

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

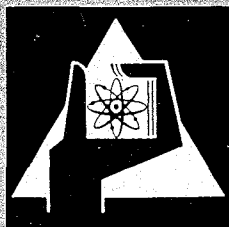
Oktober 1967

KFK 695

Institut für Angewandte Kernphysik

Herstellung von zylindrischen, koaxial-gedrifteten Germanium-pin-Zählern
mit großem empfindlichen Volumen

O. Meyer, M. Baumgärtner, F. Wüchner



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Herstellung von zylindrischen, koaxial-gedrifteten Germaniumpin-Zählern mit großem empfindlichen Volumen

O. MEYER, M. BAUMGÄRTNER und F. WÜCHNER

Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Angewandte Kernphysik

Eingegangen am 14. Juni 1967

Abstract. A detailed description of construction and performance of coaxial Li-drifted Germanium detectors with active volumes between 20 and 40 cm³ is given. Doppel-open end detectors with circular cross section show a smaller distribution in rise time than detectors with trapezoidal cross section or detectors with one open end. The energy resolution (3.3 KeV for $E_\gamma = 661$ KeV) is comparable with the energy resolution of planar drifted detectors.

Einleitung

Zur Durchführung vieler kernphysikalischer Experimente, z. B. Experimente mit schwachen γ -Quellen oder für γ - γ -Koinzidenzmessungen, werden Lithium-gedriftete Germanium-Zähler mit großem empfindlichem Volumen, d. h. mit großer Ansprechwahrscheinlichkeit benötigt. Mit dem koaxialen Driftverfahren wurden bis jetzt Zähler mit einem empfindlichen Volumen bis zu 66 cm³ hergestellt [1, 2].

Bei diesem Verfahren wird in einen p -leitenden Germanium-Kristall von 4 oder 5 Seiten Lithium eindiffundiert und zur Mitte hin gedriftet. Das Verfahren hat den Vorteil, daß man für gleiche Drifttiefen, verglichen mit dem planaren Driftverfahren, wesentlich größere empfindliche Volumina erhält, außerdem verkürzt sich für gleiche Drifttiefen bei zylindrisch-koaxial gedrifteten Zählern die Driftzeit um die Hälfte [1].

Koaxial-gedriftete Zähler mit großem empfindlichem Volumen haben Diodenkapazitäten zwischen 40 und 80 pF; der Vorverstärker ist daher so auszulegen, daß die Zunahme des Rauschens nur schwach von der Eingangskapazität abhängt. Diese Forderung wird z. B. dadurch erfüllt, daß 4 rauscharme parallelgeschaltete Feld-Effekt-Transistoren (FET) in der Eingangsstufe benutzt werden.

Die inhomogene Feldverteilung in koaxial-gedrifteten Zählern führt dazu, daß die Anstiegszeit von Impulsen stärker als bei planaren Zählern vom Ionisationsort abhängt. So beträgt z. B. in einem Zähler mit trapezförmigem Querschnitt mit einer Fläche von etwa 9 cm² und einer Drifttiefe von 1 cm die Schwankungsbreite des Impulsanstiegs für mehr als 90% der Impulse etwa 300 nsec, wobei die Verteilungskurve zu langen Zeiten hin eine merkliche Unsymmetrie aufweist: Impulse mit großer Anstiegs-

zeit werden in den Gebieten schwacher Feldstärke (Ecken) im Zähler erzeugt. Diese Zähler sind daher nicht geeignet für Experimente, die zu ihrer Durchführung ein genaues Zeitsignal benötigen. Selbst mit einem „leading edge“-Diskriminator mit kleiner Energieschwelle erhält man Schwankungsbreiten des Zeitsignals von etwa 30 nsec für knapp 90% der Impulse.

Weiterhin wird das Auflösungsvermögen durch große Anstiegszeitschwankungen verschlechtert [3]. Wählt man die Verstärkerzeitkonstanten groß gegenüber der mittleren Anstiegszeit, dann ist dieser Einfluß klein. Die Verwendung großer Zeitkonstanten kann aber dazu führen, daß man nicht mehr im Optimum zwischen Strom- und Schrotrauschen liegt.

