

基于碳化硅中子探测器的实验研究

唐彬^{1,2} 蔡军¹ 黄文博¹ 梁超飞^{1,2} 李长园^{1,2} 李世斌^{1,2}

¹(中国科学院上海应用物理研究所 上海 201800)

²(中国科学院大学 北京 100049)

摘要 碳化硅(SiC)中子探测器属于一种宽禁带半导体探测器,适合在高温强辐射环境下的测量。本文利用标准放射源建立了SiC中子探测器的实验测试系统,分别研究了SiC中子探测器在²⁵²Cf标准源及⁶⁰Co标准源照射下的响应情况。通过实验测试发现, SiC中子探测器可以在低偏置电压下工作,在²⁵²Cf标准源照射下探测器的计数率与中子通量之间具有非常好的线性关系,其线性拟合 R^2 值为0.999 8。此外, SiC中子探测器在⁶⁰Co源照射下的计数主要是在低能区,可以通过甄别阈值设置有效地分辨 γ 射线的影响。

关键词 碳化硅, 中子探测器, 探测效率

中图分类号 TL816+.3

DOI: 10.11889/j.1000-3436.2020.rj.38.050702

Experimental study of silicon carbide neutron detectors

TANG Bin^{1,2} CAI Jun¹ HUANG Wenbo¹ LIANG Chaoifei^{1,2} LI Changyuan^{1,2} LI Shibin^{1,2}

¹(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

²(University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

ABSTRACT Silicon carbide (SiC) neutron detector is suitable for monitoring in elevated temperature and harsh radiation environment owing to its wide band gap. An experimental test system of SiC neutron detector was established using standard radioactive sources, and the responses of SiC neutron detector irradiated by ²⁵²Cf and ⁶⁰Co standard sources were investigated, respectively. It was found that the SiC neutron detector could work at a low bias voltage, the R^2 value of the linear fitting between the counting rate and the incident neutron flux of the detector is 0.999 8 under the ²⁵²Cf source irradiation, which showed a very good linear relationship. In addition, the count of the SiC neutron detector under the ⁶⁰Co source irradiation was observed mainly in the low-energy area, which could effectively distinguish the effect of γ -ray by setting the discrimination threshold.

KEYWORDS Silicon carbide, Neutron detector, Detection efficiency

CLC TL816+.3

碳化硅(SiC)探测器是一种宽禁带半导体探测器,不同于常规的Si和Ge等半导体探测器,它不仅具有体积小、能量分辨率好和快时间响应等

优点,还具有禁带宽度大、击穿电场强度高、移位阈能大、热稳定性好等特点,适用于反应堆监测、乏燃料监管、高能物理实验和航天航空等高

基金资助: 中国科学院战略性先导科技专项(XDA02050100)资助

第一作者: 唐彬,男,1992年出生,2016年于南华大学获学士学位,现为硕士研究生,研究领域是辐射探测技术

通信作者: 蔡军,高级工程师, E-mail: caijun@sinap.ac.cn

收稿日期: 初稿 2020-04-30; 修回 2020-06-19

Supported by Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (XDA02050100)

First author: TANG Bin (male) was born in 1992, and obtained his bachelor's degree from University of South China in 2016. Now he is a graduate student, majoring in radiation detection technology

