

金刚石膜 α 粒子探测器的电学性能研究*

王林军[†] 刘健敏 苏青峰 史伟民 夏义本

(上海大学材料科学与工程学院, 上海 200072)

(2005 年 7 月 5 日收到, 2005 年 11 月 2 日收到修改稿)

从外加偏压、预辐照处理等方面对三明治结构金刚石膜探测器在 α 粒子辐照下的电学性能进行了研究. 电流-电压特性和脉冲高度分布测试和分析表明, 金刚石膜探测器在能量为 5.5 MeV 的 ^{241}Am α 粒子辐照一定时间后, 其暗电流有所增加. 探测器顶电极施加负偏压时, 在 α 粒子辐照下得到的净电流和信噪比均较大. Raman 光谱测试表明, 造成上述现象的原因很可能是金刚石膜厚度方向的不均匀性分布. 负偏压下探测器对 α 粒子的能量分辨率为 25.0%, 优于正偏压下的能量分辨率(38.4%). 随着 α 粒子辐照时间的延长, 探测器的净电流和电荷收集效率均有明显增加.

关键词: 金刚石薄膜, 辐射探测器, 电学性能, 脉冲高度分布

PACC: 7360, 2970, 8115H

1. 引 言

金刚石具有独特的优异性能^[1-5], 如高的抗辐照强度, 快的载流子迁移率, 可于高温下正常工作, 具有与人体组织等效的原子序数(6)和最佳的热导率($20 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$), 由此带动了人造金刚石膜(尤其是 CVD 金刚石膜)在辐射探测领域中的应用研究^[6-8]. CVD 金刚石正在发展应用于下一代适合于恶劣环境下工作的新型辐射探测器^[9, 10]. 1994 年起欧洲核子研究中心(CERN)投入巨资实施了由多国专家参加的 RD42 研究计划进行金刚石膜粒子探测器的研究, CERN 最新研究表明, 即使在 4×10^{14} 中子/ cm^2 , 6×10^{14} 介子/ cm^2 和 10^6 Gy 的电子和光子如此高通量剂量下, 金刚石的电学性能也不会降低.

研究表明, 金刚石膜粒子探测器的电荷收集效率、灵敏度等性能参数强烈依赖于金刚石薄膜的质量^[11-13]. 多晶金刚石薄膜中存在的缺陷作为载流子的俘获与复合中心是影响探测器电学性能的主要因素, 并认为通过增大晶粒尺寸、增加薄膜厚度、采用 [100] 定向生长薄膜等方法可一定程度上改善金刚石膜探测器的性能^[14]. 本工作则在采用 [100] 定向、大晶粒金刚石薄膜的基础上, 从探测器外加偏压极

性、预辐照处理等方面对探测器在 α 粒子辐照下的电学性能进行了研究, 试图建立外部工作条件、金刚石薄膜质量与探测器性能之间的关系, 为获得高性能 α 粒子探测器提供依据.

2. 实 验

采用热丝辅助化学气相沉积(HFCVD)法在 p 型硅衬底(电阻率为 $4-7 \Omega \cdot \text{cm}$)上制备金刚石膜, 具体的制备工艺和沉积参数见文献 [15]. 为了除去薄膜表面的非金刚石相, 将金刚石膜置于浓硫酸和 50% 硝酸混合液中处理 30 min, 接着再在 500°C 氩气气氛中退火 1 h 除去薄膜表面氢, 以减小探测器的表面漏电流^[7]. 用真空热蒸发法在金刚石膜的生长面制备直径为 1 mm、厚度分别为 50 nm 和 150 nm 的 Cr/Au 复合层作为信号输出端, 硅衬底作为背接触接地以形成三明治结构的金刚石膜探测器. 随后, 探测器在 450°C 氩气气氛中退火 45 min, 以改善电极与金刚石膜的欧姆接触性能.

采用 Keithley 4200-SCS 半导体特性分析系统测量了能量为 5.5 MeV 的 ^{241}Am α 粒子辐照下探测器的电流特性. 信号输出电极通过电荷灵敏前置放大器、线性成形放大器 (gain = 12 k; shaping-time = 3 μs) 及

* 国家自然科学基金(批准号: 60277024, 60577040), 上海应用材料研究与发展基金(批准号: 0404), 上海市纳米专项(批准号: 0452nm051)和上海市重点学科(批准号: T0101)资助的课题.

