

第三届半导体辐射探测器研讨会

11-14 May 2023 安徽·巢湖



西北工业大学
NORTHWESTERN POLYTECHNICAL UNIVERSITY



CsPbBr₃结型探测器的制备及接触性能研究

The Fabrication and Contact Properties of CsPbBr₃ Junction Detector

郝莹莹，白蕊沉，张鑫，李芳沛，徐亚东*

2023年5月13日

目录

OUTLINES

01

研究背景

02

研究内容

- 肖特基接触CsPbBr₃探测器
- LiF中间层CsPbBr₃探测器

03

主要结论

目录

OUTLINES

01

研究背景

02

研究内容

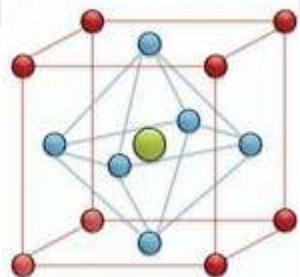
- 肖特基接触CsPbBr₃探测器
- LiF中间层CsPbBr₃探测器

03

主要结论



AMX₃钙钛矿半导体



钙钛矿晶体结构

- A⁺ = Cs⁺、CH₃NH₃⁺、HC(NH₂)₂⁺
- M²⁺ = Ge²⁺、Sn²⁺、Pb²⁺
- X⁻ = Cl⁻、Br⁻、I⁻

CsPbBr₃单晶照片



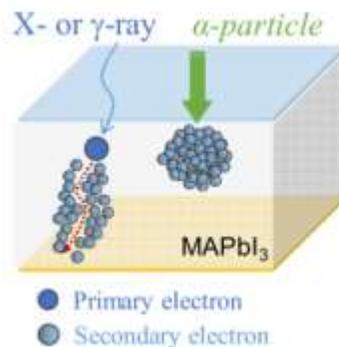
Nature Communications, 2018, 9(1):1609

6×6×3 mm³

- ✓ 平均原子序数大
- ✓ 禁带宽度适中
- ✓ 载流子迁移率-寿命积高
- ✓ 缺陷容忍度高
- ✓ 成本低

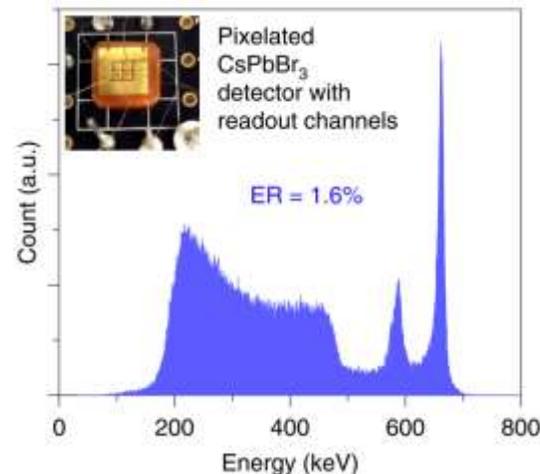
满足半导体核辐射探测器对材料的要求