Die Nachteile koaxial-gedrifteter Zähler mit trapezförmigem Querschnitt werden vermieden durch die Herstellung von koaxial-gedrifteten Zählern mit kreisförmigem Querschnitt und durchgehender *p*-Säule. Die Herstellung dieser Zähler wird beschrieben und die Meßergebnisse der Zählereigenschaften diskutiert.

1. Diffusionsprozeß

Als Ausgangsmaterial werden vertikalgezogene, *p*-leitende Germanium-Einkristalle* verwendet mit einem spezifischen Widerstand zwischen 10–20 Ω cm und einer mittleren Lebensdauer von 300–500 μ sec. Die Versetzungsdichte ist 1100–1900 cm^{-2} . Die kreisförmige Querschnittsfläche der Einkristalle beträgt 7–8 cm^2 . Von den Einkristallstäben werden mit einer Diamantsäge (Vorschub 6 mm/h, Schnittgeschwindigkeit 35 m/sec) senkrecht zur 1-1-1-Richtung Stücke zwischen 4 und 6 cm Länge abgeschnitten. Der Kristall wird danach auf allen Seiten mit Schmirgelpulver (5–12 μ) abgeläppt und in ultrareinem Trichloräthylen mit Ultraschall gespült. In einer Mischung aus 1:3 Teilen HF (48%) und HNO_3 (65%) (alle verwendeten Chemikalien sind ultrarein) wird der Kristall blank geätzt und mit entionisiertem Wasser im Ultraschallbad gründlich gespült. Die Stirnseiten des Kristallzylinders werden mit Aquadag geschützt und die Zylinderwand mit einer Lithium-Öl-Suspension dünn bestrichen. Der Kristall wird nun langsam (etwa in einer Stunde) in einem mit reinem Stickstoff gut gespülten Diffusionsofen auf 400° C gebracht. Bei etwa 200° C dampft das Öl ab; die Öldämpfe werden mit dem Stickstoffstrom weggespült. Bei 400° C erfolgt der Diffusionsprozeß, man diffundiert etwa 10 bis 15 min lang, das ergibt nach unseren Messungen Diffusionstiefen zwischen 0,3 und 0,5 mm. Der Kristall muß langsam abgekühlt werden (Abkühlzeit etwa 1 h), damit keine thermischen Spannungen auftreten, die den Kristall zerstören können.

Das restliche Lithium an der Oberfläche wird mit Wasser abgewaschen und die fertige Diode, wie oben beschrieben abermals geläppt, geätzt und gespült. Zur Kontaktierung verwenden wir Ga–In-Eutektikum (Schmelzpunkt 15° C), das mit einem Glashaarpinsel in die Oberfläche eingerieben wird. An eine gute Diode sollte man 300–400 Volt Sperrspannung bei etwa 20 mA/cm² anlegen können. Diese Werte werden oft erst nach erneutem Läppen und Diffundieren erreicht.

* Hobboken, Belgien.

2. Driftprozeß

Die Erzeugung einer eigenleitenden Zone durch den Lithium-Driftprozeß wurde erstmals von PELL [4] in Silizium durchgeführt. Unter dem Einfluß eines elektrischen Feldes wandern (driften) Lithiumionen als Zwischengitterionen von der stark dotierten Seite in das *p*-Gebiet, und kompensieren die dort vorhandenen Akzeptorionen. Die Dicke der kompensierten Schicht d wird gegeben durch: $d = (2 \mu U t)^{1/2}$; μ ist die temperaturabhängige Beweglichkeit der Lithiumionen im Kristallgitter; U die angelegte Sperrspannung und t die Driftzeit. Diese Abhängigkeit ist in einem Monogramm dargestellt [5], und stimmt mit unseren Messungen überein.

