

文章编号: 1007-4627(2016)01-0052-05

高纯锗探测器的广泛应用和自主研制进展

白尔隽¹, 郑志鹏², 高德喜³, 孙慧斌¹, 赵海歌¹, 孙志嘉², 米家蓉⁴, 谢天敏⁴, 李学洋⁴

(1. 深圳大学核技术应用联合研究所, 广东 深圳 518060;
2. 中国科学院高能物理研究所, 北京 100049;
3. 中国原子能科学研究院, 北京 102413;
4. 云南临沧鑫圆锗业股份有限公司, 昆明 650021)

摘要: 以目前国际上极为活跃开展的暗物质探测、无中微子双 β 衰变研究为例, 评述了高纯锗探测器的重要性及其广泛的应用前景。介绍了已开展的高纯锗单晶、探测器制备的关键技术研究进展: 合作单位已研制出了用于高纯锗单晶材料制备的区熔炉、单晶炉; 并制备出直径为 20~50 cm、纯度为 12N($< 4 \times 10^{11}$ atoms/cm³)、位错 < 5000 atoms/cm² 的锗单晶; 掌握了高纯锗探测器(平面型、同轴型)制备的关键技术, 用进口高纯锗单晶材料制备出的同轴型高纯锗探测器对 γ 射线的能量分辨率及探测效率均达到进口产品指标, 使用自制的 12N 高纯锗单晶材料已制备出平面型高纯锗探测器。呼吁加速高纯锗研制的自主创新步伐, 尽早实现其国产化目标。

关键词: 高纯锗单晶; 高纯锗探测器; 暗物质

中图分类号: TL814

文献标志码: A

DOI: 10.11804/NuclPhysRev.33.01.052

1 高纯锗探测器

高纯锗探测器在探测粒子, 特别是 X, γ 射线方面同时具有能量分辨率好、探测效率高、稳定性强等优点, 是其他 γ 探测器所不及的。其对 X, γ 能量分辨率达千分之几, 比 CdTe, HgI₂, GaAs 等常用的晶体探测器的能量分辨率高一个量级(见表 1)。

表 1 显示高纯锗探测器能量分辨率的优势

探测器	射线能量/keV	半宽度FWHM/keV
HPGe	1 330	1.75
HgI ₂	1 330	22
CdTe	1 330	25
GaAs	1 330	22

因此高纯锗探测器不仅成为核物理、粒子物理、天体物理实验研究的首选, 而且成为材料科学、环境监测、微量元素分析、安检及国防安全等方面不可或缺的仪器设备。在科学研究、国民经济发展等方面起到越来越重要的作用。

收稿日期: 2015-09-29; 修改日期: 2015-10-21

基金项目: 国家科技支撑项目(2009BAE84B02)

作者简介: 白尔隽(1943-), 男, 浙江舟山人, 教授, 从事核物理、高纯锗材料与探测器研究; E-mail: baierj@szu.edu.cn。

2 高纯锗探测器在21世纪两大物理热点研究的重要作用

2.1 暗物质探测

宇宙学、天体物理的最新成果表明, 我们所能观测到的物质仅占全部物质的 4%, 73% 是暗能量, 有 23% 左右的物质却观测不到, 是以暗物质形态出现。暗物质有质量, 有引力作用却不发光^[1]。在暗物质(Weakly Interacting Massive Particles, WIMP)理论中, 暗物质质量主要来源于弱作用中性粒子的贡献。物理描述预言这些粒子(WIMPs)与重子存在耦合机制, 导致其可以通过核反冲的信号进行测量, 即为检验暗物质存在提供了直接的方法^[2]。近年来寻找暗物质、暗能量存在的证据, 研究其性质已成为当代物理学的热点, WIMPs 粒子测量在探测技术飞速进步的助力之下, 已经开始显露出结果日渐明确的迹象。国际上相继采用不同的方法, 包括天文和粒子探测等手段来探测暗物质(寻找 WIMPs), 低本底高能量分辨率的高纯锗探测器自然成为其中的重要工具之一。

在探测暗物质粒子方面, 与液氙、液氩探测器相比, 高纯锗探测器有更低的能量阈, 更高的灵敏度, 适

用于质量小于 10 GeV 暗物质粒子的探测。

高纯锗探测器探测暗物质的工作原理是: 当暗物质粒子打在探测器的锗原子核上引起核反冲, 给出电信号或热信号。目前主要使用两种不同类型的高纯锗探测器, 一种是工作在常规温度下(液氮温度), 另一种则工作在极低温度下(20~50 mK)。前者的代表有中国的CDEX(中国暗物质实验, China Dark Matter Experiment)^[3]和美国的CoGeNT^[4]实验, 都采用了被称为点接触型的新型高纯锗探测器, 具有较小的电容, 从而有较小的噪声。