Corresponding author: CAI Jun, senior engineer, E-mail: caijun@sinap.ac.cn

Received 30 April 2020; accepted 19 June 2020

温、强辐射环境下的辐射监测^[1-3]。一般地, SiC探测器通过核反应法或核反冲法对 neutron 进行测量, 其中, 最常用的核反应法是利用 neutron 经过¹⁰B₄C 或⁶LiF 转化层与¹⁰B 或⁶Li 发生反应后生成次级带电粒子进入探测器灵敏层, 在灵敏层内产生电子空穴对被收集, 从而实现对 neutron 的探测^[4]。SiC 探测器从 20 世纪 50 年代起就开始进行 α 粒子、neutron 探测性能的研究^[5], 但受工艺技术的限制, 没有开展进一步的研究。随着 20 世纪 90 年代 SiC 材料及器件工艺技术的日益成熟, 美国、意大利、韩国等研究人员验证了 SiC neutron 探测器在高温及强 neutron 辐照条件下的性能^[6-7], 并研究将 SiC neutron 探测器应用于反应堆内^[8-10]和乏燃料环境下^[11]的监测。国内对 SiC neutron 探测器的研究起步比较晚, 2013 年, 陈雨等^[12]研究了以⁶LiF 薄膜为转换层的 SiC neutron 探测器在热 neutron 照射下的响应情况; 2014 年, 吴健等^[13]研制了以¹⁰B₄C 及聚乙烯为转化层的 SiC neutron 探测器, 并开展了在 CFBR-II 脉冲堆中的实验测试, 验证了 SiC neutron 探测器在反应堆中的测量性能; 2016 年, 张少华等^[14]采用蒙特卡罗方法计算分析了以¹⁰B₄C 作为转换层的 SiC neutron 探测器的热 neutron 探测效率, 优化了 SiC neutron 探测器结构设计。¹⁰B 与 neutron 反应产生的次级带电粒子⁷Li (0.84 MeV

和 1.01 MeV) 和 α 粒子 (1.47 MeV 和 1.78 MeV) 比⁶Li 与 neutron 反应产生的次级带电粒子 α 粒子 (2.05 MeV) 和 H³ (2.73 MeV) 的能量低, 容易受到 γ 射线干扰。本文基于以⁶LiF 为转换层的 SiC neutron 探测器, 开展了蒙特卡罗模拟分析及在²⁵²Cf 及⁶⁰Co 标准源照射下的实验测试, 测试了 SiC neutron 探测器在²⁵²Cf 源照射下的 neutron 探测效率及 neutron 探测线性关系, 并分析了在⁶⁰Co 源照射下 γ 射线的探测效率和次级电子能量沉积, 并将实验结果与蒙特卡罗模拟的计算结果进行对比, 为 SiC neutron 探测器的应用提供实验依据。

1 实验方案

实验测试采用的 SiC neutron 探测器为陶瓷封装的肖特基势垒型探测器, 这种探测器漏电流小, 且能在低电压下稳定工作, 灵敏面积为 0.5 cm×0.5 cm, 灵敏层厚度为 80 μ m, 全耗尽下的偏置电压为 450 V, 其 N 掺杂浓度为 10¹⁴ cm⁻³, 见图 1。转换层厚度为 25 μ m 的⁶LiF, 肖特基接触层由 100 nm 的 Ni、Au 组成, 基底的厚度为 360 μ m, 在基底和外延层之间设有 0.5 μ m 的缓冲层, 底部欧姆接触层分别由 30 nm Ti、30 nm Ni 和 100 nm Au 组成。

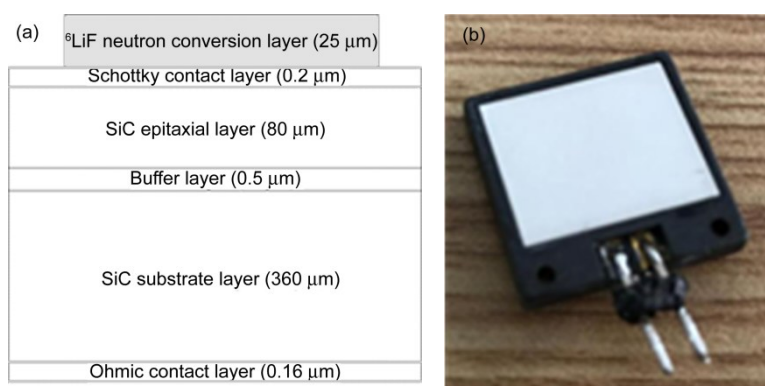


图 1 SiC neutron 探测器结构示意图(a)与封装后的 SiC neutron 探测器实物图(b)
Fig.1 Structure diagram of SiC neutron detector (a) and physical picture of SiC neutron detector after encapsulation (b)

