonizējošā starojuma (rentgenstari, gamma stari) detektori un salīdzinātas šo detektoru īpašības. Labākajam no tiem enerģijas izšķirtspējas ir 0.8 (13,6%), 1.4 (2.3%), 2.1 (1.7%) un 7.1 keV (1.1%) atbilstoši enerģijām 5.9, 59.6, 122 un 662 keV.

9. Literatūras saraksts

1. A. Owens, A. Peacock, Compound semiconductor radiation detectors, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, **531**, 1-2, 21 (2004), 18
2. Под ред. М.П. Шаскольской, Акустические кристаллы, Наука, Москва, 1982
3. D. A. Pinnow, A. L. Gentile, A. G. Standlee, A. J. Timper, L. M., Hobrock, Polycrystalline fiber optical waveguides for infrared transmission, *Applied Physics Letters*, 33 (1), (1978), 28
4. A. Owens, A. Peacock, M. Bravadz, "Progress in Compound Semiconductors", *X-Ray and Gamma-Ray Telescopes and Instrum. for Astron.*, **4851**, (2003), 1059
5. Д. К. Миллерс, А. В. Номоев, Л. Г. Григорьева, Точечные радиационные дефекты в галогенидах таллия, *Изв. АН. сер. физ. и техн. н.* **3**, (1989), 60
6. Л. Г. Григорьева, Д. К. Миллерс, Е. А. Котомин, Люминесценция смешанных кристаллов галогенидов серебра при высоких плотностях возбуждения, *Журнал прикладной спектроскопии*, **55**, (1991), 826
7. Т. Х. Джеймс, Теория фотографического процесса, «Химия», Ленинград (1984)
8. Л. Г. Григорьева, Д. К. Миллерс, Е. А. Котомин, В. Г. Артюшенко, А. В. Номоев, Короткоживущие радиационные дефекты в галогенидах серебра, *Оптика и спектроскопия*, **67**, (1989), 3
9. M. Ueta, H. Kanzaki, K. Kobayashi, Y. Toyozawa and E. Hanamura, *Excitonic Processes in Solids*, Springer-Verlag, Hiedelburg, New York, Tokio 1984
10. R. Shimizu, T. Kōda and T. Murahashi, Exciton Luminescence in TlBr and TlCl, *J. Phys. Soc. Jpn.* **36** (1974), 161
11. V. Kohlová, I. Pelant, J. Hála, M. Ambrož, K. Vacek, Luminescence of direct-and indirect-gap electron-hole plasma in TlBr, *Solid State Communications*, **62**, 2, (1987), 105

12. А. С. Высочанский, О фотолюминесценции хлористого таллия – *ДАН СССР*, **112**, (1957), 228
13. В. А. Соколов, Н. А. Толстой, О природе люминесценции хлористого таллия, *Опт и Спектр.*, **18**, (1965), 251
14. В. А. Соколов, Люминисценция хлористого таллия, *Диссертация на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук*, Москва, 1963
15. H. Overhov, J. Treusch, *Solid State Commun*, **9**, (1971), 53
16. И. В. Белевич, Е. А. Котомин, А. Л. Шлюгер, Р. А. Эварестов, Расчёт электронной структуры хлорида таллия, *Изд. АН Латв. Сер. Физ. и техн. н.* (1986)
17. Л. Г. Григорьева, Процессы создания и рекомбинации радиационных дефектов в галогенидах таллия и щелочных металлов, *Автореферат диссертации на соискание учёной степени кандидата физ.-мат. наук*, Рига (1986)
18. M. Kurik, Urbah Rule, *Phys Stat. Sol. (a)* **8**, (1971), 9
19. Полупроводниковые детекторы в экспериментальной физике. Под ред. Ю. К. Акимова, Энергоиздат, Москва 1989
20. V. Gostilo, A. Owens, M. Bravadz, I. Lisjutin, A. Peacock, H. Sipila, S. Zataloka, Single and Pixel Arrays Based on TlBr, Nuclear Science, *IEEE Trans. Nucl. Sci*, **41**, (2002), 2513
21. I. B. Oliveira, F. E. Costa, P. K. Kiyohara, M. M. Hamada, Influence of Crystalline Surface Quality on TlBr Radiation Detector Performance, *IEEE Trans. Nucl. Sci*, **52**, 5, (2005), 2058
22. D. Zhou, L. Quan, X. Chen, S. Yu, Z. Zheng, S. Gong, Preparation and characterizations of thallium bromide single crystal for room temperature radiation detector use, *Journal of Crystal Growth*, **311**, 8, (2009), 2524