CDEX实验是由清华大学领衔的, 上海交通大学、中国科学院高能物理研究所等单位参加的寻找暗物质合作研究实验, 位于四川锦屏山中深达2400 m的隧道, 是国际上岩石厚度最厚的地下实验室——CJPL(China Jinping Underground Laboratory, 中国锦屏地下实验室)。由于山体的屏蔽, 大大地降低了宇宙线本底。CDEX-1实验使用了994 g的高纯锗, 由许多小的点接触型探测器阵列组成的装置, 并带有反符合屏蔽系统, 可以降低外部的辐射本底。该探测设备具有良好的位置分辨和多次事例分辨性能及极低能量阈。实验收集到大量数据后于2014年发表了暗物质存在下限的最新成果, 排除了CoGeNT的实验结果^[5]。该研究结果受到了国际同行的广泛关注。

为了获得更低的下限, CDEX实验下一步拟采用20 kg的高纯锗探测器, 并使用液氩为屏蔽体。其长远目标是采用1000 kg的高纯锗单晶制备成探测器, 采取一系列降低本底的措施, 以得到暗物质是否存在的更精确的证据, 在国际竞争中处于前沿地位。显然这样一个宏伟计划的实施除了探测技术本身问题, 还极大程度依赖于国内高纯锗单晶和探测器自主研制及产业化程度。

2.2 ^{76}Ge 无中微子双 β 衰变

中微子一直是近年来物理研究的热门话题。按粒子物理标准模型理论, 中微子是无质量的, 但中微子振荡实验却揭示出中微子质量不为零, 这一发现为扩展标准模型理论提供了实验基础和展望方向。为了在多种候选的扩展理论中进一步确定物理机制, 物理学家们想方设法测出中微子质量信息, 以此对理论预期描述进行量化和甄别, 其中一种办法是对某些同位素如 ^{76}Ge 、 ^{130}Te 、 ^{136}Xe 等开展无中微子双 β 衰变实验研究。

普通的双 β 衰变发射一对正负电子(β)和一对正反中微子, 其中中微子质量为零, 而无中微子双 β 衰变过程则可不发射中微子^[6]。但在扩展理论中, 一种称为majorana型中微子在中间过程起作用。此种中微子

与其反粒子相同, 其质量可不为零。一旦测出这种同位素衰变的半衰期, 即可推出majorana中微子质量上限^[7]。

^{76}Ge 是锗5种天然同位素中的一种, 丰度仅为7.8%, 因此实验的第一步需将 ^{76}Ge 进行同位素浓缩(通常达到80%以上), 然后经过提纯, 拉制出高纯锗单晶, 最后制成探测器进行 ^{76}Ge 无中微子双 β 衰变实验研究。

目前国际上开展这方面工作的有: HM^[8], IGEX^[9], GERDA^[10], Majorana^[11]等合作实验。以GERDA为例, 它是由欧洲、美国和中国组成的国际联合研究实验, 位于意大利Gransasso国家实验室地下1400 m深处, 使用了21 kg含 ^{76}Ge 浓缩度达86%的高纯锗探测器阵列。

近期几个实验给出的结果综合如下: ^{76}Ge 无中微子双 β 衰变半衰期下限为: $>1.1 \times 10^{25}$ a, 相当于中微子质量上限为: $<0.2\sim0.45$ meV。

为了获得更精准的中微子质量上限, 一些实验拟将 ^{76}Ge 高纯锗探测器扩充至1000 kg。因此为了实现这一计划, 必须在 ^{76}Ge 同位素分离、高纯锗单晶拉制和探测器的制备过程采取新工艺, 将成本大大降下来, 才可能实现物理学家的梦想。中国科学家也应义不容辞, 在这方面有所作为。