为了防止电磁干扰, 在 SiC neutron 探测器周围采用铜纸密封包裹, 并将信号输出端与前置放大器紧密相连, 外接高压电源对探测器提供偏置电压。前置放大器输出端口连接 MCA-8K 多道分析仪, 多道分析仪输出信号接入计算机, 见图 2。实验采用标准放射源为²⁵²Cf 源和⁶⁰Co 源, 其中²⁵²Cf 源和⁶⁰Co 源的强度分别为 3.49×10⁶ Bq、1.13×10⁵ Bq

(截至 2020 年 3 月 18 日)。²⁵²Cf 标准源存放在密封的屏蔽室内, 屏蔽室内温度 20 °C。在实验过程中, ²⁵²Cf 标准源经过提升控制装置打开后, neutron 经过准直孔照射在 SiC neutron 探测器上。⁶⁰Co 标准源表面的不锈钢厚度为 2 mm, 可以阻挡 0.315 MeV 的 β 射线, 避免其在实验过程中衰变产生的 β 射线对 SiC neutron 探测器的影响。

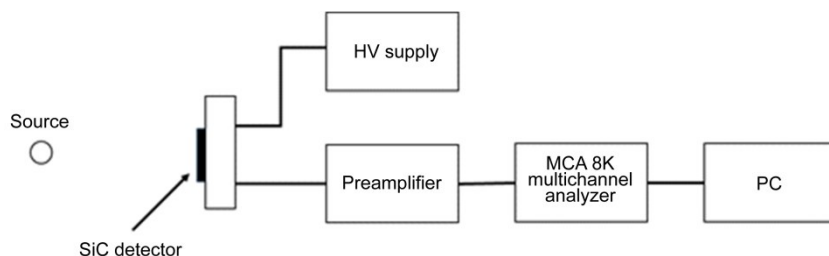


图2 SiC中子探测器实验测试示意图

Fig.2 Schematic diagram of SiC neutron detector under experiment testing

2 蒙特卡罗模拟分析

根据SiC中子探测器的结构及实验测试过程,采用蒙特卡罗模拟软件Geant4对SiC中子探测器的测量性能进行分析^[15]。

在 ^{252}Cf 标准源的模拟计算时采用了高精度中子物理过程(QGSP-BERT-HP),在 ^{60}Co 标准源的模拟计算时采用了电磁(EM)物理过程。输入粒子数为 10^6 ,在探测面上设置为均匀入射,入射位置在探测面范围内采用随机抽样,采用放射源垂直入射SiC中子探测器。 ^{252}Cf 标准源的能谱采用美国核数据库(ENDF)的 ^{252}Cf 源中子能谱^[16], ^{60}Co 源 γ 射线的能量为1.17 MeV和1.33 MeV。计算得到SiC中子探测器对 ^{252}Cf 源的中子本征探测效率为0.17%,对 ^{60}Co 源 γ 射线的本征探测效率为0.99%。

^{252}Cf 标准源主要发射快中子,在SiC中子探测器和 ^{252}Cf 标准源之间放置聚乙烯材料用来慢化快中子,SiC中子探测器对经过不同厚度聚乙烯材料慢化后的中子本征探测效率的模拟计算结果见图3。

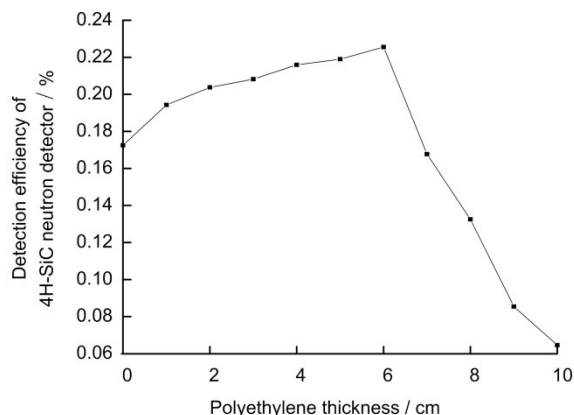
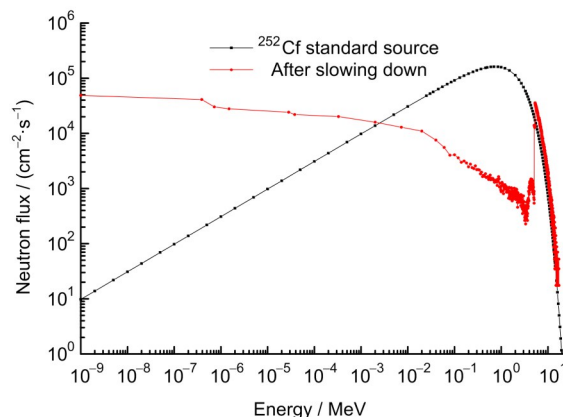


