

碘化汞 (HgI₂) 晶体及其应用

李正辉 曾家玉¹⁾ 朱世富 陈观雄

(四川大学物理系)

自七十年代初 Willing 等首先用 HgI₂ 晶体制成室温半导体核探测器^[1]以来,迄今在该晶体的生长和应用等方面都取得了很大进展. 美国生长 HgI₂ 单晶已初具规模^[2], Iwanczyk 等报道长出的单晶达 700g, 并制出活化面积达 4cm² 的光电探测器^[3]. 近年来, 已制出 17cm² × 1.5cm 的大体积 γ 射线探测器^[4]. 并对此材料进行了更加深入全面的研究^[2,5,6].

HgI₂ 是 II-VII 族化合物半导体. 常温下为红色透明的层状结构的四方晶系晶体. 其禁带宽度大 (2.14 eV), 体暗电阻大 (> 10¹³Ω · cm), 电流小(在电场高达 10⁴V/cm 也不击穿), 组元原子序数高(80 和 53), 密度大(6.4g/cm³), 所以它是目前适于制作室温半导体探测器的极好材料. HgI₂ 晶体的应用前景广阔, 现已用于核谱仪, 并将逐渐用于核医学、高能物理和天文学.

一、HgI₂ 晶体的性能

用作辐射探测器的 HgI₂ 单晶, 可用溶液法、汽相法和熔体法生长. 表 1 列出了 HgI₂ 与 CdTe, Si, Ge 的性能比较.

从表 1 可以看出, 与其它三种晶体相比, HgI₂ 有两个明显的优点: (1) 由于组元原子序数高、密度大, 所以对 X 射线有大的阻止本领, 灵敏度和探测效率都高; (2) 由于禁带宽度大, 因而能在 -50—+50℃ 温区工作.

在室温下, HgI₂ 探测器有下述特性.

1. 光谱响应特性

对于相同的光子能量, 不同的探测器材料的光电线吸收系数 $\mu_{PE} \propto \rho Z^3$, 这里 ρ 和 Z 分别为探测器材料的密度和平均原子序数. HgI₂

晶体的 μ_{PE} 大, 所以其器件有着强的光电效应. 从光谱响应特性来看(图 1)^[9], 它适用于 300 至 600nm 波长范围, 在约 570nm 处出现最大光电流, 它的截止波长约为 600nm. 而大多数闪烁体放射出最强光的波长是 400—560nm. 由此可见, HgI₂ 器件适宜探测闪烁光.

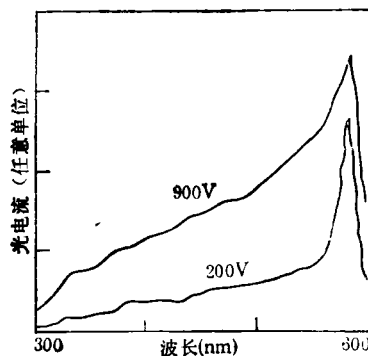


图 1 两种偏压下 HgI₂ 光电探测器的光谱响应特性

2. 电压-电流特性

HgI₂ 晶体是半绝缘体, 其漏电流很小. 在 700V 偏压下, 探测器漏电流小于 60pA^[3], 甚至偏压高达 1500V 时, 漏电流也能小于 100pA^[9]. HgI₂ 探测器的漏电流, 除器件的体电流外, 主要来自表面电流, 这与探测器的制备工艺有关. 因而在器件制备过程中, 应选用最佳制备工艺使漏电流降至最小.

3. 稳定性

由于 HgI₂ 晶体在大气中有一定的挥发性, 且碘原子的挥发速率大于汞原子的挥发速率致使汞富集, 从而降低探测器的性能. 但如果选用密封剂保护表面, 则 HgI₂ 探测器在大气中至少两年之内性能是稳定的^[10].

1) 曾家玉在四川大学分析测试中心工作.