3 高纯锗单晶和高纯锗探测器的研制

高纯锗探测器的原材料是纯度12~13N, 位错小的锗单晶, 因此高纯锗探测器的自主研制需从高纯锗单晶的研制做起。为此, 自20世纪80年代开始, 我国许多单位进行了这方面的尝试。在90年代, 深圳大学的特殊区熔方面取得很好的成果。从2006年起, 在叶铭汉、冼鼎昌、王乃彦院士的支持和推动下, 由云南锗业(云南临沧鑫圆锗业股份有限公司)牵头负责, 组成了有深圳大学、中国科学院高能物理研究所、中国原子能科学研究院的科研人员参加的产学研队伍, 进行高纯锗单晶和探测器研制的工作。在艰难的条件下建立了实验室, 开展了高纯锗原材料纯化、区熔、拉单晶和制备探测器的前期工作。2009~2013年, 该工作得到国家科技部支撑计划的支持(项目序号: 2009BAE84B02), 使研制工作取得了较快进展。经过四年不懈的努力, 最终获得了预期成果, 达到任务规定的阶段目标, 通过了科技部专家委员会验收, 取得了以下主要成果。

(1) 掌握了高纯锗单晶制备的关键技术, 拉制出直径为20~50 cm(图1), 纯度为12N($<4. \times 10^{11}$ atoms/cm³), 位错 <5000 atoms/cm²的锗单晶(已得

到信息专业用材料质量检验中心的验证)。



图1 (在线彩图) 一根拉制出的高纯锗单晶棒

(2) 掌握了高纯锗探测器(平面型、同轴型)制备的关键技术,用进口高纯锗单晶材料制备出的同轴型高纯锗探测器对 γ 射线的能量分辨率及探测效率均达到当前Canberra公司产品的指标(经中国原子能科学研究院检测中心验证)。(如测1332.5 keV峰,能量分辨为1.94 keV,相当于0.15%)。用自己拉制的12N高纯锗单晶材料,已制备出平面型高纯锗探测器(图2)。



图2 (在线彩图) 制备好的同轴型高纯锗探测器

(3) 所采用的工艺流程:

(a) 对 GeCl_4 原料采取特殊化学处理和多次精馏进行提纯,大幅度降低杂质含量,有效去除那些在区熔过程中难以去掉的Al, B, Si, P, As等杂质。将这些经过反复提纯的 GeCl_4 原料在极清洁的环境下进行水解、还原、区熔得到5~6N以上的锗锭。

(b) 采用了自主创新的特殊区熔设备和工艺(图3),包括特殊形状、尺寸的高频线圈,优化的涂层工艺,净化工艺。在区熔过程中对各种参数进行优化。最终获得了12N的高纯锗多晶。

(c) 使用了自主创新的直控式高频感应单晶炉(图4),采用高纯石英为炉体;使用特殊的石英-石墨封装技术防止杂质的扩散;炉体维持较高的真空间;采用钼籽晶杆冷却技术降低杂质挥发;使用高纯气体减少



图3 (在线彩图) 自行设计的区熔设备



图4 (在线彩图) 自行设计的单晶炉

二次污染等一系列措施以保证单晶的高纯度。同时在设计和调试中需保证炉体有一个理想的热场,以获得小位错的高质锗单晶。在实践中不断摸索最佳成晶条件,提高拉晶的自动化程度。

(4) 自主创新建立了一套先进的高纯锗探测器制备和测试系统。第一步使用进口高纯锗单晶材料,制备P型平面型和同轴型高纯锗探测器,在反复实践中掌握制备的关键技术。不断改善工艺流程,在镀膜、离子扩散、离子注入、腐蚀、封装、低温制冷、前端电子学、信号读出系统等环节严格把关,不断创新,将经过检验的新工艺固定下来形成自己的特色。在离子注入过程摸索了一套优化离子注入能量、计量及离子分布均匀度的方法,保证了产品的高品质。

在完成国家支撑计划以后,合作团队继续在深圳大学开展13N高纯锗单晶材料和新型高纯锗探测器的研制工作。

4 加快高纯锗单晶和探测器自主研制的步伐

我们在高纯锗单晶和高纯锗探测器制备上虽已迈开了可喜的一步,国内一些单位在这方面也有一定进展,

但离产业化还有一段距离, 离国家在科研、社会发展对该领域的需求差距还很大。

据我们所知, 我国每年需向国外 ORTEC, Canberra 等公司进口数百台高纯锗探测器, 价值数亿元。从 1970 年代至今, 美国、欧洲垄断了高纯锗单晶和探测器的国际市场。他们从我国以每千克 8000~10 000 元左右的人民币价格购买区熔锗锭加工后, 以 30~40 倍的价格向我们出售一千克高纯锗单晶材料, 高达 25~30 万元。而含一千克锗的高纯锗探测器则需要 60~100 倍 (50~200 万, 特殊型的更贵得难以想象) 的高价。要改变这一不合理状况, 打破国际垄断的唯一方法是采取自力更生措施, 拉制出我国自己生产的高纯锗单晶材料, 并用此制成不同类型, 具有优良性能, 物美价廉的高纯锗探测器。