粒子/射线探测



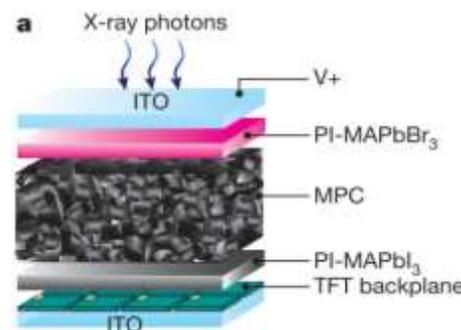
ACS Photonics, 2018, 5(10): 6

能量分辨率好



Nature Photonics, 2021, 15, 6-42

X射线成像



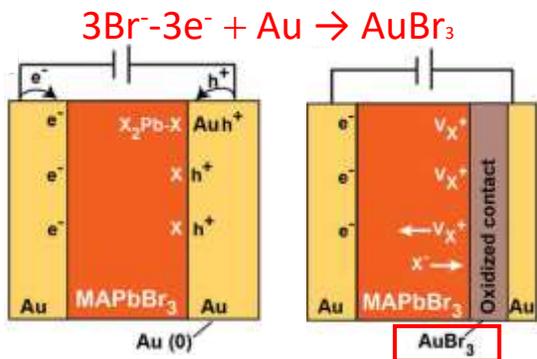
成像质量高



Nature, 2017, 550(10), 87-91

金属/钙钛矿的电化学反应

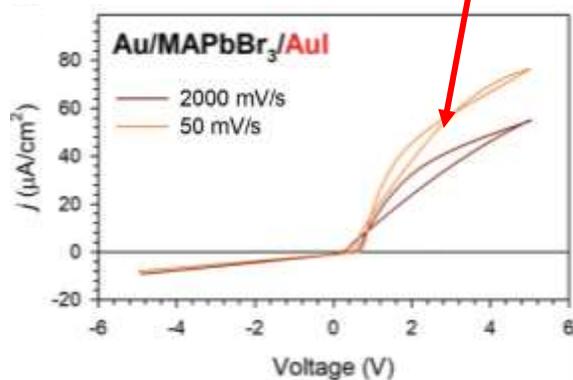
Au/MAPbBr₃反应过程示意图



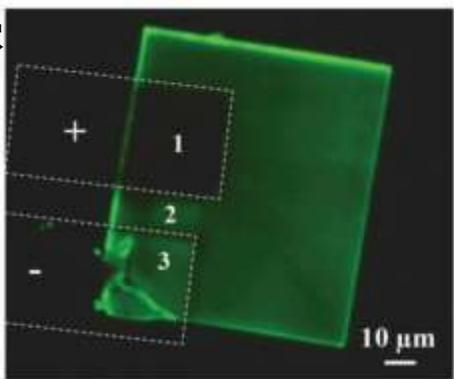
Adv. Mater. 2019, 31, 1902618

接触改变, 电流增大

J-V曲线

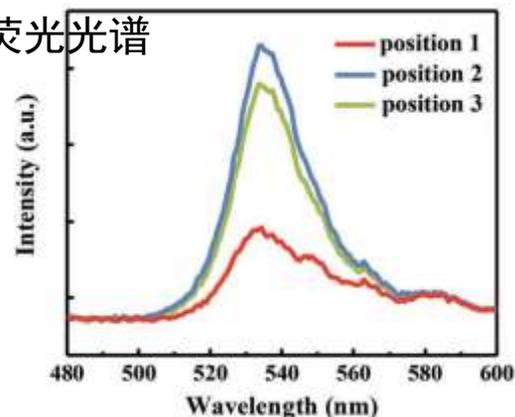


荧光图像



阳极接触区域发生明显荧光猝灭

荧光光谱

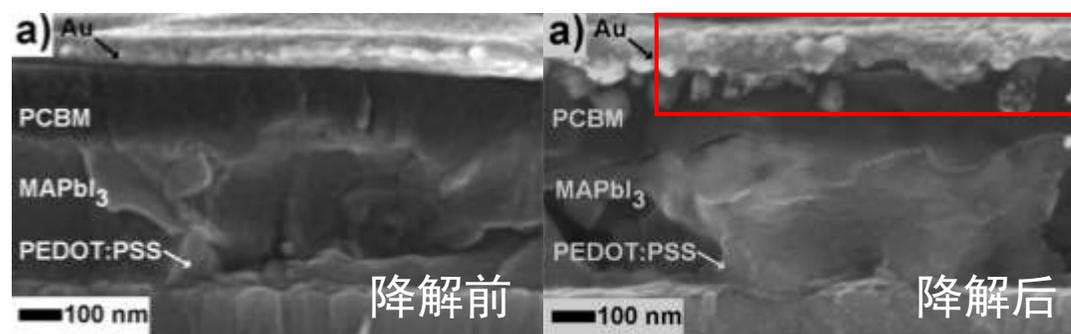


钙钛矿核辐射探测器电极接触

钙钛矿太阳能电池的界面降解

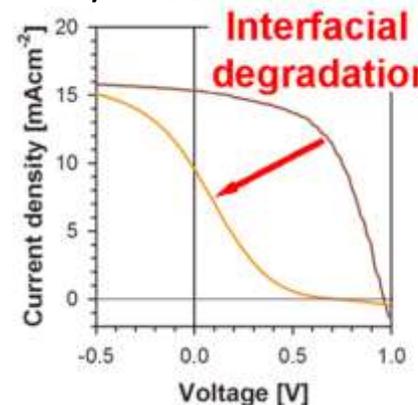
ACS Nano 2016, 10, 218-224

界面降解前后器件截面形貌



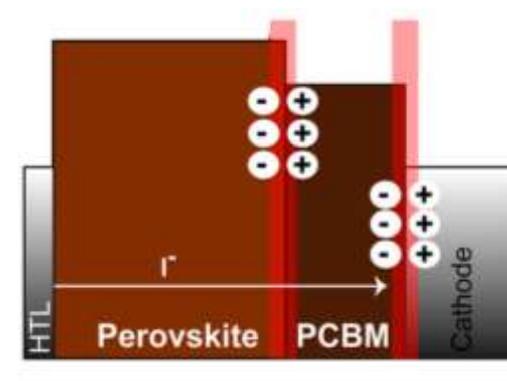
Au电极形貌变化

1 kW/m²光照下的J-V曲线



界面降解后出现“S”形曲线, 降低器件效率

反应过程示意图



探测性能及稳定性

目录

OUTLINES

01

研究背景