[†] E-mail: ljwang@staff.shu.edu.cn

多道脉冲分析器等 Ortec 公司组件组成的微机多道谱仪进行数据采集和处理, 以此系统测试并研究探测器的脉冲高度分布和电荷收集效率. 辐射源在室温下置于离探测器 1 cm 处进行测试.

3. 结果与讨论

3.1 探测器的暗电流-电压特性

图 1 给出了由扫描电子显微镜 (SEM) 下观察到的金刚石膜的表面形貌. 生长面的晶粒大小为 $\sim 10 \mu\text{m}$, 且呈明显的 [100] 取向生长. 一般认为 [100] 定向的金刚石膜具有最佳的电学性能和表面平整度, 有利于获得高性能辐射探测器^[16, 17]. 由金刚石膜剖面图可知膜的厚度约为 $20 \mu\text{m}$, 并且可清晰看到薄膜为柱状生长.

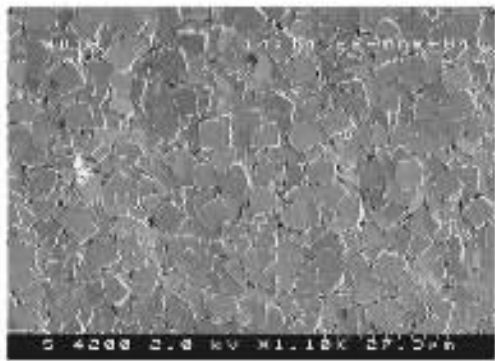


图 1 CVD 金刚石膜生长表面的 SEM 照片

图 2 给出了探测器的暗电流随外加偏压的变化情况. 暗电流在正反向电场下表现为较好的线性对称, 表明金刚石与接触电极直至 $\pm 150\text{V}$ 都具有好的欧姆接触特性, 暗电流在 -100V 电压下只有 3.2nA . 图 2 同时给出了探测器在 ^{241}Am α 粒子辐照 2 h 后测得的暗电流. 很明显, 经过 α 粒子预辐照后, 暗电流略有增加, -100V 偏压下, 暗电流增加到 4.3nA . 由于金刚石薄膜的多晶特性, 晶界中存在各种杂质和缺陷, 移走辐射源后被浅能级陷阱中心俘获的载流子在外加电场作用下将重新释放出来, 从而引入额外电流.

3.2 α 粒子辐照下探测器的响应特性

图 2 同时给出了探测器在 α 粒子辐照下测得的电流随外加偏压的变化情况. 这里的电流为总电流减去暗电流 (以下所称电流为净电流以示区别). 从图中可以看出, 在正负偏压下净电流均随着外加电

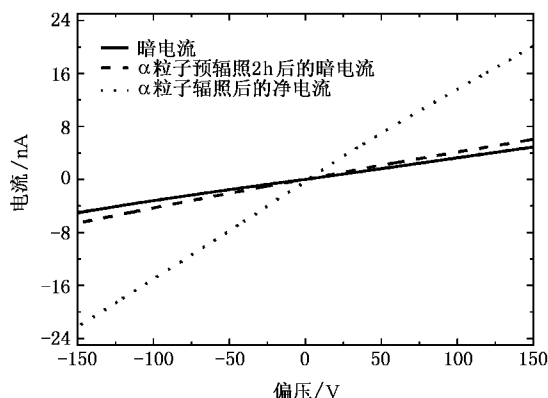


图 2 CVD 金刚石 α 粒子探测器的暗电流和净电流随外加偏压变化曲线

压的增加而增加. 在高达 150V 的偏压条件下表现出线性关系. 探测器在工作时, α 粒子照射下在金刚石中将产生自由载流子 (电子-空穴对), 它们在外加电场作用下, 分别向各自电极迁移, 从而在电极上引起瞬时信号, 其净电流满足表达式^[18]:

$$I_{\text{net}} = q \frac{E_{\text{dep}}}{\epsilon_p} \frac{\mu\tau V}{L}, \quad (1)$$

其中 q 是电子基本电量, ϵ_p 是在金刚石中生成一个电子-空穴对的平均能量 ($\sim 13.2\text{eV}$), $\mu\tau$ 是载流子迁移率-寿命乘积, V 是外加偏压, L 是电极间距即探测器厚度, E_{dep} ($\text{keV} \cdot \text{s}^{-1}$) 是单位时间沉积的能量. 可见, 净电流正比于外加电场. 然而金刚石膜中存在大量晶界, 在高电场强度下晶界对载流子 (尤其是空穴) 具有很强的散射作用, 使 $\mu\tau$ 乘积表现出强烈的电场依赖性, 并由薄膜质量所决定, 受到缺陷浓度的制约. 因此, 在高压条件下净电流随外加电场的变化将偏离线性关系, 特别是当晶界浓度较大, 即晶粒较小时, 这种现象更为明显.