表1 HgI₂, CdTe, Si 和 Ge 晶体的基本参数^[7-10]

参数		HgI ₂	CdTe	Si	Ge
原子序数		80 和 53	48 和 52	14	32
晶系		四方	立方 (闪锌矿型)	立方 (金刚石型)	立方 (金刚石型)
晶胞 (Å)		a = 4.37 c = 12.44	a = 6.47	a = 5.431	a = 5.657
密度 (g/cm ³)		6.4	6.06	2.33	5.32
熔点(°C)		254	1091	1410	937
禁带宽度 (eV)		2.14	1.47	1.12	0.66
平均电离能 (eV)		4.2	4.45	3.62	2.8
迁移率-寿命积 (cm ² /V)	电子	10 ⁻³	2.1 × 10 ⁻³	1.4	3.5
	空穴	4 × 10 ⁻³	4 × 10 ⁻⁴	0.5	2
俘获长度 (cm)	电子	60	14	280	175
	空穴	2.4	2.8	100	100

4. 核光谱特性

当 X, γ 射线与 HgI₂ 晶体作用时,其大部分能量转变成电子-空穴对而使晶体具有导电性。用电场收集这些载荷子所产生的电流脉冲,但事实上,由于统计涨落,电子噪声和电子收集特性的涨落,多道分析器所记录的单一能量的线光谱变成了宽化的峰。HgI₂ 的平均原子序数高、禁带宽度宽、漏电流低、密度大,并且有良好的电子输运特性,因而它的光谱具有能量分辨率好,探测效率高优点。对于低能光子,其探测效率高于 CdTe,大大优于 Si 和 Ge。对探测能量低于 100 keV 的 X 射线和 γ 射线,它除有极高的探测效率外,还有很好的能量分辨率和能量线性特性。

迄今,由 HgI₂ 探测器和脉冲调制-光反馈前置放大器所构成的室温高分辨核谱仪,对⁵⁵Fe 5.9 keV 的 X 射线,其能量分辨率(半高宽 FWHM) 为 5%,低温下可达 3%,已接近 Si 探测器系统的水平^[11]。对于²⁴¹Am 59.5 keV 和¹³⁷Cs

662keV 的 γ 射线,其 FWHM 分别为 2%^[12] 和 0.7%^[7]。能量分辨率虽然随着探测光子能量的增加而增加,但探测效率却减小。用厚探测器可提高效率,厚度为 1.2cm 的 HgI₂ γ 射线探测器,对能量直到 1.5 MeV 的 γ 射线的探测效率仍达 80%^[13]。HgI₂, CdTe, Si 和 Ge 探测器的 FWHM 如表 2 所示。

表2 HgI₂ 和 CdTe, Si, Ge 探测器的 FWHM 比较^[7]

探测器 FWHM 特征峰 (keV)	HgI ₂	CdTe	Si 表面 位垒	Ge
5.9	5 ^[11]	18	2.5	—
59.5	2 ^[12]	3	1.5 ^[13]	—
662	0.7	1.3	—	0.2

由表 2 可以看出, HgI₂ 的能量分辨率优于 CdTe, 而接近 Si, Ge 探测器的水平。

二、HgI₂ 晶体的应用

HgI₂ 晶体是一种匀质半导体材料。用它制成的电离辐射探测器是无结器件，称为匀质体电导探测器。在晶体的两个相对面上制备金属电极而构成固体电离室，入射线在电离室的晶体内耗损能量，激发产生电子-空穴对而使晶体具有电导性。电子-空穴对的数目 N 与入射线能量有正比关系，即 $N = W/\epsilon$ 。这里 W 是入射线能量， ϵ 是 HgI₂ 的平均电离能。探测器上加足够高的电压、产生较强的电场，以便尽可能完全地收集电荷。所收集的电荷在电极上作为电脉冲被记录下来。从这些电荷的多少或脉冲幅度的高低可以确定入射线的能量，再由单位时间内的脉冲个数确定入射线的强弱。HgI₂ 晶体具有前述特性，因而其器件用途很广，可分为四类。