Der Driftprozeß kann bei hoher Temperatur (etwa 60° C) und bei niedriger Sperrspannung (bis etwa 200 V, Sperrströme von etwa 1–1,5 A/cm²) oder bei niedriger Temperatur (30–40° C) und hoher Sperrspannung (500–1000 V; Sperrstrom um 30 mA/cm²) vorgenommen werden. Für beide Methoden werden gleichlange Driftzeiten für gleiche Drifttiefen angegeben. Nach unserer Erfahrung können hohe Driftströme die Diode örtlich aufheizen und beschädigen, weiterhin ist das Driftprofil oft ungleichmäßig. Wir verwenden daher die zweite Methode. Weiterhin gibt es verschiedene Möglichkeiten, die während des Driftprozesses freiwerdende Wärme abzuführen: kleinvolumige Zähler spannen wir auf ein Peltier-Element und driften unter Schutzgas. Großvolumige Zähler driften wir in einer unpolaren Flüssigkeit [6]. Geeignet ist *n*-Pentan, das inaktiv gegenüber den Kontakten und der Diodenhalterung ist, selbst nach langen Driftzeiten (60 d) bleiben die Dioden und die Flüssigkeit klar und sauber.

Bei Driftbeginn wird die Sperrspannung langsam angelegt, damit sich Unebenheiten im Diffusionsprofil ausgleichen können. Auch führen Sperrspannungen von 1000–1500 V bei Driftbeginn oft zu Durchbrüchen, die den Kristall mindestens an der Oberfläche zerstören. Die Versorgung erfolgt mit 250 Watt Netzgeräten, die über Kontaktgeber stromstabilisiert sind. Ein Magnetührwerk und eine Kühlschlange sorgen dafür, daß die freiwerdende Wärme schnell abgeführt wird. Die Drifttiefe wird durch elektrolytische Abscheidung von Kupfer auf der *p*-Seite beobachtet: Auf die leicht geläppten Stirnseiten der Dioden werden einige Tropfen einer verdünnten $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ -Lösung aufgebracht. Beim Anlegen von einigen Volt Sperrspannung wird die *i-p*-Grenze durch einen Kupferniederschlag sichtbar.

Während der Drift mit hohen Sperrströmen werden Rauschladungen des kontinuierlich fließenden Sperrstroms mitkompensiert. Bei Kühlung der Diode (Stromreduktion) ist daher der eigenleitende Bereich in der Nähe des *n*-Gebietes über- und in der Nähe des *p*-Gebietes unterkompensiert [7]. Am Ende der Drift wird daher die Temperatur auf etwa 10–15° C reduziert und eine Drift bei reduziertem Sperrstrom (0,5 A/cm²) durchgeführt. Während der „clean-up“-Drift wird die Änderung der Diodenkapazität beobachtet, die am Ende der „clean-up“-Driftzeit den errechneten Wert erreicht haben sollte.

3. Nachbehandlung und Einbau in das Vakuumsystem

Die Oberflächenbehandlung der eigenleitenden Zone vor dem Einbau der Diode in das Vakuum-

system hat einen entscheidenden Einfluß auf die Strom-Spannungscharakteristik und damit auf die Zählereigenschaften. Unter dem Einfluß verschiedener Ätz- und Spülverfahren oder der Atmosphäre bilden sich auf der eigenleitenden Oberfläche *n*- oder *p*-leitende Inversionsschichten mit stark erhöhter Leitfähigkeit gegenüber der Leitfähigkeit einer eigenleitenden Oberfläche. Sind Inversionsschichten vorhanden, dann wird die Sperrspannung entweder an der *i-n*- oder an der *i-p*-Grenze abfallen. Das führt zu erhöhter Feldstärke und daher zu vorzeitigem Stromdurchbruch. Bei minimaler Leitfähigkeit oder Eigenleitung auf dem *i*-Gebiet fällt die Sperrspannung an der Oberfläche linear über die gesamte Dicke des *i*-Gebietes ab.

Mit einer Potentialprobe wird der Potentialverlauf über die eigenleitende Zone unter Schutzgas für verschiedene Vorbehandlungen der Zähleroberfläche ausgemessen [8].

Vor jeder Messung wird die Diode geätzt:

- 3 min in 3:1 HNO₃/HF,
- 1 min in 5:1 HNO₃/HF,

danach in entionisiertem Wasser mit Ultraschall gespült.