α 粒子入射金刚石膜时容易受到离化、碰撞和散射等各种效应的影响. 如果考虑空气层和电极层对粒子的吸收, 5.5MeV α 粒子在金刚石膜中的射程仅为 $\sim 14\mu\text{m}$ ^[19]. 本文所用的金刚石膜厚度为 $20\mu\text{m}$, α 粒子主要在薄膜近生长面被吸收, 辐射产生的载流子在向背电极迁移过程中会经历较长的距离. 由于未掺杂的金刚石膜呈现弱 p 型导电, 因此对于 α 这种短射程粒子来说, 空穴和电子对输出信号贡献的不同地位显得尤为突出.

定义探测器净电流与暗电流的比值为探测器信噪比 (SNR), 表 1 给出了探测器在施加不同极性偏压 ($\pm 100\text{V}$) 下的电学参数. 可见, 探测器顶电极施

加负偏压时,得到的净电流和信噪比均较大.造成上述现象的原因很可能是金刚石晶粒柱状生长引起的厚度方向的不均匀性.我们对金刚石薄膜的生长面和衬底成核面进行了 Raman 光谱测试(如图 3 所示).可以看出,金刚石膜成核面与生长面分别在 1334cm^{-1} 、 1332cm^{-1} 附近出现尖锐的金刚石拉曼散射峰,但对应于非金刚石相(sp^2 、晶界等缺陷)的 1550cm^{-1} 附近的散射峰强度,成核面明显比生长面要大.表明,相对生长面来说,成核面具有更多的晶界、 sp^2 键、杂质缺陷等非金刚石相.因此,当探测器顶电极施加正偏压时,电子迁移距离较短,很快被收集,而空穴要迁移更长的距离且要经过高陷阱中心浓度的成核面.当探测器顶电极施加负偏压时,空穴只在生长面附近迁移较短的距离就能被收集,受到晶界或陷阱中心的散射和俘获概率大大降低,使器件信噪比较高.同时,我们进一步的实验发现,金刚石晶粒越大,探测器信噪比越高,归功于薄膜中含有越少的晶界和缺陷.

表 1 金刚石膜探测器在 $\pm 100\text{V}$ 时的暗电流和净电流值

	+ 100V	- 100V
暗电流/nA	3.3	- 3.2
净电流/nA	13.6	- 15.0
信噪比 SNR	4.121	4.688

在 $\pm 100\text{V}$ 偏压下,采用微机多道谱仪测量了探测器对 $5.5\text{MeV }^{241}\text{Am } \alpha$ 粒子的脉冲高度分布 (PHD) 谱,如图 4 所示.实际测量时间 600s ,偏压加在探测器背电极,顶电极接地连接到电荷灵敏前置放大器组成的微机多道谱仪进行信号输出.两个脉冲高度谱都显示了一个很明显的 $5.5\text{MeV } \alpha$ 粒子能量峰,并且脉冲高度峰明显地从底部噪声中分离,表明器件具有较高的信噪比.偏压极性对 α 粒子探测器性能的影响明显,负偏压下具有更高的 PHD 峰,这主要是由于 α 粒子在金刚石薄膜中较短的射程引起的,离化主要发生在薄膜生长面,载流子在外电场作用下需要迁移较大的距离,因此电子和空穴不同地位的显现更加明显.探测器能量分辨率 ϵ 定义为半高宽 (FWHM ΔE) 与全能峰的比值,即 $\epsilon = \Delta E/E$.利用 MAESTRO-32 数据处理软件对谱线进行寻峰,探测器在 100V 和 -100V 偏压下,能量分辨率分别为 38.4% 和 25.0% .探测器施加负偏压时,主要输出电子电流信号,晶界等缺陷对电子比空穴的散射作用小,因此探测器信号损失小,能量分辨率好.