1. 计数器/电流型探测器

高 Z 的 HgI₂ 晶体对 X 和 γ 射线和 α 和 β 带电粒子等有高的阻止本领，因而 HgI₂ 探测器首先用作辐射计数器，探测辐射源产生的电脉冲或电流，而不要求光谱分辨率。例如，17cm² × 1.5 cm 的便携式 γ 射线计数器用于探测 30 keV—1.3MeV 的 γ 射线。这种计数器不需使用闪烁探测器的光电倍增管和相当稳定的高压电源，只要用一个周期性（每 8 到 20h）充电的高压电容器作为电源即可。因而，它与 NaI(Tl) 类闪烁计数器相比，具有体积小、重量轻、漏电流小 (< 100 pA)、灵敏度高和使用方便等优点^[4]。

另一方面，HgI₂ 计数器广泛用于核医学^[4]。与气体电离室或硅结二极管医用探头相比，由于 HgI₂ 的 Z 高，禁带宽度大，因而在体温下工作时具有低噪声、高灵敏度和高效率等优点。长为 4.3cm，外径为 0.9mm 的 HgI₂ 探头可用来探测进入人体内的同位素辐射（如用于放射治疗或诊断癌症的 ¹²⁵I）。高通量 β 粒子医用探头可用来探测放射治疗用的 β 射线。当 HgI₂ 探测器受到达 40 keV，10¹² pps 通量（约相当于

400R/min 剂量）的 X 射线辐照时，其直流电流对辐射剂量呈线性关系。因而，此种高通量 X 射线探测器在核医学和辐射剂量学中可作为辐射剂量计。

2. 分光计

HgI₂ 探测器作为分光计，在低能 X 射线谱范围内已取得了重要的进展^[4]。HgI₂ X 射线分光计的高分辨率使它有可能用于 X 射线荧光 (XRF) 分析。图 2 表示用 X 射线管激发不锈钢

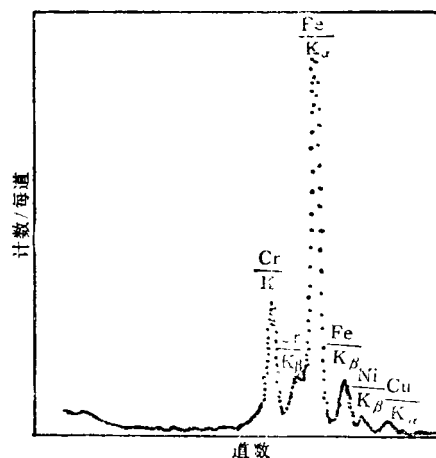


图 2 X 射线管激发不锈钢样品的特征 X 射线谱

钢样品，用 4mm² × 400 μ m 的 HgI₂ 探测器（偏压 400V，温度 -1 $^{\circ}$ C，低温冷却脉冲-光反馈前置放大器）所得到的特征 X 射线谱，表明样品含有 Cr，Fe，Ni 和 Cu 等元素。X 射线谱仪的高分辨率和高探测效率，使其在 XRF 分析中灵敏度高，样品中浓度为 44ppm 的微量元素也能被探测到。高分辨谱仪还能区别周期表中彼此邻近的元素。其它的应用包括取代 X 射线衍射中的气体计数器和 X 射线衍射天文望远镜^[4]中的 NaI(Tl) 闪烁探测器。由于 HgI₂ 所具有的特性，其 X 射线分光计与 NaI(Tl)，Si，Ge 相比具有能在室温下工作，且兼有高量子效率和好的能量分辨率，因而灵敏度高等优点。美国麻省理工学院研究出用于硬 X 射线天文学中的 BGO（锗酸铋）闪烁体屏蔽 HgI₂ 探测器。此种探测器在气球吊舱飞行试验中，测得 40—80keV 范围内的背景计数率为 4.2 × 10⁻⁵ cps/cm² · keV。这表明，对于强度为巨蟹座星云的

1%的天体X射线源,在1.5h内能探测到。

对于 γ 射线,现已制出薄型(0.5mm)和厚型(1.2cm)分光计^[2,4,33]。前者在10—100keV的能量范围内显现出高的效率。由12个单元构成的系统于1981年的气球飞行实验中,测量了来自天鹅座I的 γ 射线脉冲。厚度为1.2cm,体积约为10cm³的HgI₂ γ 射线分光计,对能量约为1MeV的 γ 射线的能量分辨率已小于10%,对能量直到1.5MeV的 γ 射线的探测效率约为80%。