02

研究内容

- 肖特基接触CsPbBr₃探测器
- LiF中间层CsPbBr₃探测器

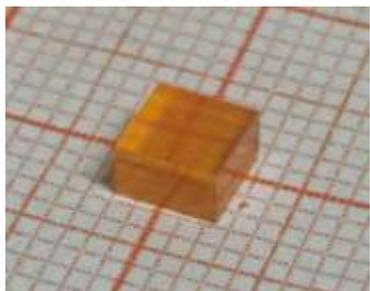
03

主要结论

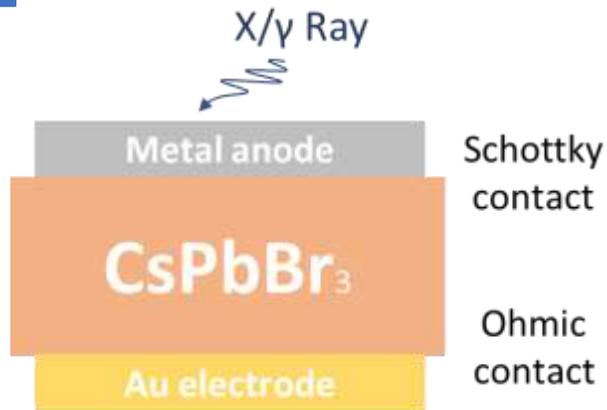


研究内容——肖特基接触CsPbBr₃器件

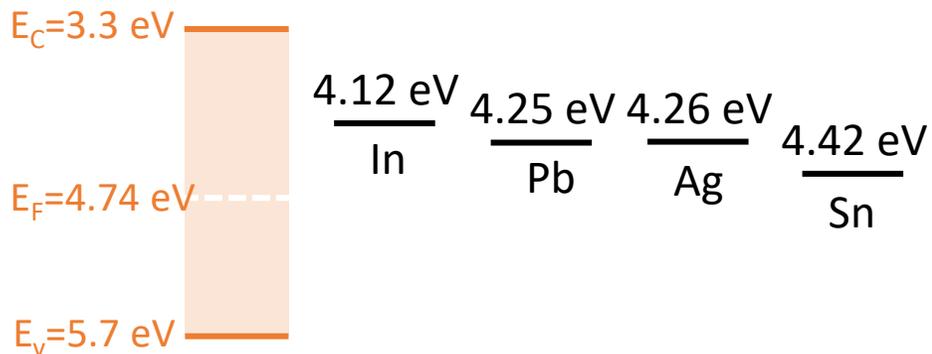
肖特基接触器件结构



ITC法生长的CsPbBr₃ (CPB) 单晶体



Vacuum level



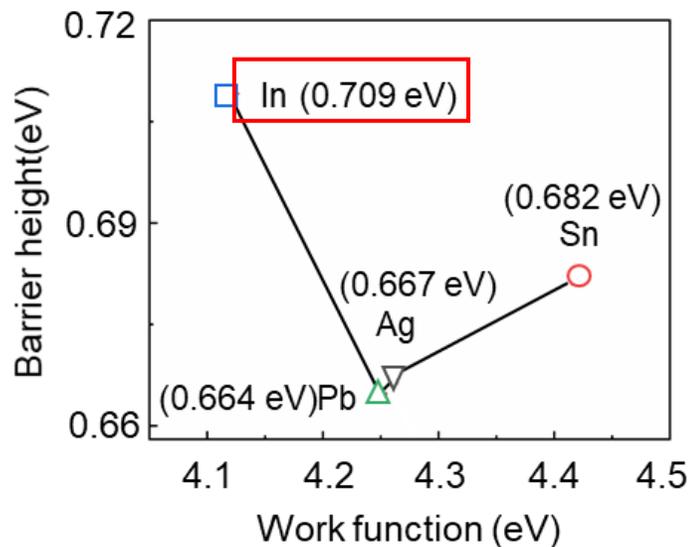
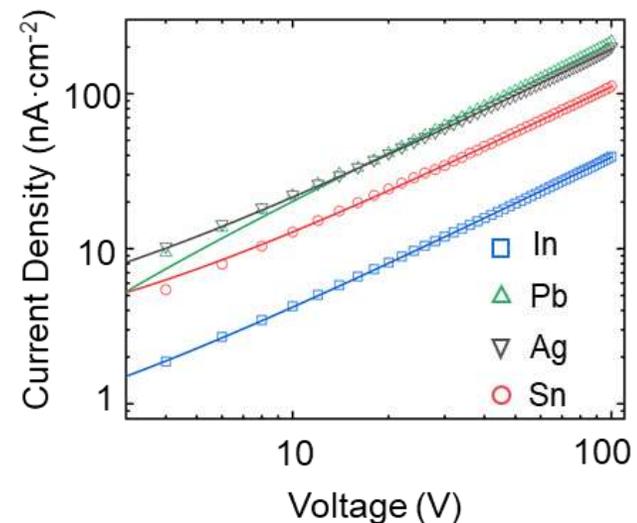
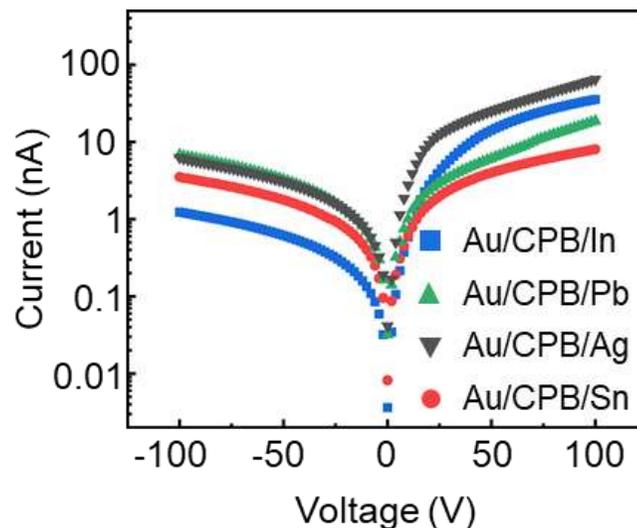
CsPbBr₃

低功函数金属

I-V 特性&势垒高度

扩散模型:

$$J = \frac{q^2 \mu N_c N_i}{\varepsilon} \left[\frac{\varepsilon}{q N_i d} (V + V_{in}) + \frac{d}{2} \right] (1 - e^{-q\phi_b / kT})$$

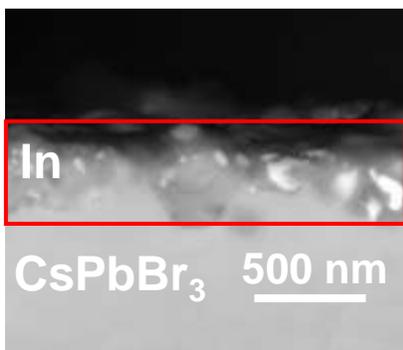


- 四种肖特基接触器件均具有典型的结型特征
- In电极器件势垒高度最大, 漏电流低至-1.23 nA (-100 V)

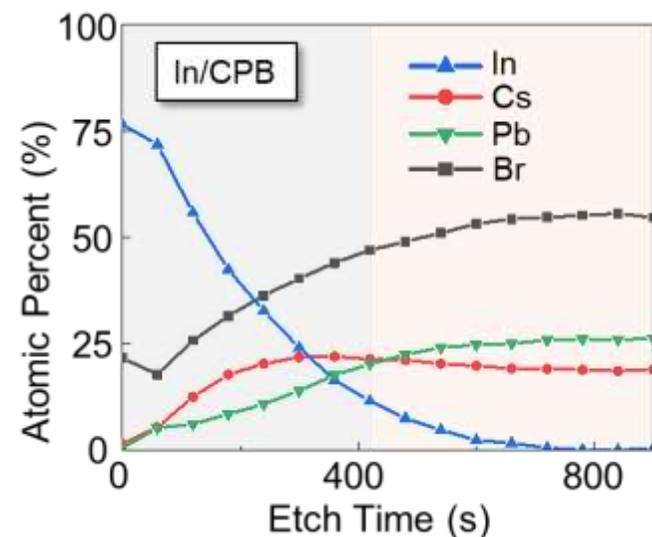
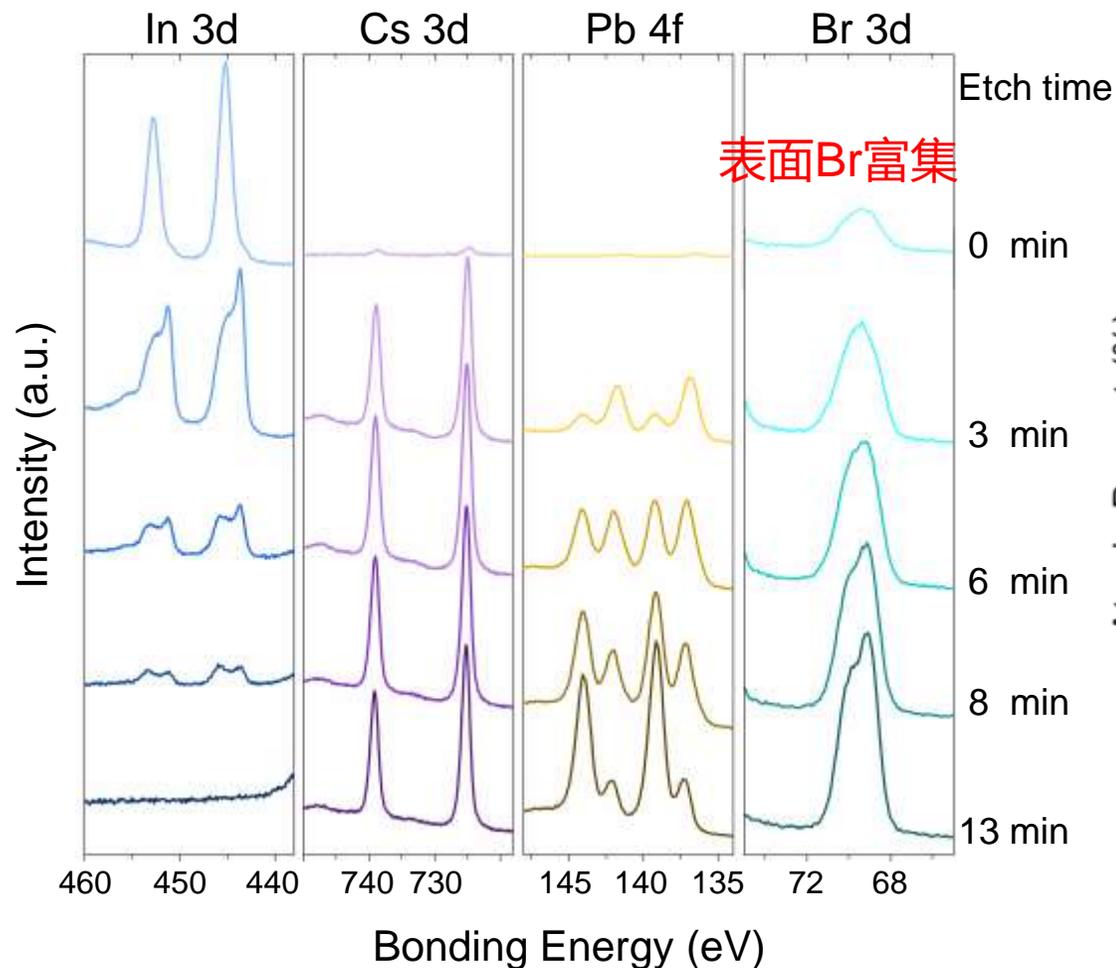