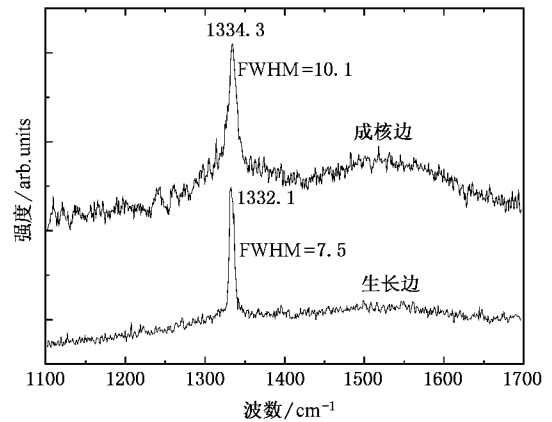


图 3 金刚石薄膜生长面和成核面的 Raman 光谱

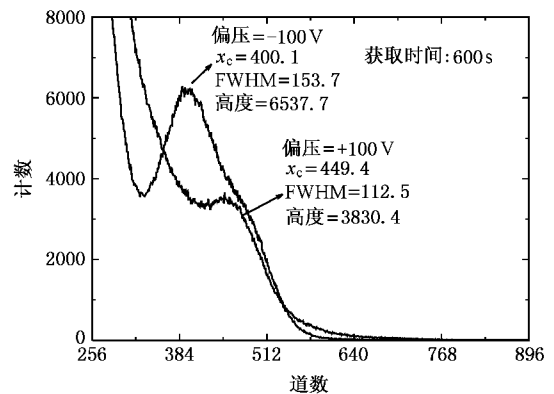


图 4 金刚石膜探测器的脉冲高度分布谱

3.3 α 粒子预辐照时间对探测器性能的影响

为了深入研究陷阱中心对载流子的俘获效应,我们测试了金刚石膜探测器顶电极施加 -100V 偏压时净电流随 α 粒子辐照时间在 30min 内的演化过程(如图 5 所示).发现随着辐照时间的变化,净电流逐渐增大.一般来说,多晶金刚石膜的晶界处存在各种缺陷和杂质,引入的陷阱中心会俘获载流子,从而引起极化效应.辐照开始初期,大量的陷阱中心不断地被载流子填充而减少,致使净电流随着辐照时间的增加而不断增大.一段时间后,被俘获的载流子数与释放的载流子数将达到动态平衡,此时光电流最终趋向饱和.因此,我们可以认为,如果将 CVD 金刚石探测器进行一定时间的预辐照,将明显提高器件稳定性和灵敏度.

图 6 和图 7 分别给出了 CVD 金刚石探测器电荷收集效率谱和平均电荷收集效率随辐照时间的变化情况.测试条件为:探测器背电极加 100V 偏压,数

据获取时间 5s, 测试间隔时间 5min. 随着辐照时间的延长, 电荷收集效率不断提高, 平均电荷收集效率从 19.4% 提高到了 31.4%, 并且一开始平均电荷收集效率增加很快, 接着增速放慢并趋向稳定. 电荷收集效率和净电流随辐照时间的变化趋势相一致, 主要是由于随着辐照时间的变化, 陷阱中心不断地被载流子填充而减少, 致使收集的电荷数不断增多. 因此, 在探测器工作前, 为了获得高的探测效率和灵敏度及稳定的探测性能, 可以对探测器进行合适的预辐照.

