

基于碳化硼转换材料的 SiC 中子探测器研究

孙乙文¹, 田立朝¹, 张 湘^{2,*}, 杨晓虎^{1,*}, 徐伟立², 胡佳丽²

(1. 国防科技大学 理学院, 湖南 长沙 410072; 2. 四川大学 物理学院, 四川 成都 610064)

摘要: 以 SiC- α 探头和中子核反应转换材料 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 为基础的探测器, 是实现反应堆中子通量测量的新半导体中子探测器方案, 其中转换材料的关键在于确定 SiC 外延层及 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 转换层厚度。使用 Geant4 模拟了不同厚度 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 涂层下热中子和不同能量 γ 射线在 SiC 灵敏体积内的能谱, 并对不同阈值下热中子探测效率随 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 涂层厚度的变化关系进行模拟, 确定了 SiC 外延层及 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 转换层厚度值。拆卸转换层, 使用 ^{60}Co 、 ^{137}Cs 、 ^{22}Na 放射源以及中子源, 对 SiC 探测器进行了 γ 射线探测和热中子探测实验, 获得了不同层厚下 SiC 对热中子探测的能量沉积, 得到了最佳的层厚设计, 确定了筛除 γ 信号的合理阈值, 验证了方案的可行性。

关键词: 中子探测; SiC 探测器; $^{10}\text{B}_4\text{C}$; Geant4 蒙特卡罗模拟

中图分类号: TL816

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2025)04-0920-06

doi: 10.7538/yzk.2024.youxian.0595

Research of SiC Neutron Detectors Based on Boron Carbide Conversion Materials

SUN Yiwen¹, TIAN Lichao¹, ZHANG Xiang^{2,*}, YANG Xiaohu^{1,*}, XU Weili², HU Jiali²

(1. College of Science, National University of Defense Technology, Changsha 410072, China;

2. College of Physics, Sichuan University, Chengdu 610064, China)

Abstract: In order to ensure the long-term, stable and safe operation of compact all-solid-state reactors, real-time monitoring of neutron fluxes within the reactor is essential. Neutron flux not only reflects the nuclear activity of the reactor, but is also directly related to the safety and efficiency of the reactor. Among the existing neutron detector technologies, there are some limitations in the application of ^3He proportional counting tubes, fission gas ionization chambers, and traditional Si and Ge semiconductor detectors in high-temperature and strong radiation environments, such as the noise of gas detectors will increase significantly in high-temperature environments, which affects the detection accuracy. Although the traditional Si and Ge semiconductor detectors have good energy resolution in low temperature environments, the leakage current becomes larger in high temperature and strong irradiation environments, and the introduced noise will increase significantly, thus limiting their application in extreme environments. As a wide band-gap semiconductor material, SiC detector has the characteristics of large band gap, strong radiation resistance, high breakdown electric field strength and large saturated electron drift velocity, which makes it have excellent high temperature resistance and radiation

收稿日期: 2024-07-31; 修回日期: 2024-09-09

基金项目: 国家重点研发计划(2023YFC2509301); 国家自然科学基金(12175309)

* 通信作者: 张 湘, 杨晓虎

resistance in extreme environments. The purpose of this study is to design a SiC neutron detector based on the $^{10}\text{B}_4\text{C}$ conversion layer and optimize its structural parameters to achieve high-precision real-time monitoring of neutron flux in the reactor. The energy spectrum of thermal neutrons in the sensitive volume of $^{10}\text{B}_4\text{C}$ coating with different thicknesses was simulated by Geant4 simulation software, and the relationship between the energy spectrum of γ rays of different energies in the sensitive volume of SiC and the variation of thermal neutron detection efficiency with the thickness of $^{10}\text{B}_4\text{C}$ coating under different thresholds were analyzed to determine the optimal thickness values of SiC epitaxial layer and $^{10}\text{B}_4\text{C}$ conversion layer. Combined with the dismantling of the conversion layer, the SiC detector was used to detect γ rays and thermal neutrons using ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{22}Na radioactive sources and neutron sources. By comparing the energy deposition of SiC for thermal neutron detection at different layer thicknesses, the accuracy of the simulation results was verified and experimental basis for subsequent applications was provided. The simulation and experimental results show that the optimal thickness of the conversion layer is 2 μm , 300 keV can be used as the screening γ ray threshold, the air gap has great influence on the energy deposition of nuclear reaction products, and the energy resolution of SiC can reach 2.08% when working at low pressure of 20 V. The overall results verify the feasibility of the design parameters of the SiC neutron detector, and realize the detection of neutron energy spectrum and flux.

