

06

Зависимость рентгенодозиметрических характеристик монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ от состава

© С.М. Асадов,¹ С.Н. Мустафаева,² Д.Т. Гусейнов,² К.И. Келбалиев¹

¹ Институт катализа и неорганической химии НАН Азербайджана, AZ-1143 Баку, Азербайджан

² Институт физики НАН Азербайджана, AZ-1143 Баку, Азербайджан
e-mail: solmust@gmail.com

(Поступило в Редакцию 14 марта 2017 г.)

Показано, что монокристаллы $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$, выращенные методом химических транспортных реакций, характеризуются высокими значениями коэффициентов рентгенопроводимости и рентгеночувствительности при комнатной температуре. Проведено сравнение рентгенодозиметрических характеристик монокристаллов. Коэффициент рентгенопроводимости, например, для образцов AgGaS_2 варьируется в пределах 0.22–3.20 min/R при эффективной жесткости излучения $V_a = 25–50$ keV мощностью дозы $E = 0.75–78.05$ R/min. Монокристаллические образцы AgGaSe_2 имеют более высокие рентгенодозиметрические коэффициенты по сравнению с коэффициентами образцов на основе AgGaS_2 . Коэффициент рентгенопроводимости AgGaSe_2 варьируется в пределах 1.2–8.5 min/R при эффективной жесткости излучения $V_a = 25–50$ keV мощностью дозы $E = 0.75–31.3$ R/min. Определены зависимости стационарного рентгенотока в $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ от дозы рентгеновского излучения.

DOI: 10.21883/JTF.2018.04.45724.2251

Введение

Почти все полупроводниковые детекторы, используемые в технической физике, изготавливаются на основе монокристаллов, в частности, кремния. В практическом плане использование новых полупроводниковых материалов перспективно для создания высокоэффективных радиационностойких детекторов ионизирующих излучений [1,2]. Монокристаллы AgGaS_2 со структурой халькопирита применяются в оптических устройствах, работающих в ИК диапазоне благодаря, в частности, высоким нелинейным оптическим коэффициентам и соответствующему двулучепреломлению [3]. Несмотря на большое число работ по исследованию физических свойств монокристаллов AgGaS_2 и AgGaSe_2 , в литературе почти отсутствуют данные по рентгенодозиметрическим характеристикам этих материалов [4].

Целью настоящей работы являлось определение рентгенодозиметрических характеристик монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ ($x = 0, 0.5$ и 1.0), выращенных методом химических транспортных реакций (ХТР), а также проведение сравнительного анализа рентгенодозиметрических характеристик в зависимости от состава кристаллов.

Методика эксперимента

Из известной T - x фазовой диаграммы системы AgGaS_2 – AgGaSe_2 следует, что в системе образуется непрерывный ряд твердых растворов. Для синтеза соединений AgGaS_2 и AgGaSe_2 использовали стехиомет-

рические количества исходных элементарных компонентов Ag (марки ОСЧ), Ga (квалификации 5N), S (марки ОСЧ 15-3 ТУ 6-09-2546-77) и Se (марки ОСЧ 22-4 ТУ 6-09-2521-77). Синтез соединений проводили методом двухтемпературного синтеза в горизонтальной печи путем сплавления исходных компонентов в вакуумированной до 10^{-3} Pa и запаянной кварцевой ампуле [5]. Термограммы ДТА как соединений AgGaS_2 , так и AgGaSe_2 имели по одному острому эндотермическому пику при 1270 и 1130 К. Эти значения соответствуют их температурам плавления. Кристаллическую структуру полученных кристаллов идентифицировали рентгенофазовым анализом (РФА). Параметры кристаллической решетки AgGaS_2 определяли на дифрактометре ДРОН-3 с использованием монохроматического CuK_α -излучения. Погрешность определения параметров кристаллической решетки составляла ± 0.001 (a) и ± 0.002 (c) Å. Установлено, что структура полученных кристаллов соответствует устойчивой при комнатной температуре тетрагональной сингонии типа халькопирита (пространственная группа $\overline{14}2d$; $a = 5.757$, $c = 10.310$ Å для AgGaS_2 и $a = 5.992$, $c = 10.883$ Å для AgGaSe_2). Полученные кристаллографические параметры соответствуют литературным данным [6]. Из полученных соединений синтезировали твердые растворы $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$.