Die Ergebnisse sind in Abb. 1 dargestellt. Kurve 1 zeigt den Potentialverlauf nach der oben angegebenen Vorbehandlung. Die Oberfläche ist leicht *p*-leitend. Mit wachsender Spüldauer in Methanol wird die Oberfläche *n*-leitend (Kurve 2 und 3). Reduzierende Substanzen, z. B. Wasserstoffsuperoxyd (Kurve 4) erzeugen eine *p*-Inversion.

Vor dem Einbau in den Kryostaten verwenden wir die Oberflächenbehandlung, die zur Kurve 2 führt. Allerdings wird die Oberflächenleitfähigkeit bei Lagerung in Zimmerluft geändert (Kurve 5). Dies ist kaum zu vermeiden während des Einbaus der Zähler in den Kryostaten oder während der Pumpzeit. Der Zähler wird daher schnell in den Kryostaten eingebaut und innerhalb 10 min auf einem Öldiffusionspumpstand mit einer Kühlfalle für flüssige Luft auf 10⁻⁵ Torr ausgepumpt. Danach wird die Ionengetterpumpe in Betrieb genommen, der Kryostat von Diffusionspumpstand getrennt und der Zähler mit flüssiger Luft gekühlt. Nach etwa einer Stunde wird die Kennlinie gemessen. Die Ergebnisse sind nicht eindeutig: erstens ist der Einfluß der Temperaturänderung auf die Oberflächenzustände nicht bekannt, zweitens wird die Oberfläche selbst noch durch Restgase mit einem Partial-Druck von 10⁻⁵ bis 10⁻⁶ Torr beeinflusst [9].

4. Meßergebnisse

a) Abb. 2 zeigt die Sperrkennlinien von drei großvolumigen Germanium-Zählern. Die Sättigungsströme sind nicht proportional dem empfindlichen Volumen; das ist ein Hinweis dafür, daß die Kennlinien allein durch Oberflächenströme bestimmt werden. Diese Behauptung wird unterstützt durch die Erfahrung, daß bei vorzeitigem Stromdurchbruch (~100 V) durch kurzzeitiges Erwärmen der Diode auf Zimmertemperatur der Sättigungsstrom kleiner und die Durchbruchspannung oft um einen Faktor 5 bis 10 größer wird.

b) Zur Messung des Energieauflösungsvermögens wird die Eingangsstufe des ladungsempfindlichen Vor-

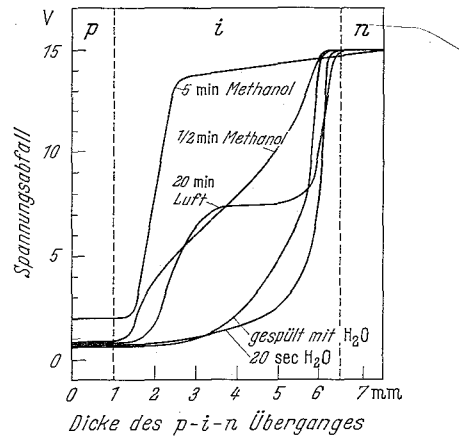


Abb. 1. Einfluß von Gasen und Dämpfen auf die Oberflächenleitfähigkeit einer eigenleitenden Germaniumprobe

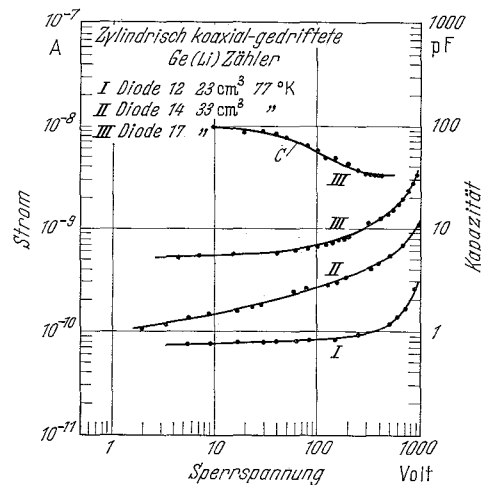


Abb. 2. Strom-Spannungscharakteristiken von Germanium *p-i-n*-Dioden mit empfindlichem Volumen zwischen 20 und 40 cm³