Key words: neutron detection; SiC detector; $^{10}\text{B}_4\text{C}$; Geant4 Monte Carlo simulation

中子通量是衡量核反应堆中子辐射强度的一个重要参数^[1], 中子通量的实时监测有助于确保反应堆运行在安全范围内, 同时核反应堆中的中子能量分布代表着反应堆的运行状态^[2], 通过能谱监测可了解中子的能量分布, 进而分析反应堆的运行状态。微小型反应堆, 作为一种新型的核能发电技术, 具有高效能源利用率、安全性能强以及环境影响小的优势, 其核心原理是通过原子核的裂变释放大量能量, 用于发电、供暖和工业生产等。常用的中子探测器有 ^3He 正比计数管、裂变气体电离室和传统的 Si、Ge 半导体探测器^[3]等。气体探测器在高温环境下噪声会显著增加^[4-5]; 半导体探测器在低温环境下具有良好能量分辨率, 但传统的 Si、Ge 半导体探测器在高温和强辐照环境下漏电流变大, 导致噪声大幅度增加^[6-7], 而 SiC 探测器, 作为一种宽带隙半导体材料, 具有禁带宽度大、抗辐射能力强、击穿电场强度高以及饱和电子漂移速度大等特点, 具有出色的耐高温和抗辐照性能, 被看作是半导体材料领域最有前景的材料之一^[8-9], 在其表面镀上中子转换材料即可实现中子探测, 同时保留其作为半导体探测器高能量分辨率的物理性能, 可为紧凑型全固态反应堆中子监测提供一种可行的中子监测方案。

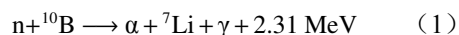
1972 年, Tikhomirova 等^[10] 制造了 Be 掺杂的 6H-SiC P-N 结辐射探测器, 但因技术限制未得到进一步发展^[11], 随着 SiC 材料工艺技术的日益成熟, 研究人员验证了 SiC 中子探测器在高温及强中子辐照条件下的性能^[12-13]; 2013 年, 四川大学陈雨、蒋勇等^[14] 采用 4H-SiC 材料研制了肖特基型 α 粒子探测器; 2015 年, 中国工程物理研究院吴健等^[15] 研制了基于 4H-SiC 肖特基型探测器, 探测器漏电流较低; 2021 年, 长春理工大学和中国科学院高能物理研究所等^[16] 基于 15 μm 的 4H-SiC 外延片, 在外延层和 Ni 电极之间插入一层 SiO_2 作为介电层, 形成 MIS 结构的探测器。中子探测常用的一种方法是利用中子经过转化层发生反应后, 次级带电粒子进入探测器外延层, 从而实现对中子的探测; 2020 年, 唐彬等^[17] 对含 ^6LiF 转换层的 SiC 中子探测器进行实验, 相较于 ^6Li 材料, ^{10}B 具有较高的中子捕获截面^[18], 同时硼作为非金属, 通常以硼酸盐或硼化合物的形式存在, 这些化合物在高温下有良好的稳定性。

本文对基于 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 的可拆卸转换层的中子探测方案进行蒙特卡罗模拟, 对结果进行分析得到最佳转换层厚度, 在实验室中对 SiC 探头进行 α 粒子探测实验并对添加转换层后的 SiC 中子探