研究内容——In/CsPbBr₃接触界面反应

In/CsPbBr₃界面元素分布



In/CsPbBr₃界面形貌

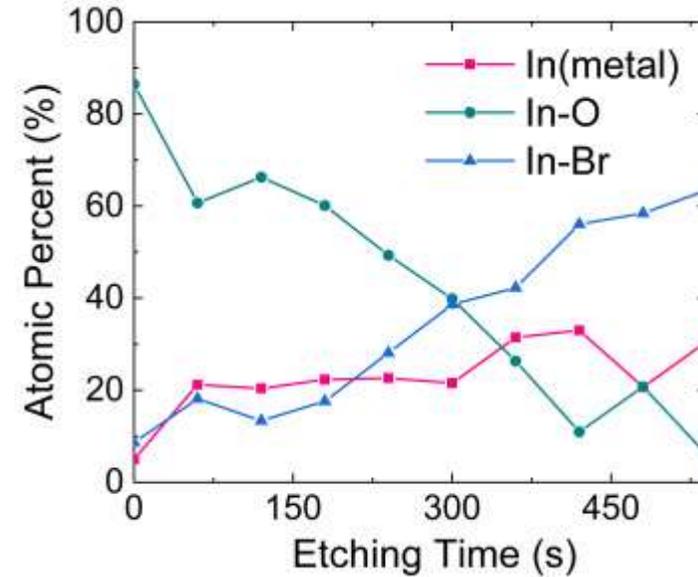
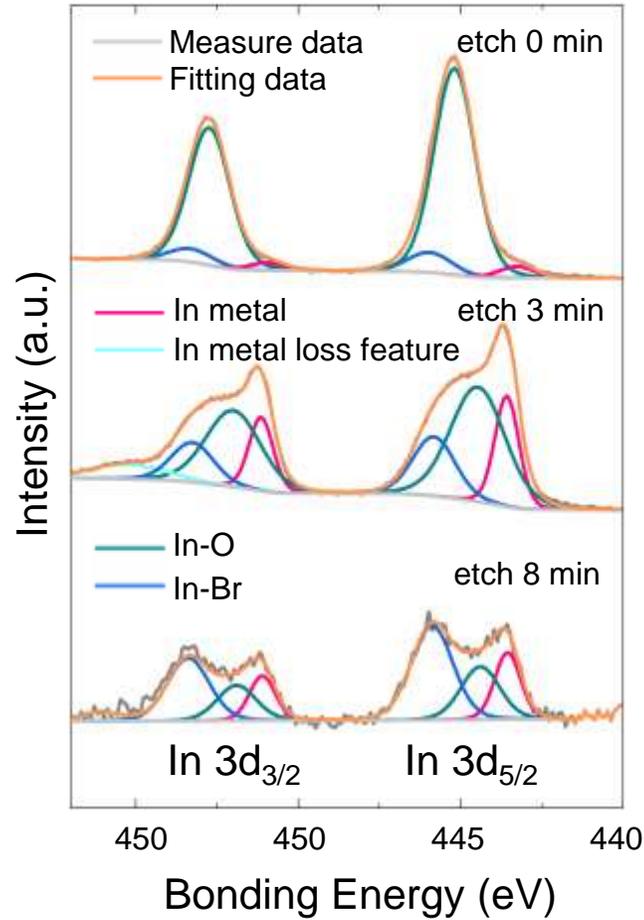