图3 经过不同厚度聚乙烯慢化后的SiC中子探测器本征探测效率

Fig.3 Intrinsic detection efficiency of SiC neutron detector moderated by polyethylene with different thicknesses

在 ^{252}Cf 标准源照射下,经过厚度为6 cm的聚乙烯慢化后的中子能谱见图4。对比 ^{252}Cf 源中子能谱,慢化后低能段的中子份额明显增加,此时SiC中子探测器的本征探测效率为0.23%。

图4 ^{252}Cf 标准源中子能谱和经过6 cm聚乙烯慢化后的中子能谱Fig.4 Neutron energy spectrum of ^{252}Cf standard source and neutron energy spectrum after 6 cm polyethylene moderation

3 结果及讨论

3.1 偏置电压的影响

偏置电压影响到SiC中子探测器的噪声及漏电流,从而影响探测器的测量性能。在环境本底下,不同偏置电压下探测器的本底计数情况见图5。从图5可以看出,在0~450 V内随着电压升高,探测器的本底计数减小,说明探测器的噪声减小,偏置电压为0 V时的本底计数是偏置电压为450 V时的90倍。这是由于偏置电压升高探测器结电容减小,使探测器的噪声变小,因此本底计数随电压升高而减小。

将SiC中子探测器放置在距离 ^{252}Cf 标准源50 cm处,在0~450 V内调节探测器的偏置电压,其实验结果见图6。从图6可以看出,SiC中子探测器的

计数率随着偏置电压升高而增加,这是由于耗尽层的增加导致灵敏区域增加。但在SiC中子探测器的偏置电压为0 V时的计数率为 0.21 s^{-1} ,而偏置电压为450 V时的计数率仅比0 V偏置电压时提高了30.00%,测试结果与Nava等^[17]、吴健等^[18]的研究结果符合比较好,这说明SiC中子探测器可以在低压下工作。

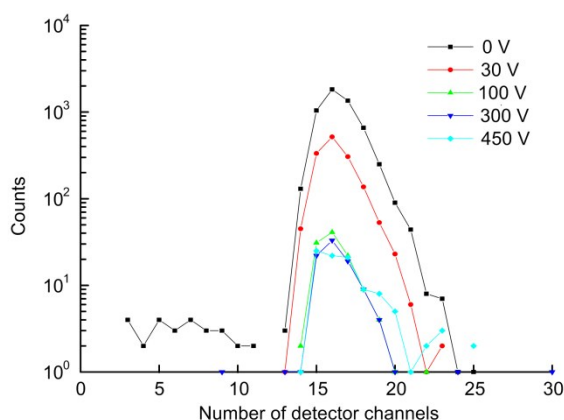


图5 不同偏置电压下的探测器本底计值
Fig.5 Background counts of SiC neutron detector with different bias voltages

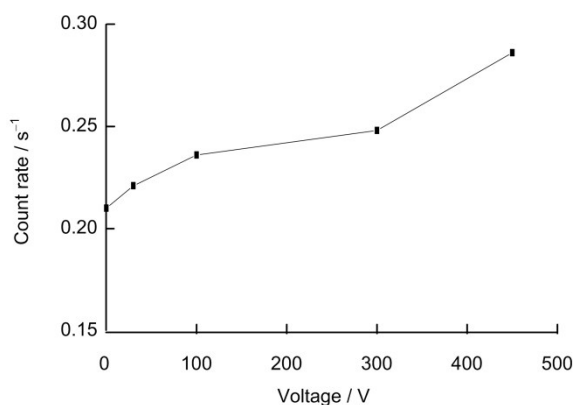


图6 ^{252}Cf 标准源照射下不同偏置电压的探测器计数率
Fig.6 Counting rate of SiC neutron detector with different bias voltages under ^{252}Cf source