测器进行 γ 射线探测和中子探测实验,分析 γ 射线和空气间隙对SiC中子探测器的影响,验证可拆卸中子转换层的可行性,拟为SiC探测器用到中子辐射场提供依据和方法。

1 含 ^{10}B 转换层的SiC中子探测器模拟

中子入射到 ^{10}B 转换层时将与 ^{10}B 发生如下核反应:



核反应产物能量分别是 $E_\alpha=1.48 \text{ MeV}$ 、 $E_{\text{Li}}=0.84 \text{ MeV}$ 。根据中子与 ^{10}B 反应的主要产物及其能量,首先使用SRIM软件^[19]对1~2 MeV能量范围的 α 粒子在SiC中射程进行模拟,结果如图1所示,由模拟可得到1.48 MeV的 α 粒子在SiC中射程约3.37 μm 。

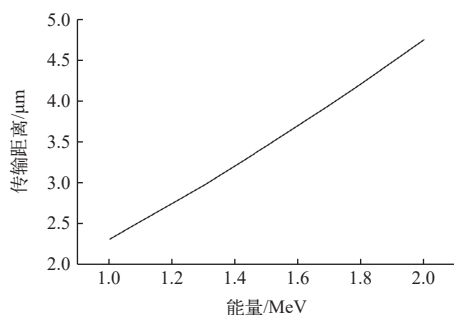


图1 不同能量 α 粒子在SiC中传输距离
Fig. 1 Travel distances of different energies α particles in SiC

由于中子转换层与SiC探头外延层之间存在空气间隙,热中子与转换层核反应产生的产物核在空气中传输时会有能量损失,为考察空气间隙的影响,采用Geant4软件开展5 μm 空气间隙、1 μm 和5 μm $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 转换层厚度条件下,热中子产生的次级离子在30 μm 厚SiC中的能谱,结果如图2所示。模拟时 ^{10}B 丰度为95%, $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 密度为2.34 g/cm^3 ,SiC密度为3.2 g/cm^3 。

模拟结果显示了两处明显峰值,根据能量关系,能谱前、后两处峰分别对应Li离子、 α 离子,在不同厚度转换层下,核反应产物在SiC中的能量沉积分布图谱型一致,但由于Li离子质量更重,随转换层厚度增加,在转换层中更易沉积,故计数下降更显著。

由于中子与 ^{10}B 核反应产物中有 γ 射线,需研究 γ 射线对SiC探测结果的影响。在模拟实验中,使用661.6 keV和1 250 keV能量的 γ 射线入

射30 μm 厚的SiC材料,得到能谱图如图3所示。由图3中模拟结果可知,99.9%的 γ 入射事件沉积能量小于300 keV,因此使用300 keV作为沉积能量的阈值时可排除 γ 射线的干扰。

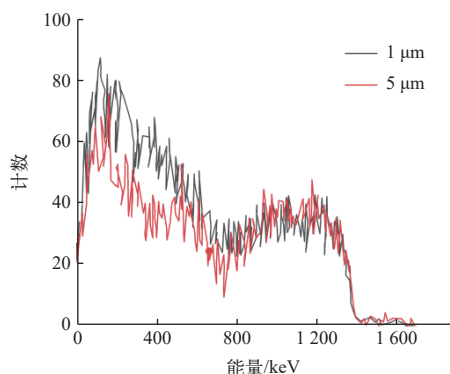


图2 1 μm 和5 μm 厚度涂层下次级离子在SiC内能谱
Fig. 2 Energy spectra of secondary ions in SiC under coating with thicknesses of 1 μm and 5 μm