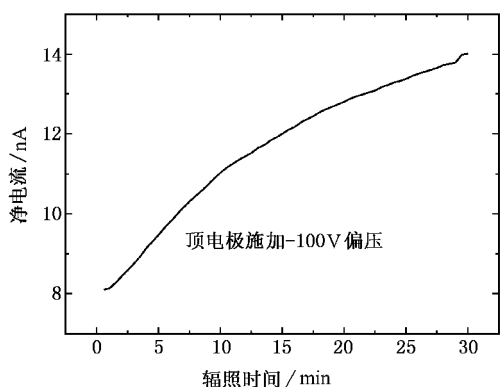


图 5 探测器净电流随辐照时间的变化情况

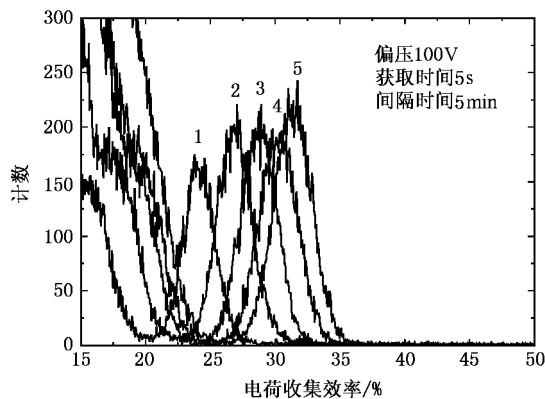


图 6 探测器电荷收集效率随辐照时间的变化情况. 曲线 1: 5min; 曲线 2: 10min; 曲线 3: 15min; 曲线 4: 20min; 曲线 5: 25min

另外, 人们对高能粒子探测的兴趣主要因为在探测器中所沉积的能量与材料厚度成正比, 然而对于短程入射粒子 (如 α 粒子) 来说, 能量是沉积在材料表面十几 μm 处, 因此为了提高探测器的电荷收

集效率应该尽量降低金刚石层厚度. 同时, 薄的金刚石层也可减小材料性质的不均匀性, 但为使 5.5 MeV α 粒子的能量能够全部沉积在探测器内, 就必须使薄膜厚度 $\geq 15\mu\text{m}$.

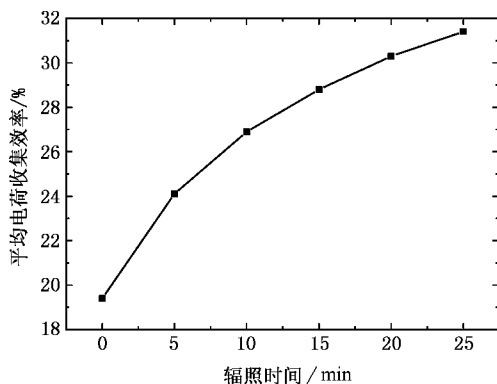


图 7 探测器平均电荷收集效率随辐照时间的变化曲线

4. 结 论

[100] 定向金刚石膜探测器在能量为 5.5 MeV 的 ^{241}Am α 粒子辐照一定时间后, 其暗电流有所增加, 归功于多晶金刚石薄膜中浅能级陷阱中心俘获的载流子在外加电场作用下重新释放的过程.

电流-电压特性测试表明, 探测器顶电极施加负偏压时, 在 α 粒子辐照下得到的净电流和信噪比均较大. Raman 光谱测试表明, 造成上述现象的原因很可能是金刚石晶粒柱状生长引起的厚度方向的不均匀性分布. 相对金刚石膜生长面来说, 成核面具有更多的晶界、 sp^2 键、杂质缺陷等非金刚石相. 脉冲高度分布谱测试表明, 负偏压下探测器对 α 粒子的能量分辨率为 25.0%, 优于正偏压下的能量分辨率 (38.4%).

同时, 电流-电压特性和脉冲高度分布谱测试表明, CVD 金刚石探测器随着 α 粒子辐照时间的延长, 探测器的净电流和电荷收集效率均有明显的增加, 30min 的预辐照可以使探测器的平均电荷收集效率从 19.4% 提高到 31.4%, 归功于金刚石膜中陷阱中心上载流子的俘获与释放的动态过程. 表明, 在探测器工作前, 为了获得高的探测效率、灵敏度及稳定性, 可以对探测器进行合适的预辐照.