Рост монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ осуществляли методом ХТР аналогично описанному в [4]. Основное преимущество выращивания монокристаллов методом ХТР заключается в возможности вести процесс при более низких температурах и давлении.

При изготовлении образцов из $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ для рентгенодозиметрических измерений контакты к ним

Коэффициенты рентгенопроводимости монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ ($x = 0, 0.5$ и 1.0) при $T = 300$ К

E , R/min	K_σ , min/R			V_a keV	E , R/min	K_σ , min/R			V_a , keV
	$x = 1$	$x = 0.5$	$x = 0$			$x = 1$	$x = 0.5$	$x = 0$	
1.68	2.68	6.55	6.94	25	8.89	0.62	1.46	1.76	40
2.03	3.20	6.90	8.54		12.60	0.56	1.19	2.04	
2.73	3.11	6.96	8.30		16.38	0.52	1.16	1.97	
3.64	1.37	3.02	3.39	30	10.00	0.50	1.20	1.23	45
6.44	1.24	2.64	3.99		25.34	0.36	0.87	1.28	
8.33	1.14	2.52	3.72		31.29	0.34	0.80	1.25	
8.82	0.79	1.70	2.53	35	13.05	0.46	1.07	1.16	50
10.64	0.75	1.69	2.73		17.01	0.41	0.94	1.31	
12.46	0.72	1.68	2.59		24.64	0.34	0.81	1.31	

были созданы нанесением серебряной пасты на боковые торцы монокристаллов. Рентгеновское излучение в процессе измерений направлялось в межконтактную область изготовленных образцов. Расстояния между контактами различных образцов составляли от 1.5 до 5.0 mm. Рабочее напряжение, приложенное к образцам в процессе рентгенодозиметрических измерений, составляло 30–60 V, так что напряженность электрического поля была в пределах 125–200 V/cm. С целью изучения рентгенодозиметрических характеристик выращенных монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ в качестве источника рентгеновского излучения использована установка типа УРС с трубкой БСВ-2(Cu) [1]. Интенсивность рентгеновского излучения регулировалась посредством вариации тока в трубке при каждом заданном значении ускоряющего потенциала на ней. Абсолютные значения доз рентгеновского излучения измерены рентгенодозиметром ДРГЗ-02. Изменение величины тока в исследованных образцах под действием рентгеновского излучения регистрировалось в режиме малого нагрузочного сопротивления ($R_l \ll R_c$), где R_c — сопротивление исследуемого кристалла с помощью электрометрического усилителя типа У5–9.

Результаты и их обсуждение

Ниже приведены результаты изучения рентгенодозиметрических свойств монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$, выращенных методом ХТР. Все измерения проведены при температуре $T = 300$ К. Исследуемые монокристаллы $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ проявляли высокую чувствительность к рентгеновскому излучению. Коэффициент рентгенопроводимости, характеризующий рентгеночувствительность монокристалла, определяли по формуле [1]:

$$K_\sigma = \frac{\sigma_E - \sigma_0}{\sigma_0 E}, \quad (1)$$

где σ_E — проводимость образца под действием рентгеновского облучения мощностью дозы E (R/min); σ_0 — темновая удельная проводимость монокристалла.

Рентгеночувствительность монокристалла определяли по формуле

$$K = \frac{\Delta I_{E,0}}{UE}, \quad (2)$$

где $\Delta I_{E,0} = I_E - I_0$; I_E — величина тока в образце при мощности дозы рентгеновского облучения E (R/min); I_0 — темновой ток; U — внешнее приложенное к образцу электрическое напряжение.

По формуле (1) определены значения коэффициентов рентгенопроводимости монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ при различных значениях ускоряющего потенциала V_a (или эффективной жесткости излучения) на рентгеновской трубке и соответствующих дозах рентгеновского излучения. В таблице приведены значения K_σ для $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ ($x = 0, 0.5$ и 1.0) при $E = 1.68$ – 31.29 R/min и $V_a = 25$ – 50 keV ($T = 300$ К). Как видно из таблицы, коэффициенты рентгенопроводимости монокристаллов AgGaSe_2 при всех значениях E и V_a превышают значения K_σ для монокристаллов AgGaS_2 и AgGaSSe .