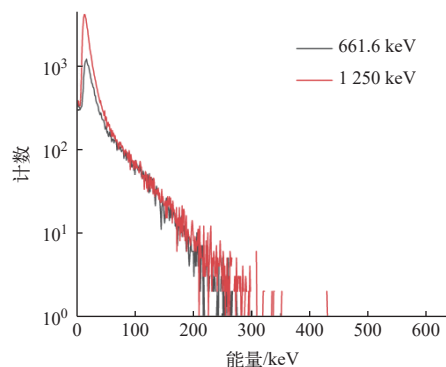


图3 不同能量 γ 射线在SiC灵敏体积内的能谱
Fig. 3 Spectra of different energies γ rays in sensitive volume of SiC

采用Geant4软件开展了阈值为0 keV和300 keV条件下探测器对热中子的探测效率随 B_4C 厚度的变化趋势模拟,结果如图4所示。由图4结果可看出,在 B_4C 转换层厚度约2 μm 时,探测效率最大,故 B_4C 转换层最优厚度应取2 μm 。在阈值取为300 keV条件下,对热中子的探测效率可达约2.3%。

2 α 粒子响应测试

$^{10}\text{B}_4\text{C}$ 涂层SiC中子探测实际上是对中子与转换层反应后的次级粒子进行探测,中子与 ^{10}B 转换层发生核反应主要产物为 α 粒子,SiC探头对 α 粒子的探测性能直接影响到中子探测的效率和精度,探头对 α 粒子的响应主要取决于其工作电

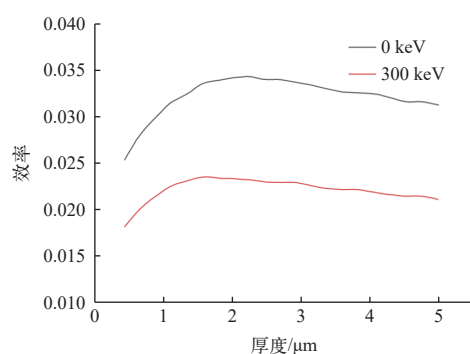


图4 不同阈值下热中子探测效率随 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 涂层厚度的变化

Fig. 4 Thermal neutron detection efficiency variation with $^{10}\text{B}_4\text{C}$ coating thickness at different thresholds

压及电子学成形时间,并由能谱分辨率体现。

整体实验测试采用的SiC探头为金属铜镀金封装的PIN型探测器,在没有缓冲层的情况下,在360 μm 厚的SiC衬底的硅面上生长了外延层,厚度为30 μm ,肖特基势垒由镍通过11 mm $\times$ 11 mm的方形孔热蒸发形成,有效灵敏面积为10 mm $\times$ 10 mm,氩气环境中在高温下将Ni/Au烧结在SiC基体背面形成欧姆接触, SiC探头的结构与实物如图5所示,采用的探头及电子学系统框图如图6所示。实验时,将SiC探头与 ^{241}Am 放射源放置于真空腔,电荷前置放大器为ORTEC-142,线性放大器为ORTEC-572A、高压电源为ORTEC-710。

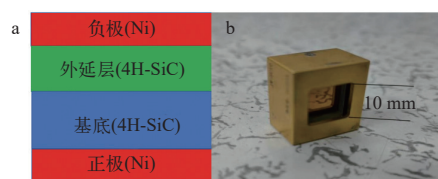


图5 SiC探头结构示意图(a)与实物图(b)

Fig. 5 Structure diagram (a) and physical diagram (b) of SiC probe

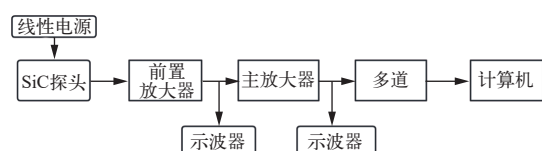


图6 α 粒子响应测试实验装置框架

Fig. 6 α -particle response testing apparatus structural diagram

在偏置电压0~40 V范围内以10 V为间隔,分别对 ^{241}Am 放射源的 α 能谱进行测量,并由能谱数据计算得到探测器的能量分辨率,结果如图7所示,偏置电压为10 V时能量分辨率最优,