In元素扩散

➢ In电极不光滑，界面不清晰，电极表面出现Br元素富集，In元素向晶体内部扩散。



In电极化学态



➤ In- CsPbBr₃界面, 存在In-Br键, 且占比随刻蚀深度增大, 因此In- CsPbBr₃接触存在界面反应, 引起界面降解。

目录

OUTLINES

01

研究背景

02

研究内容

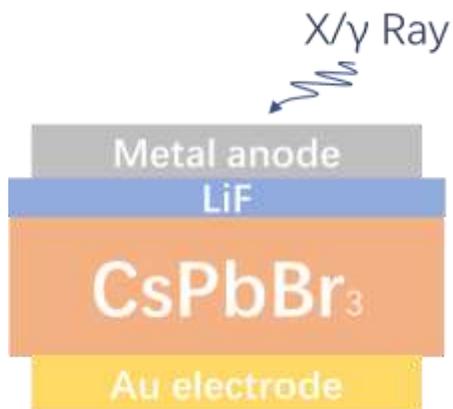
- 肖特基接触CsPbBr₃探测器
- LiF中间层CsPbBr₃探测器

03

主要结论



◆ MIS器件结构



- 阳极金属: In
- LiF制备方法: 真空蒸镀
- LiF厚度: 14~55 nm

LiF中间层

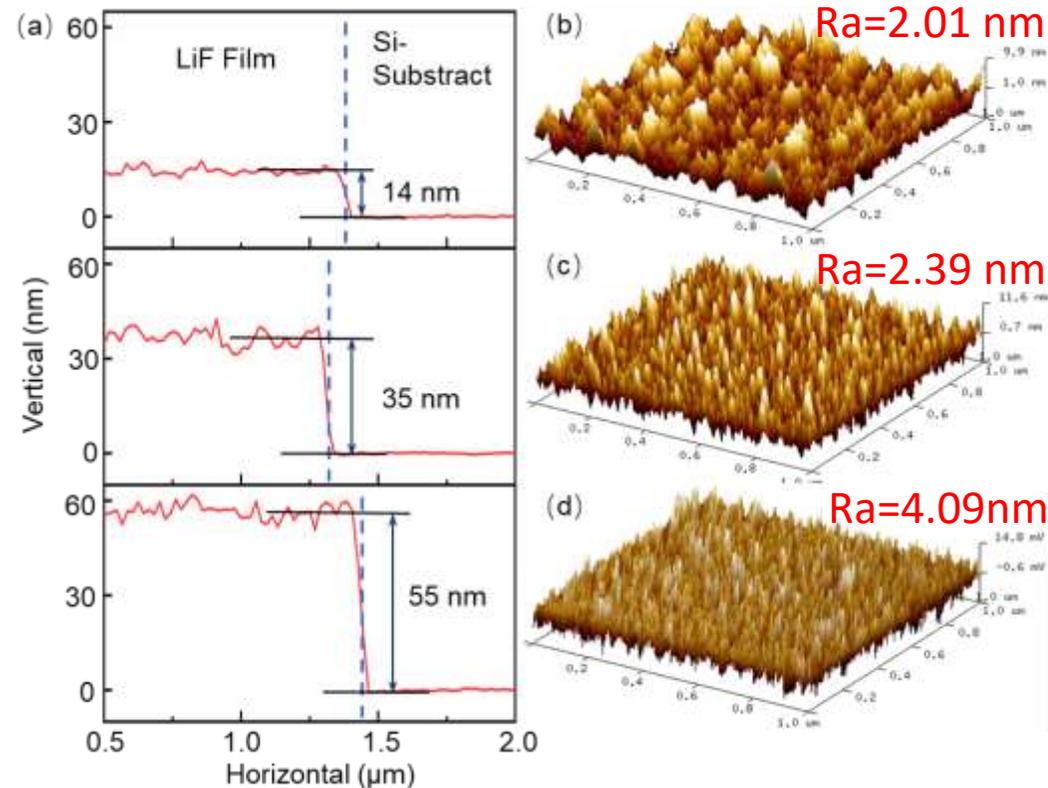
保护性: 蒸发温度低→保护半导体材料的表面

阻止金属向半导体发生扩散以及金属与半导体之间的化学反应

修饰性: 偶极矩→真空能级的偏移→改变肖特基接触的势垒高度

LiF厚度

AFM测试

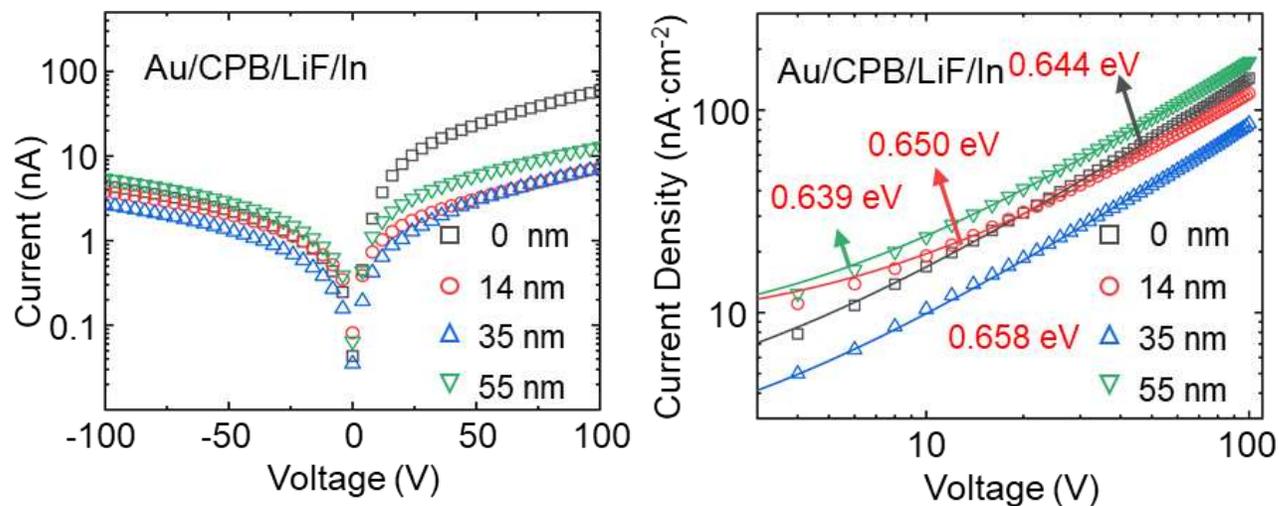


LiF薄膜厚度↑

- 整体分布相对均匀
- 表面粗糙度↑
- 岛状结构逐渐密集, 截面积减小且高度增加



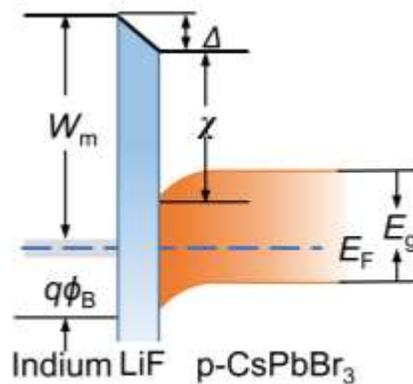
◆ I-V 特性&势垒高度