3.2 中子探测性能

为了研究SiC中子探测器的中子探测线性关系,将SiC中子探测器放在距离 ^{252}Cf 标准源50 cm、80 cm和110 cm位置处,分别测量不同中子通量下的中子计数,偏置电压设为450 V,测量时间为2 h,测量结果见图7。在这些位置处的中子剂量已通过了国家计量院的标定,可以根据 $280 \text{ pSv} \cdot \text{cm}^2$ 中子通量与剂量的转化关系获得中子通量密度^[19]。从入射到探测器的中子通量与探测器的计数率对比可以发现,入射中子通量与探测器计数率的线性

拟合 R^2 值为0.999 8,这说明SiC中子探测器在 ^{252}Cf 标准源照射下具有非常好的线性关系。

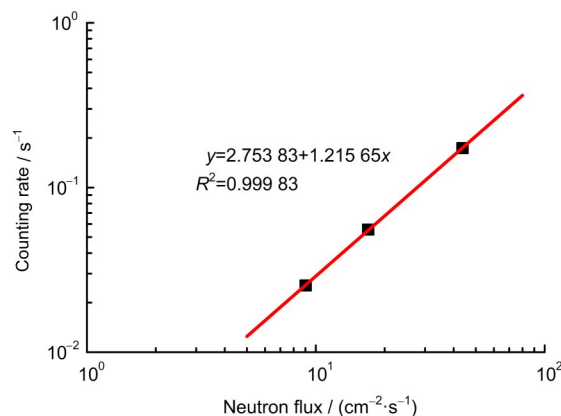


图7 ^{252}Cf 标准源下的中子通量与探测器计数率的关系
Fig.7 Relationship between neutron flux and counting rate of detector under ^{252}Cf source

还可以进一步发现, SiC中子探测器的探测效率为0.16%,比Geant4蒙特卡罗模拟计算值低8.80%。在探测器与 ^{252}Cf 标准源之间加上厚度为6 cm的聚乙烯慢化层,可以得到SiC中子探测器的探测效率为0.21%,比不加聚乙烯慢化材料时SiC中子探测器的中子探测效率高31.25%,但实验结果比Geant4蒙特卡罗模拟计算值低8.69%,这主要由于SiC中子探测器的 ^6LiF 转换层材料内含有Na、K、Ca、Fe等杂质,使得产生反应的中子数目变少,从而实验测量值低于理论计算的结果。

3.3 γ 射线响应

在中子辐射场中通常存在 γ 射线, γ 射线进入探测器会干扰中子的计数,影响中子的准确测量。因此,采用 ^{60}Co 标准源对SiC中子探测器进行 γ 射线响应的实验测试。将SiC中子探测器放置于距 ^{60}Co 源8 cm处,偏置电压设为450 V,实验测得次级电子的能谱与模拟计算的能谱结果比较见图8。从图上看,实验测得的次级电子能谱与模拟计算结果整体趋势符合较好,实验测试下次级电子的计数要低于模拟计算值。实验测得 γ 射线的探测效率为0.86%,比Geant4蒙特卡罗模拟计算值低13.13%,主要由于SiC灵敏层材料内存在缺陷,使探测器的电荷收集性能下降,从而实验值低于理论计算值^[20]。从图8还可以看出, γ 射线在SiC中子探测器的计数主要在低能区,这是由于SiC材料与 γ 射线的反应截面小,且SiC中子探测器灵敏层厚度薄,与 γ 射线产生的次级粒子在灵敏层内的能

量沉积小等原因导致。此外，中子与 ${}^6\text{LiF}$ 转换层产生的次级粒子中 α 粒子能量为2.05 MeV， ${}^3\text{H}$ 能量为2.73 MeV，这使得在灵敏层内沉积的能量远大于 γ 射线沉积的能量，因此可以通过设置甄别阈区分中子和 γ 射线在探测器内产生的计数，实现对中子的准确测量。

