



بیست و پنجمین کنفرانس اپتیک و
فوتونیک ایران و یازدهمین کنفرانس
مهندسی و فناوری فوتونیک ایران،
دانشگاه شیراز،
شیراز، ایران.
۱۱-۹ بهمن ۱۳۹۷



افزاره هیبریدی آلی - معدنی پروسکایتی برای کاربرد بعنوان آشکارساز پرتو ایکس

امین محمدپورفرد^۱، وحید احمدی^{۱*}، فرزانه عربپور رق آبادی^{۲،۱}

^۱ایران، تهران، دانشگاه تربیت مدرس، دانشکده مهندسی برق و الکترونیک، گروه پژوهشی اپتوالکترونیک و نانوفوتونیک

^۲ایران، تهران، دانشگاه تربیت مدرس، دانشکده مهندسی شیمی

*نویسنده مسئول: V_ahmadi@modares.ac.ir

چکیده - آشکارسازهای پرتو ایکس ساخته شده بر پایه سیلیکون کاربرد عمده ای در تشخیص پزشکی دارند. هرچند این فناوری در ازای هزینه ساخت بالا دارای حساسیت قابل قبولی برای مصارف پزشکی نیست. تحرک و طول عمر بزرگ حامل ها در مواد آلی - غیر آلی پروسکایتی و عدد اتمی بزرگ عنصر سرب در ترکیب، این مواد را برای آشکارسازی پرتو ایکس مناسب می کند. در این مقاله ساخت آشکارسازهای پرتو ایکس با ناحیه فعال از جنس متیل آمونیوم تری یدید سرب ($\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$) و استفاده از لایه های پلیمری انتقال دهنده حفره و الکترون بررسی می شوند. عملکرد افزاره ساخته شده تحت پرتو ایکس با انرژی ۳ کیلو الکترون ولت بررسی شد که جریان نانوآمپری در خروجی افزاره مشاهده شد.

کلید واژه- پرتو ایکس، آشکارساز، پروسکایت، متیل آمونیوم یدید سرب، یدید سرب

Organic-Inorganic Hybrid Perovskite Device as an X-ray Detector

Amin Mohammad Pourfard¹, Vahid Ahmadi^{1,*}, Farzaneh Arabpour Roghabadi^{1,2},

¹Optoelectronic and Nanophotonic Research Group, Faculty of Electrical and Computer Engineering, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran.

²Faculty of Chemical Engineering, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran.

*Corresponding author: v_ahmadi@modares.ac.ir

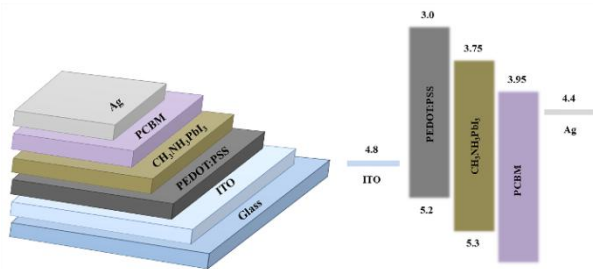
Abstract- X-ray detectors made from crystalline silicon or amorphous are widely used in medical diagnosis. However, this technology does not have acceptable sensitivity for medical purposes due to the high cost of the fabrication. The large charge carrier mobility and charge carrier lifetimes of hybrid perovskite materials and the presence of Pb in the compound as a high atomic number element make them promising candidates for X-ray detection. In this paper, we demonstrate the development of X-ray detectors with an active area of methylammonium lead iodide ($\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$) and polymeric layer of electron and hole transporting layer. The performance of device was measured under 3 KeV x-ray radiation that showed a current in the range of nano ampere.