- 反偏下漏电流呈现先减小后增大的趋势
- 势垒高度先增大后的减小, 35 nm → 0.658 eV
- 35 nm时, -100 V下漏电流降低了40.3%

◆ 势垒高度调制机制

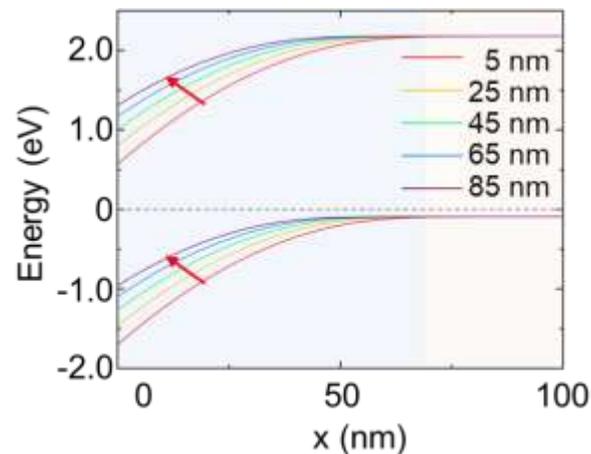
能带结构示意



- LiF中间层厚度↑, 有效势垒高度↑

- ✓ 真空能级偏移引起附加势垒
- ✓ 中间层引起附加电阻

COMSOL仿真



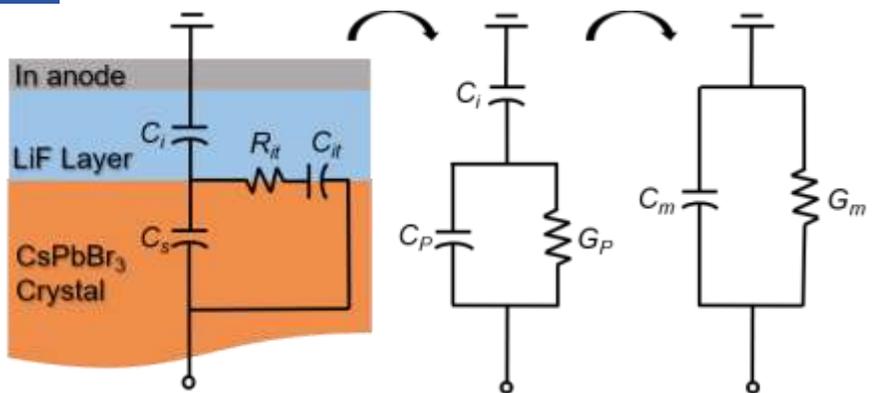
- LiF中间层厚度↑
半导体表面的能带弯曲程度↓, 接触势垒高度↓

LiF厚度的增加使金属与半导体之间的作用减弱, 导致了势垒高度的下降



◆ 界面缺陷态密度

电导法



$$\frac{G_p}{\omega} = \frac{\omega G_m C_i^2}{G_m^2 + \omega^2 (C_{it} - C_m)^2}$$

界面缺陷态密度:

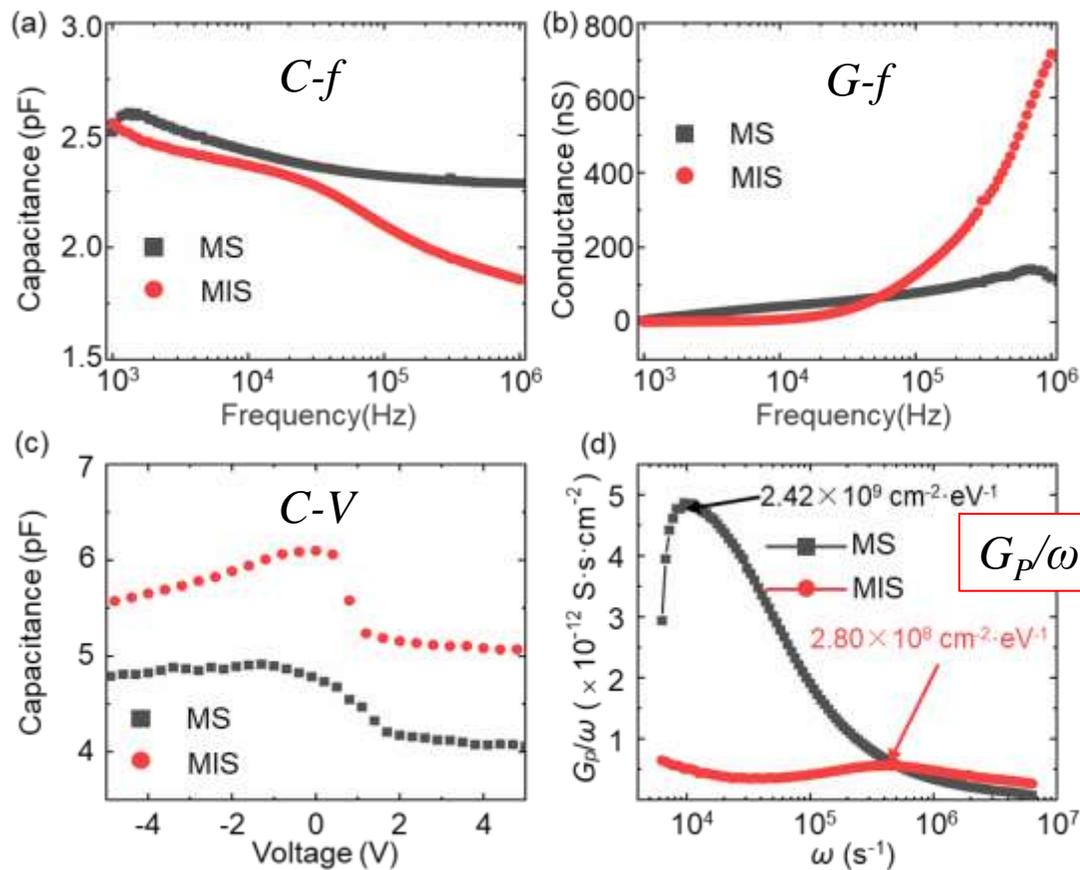
$$D_{it} = \frac{2.5}{q} \left(\frac{G_p}{\omega} \right)_{\max}$$

$$\frac{G_p}{\omega} = \frac{C_{it} \omega \tau_{it}}{1 + \omega^2 \tau_{it}^2}$$