- [1] Shen H J , Wang L J , Fang Z J , Zhang M L , Yang Y , Wang L , Xia Y B 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2009 (in Chinese) [沈沪江、王林军、方志军、张明龙、杨莹、汪琳、夏义本 2004 物理学报 **53** 2009]
- [2] Li J J , Wu H H , Long B Y , Lü X Y , Hu C Q , Jin Z S 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1447 (in Chinese) [李俊杰、吴汉华、龙北玉、吕宪义、胡超权、金曾孙 2005 物理学报 **54** 1447]
- [3] Ma B X , Yang S E , Yao N , Zhang B L , Fan Z Q , Lu Z L 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2287 (in Chinese) [马丙现、杨仕娥、姚宁、张兵临、樊志勤、鲁占灵 2004 物理学报 **53** 2287]
- [4] Wang Z J , Dong L F , Shang Y 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 880 (in Chinese) [王志军、董丽芳、尚勇 2005 物理学报 **54** 880]
- [5] Dong L F , Ma B Q , Wang Z J 2004 *Chin. Phys.* **13** 1597
- [6] Vatnitsk Y S , Jaervinen H 1993 *Phys. Med. Biol.* **38** 173
- [7] Wang L J , Xia Y B , Shen H J , Zhang M L , Yang Y , Wang L 2003 *J. Phys. D : Appl. Phys.* **36** 2548
- [8] Lou Y Y , Wang L J , Zhang M L , Gu B B , Su Q F , Xia Y B 2005 *Chinese Journal of Semiconductors* **26** 53 (in Chinese) [楼燕燕、王林军、张明龙、顾蓓蓓、苏青峰、夏义本 2005 半导体学报 **26** 53]
- [9] Keil M , Adam W , Berdemann E , Bergonzo P , de Boer W , Bogani F , Borchi E , Brambilla A 2003 *Nucl. Instr. Meth. A* **501** 153
- [10] Foulon F , Bergonzo P , Amosov V N , Kaschuck Yu , Frunze V , Tromson D , Brambilla A 2002 *Nucl. Instr. Meth. A* **476** 495
- [11] Jany C , Tardieu A , Gicquel A , Bergonzo P , Foulon F 2000 *Diam. Relat. Mater.* **9** 1086
- [12] Marinelli Macro , Milani E , Paoletti A , Tucciarone A , Verona Rinati G , Angelone M 2001 *Diam. Relat. Mater.* **10** 645
- [13] Marinelli Marco , Milani E , Paoletti A , Tucciarone A , Verona Rinati G , Angelone M , Pillon M 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 1430
- [14] Achard J , Tardieu A , Kanaev A , Gicquel A , Castex M C , Yokota Y , Hayashi K , Tachibana T 2002 *Diam. Relat. Mater.* **11** 423
- [15] Zhang M L , Xia Y B , Wang L J , Gu B B , Su Q F , Lou Y Y 2004 *J. Crystal Growth* **274** 21
- [16] Wang L J , Xia Y B , Ju J H , Zhang W G 2000 *Diam. Relat. Mater.* **9** 1617
- [17] Bergonzo P , Brambilla A , Tromson D , Mer C , Guizard B , Foulon F and Amosov V 2001 *Diam. Relat. Mater.* **10** 631
- [18] Salvatori S , Rossi M C , Galluzzi F , Pace E 1997 *Diam. Relat. Mater.* **6** 361
- [19] Bergonzo P , Brambilla A , Tromson D , Mer C , Guizard B , Marshall R D , Foulon F 2002 *Nucl. Instr. Meth. A* **476** 694

Electrical properties of alpha-particle detectors based on CVD diamond films^{*}

Wang Lin-Jun[†] Liu Jian-Min Su Qing-Fen Shi Wei-Min Xia Yi-Ben

(School of Materials Science and Engineering , Shanghai 200072 , China)

(Received 5 July 2005 ; revised manuscript received 2 November 2005)

Abstract

The influences of the applied bias voltage and the pre-irradiation treatment by alpha particles on the electrical properties of sandwich structural diamond film detectors under 5.5 MeV ²⁴¹Am alpha-particle irradiation were investigated. Results of current-voltage (*I-V*) and pulse height distribution measurements showed that the dark current of the diamond film detector would increase due to the pre-irradiation by alpha particles. Under the alpha irradiation, the detector under negative bias voltage had a higher response current and a better signal-to-noise ratio than that under a positive bias. Raman scattering studies directly demonstrated that the above phenomenon resulted mainly from the different structural imperfection distributions along the thickness direction. An energy resolution of about 25.0% was obtained for the detector under a negative bias voltage and 38.4% under a positive bias voltage. With increasing alpha-particle irradiation time, both the response current and the charge collection efficiency increased obviously.

Keywords : diamond films , radiation detectors , electrical properties , pulse height distribution

PACC : 7360 , 2970 , 8115H

^{*} Projects supported by National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60277024 , 60577040) the Shanghai Foundation of Applied Materials Research and Development (Grant No. 0404) , the Nano-Technology Projects of Shanghai (Grant No. 0452nm051) and the Key Subject Construction Project (Grant No. T0101) of Shanghai.

[†] E-mail : ljwang@staff.shu.edu.cn