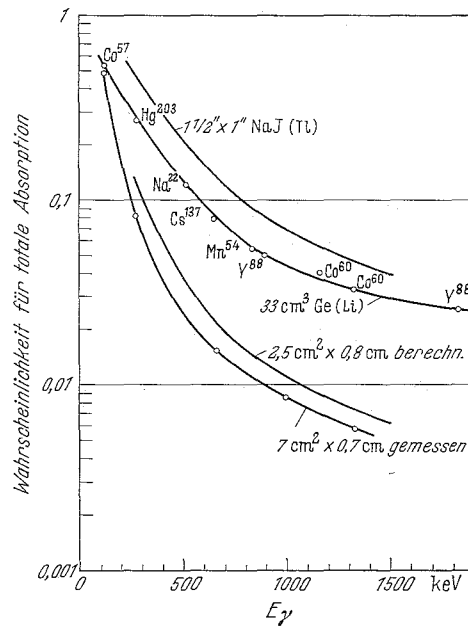


Abb. 3. Wahrscheinlichkeit für die totale Absorption als Funktion der γ -Energie in einem Ge(Li)-Zähler mit einem empfindlichen Volumen von 33 cm³

verstärkers mit zwei parallel geschalteten Feld-Effekt Transistoren ausgerüstet, die in den Kryostaten mit eingebaut und gekühlt werden. Die gemessene Halbwertsbreite beträgt 3,3 keV für eine γ -Energie $E_\gamma = 661$ keV und 3,7 keV für $E_\gamma = 1,33$ MeV. Das Peak zu Compton-Verhältnis ist 14/1 bzw. 9/1. Das Rauschminimum wird bei Sperrspannungen von 250—300 V erreicht, ab dieser Spannung sind die Linien völlig symmetrisch. Das zeigt, daß die durchgeführte „clean-up“-Drift ausreichend ist und daß durch die Driftmethode wie oben beschrieben das eigenleitende Gebiet örtlich gut kompensiert wird.

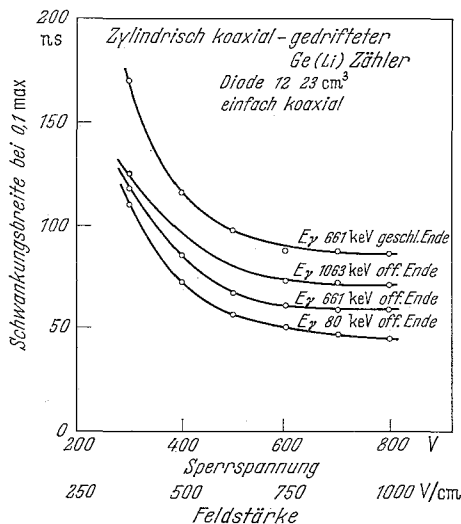


Abb. 4. Schwankungsbreite der Impulsanstiegszeit bei 10% des Maximums in Abhängigkeit von der Zählersperrspannung

c) Abb. 3 zeigt die Wahrscheinlichkeit für die totale Absorption in einem 33 cm³ großen Ge(Li)-Zählern als Funktion der γ -Energie. Zum Vergleich ist aufgetragen die Wahrscheinlichkeit für die totale Absorption eines 1,5'' \times 1'' großen NaJ(Tl)-Kristalls und eines 5 cm³ großen planar-gegrifteten Zählers. Zur Messung wurde ein Satz geeichter Standardpräparate benutzt. Der Abstand Quelle—Zähler betrug 14 cm. Der geschätzte Fehler, besonders bedingt durch Ungenauigkeiten in der Geometrie, liegt bei $\pm 7\%$. Die systematische Abweichung der Meßergebnisse des planaren Zählers (7 cm², 7 mm tief) von den in [10] berechneten Werten finden wir in Übereinstimmung mit Meßergebnissen von EWAN u. TAVENDALE (in [10] diskutiert) für gleichgroße Zähler.