界面陷阱寿命: $\tau_{it} = 1 / \omega$

$$D_{it} = C_{it} / q^2$$

对应缺陷能级大小

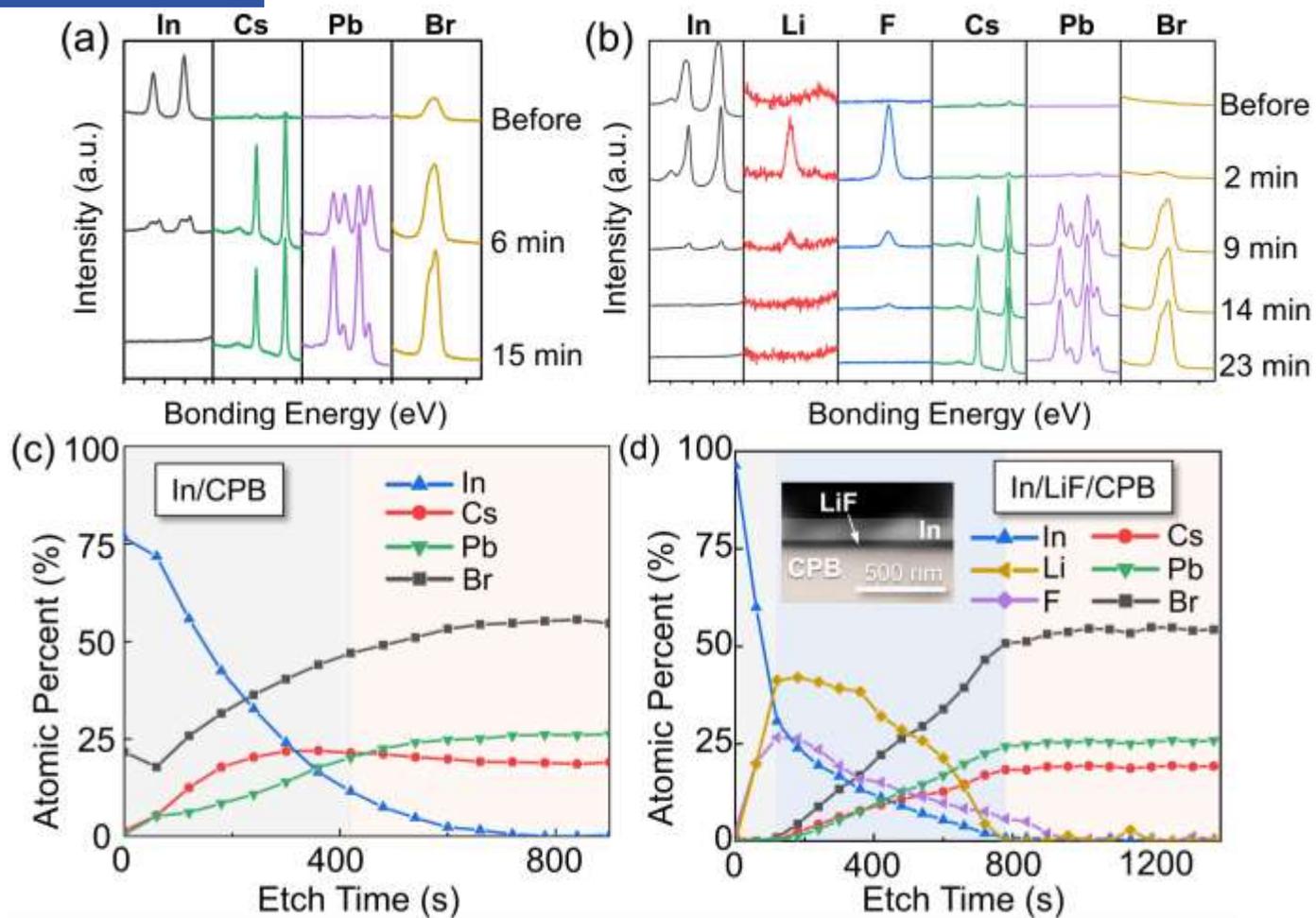


- 界面态密度下降了88.5%
- G_p/ω 的最大值右移→界面陷阱寿命减小→浅能级缺陷

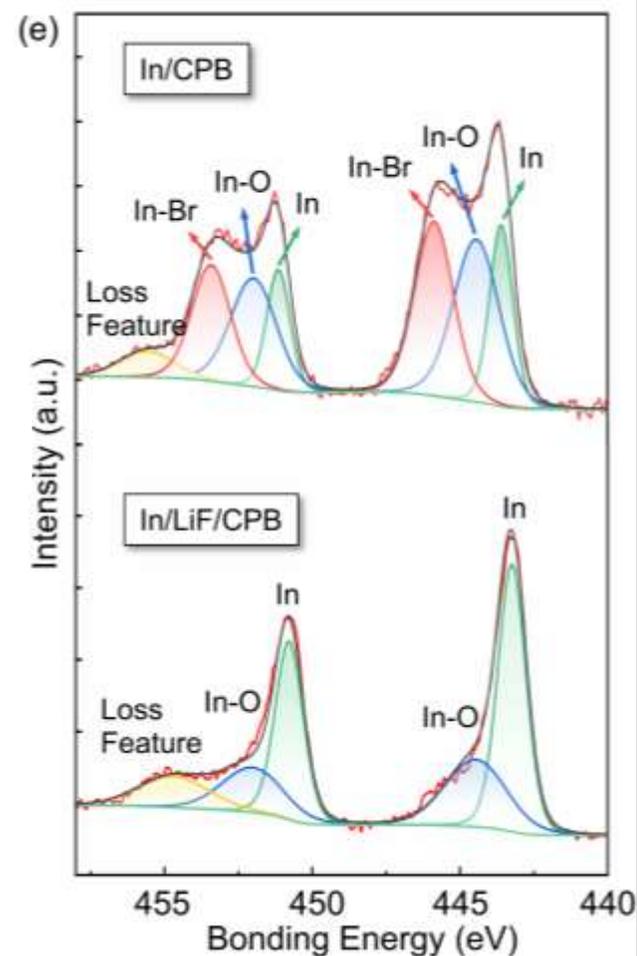


研究内容——LiF中间层CsPbBr₃器件界面分析

XPS深度分析



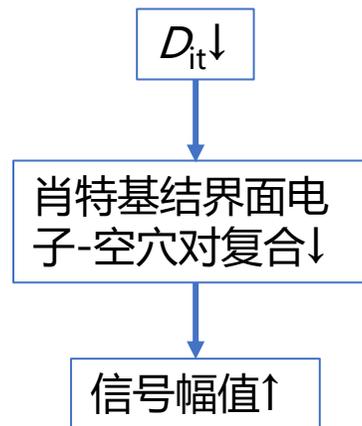
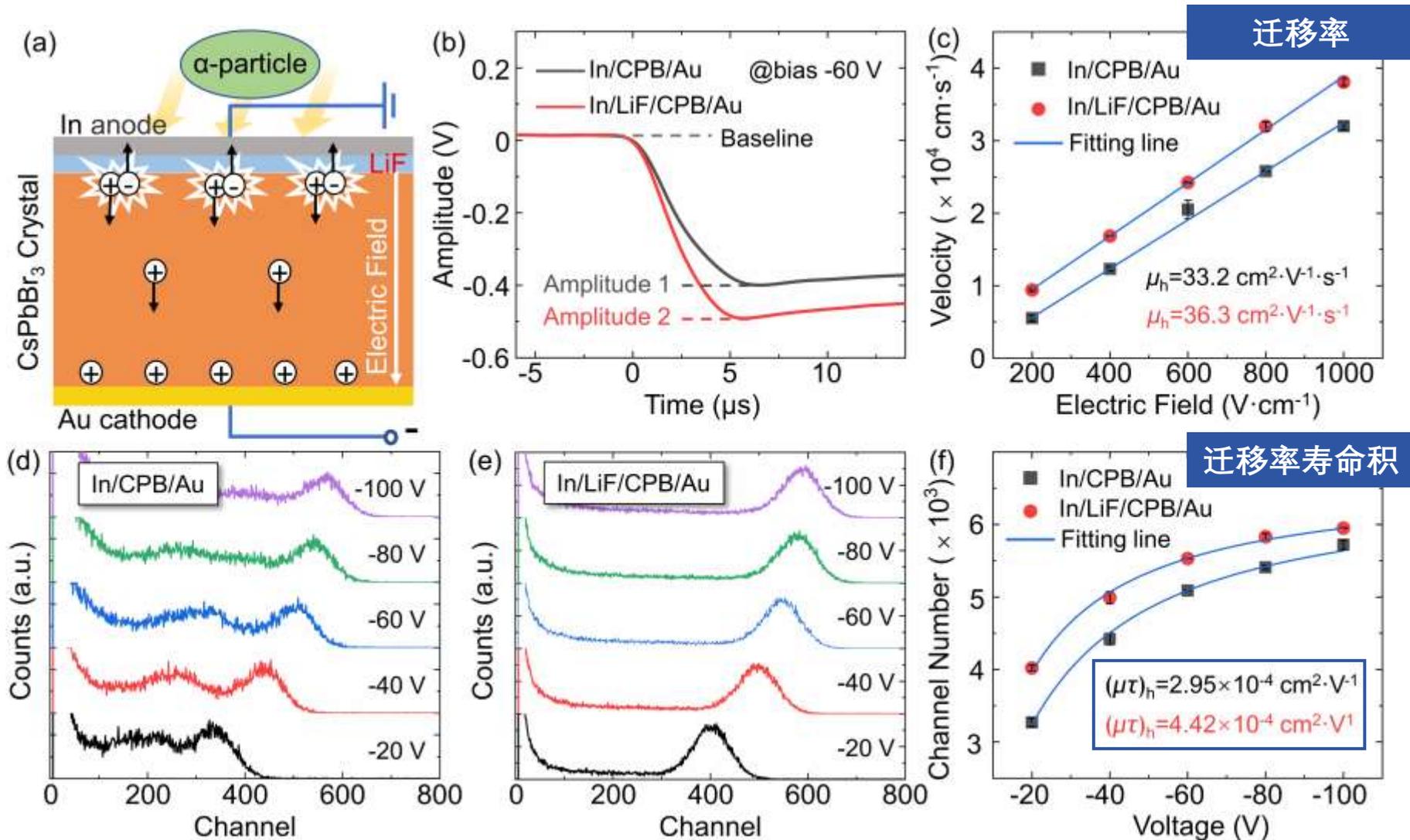
In元素价态分析