23. S. Yu, D. Zhou, S. Gong, Z. Zheng, Y. Hu, C. Wang, L. Quan, Purification and optical properties of TlBr crystals, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, **602**, 2, (2009), 484
24. K. Hitomi, T. Onodera, T. Shoji, Y. Hiratate, H. Zhong, TlBr Gamma-Ray Spectrometers Using the Depth Sensitive Single Polarity Charge Sensing Technique, *IEEE Trans. Nucl. Sci*, **55**, 3, 3, (2008), 1781
25. V. M. Zaletin, I. P. Barkov, I. M. Gazizov, V. S. Khrunov, I. S. Lisitskii and M. S. Kuznetsov, Use of TlBr crystals for x- and γ -ray detectors, *Atomic Energy*, **106**, 4, (2009), 214

10. Autora publikāciju saraksts

10.1 Raksti tieši saistīti ar promocijas darba tēzēm:

1. L. Grigorjeva, D. Millers, M. Shorohov, I. S. Lisitskii, M. S. Kuznetsov, S. Zatoloka, V. Gostilo, Optical investigations of TlBr detector crystals, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, **531**, 1-2, (2004), 197
2. M. Shorohov, L. Grigorjeva, D. Miller, Optical properties and spectrometric performance of TlBr detector crystals, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A* **563**, 1, (2006), 78
3. M. Shorohov, F. Muktepavela, L. Grigorjeva, J. Maniks, D. Millers, Surface processing of TlBr single crystals used for radiation detectors, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A* **607**, 1, (2009), 120-122
4. M. Shorohov, F. Muktepavela, J. Maniks, Surface processing of TlBr crystals for X- and γ -ray detectors, *Latvian Journal of Physics and Technical Sciences*, **3**, (2008), 13.
5. V. Kozlov, H. Andersson, V. Gostilo, M. Leskelä, A. Owens, M. Shorohov, H. Sipilä, Improved process for the TlBr single-crystal detector, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, **591**, 1, (2008), 209
6. P. Kostamo, M. Shorohov, V. Gostilo, H. Sipilä, V. Kozlov, I. Lisitsky, M. Kuznetsov, A. Lankinen, A.N. Danilewsky, H. Lipsanen, M. Leskelä Characterization of TlBr for X-ray and γ -ray detector applications, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, **607**, 1, (2009), 129
7. Vaidotas Kažukauskas, Andžej Ziminskij, Juozas-Vidmantis Vaitkus, Vladimir Gostilo, Mihail Shorohov, Photoelectrical properties of TlBr related to ionic transport and presence of defects, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, **607**, 1, (2009)123

8. M. Shorohov, M. Kouznetsov, I. Lisitskiy, V. Ivanov, V. Gostilo, A. Owens, Recent Results in TlBr Detector Crystals Performance, Nuclear Science, IEEE Trans. Nucl. Sci. **56**, 4 , 1, (2009), 1855
9. M. Shorohov, V. Gostilo, V. Ivanov, A. Owens, Probe prototypes based on TlBr detectors, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, **607**, 1, (2009), 116
10. V. Kozlov, H. Andersson, V. Gostilo, M. Kemell, P. Kostamo, M.S. Kouznetsov, M. Leskelä, H. Lipsanen, I.S. Lisitsky, M. Shorohov, H. Sipilä, Improvements and problems of Bridgman–Stockbarger method for fabrication of TlBr single crystal detectors, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, **607**, 1, (2009), 126
11. A. Kozorezov, V. Gostilo, A. Owens, F. Quarati, M. Shorohov, M. A Webb, J. K. Wigmore, Polarization effects in thallium bromide x-ray detectors *Journal of Applied Physics*, **108** , (2010), 64507

10.2 Ar aizstāvamajām tēzēm nesaistītas publikācijas:

1. M. Shorohov, I. Tsirkunova, A. Loupilov, V. Gostilo, C. Budtz-Jørgensen, I. Kuvvetli, Performance updating of CdZnTe strip-drift detectors, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, **576**, 1, (2007), 80
2. A. Bulycheva, M. Shorohov, A. Lupilov, V. Gostilo, W. Inui, M. Funaki, CdTe linear arrays for registration of hard gamma-ray fluxes, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, **607**, 1, (2009), 107

Pateicība

Īpašs paldies Larisai Grigorjevai par lielo atbalstu zinātniskā darba tapšanā un konstruktīvām diskusijām, kritiku zinātnisko rezultātu apspriešanā.

Vēlos izteikt arī pateicību visiem Cietvielu Fizikas institūta kolēģiem.

Darbs tapis pateicoties Eiropas Sociālā Fonda finansiālajam atbalstam.