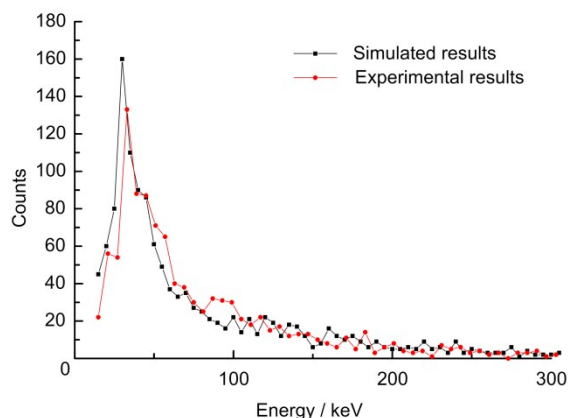


图8 ${}^{60}\text{Co}$ 源产生的 γ 射线在SiC探测器内的次级电子能量沉积谱

Fig.8 Secondary electron energy deposition spectrum of γ -ray produced using ${}^{60}\text{Co}$ source in SiC detector

4 结论

通过 ${}^{252}\text{Cf}$ 、 ${}^{60}\text{Co}$ 标准源的实验测试和蒙特卡罗软件Geant4的模拟分析相结合的方式研究了SiC中子探测器的偏置电压影响、中子探测性能及 γ 射线响应等性能参数，研究结果表明：（1）SiC中子探测器在0~450 V偏置电压下都有计数，这说明此探测器可以在低压下工作；（2）从入射到SiC中子探测器的中子通量与探测器计数之间的关系可以发现，其线性拟合 R^2 值为0.999 8，这表明SiC中子探测器在 ${}^{252}\text{Cf}$ 标准源照射下具有非常好的线性关系；（3）SiC中子探测器实验测试的探测效率与Geant4模拟分析结果最大相差13.13%，符合比较好；（4）SiC中子探测器在 ${}^{60}\text{Co}$ 标准源照射下的计数主要是在低能区，可以通过甄别阈值设置辨别中子、 γ 射线在探测器内产生的计数。

参考文献

- Sellin P J, Vaitkus J. New materials for radiation hard semiconductor detectors[J]. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2006, **557**(2): 479-489. DOI: 10.1016/j.nima.2005.10.128.
- Seshadri S, Dulloo A R, Ruddy F H, *et al.* Demonstration

of an SiC neutron detector for high-radiation environments[J]. IEEE Transactions on Electron Devices, 1999, **46**(3): 567-571. DOI: 10.1109/16.748878.

- Giudice A L, Fasolo F, Durisi E, *et al.* Performances of 4H-SiC Schottky diodes as neutron detectors[J]. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2007, **583**(1): 177-180. DOI: 10.1016/j.nima.2007.08.241.
- 丁大钊, 叶春堂, 赵志祥. 中子物理学: 原理、方法与应用[M]. 上册. 北京: 原子能出版社, 2001.
DING Dazhao, YE Chuntang, ZHAO Zhixiang. Neutron physics: principles, methods and applications[M]. Volume I. Beijing: Atomic Energy Press, 2001.
- Babcock R V, Chang H C. SiC neutron detectors for high-temperature operation[C]//IAEA Symposium Proceedings. England, Harwell: IAEA, 1963: 613-622.
- Kalinina E V, Ivanov A M, Stokan N B. Performance of p-n 4H-SiC film nuclear radiation detectors for operation at elevated temperatures (375 °C)[J]. Technical Physics Letters, 2008, **34**(3): 210-212. DOI: 10.1134/s1063785008030103.
- Sciortino S, Hartjes F, Lagomarsino S, *et al.* Effect of heavy proton and neutron irradiations on epitaxial 4H-SiC Schottky diodes[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2005, **552**(1/2): 138-145. DOI: 10.1016/j.nima.2005.06.017.
- Park J, Shin H S, Kim H D, *et al.* Effect of a metal electrode on the radiation tolerance of a SiC neutron detector[J]. Journal of the Korean Physical Society, 2012, **61**(3): 330-335. DOI: 10.3938/jkps.61.330.
- Park S H, Park J S, Kang S M. Development of SiC neutron detector and its application to harsh environment [J]. Comprehensive Psychiatry, 2012, **53**(2): 201-207. DOI: 10.1016/j.comppsy.2011.02.008.
- Kandlakunta P, Tan C T, Smith N, *et al.* Silicon carbide detectors for high flux neutron monitoring at near-core locations[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2019, **953**: 163110. DOI: 10.1016/j.nima.2019.163110.
- Radulović V, Ambrožič K, Snoj L, *et al.* E-SiCure collaboration project: silicon carbide material studies and detector prototype testing at the JSI TRIGA reactor[J].