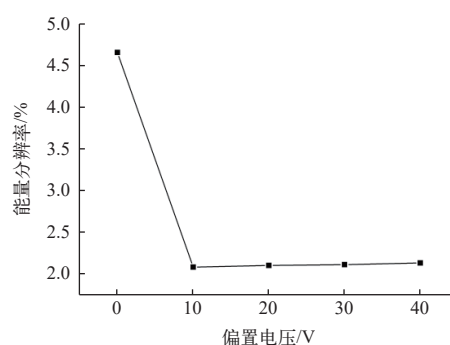


图7 能量分辨率随偏置电压变化规律

Fig. 7 Energy resolution variation with bias voltage

约2.08%,随后增大偏压,能量分辨率变化小于10%。

为探究成形时间对能量分辨率的影响,固定偏置电压为10 V,在成形时间0.5~3.0 μs 范围内对 ^{241}Am 放射源展开扫描测试,进行能谱采集,所获结果如图8所示。由实验结果可知,当成形时间为1.0 μs 时,能量分辨率达最佳2.08%,当成形时间过短或过长时,导致信号的信噪比变差,能量分辨率降低。

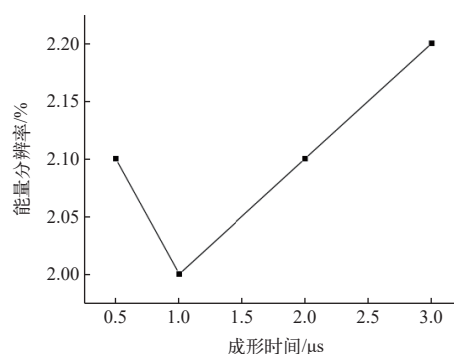


图8 能量分辨率随成形时间变化规律

Fig. 8 Energy resolution variation with forming time

3 γ 射线沉积

中子与 ^{10}B 转换层反应时不可避免产生 γ 射线,与中子一同入射到SiC探头中,使最终计数增大,影响中子能谱采集。设置偏置电压为10 V,成形时间为1.0 μs ,实验装置搭建与 α 粒子响应实验相同,将 ^{241}Am 放射源依次更换为 ^{60}Co 、 ^{137}Cs 和 ^{22}Na 放射源,对SiC探头进行照射,并进行能谱采集,确定其计数主要分布区域,结果如图9所示。

由图9可知,3种放射源的 γ 射线均主要集中在道址较小的范围内,即能谱低能段区域,这是由于SiC与 γ 射线的反应截面小,且外延层厚度仅30 μm ,较难沉积次级粒子。 ^{241}Am 放射 α 射线能

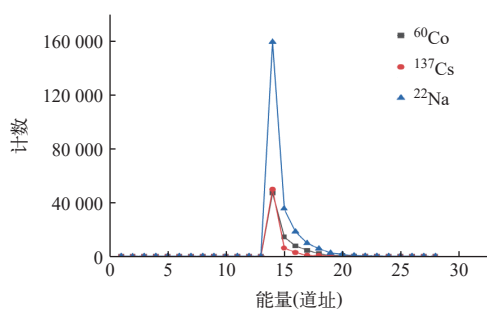


图9 放射源在 30 μm 厚 SiC 中的沉积能谱

Fig. 9 Radioactive sources deposit energy spectra in 30 μm SiC

量为 5.586 MeV, 由式(1)可知, 热中子与 B 反应产生的 α 粒子能量为 1.48 MeV, ^{60}Co 放射源的 γ 射线在 SiC 中的沉积能量与 α 粒子能量相比, 仍属于低能沉积范围, 故可在数据处理时通过设置合理阈值, 去除低能端计数从而排除中子探测时 γ 射线的干扰。