Keywords: Detectors, Perovskite, Methylammonium lead iodide, Lead iodide

۱ - مقدمه

آشکارسازهای پرتو ایکس حساس و ارزان قیمت در زمینه-های امنیتی، دفاعی، عکسبرداری پزشکی، نیروگاه‌های هسته‌ای و تحقیقات علمی کاربرد وسیعی دارند. در همه این کاربردها حساسیت بالا دارای اهمیت زیادی است [۱]. نیاز عمده برای آشکارسازهای پرتو ایکس در زمینه پرتونگاری پزشکی بوجود آمده که آشکارسازهای نقطه آرایه‌ای بر پایه نیمه رساناهای حالت جامد هستند که در حال پیشرفتند و جایگزین فیلم‌های پرتونگاری شده‌اند [۲]. عملکرد آشکارسازهای پرتو ایکس مشابه آشکارسازهای نور مرئی است، با توجه به قابلیت نفوذ بالای فوتون‌های پرتو ایکس ضخامت بیشتری از لایه فعال لازم است تا پرتو ایکس را متوقف کند و بارهای الکتریکی در داخل ضخامت نیمه رسانا تولید شوند. برای جمع‌آوری این بارها به تحرک (μ) بزرگ و نیمه عمر (τ) بالای حامل‌های الکتریکی تولید شده نیاز است [۱]. برای آشکارسازی پرتو ایکس تنها خواص مواد نیمه‌رسانای ناحیه فعال مهم نیستند بلکه ماهیت اجزای اتمی تشکیل دهنده آن اهمیت زیادی دارد [۲]. به این دلیل که جذب پرتو ایکس با عدد اتمی (Z) به صورت $\alpha \propto Z^4/AE^3$ رابطه دارد که در آن A جرم اتمی و E انرژی فوتون پرتو ایکس است [۱ و ۲]. اخیراً با معرفی مواد آلی- غیر آلی موسوم به پروسکایت که دارای خواص اپتوالکترونیک خوبی برای سلول‌های خورشیدی، آشکارسازهای نوری، دیودهای نورگسیل و لیزرها بوده است، احتمال آنکه نیمه‌رسانای مناسبی برای ساخت آشکارسازهای پرتو ایکس باشند بوجود آمد. این مواد خواص ذاتی بسیاری برای آشکارسازی پرتو ایکس دارند، از جمله شکاف انرژی (E_g) بزرگ حدود ۱٫۶-۳٫۰ الکترون‌ولت که نوفه گرمایی را کاهش می‌دهد، تحرک و

طول عمر بزرگ ($\mu\tau$) حامل‌های تولید شده که نتیجه جرم موثر کوچک الکترون و چگالی کم نقص‌ها است، وجود عنصر سرب (Pb) با عدد اتمی بزرگ در ترکیب پروسکایت و چگالی زیاد آن که سبب جذب فوتون‌های پر-انرژی پرتو ایکس (حدود ۱۰ کیلو الکترون‌ولت تا ۱ مگا الکترون‌ولت) است [۳]. استفاده از پروسکایت در ساخت آشکارسازهای پرتو ایکس، اولین بار در سال ۲۰۱۵ گزارش شد که در آن، افزاره با لایه فعال پروسکایتی از جنس متیل آمونیوم تری یدید سرب با ضخامت ۶۰ میکرومتر ساخته شده و تحت پرتو ایکس بررسی شده است [۲]. در سال ۲۰۱۶ افزاره با لایه فعال پروسکایتی از جنس متیل آمونیوم تری برمید سرب تک بلوره ساخته شده و تحت تابش پرتو ایکس بررسی شده است [۱]. با توجه به مشخصات ذاتی مواد پروسکایتی و روش‌های ساخت ارزان قیمت و در دسترس، این مواد گزینه مناسبی برای ساخت آشکارسازهای با حساسیت بالا است [۲].



شکل ۱: طرح کلی و نوار انرژی افزاره پروسکایتی

در اینجا ساخت اولین نمونه آشکارساز پرتو ایکس پروسکایتی را در کشور گزارش می‌کنیم و به بررسی میزان جذب و ضخامت ناحیه فعال می‌پردازیم. در شکل ۱ طرحی کلی از ساختار آشکارساز نشان داده شده است. در ساخت این نمونه از لایه‌های آلی برای انتقال حفره و الکترون و از لایه پروسکایت سنتز شده به روش تک مرحله‌ای از جنس $CH_3NH_3PbI_3$ استفاده شده است.

۲- روش انجام آزمایش

۲ ۱- مواد مورد نیاز

شیشه رسانای (ITO) Indium Tin Oxid، هیدروکلریک اسید، اتانول، ایزوپروپانول، محلول پلیمری PEDOT:PSS، PCBM، دی‌متیل‌فرمامید، پودر متیل‌آمونیم‌یدید، پودر سرب‌یدید.