Установлено, что значение коэффициента рентгенопроводимости монокристаллов AgGaSe_2 резко увеличивается по мере увеличения дозы излучения при $V_a = 25$ keV, а затем незначительно спадает. С увеличением эффективной жесткости рентгеновского излучения зависимость $K_\sigma(E)$ также была возрастающей, но все более пологой и при $V_a = 50$ keV слабо зависела от E . В AgGaS_2 и AgGaSSe дозовые зависимости K_σ при $V_a = 25$ keV носили возрастающий характер, а при $V_a > 30$ keV — спадающий характер.

Аналогичные закономерности были получены и для дозовой зависимости коэффициента рентгеночувствительности K монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$. Значения K , вычисленные по формуле (2) при различных мощностях дозы и эффективных жесткостях рентгеновского излучения, приведены на рис. 1–3. На рис. 4 показаны для сравнения зависимости коэффициента рентгеночувствительности от жесткости рентгеновского излучения мощностью дозы $E = 10$ R/min для монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ различного состава. Видно, что наибольшую рентгеночувствительность проявляют

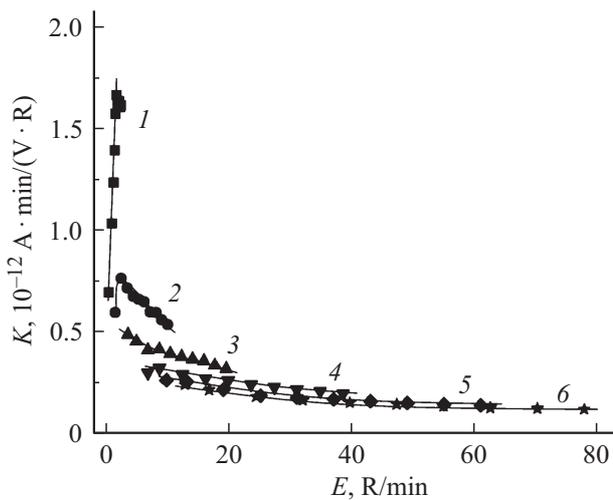


Рис. 1. Зависимости коэффициента рентгеночувствительности от мощности дозы облучения для монокристалла AgGaS_2 при различных ускоряющих напряжениях на трубке V_a , keV: 1 — 25, 2 — 30, 3 — 35, 4 — 40, 5 — 45, 6 — 50. $T = 300$ К.

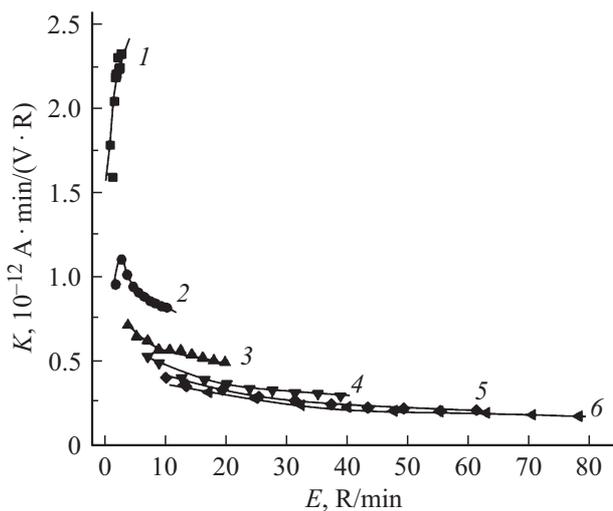


Рис. 2. Зависимости коэффициента рентгеночувствительности от мощности дозы облучения для монокристалла AgGaSSe при различных ускоряющих напряжениях на трубке V_a , keV: 1 — 25, 2 — 30, 3 — 35, 4 — 40, 5 — 45, 6 — 50. $T = 300$ К.

монокристаллы AgGaSe_2 . Так, при $V_a = 30$ keV значение K для AgGaSe_2 в три раза было больше, чем в AgGaS_2 . При этом во всех изученных монокристаллах значение K спадало по мере увеличения жесткости рентгеновского излучения. В случае AgGaSe_2 этот спад был довольно крутым и линейным, а для AgGaS_2 и AgGaSSe наблюдалось монотонное уменьшение K . Различие в коэффициентах рентгеночувствительности монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ убывало по мере роста жесткости излучения. Это наглядно видно из рис. 5, на котором приведены зависимости значений K от состава кристаллов при $V_a = 25$ keV; $E = 2.73$ R/min и при $V_a = 50$ keV; $E = 24.64$ R/min.