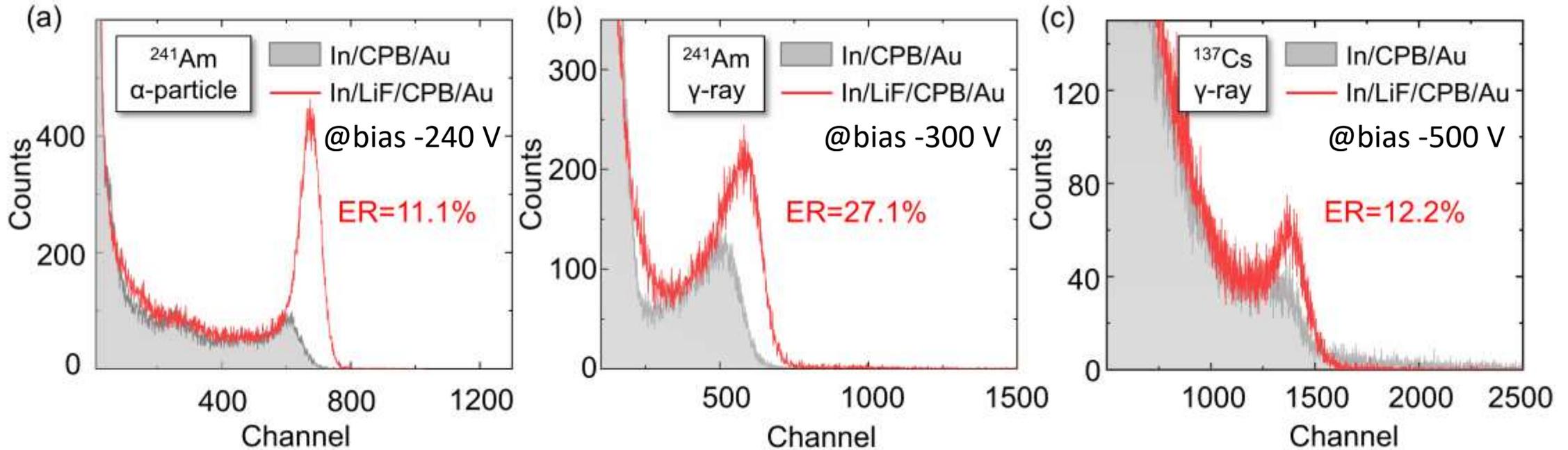
- In/LiF/CPB: In元素向LiF层发生了明显的扩散但未到达CsPbBr₃晶体表面, LiF中间层可以有效抑制电极与晶体之间的化学反应。



◆ α 粒子响应



- 空穴载流子的迁移率接近
- 迁移率寿命积的增加是界面缺陷对载流子复合减少的宏观表现



- 肖特基势垒的增强抑制器件的漏电流，降低了探测器的因漏电流起伏而引起的器件噪声，在能谱图中表现为峰谷比的提高
- 界面缺陷态密度降低，减少了载流子的复合和俘获所造成的电荷损失，使电荷收集效率提高，表现为全能峰道址的增大和计数率的提高

Published: "Investigation of LiF Interlayer on Charge Collection Efficiency and Leakage Current in CsPbBr_3 Radiation Detector," in IEEE Transactions on Electron Devices, vol. 69, no. 12, pp. 6837-6842, Dec. 2022

目录

OUTLINES

01

研究背景

02

研究内容

- 肖特基接触CsPbBr₃探测器
- LiF中间层CsPbBr₃探测器

03

主要结论



- ① 对比了 In、Pb、Ag、Sn 四种金属阳极的肖特基结型 CsPbBr₃ 器件，分析了金属 In 与 CsPbBr₃ 晶体的化学反应；
- ② 提出了一种通过引入 LiF 中间层优化 CsPbBr₃ 探测器肖特基接触界面的方法，证明了 35 nm 厚度的 LiF 中间层能够阻止金属 In 与 CsPbBr₃ 晶体的扩散和化学反应，器件的界面缺陷态密度降低，且有效的提高了势垒高度；
- ③ 引入 LiF 中间层优化肖特基接触 CsPbBr₃ 探测器对 ²⁴¹Am @5.48 MeV 的 α 粒子，²⁴¹Am @59.6 keV 的 γ 射线和 ¹³⁷Cs @662 keV 的 γ 射线能量分辨率得到了显著提高，强调了电极接触界面反应对钙钛矿核辐射探测性能的影响，后续对钙钛矿非反应性接触的研究有望进一步提高其在核辐射探测领域实际应用的可能性。

第三届半导体辐射探测器研讨会

11-14 May 2023 安徽·巢湖



西北工业大学
NORTHWESTERN POLYTECHNICAL UNIVERSITY



辐射探测材料与器件工业和信息化部重点实验室

Thanks!