若在HgI₂探测器前面放置一个Cd或Gd金属片作为中子/ γ 转换器,则HgI₂分光计便可用作中子的固态探测器^[34]。中子的计数效率依赖于HgI₂分光计的厚度,1mm厚度所探测的中子,大约为同样面积的¹⁰BF₃中子探测器所探测热中子总数的10%。此外,HgI₂分光计还可用来探测质子和 α 粒子^[35]。

3. 光电探测器

在探测带电粒子或 γ 射线的单脉冲中,人们把具有高效率的闪烁体与高分辨率的HgI₂晶体经光耦合而构成一种新颖的光电探测器。从图1的光谱响应特性已看到,HgI₂光电探测器完全可取代闪烁探测器的光电倍增管。电离辐射在闪烁体中产生闪烁光,并穿过半透明入射电极而进入HgI₂光电探测器,在电极附近的薄层内产生电子-空穴对。由于HgI₂中所吸收的闪烁光子数和产生的电子-空穴对数间有一一对应关系,因而经已知能量的X射线校正^[3],可由所收集电荷的多少或脉冲幅度的高低确定被测射线的能量,并由单位时间的脉冲个数确定其射线的强弱。近年来,已研究出活化面积达1.3—4cm²的HgI₂光电探测器。将HgI₂光电探测器与闪烁体NaI(Tl),CsI(Tl),BGO,GSO(正硅酸钡)光耦合,得到¹³⁷Cs γ 射线谱、⁶⁸Ga正电子湮没 γ 射线谱和²⁴¹Am γ 射线谱^[3,16]。用HgI₂-CsI(Tl)光电探测器得到的⁶⁸Ga正电子源(511keV)的湮没 γ 射线谱的FWHM为9.3%,而用HgI₂-NaI(Tl)光电探测器得到的源¹³⁷Cs(662keV)的 γ 射线谱的FWHM为9%。HgI₂与BGO和GSO光

耦合得到511keV的湮没 γ 射线谱的FWHM分别为19%和13.6%。HgI₂光电探测器的探测效率与闪烁体和HgI₂的转换效率都有关。由于GSO的光输出为BGO的1.7倍,故与前者耦合的HgI₂光电探测器的探测效率要高些。尽管CsI(Tl)的光输出只有NaI(Tl)的67%^[3],但由于其闪烁光波长为560nm,接近于HgI₂的吸收限(见图1),因此它的闪烁光在HgI₂中有更大的穿透深度。因而,HgI₂-CsI(Tl)光电探测器的量子效率达72%^[9],而HgI₂-NaI(Tl)光电探测器的量子效率为40%^[3]。它们都比有光电倍增管的闪烁探测器的量子效率(20%)高得多。由于HgI₂光电探测器不仅有好的能量分辨率,而且也有高的量子效率,因此它在高能物理的领域有广泛的应用,并开辟了用于正电子发射断层照相的美好前景。

4. 位置灵敏探测器(或成像装置)

利用微电子光刻技术,在同一块HgI₂单晶片上制成若干个小探测器,构成一维或二维阵列的位置灵敏探测器。现已制成由20个单元构成的一维阵列和8×8个单元构成的二维阵列^[17],其空间分辨率已达到1—2mm。这些探测器有各种不同的用途,例如用于射电天文学或无损检查金属部件裂纹的射线照相术(γ 相机)中。

此种探测器的另一重要应用是在核医学。它已用在X射线计算机断层照相^[18]中,通过成像来检查人体病变。¹³³Xe吸入法用于测定局部脑血流量(rCBF)以诊断脑部疾病。以前主要是用NaI(Tl)闪烁探头或CdTe探测器,我国也有这方面工作的报道^[19,20]。HgI₂除了比它们有更高的能量分辨率和灵敏度之外,用HgI₂和NaI(Tl)探头所完成的大量对比诊断rCBF测量的结果也表明,HgI₂探测器能提供精确的rCBF数据,使有可能最好地鉴别左和右脑血流量的差别^[18]。这些都说明,用HgI₂探测器代替NaI(Tl)探头测量rCBF是可能的。

本文内容曾与四川大学物理系肖定全同志进行过
(下转第280页)