Изучены также рентген-амперные характеристики монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ (рис. 6–8), из которых следует, что зависимость стационарного рентгенотока от дозы рентгеновского излучения носит степенной характер:

$$I_r = \Delta I_{E,0} = I_E - I_0 \sim E^\alpha. \quad (3)$$

Дозовые зависимости рентгенотока в AgGaS_2 при сравнительно малой интенсивности рентгеновского излуче-

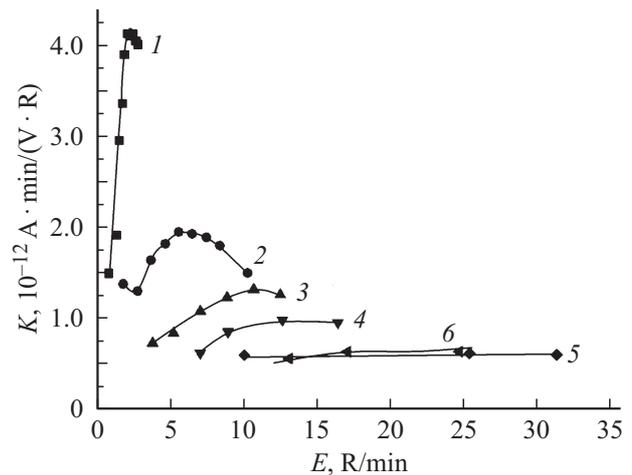


Рис. 3. Зависимости коэффициента рентгеночувствительности от мощности дозы облучения для монокристалла AgGaSe_2 при различных ускоряющих напряжениях на трубке V_a , keV: 1 — 25, 2 — 30, 3 — 35, 4 — 40, 5 — 45, 6 — 50. $T = 300$ К.

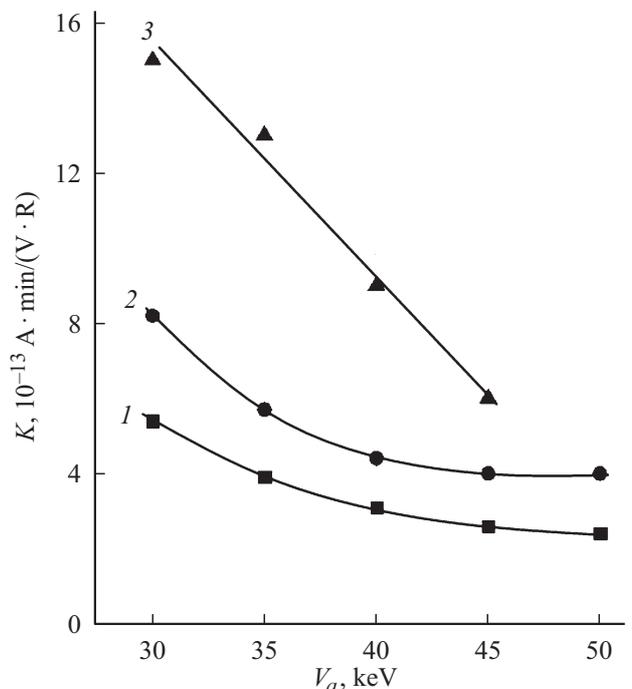


Рис. 4. Зависимости коэффициента рентгеночувствительности от жесткости рентгеновского излучения мощностью дозы $E = 10$ R/min для монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$: $x = 1$ (1), 0.5 (2) и 0 (3).

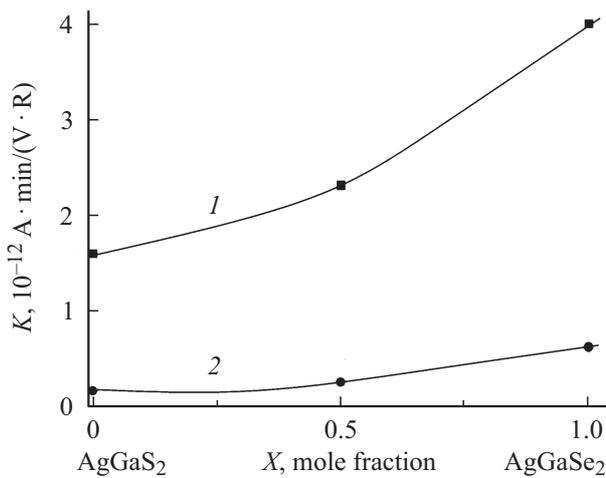


Рис. 5. Зависимости коэффициента рентгеночувствительности монокристаллов $\text{AgGaS}_{2-x}\text{Se}_{2-2x}$ от их состава при $V_a = 25$ keV и $E = 2.73$ R/min (кривая 1); $V_a = 50$ keV и $E = 24.64$ R/min (кривая 2).