d) Die Laufzeit der Ladungsträger, d. h. die Anstiegszeit ist direkt proportional dem Weg, den die Ladungsträger zwischen dem Ort der Ionisation und dem n - oder p -Kontakt zurückzulegen haben, und umgekehrt proportional der Driftgeschwindigkeit der

Ladungsträger. Bei 77° K unterscheiden sich die Driftgeschwindigkeiten der Elektronen und Defekt-elektronen nur um 15%, und zeigen etwa die gleiche Feldstärkeabhängigkeit. Für Feldstärken größer als 1,5 KV/cm erreicht die Driftgeschwindigkeit für beide Ladungsträgerarten einen Sättigungswert von $9 \cdot 10^6$ cm/sec [11].

Im günstigsten Fall (für hohe Sperrspannungen) erwarten wir daher für einen planar-gegrifteten Zähler mit einer Feldzonendicke von 10 mm Anstiegszeiten zwischen 50 und 100 nsec. Die unterschiedlichen Driftgeschwindigkeiten im inhomogenen Feld eines koaxial-gegrifteten Zählers führen zu einer zusätzlichen Anstiegszeitverbreiterung. Mit einer einfachen elektronischen Meßapparatur (zwei Diskriminatoren und einem Zeit-Impulshöhenkonverter) wurde die Verteilungsfunktion der Anstiegszeit zwischen 10% und 90% der Impulshöhe aufgenommen. Ein Vergleich der Verteilungsfunktionen bei Einschub in das offene und in das abgeschlossene Ende eines zylindrischen, einfach koaxial-gegrifteten Zählers brachte folgendes Ergebnis: Die Schwankungsbreite bei 10% des Maximums (d. h. für knapp 90% aller Impulse) beträgt 57 nsec, im abgeschlossenen Ende dagegen 90 nsec. 57 nsec ist vergleichbar mit Werten, die man für planare Zähler gleicher Drifttiefe erhält. Bei Einschub in das abgeschlossene Ende wird die mittlere Anstiegszeit größer, und ein Teil der Impulse zeigt wesentlich langsamere Anstiegszeiten.

Abb. 4 zeigt die Schwankungsbreite bei 10% des Maximums als Funktion der Sperrspannung. Zunächst wird noch einmal der Unterschied in den Schwankungsbreiten bei Einschub in das offene und das geschlossene Ende deutlich. Weiterhin zeigt sich, daß die Schwankungsbreite leicht energieabhängig ist. Bei niedrigen γ -Energien ist die Ionisation örtlich besser konzentriert, die Schwankungsbreite der Verteilungsfunktion ist daher kleiner, der mittlere Impulsanstieg dagegen größer als bei höheren Energien.

Literatur. [1] TAVENDALE, A. J.: I. A. E. A. Panel Meeting on Use of Ge(Li)-Gamma-Ray Detectors ..., Vienna, Austria, 6—10 June 1966. — [2] MALM, H. L.: IEEE Trans., June, NS-13, No. 3 (1966). — [3] GILLESPIE, A. B.: Signal, noise and resolution in nuclear counter amplifiers. London: Pergamon Press LTD 1953. — [4] PELL, E. M.: J. Appl. Phys. 31, No. 2, Feb. (1960). — [5] STAB, L., et al.: Nucl. Instr. and Meth. 35, 113—119 (1965). — [6] CAPPELLANI, F., et al.: Nucl. Instr. and Meth. 37, 352 (1965). — [7] MAYER, J. W.: J. Appl. Phys. 33, No. 9 (1962). — [8] ARMANTROUT, G.: IEEE Trans., Feb., NS-13, No. 1 (1966). — [9] SPARNAAY, M. J.: Ann. N. Y. Acad. Sci. 101, 962—982 (1962). — [10] WAINO, K. M., and G. F. KNOLL: Nucl. Instr. and Meth. 44, No. 2 (1966). — [11] RYDER, E. J.: Phys. Rev. 90, No. 5 (1953).

O. MEYER
Institut für Angewandte Kernphysik
Kernforschungszentrum
7500 Karlsruhe, Postfach 947