4 中子测试

为测试不同空气间隙下该 SiC 中子探测器对热中子能量沉积情况, 以干式中子源实验平台为依托进行中子测试实验, 该实验平台外形为圆柱形, 内层以石蜡为主要成分慢化吸收中子, 含硼聚乙烯吸收慢中子, 外层不锈钢作为 γ 屏蔽体, 将 SiC 中子探测器放置于热中子通道中, 设置偏置电压为 10 V, 成形时间与放大倍数分别为 1 μs 和 75 倍, 在转换层与探测器外延层距离分别为 200、600、1 000 μm 条件下进行测试, 中子转换层与 SiC 探头耦合结构和测试中子实验环境分别如图 10、11 所示。

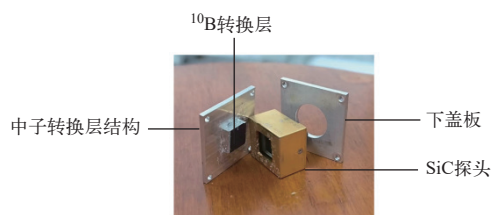


图10 中子探测器结构

Fig. 10 Neutron detector structure

将实验结果在时间上进行归一化处理, 并计算 SiC 探测器计数率与空气间隙的对应关系, 得到图 12。

由图 12 可知, 中子转化层与 SiC 探头之间的空气间隙越大, 低能端计数越多, 这是因为次级粒子在空气中的传输距离越长其损失能量越多, 导



图11 中子测试环境

Fig. 11 Neutron test environment

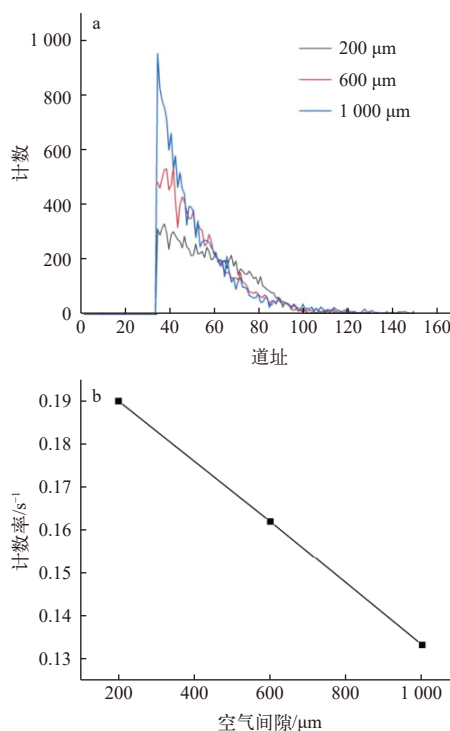


图12 不同空气间隙下热中子在 SiC 中能量沉积(a) 以及 SiC 探测器计数率随空气间隙的变化(b)

Fig. 12 Energy deposition of thermal neutrons in SiC under different air gaps (a) and count rate of SiC detector variation with air gap (b)

致最终低能粒子增多, 高能粒子减少, 且 SiC 探测器的计数率随空气间隙的增大呈线性下降的规律, 但空气间隙在 1 000 μm 范围内对中子能谱整体影响较小, 采用可更换的中子转换层结构可实现对中子能谱的探测。

5 结论

通过 Geant4 模拟分析和热中子实验测试, 确定了基于 ^{10}B 转换层的 SiC 中子探测器外延层及 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 转换层厚度。基于 α 射线实验测得探测器能量分辨率最优下的偏置电压状态: 在 10 V 电压和 1.0 μs 成形时间下对 α 粒子探测能量分辨率达到最佳, 为 2.08%; 通过多个单能(551、662、1 170、

1 330 keV) γ 射线测试,得到了 γ 事件能量沉积在能谱中的分布特征,确定了有效排除 γ 射线影响的信号阈值。以上研究的分析和实验确定了用于中子探测时的最佳SiC探测器工作状态,进一步,通过热中子试验评估 ^{10}B 转换层与SiC耦合时空气间隙对中子探测的影响。结果显示,间隙 $\leq 1\,000\,\mu\text{m}$ 时可有效区分中子事件,但有效计数率随间隙增大而减小,且呈现为线性规律。