首先满足国内的需求, 支持 CDEX 实验的未来发展, 满足国内科研、环保、安检、国家安全等的迫切需求。从走进国内市场开始, 进而打入有数十亿元潜力的国际市场。希望国家更加重视高纯锗产业, 加强组织各方面力量, 开展产学研合作, 早日实现高纯锗的自主研制, 达到上述目标。中国人应在这一领域做出应有的贡献。

致谢 感谢云南省科技厅的支持, 感谢云南锗业董事长包文东先生对高纯锗研制工作的大力支持, 感谢李金研究员在前期科研工作中的贡献, 感谢黎显刚先生在早期

组建工作的贡献。还感谢叶铭汉、冼鼎昌、王乃彦院士和吕军光研究员的支持和促进, 感谢未署名的, 所有参与过本研制工作的人员。

参考文献:

- [1] YUE Qian. Sci Sin-Phys Mech Astron, 2011, **41**: 14340. (in Chinese)
(岳骞. 中国科学: 物理学、力学、天文学, 2011, **41**(12): 1434.)
- [2] KLAUDOR-KLEINGROTHAUS H V, DIETZ A, BAUDIS L, *et al.* Eur Phys J A, 2001, **12**: 147.
- [3] KANG K J, CHENG J P, CHEN Y H, *et al.* J Phys-Conf Ser, 2010, **203**: 012028
- [4] AALSETH C E, BARBEAU P S, BOWDEN N S, *et al.* Phys Rev Lett, 2011, **106**: 131301.
- [5] YUE Q, ZHAO W, KANG K J, *et al.* Phys Rev D, 2014, **90**: 091701(R).
- [6] ARMENGAUD E. Comptes Rendus Physique, 2012, **13**(6/7): 730.
- [7] BRONIATOWSKI A, DEFAY X, ARMENGAUD E, *et al.* Physics Letters B, 2009, **681**(4): 305.
- [8] KLAUDOR-KLEINGROTHAUS H V, KRIVOSHEINA I V, DIETZ A, *et al.* Phys Lett B, 2004, **586**: 198.
- [9] AALSETH C E, AVIGNONE III F T, BRODZINSKI R L, *et al.* Phys Atom Nucl, 2000, **63**: 1225.
- [10] LUKE P N, GOULDING F S, MADDEN N W, *et al.* IEEE Trans Nucl Sci, 1989, **36**(1): 926.
- [11] VARNELL L S, CALLAS J L, MAHONEY W A. IEEE Trans Nucl Sci, 1991, **38**(2): 218.

Extensive Application and Independent Research Progress of HPGe Detector

BAI Erjuan^{1,1)}, ZHENG Zhipeng², GAO Dexi³, SUN Huibin¹, ZHAO Haige¹,
SUN Zhijia², MI Jiarong⁴, XIE Tianmin⁴, LI Xueyang⁴

(1. Joint Applied Institute of Nuclear Technology of Shenzhen University, Shenzhen 518060, Guangdong, China;
2. Institute of High Energy Physics Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;
3. China Institute of Atomic China, Beijing 102413, China;
4. Yunnan Lincang Xinyuan Germanium Industrial Co.Ltd, Kunming 518060, China)

Abstract: The article reviews importance and wide applications of HPGe detector, especially the application on the dark matter search experiment and double beta decay experiment. The research progress on the High-purity germanium single crystal and HPGe detector in China has been introduced. The cooperation partner developed new type zone-refining furnace and single crystal furnace. The ultra-purity germanium single crystal with 20~50 cm, purity up to 12N (net impurity concentration is less than 4×10^{11} atoms/cm³), and dislocation less than 5 000 /cm³ was prepared. The key technologies for preparing planar and coaxial HPGe detector were mastered. The coaxial detector, which has been made of imported ultra-purity germanium single crystal has excellent energy resolution and efficiency as the imported commercial detector. The planar detector using self-made germanium single crystal was also successfully manufactured. The research group appeals for speeding up the pace of independent innovation on the high-purity germanium, and achieving the high-purity germanium localization as soon as possible.

Key words: high-purity germanium single crystal; HPGe detector; dark matter

Received date: 29 Sep. 2015; Revised date: 21 Oct. 2015

Foundation item: National Science and Technology Support Program (2009BAE84B02)

1) E-mail: baierj@szu.edu.cn.