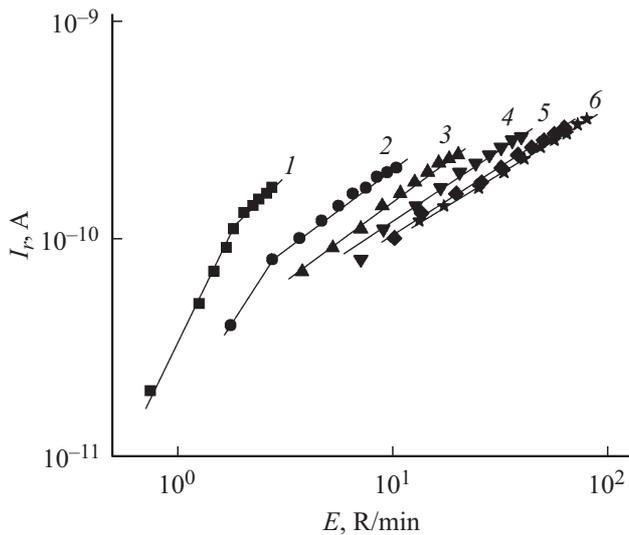


Рис. 6. Рентгенамперные характеристики монокристалла AgGaS_2 при различных ускоряющих напряжениях на трубке V_a , keV: 1 — 25, 2 — 30, 3 — 35, 4 — 40, 5 — 45, 6 — 50. $T = 300$ K.

ния (25 и 30 keV) состояли из двух участков со значениями α , равными 1.9 и 1.7, а при $V_a = 30$ –50 keV эта зависимость характеризовалась одним наклоном, который с увеличением жесткости излучения уменьшался от 0.8 до 0.6. В AgGaSSe дозовые зависимости рентгенотока при всех изученных интенсивностях излучения имели один наклон, который по мере увеличения жесткости излучения уменьшался от 1.2 до 0.6. В монокристаллах AgGaSe_2 при сравнительно малых дозах излучения имел место крутой рост рентгенотока, который при высоких дозах сменялся линейным участком ($\alpha = 1$), что важно с практической точки зрения.

Одной из возможных причин наблюдаемых в поведении $K(E, V_a)$ закономерностей является следующее. При сравнительно малых ускоряющих потенциалах рентгенопроводимость изученных монокристаллов обусловлена преимущественно поглощением излучения приповерхностным слоем. С увеличением ускоряющего потенциала повышается эффективная жесткость рентгеновского излучения, благодаря чему растет глубина его проникновения в кристалл. То есть при этом происходит преимущественно поглощение–генерация свободных рентгеноносителей в объеме и растет доля проходящего через кристалл излучения. Вследствие этого по мере увеличения ускоряющего потенциала наблюдается

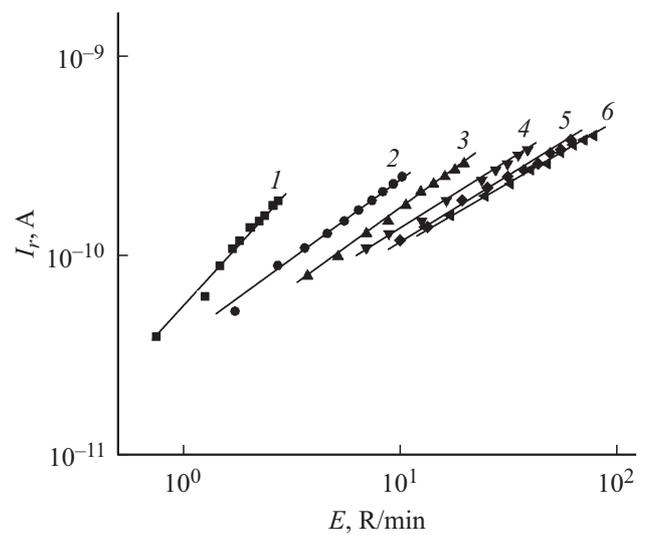


Рис. 7. Рентгенамперные характеристики монокристалла AgGaSSe при различных ускоряющих напряжениях на трубке V_a , keV: 1 — 25, 2 — 30, 3 — 35, 4 — 40, 5 — 45, 6 — 50. $T = 300$ K.