本研究确定了 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 结合SiC进行中子探测的基本特性,为后续探测器的研究和进一步集成奠定了基础。

感谢四川大学提供的中子实验平台及实验环境,以及四川大学物理学院核工程与核技术系的老师和同学们对该工作的支持和帮助。

参考文献:

- [1] TAMBOLI P, DUTTAGUPTA S P, ROY K. Particle filter based recursive data fusion with sensor indexing for large core neutron flux estimation[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, doi: 10.1109/TNS.2017.2695663.
- [2] LIU C, PAN X, MA H, et al. A study on neutron energy spectrum estimation by $\text{LaBr}_3\text{:Ce}$ detector[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2019, 320(3): 859-864.
- [3] METWALLY W A. Existing NaI detectors: An efficient alternative to He-3 detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2014, 338(14): 48-51.
- [4] ARISTOV I N, DANILOV V F, KUZELEV N R. Gas-discharge detectors for monitoring the total neutron yield in the international thermonuclear experimental reactor[J]. Instruments and Experimental Techniques, 2004, 47(2): 147-152.
- [5] MCGREGOR D S, KENNETH SHULTIS J. Reporting detection efficiency for semiconductor neutron detectors: A need for a standard[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2011, 632(1): 167-174.
- [6] BERTUCCIO G. Prospect for energy resolving X-ray imaging with compound semiconductor pixel detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2005, 546(1/2): 232-241.
- [7] 刘恩科, 朱秉升, 罗晋生, 等. 半导体物理学[M]. 4版. 北京: 国防工业出版社, 2010.
- [8] SELLIN P J, VAITKUS J. New materials for radiation hard semiconductor detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2006, 557(2): 479-489.
- [9] LO GIUDICE A, FASOLO F, DURISI E, et al. Performances of 4H-SiC Schottky diodes as neutron detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2007, 583(1): 177-180.
- [10] FASOLO F, RUDDY F H. Silicon carbide neutron detectors[J/OL]. Properties and Applications of Silicon Carbide, 2011, 28(6): 276-293.
- [11] 胡青青, 杨俊, 刘国福, 等. SiC中子探测器的研究进展[J]. 核电子学与探测技术, 2011, 31(12): 72-77.
HU Qingqing, YANG Jun, LIU Guofu, et al. Research progress of SiC neutron detector[J]. Nuclear Electronics and Detection Technology, 2011, 31(12): 72-77(in Chinese).
- [12] KALININA E V, IVANOV A M, STROKAN 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.
- [13] 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 A, 2005, 552(1/2): 138-145.
- [14] 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.
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(in Chinese).
- [15] 吴健, 蒋勇, 甘雷, 等. 基于4H-SiC的高能量分辨率 α 粒子探测器[J]. 强激光与粒子束, 2015, 27(1): 014004.
WU Jian, JIANG Yong, GAN Lei, et al. High-resolution alpha-particle spectrometry based on 4H silicon carbide semiconductor detectors[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2015, 27(1): 014004(in Chinese).
- [16] JIA Y, SHEN Y, SUN X, et al. Improved performance of SiC radiation detector based on metal-insulator-semiconductor structures[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2021, 997: 165166.
- [17] 唐彬, 蔡军, 黄文博, 等. 基于碳化硅中子探测器的实验研究[J]. 辐射研究与辐射工艺学报, 2020, 38(5): 67-72.
TANG Bin, CAI Jun, HUANG Wenbo, et al. Experimental study of silicon carbide neutron detectors[J]. Journal of Radiation Research and Radiation Processing, 2020, 38(5): 67-72(in Chinese).
- [18] LI K, ZHOU J R, WANG X D, et al. Study of a nTHGEM-based thermal neutron detector[J]. Chinese Physics C, 2016, 40(7): 076002.
- [19] MITSU E, KOUTSOMITIS K, APOSTOLOPOULOS G. On the use of SRIM for calculating arc-dpa exposure[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2023, 545: 165145.