- European Physical Journal Conferences, 2020, **225**: 07007. DOI: 10.1051/epjconf/202022507007.
- 12 陈雨, 蒋勇, 吴健, 等. SiC 基中子探测器对热中子的响应[J]. 强激光与粒子束, 2013, **25**(10): 2711-2716. DOI: 10.3788/HPLPB20132510.2711.
CHEN Yu, JIANG Yong, WU Jian, *et al.* Thermal neutron response of neutron detector based on SiC[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2013, **25**(10): 2711-2716. DOI: 10.3788/HPLPB20132510.2711.
- 13 吴健. 基于 4H-SiC 的中子探测技术研究[D]. 北京: 中国工程物理研究院, 2014.
WU Jian. Research on neutron detection technology based on 4H-SiC[D]. Beijing: Chinese Academy of Engineering Physics, 2014
- 14 张少华, 吴健, 蒋勇. 碳化硅热中子探测器的优化设计[J]. 核电子学与探测技术, 2016, **36**(4): 439-443. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2016.04.021.
ZHANG Shaohua, WU Jian, JIANG Yong. Optimization design of silicon carbide thermal neutron detector[J]. Nuclear Electronics and Detection Technology, 2016, **36**(4): 439-443. DOI: 10.3969/j. issn. 0258-0934.2016. 04.021.
- 15 Agostinelli S, Allison J, Amako K, *et al.* GEANT4-a simulation toolkit[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment, 2003, **506**(3): 250-303. DOI: 10.1016/s0168-9002(03) 00538-2.
- 16 Simakov S P, Devkin B V, Kobozev M G, *et al.* Benchmarking of evaluated nuclear data for bismuth by spherical shell transmission experiments with central T(d, n) and Cf-252 neutron sources[J]. Fusion Engineering & Design, 1999, **46**(1): 89-98. DOI: 10.1016/s0920-3796 (99)00073-3.
- 17 Nava F, Vanni P, Lanzieri C, *et al.* Epitaxial silicon carbide charge particle detectors[J]. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1999, **437**(2/3): 354-358. DOI: 10.1016/S0168-9002(99) 00756-1.
- 18 吴健, 雷家荣, 蒋勇, 等. 4H-SiC 肖特基二极管的电荷收集特性[J]. 强激光与粒子束, 2013, **25**(7): 1793-1797. DOI: 10.3788/HPLPB20132507.1793.
WU Jian, LEI Jiarong, JIANG Yong, *et al.* Charge collection properties of a 4H-SiC Schottky diode[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2013, **25**(7): 1793-1797. DOI: 10.3788/HPLPB20132507.1793.
- 19 刘立兴, 夏晓彬, 盛尹祥子, 等. 散射中子对带屏蔽体的 ²⁵²Cf 同位素中子源辐射场的影响[J]. 核技术, 2013, **36**(10): 14-18. DOI: 10.11889/j. 0253-3219.2013. hjs.36.100201.
LIU Lixing, XIA Xiaobin, SHENG Yinxiangzi, *et al.* Effects of scattered neutrons on the neutron radiation field generated by Cf-252 neutron source with a shield[J]. Nuclear Techniques, 2013, **36**(10): 14-18. DOI:10.11889/ j.0253-3219.2013.hjs.36.100201.
- 20 Mandal K C, Chaudhuri S K, Nguyen K V, *et al.* Correlation of deep levels with detector performance in ⁴H-SiC epitaxial Schottky barrier alpha detectors[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2014, **61**(4): 2338-2344. DOI: 10.1109/tns.2014.2335736.