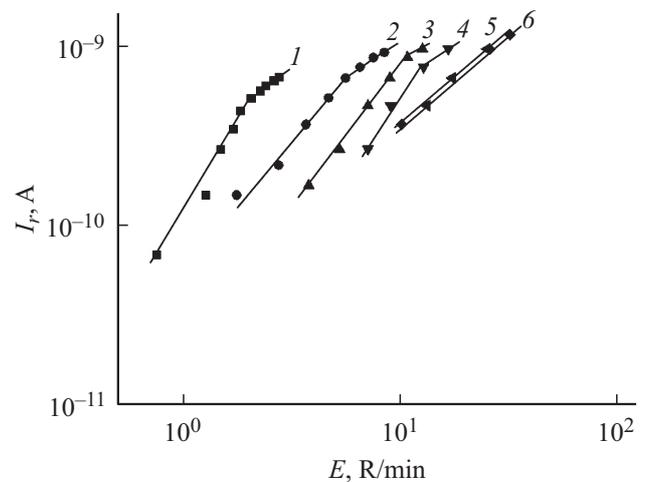


Рис. 8. Рентгенамперные характеристики монокристалла AgGaSe_2 при различных ускоряющих напряжениях на трубке V_a , keV: 1 — 25, 2 — 30, 3 — 35, 4 — 40, 5 — 45, 6 — 50. $T = 300$ K.

уменьшение коэффициента рентгеночувствительности и его зависимости от дозы излучения.

Нами изучена также кинетика рентгенотока в образцах $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$. Было обнаружено, что при отключении рентгеновского излучения уровень темного тока в образцах устанавливался почти сразу в отличие от монокристаллов CdIn_2S_4 [7] со структурой халькопирита. Это создает возможности использования полученных нами монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ в качестве активных элементов практически безинерционных рентгендетекторов, не требующих охлаждения и отличающихся высоким коэффициентом рентгеночувствительности.

Заключение

Установлено, что монокристаллы $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$, выращенные методом ХТР, характеризуются высокими значениями коэффициентов рентгенопроводимости и рентгеночувствительности при комнатной температуре. Проведено сравнение рентгенодозиметрических характеристик монокристаллов $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ различного состава. Из всех изученных составов наиболее высокую рентгеночувствительность имели монокристаллы AgGaSe_2 . Коэффициент рентгенопроводимости AgGaSe_2 варьируется в пределах 1.2–8.5 min/R при эффективной жесткости излучения $V_a = 25\text{--}50\text{ keV}$ мощностью дозы $E = 0.75\text{--}31.3\text{ R/min}$. Зависимость стационарного рентгенотока в изученных монокристаллах $\text{AgGaS}_{2x}\text{Se}_{2-2x}$ от дозы рентгеновского излучения носит степенной характер: $\Delta I_{E,0} \sim E^\alpha$. Полученные монокристаллы могут быть рекомендованы как активные материалы для создания на их основе неохлаждаемых и практически безинерционных рентгенорегистрирующих приборов.

Список литературы

- [1] Мустафаева С.Н., Асадов М.М., Гусейнов Д.Т. // ЖТФ. 2011. Т. 81. Вып. 1. С. 144–147.
- [2] Дворянкин В.Ф., Дворянкина Г.Г., Иванов Ю.М., Кудряшов А.А., Петров А.Г., Телегин А.А. // ЖТФ. 2011. Т. 81. Вып. 5. С. 153–155.
- [3] Jackson A.G., Ohmer M.C., LeClair S.R. // Infrared Phys. Technol. 1997. Vol. 38. N 4. P. 233–244.
- [4] Асадов М.М., Мустафаева С.Н. // Изв. РАН. Сер. физ. 2015. Т. 79. № 9. С. 1259–1262.
- [5] Mustafaeva S.N., Asadov M.M., Guseinov D.T. // J. Mater. Vol. 2015. Article ID 956013, 4 pages. doi.org/10.1155/2015/956013.
- [6] Madelung O. Semiconductors. Basic Data. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg: 1996. 319 с.
- [7] Мустафаева С.Н., Асадов М.М., Гусейнов Д.Т. Перспективные материалы. 2010. № 1. С. 45–48.