۲ ۲- روش ساخت

برای ساخت نمونه اولیه آشکارساز اشعه ایکس، با توجه به ساختار مورد نظر ابتدا بخشی از لایه ITO بر روی زیرلایه شیشه ITO را با استفاده از هیدروکلریک اسید در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد به روش شیمیایی لایه‌برداری شد. با استفاده از آب و صابون، آب دیونیزه، ایزوپروپانول به مدت ۱۵ دقیقه در دستگاه التراسونیک زیرلایه‌ها شسته شد و به مدت ۲۰ دقیقه در دمای ۱۰۰ درجه سانتی-گراد قرار گرفت تا خشک شود. برای لایه انتقال‌دهنده حفره (HTL) از محلول پلیمری PEDOT:PSS استفاده شد. این لایه به روش چرخشی و با سرعت چرخش ۳۰۰۰ دور در زمان ۵۰ ثانیه لایه‌نشانی شد. سپس در دمای ۱۱۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۲۰ دقیقه حرارت‌دهی شد. برای لایه ناحیه فعال پروسکایتی، یک محلول ۱ مولار از پودر سرب‌یدید (PbI_2) در حلال دی‌متیل‌فرمامید و یک محلول ۱ مولار از پودر متیل-آمونیم‌یدید (MAI) در حلال دی‌متیل‌فرمامید تهیه شد. سپس این دو محلول با نسبت ۱:۲٫۵ (سرب‌یدید:متیل-آمونیم‌یدید) ترکیب شد و محلول تک مرحله‌ای برای لایه‌نشانی آماده شد. محلول تک مرحله‌ای به روش پاششی (اسپری) لایه‌نشانی شد. عملیات حرارتی این لایه در دمای ۹۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۳۰ دقیقه انجام شد. لایه عبور دهنده الکترون (ETL) با استفاده از

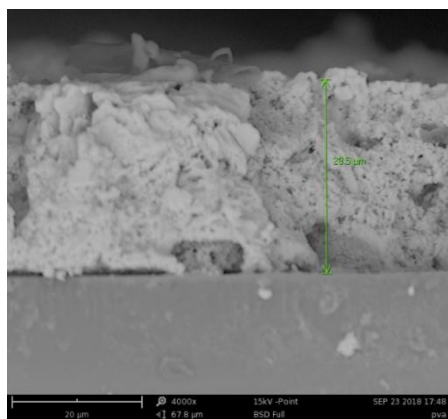
محلول PCBM به روش چرخشی و با سرعت چرخش ۱۵۰۰ دور در زمان ۵۰ ثانیه لایه‌نشانی شد. در آخر، ۱۰۰ نانومتر نقره به روش تبخیر حرارتی به عنوان الکترودهای نمونه آشکارساز لایه‌نشانی شد.

۲ ۳- مشخصه یابی

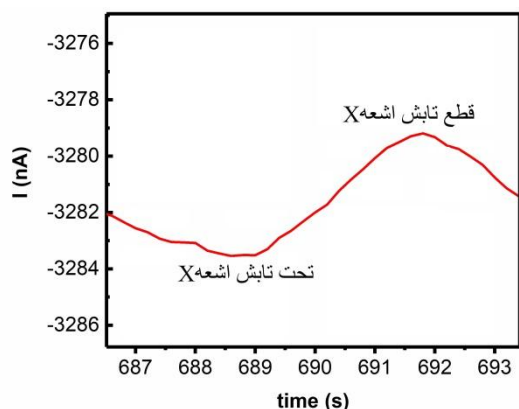
در بررسی جریان-ولتاژ افزاره از دستگاه شبیه‌ساز نور خورشید شریف سولار به همراه پتانسیواستات استفاده شد. برای مطالعه مورفولوژی سطوح لایه‌نشانی شده از میکروسکوپ روبشی الکترونی (SEM) و برای بررسی عملکرد افزاره در برابر پرتو X از دستگاه XRD با آند از جنس کبالت ($K_{\alpha} = 1.79$) استفاده شد.

۲ ۴- نتایج

اصلی‌ترین تفاوت این ساختار برای عملکرد به عنوان آشکارساز پرتو ایکس با سلول خورشیدی، استفاده از ضخامت میکرومتری لایه پروسکایت است. با استفاده از پوشش‌دهی چرخشی که روش مرسوم برای لایه‌نشانی لایه پروسکایت است، رسیدن به لایه ضخیم با ضخامت چند ده میکرومتر به سهولت انجام نمی‌شود. از این‌رو، برای ضخیم کردن لایه از روش پاششی استفاده شده است. تصویر سطح مقطع این لایه در شکل ۲ مشاهده می‌شود که ضخامتی در حدود ۲۹ میکرومتر حاصل شده است.



شکل ۲: تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)



شکل ۴: منحنی زمان قطع و تابش اشعه ایکس

۳- نتیجه گیری

افزاره پروسکایتی با لایه ۲۹ میکرومتری فعال ساخته و مشخصه‌یابی شد. لایه ضخیم با استفاده از روش پاششی لایه‌نشانی شد. این افزاره در برابر پرتو ایکس جریانی در محدوده نانوآمپر نتیجه داد.

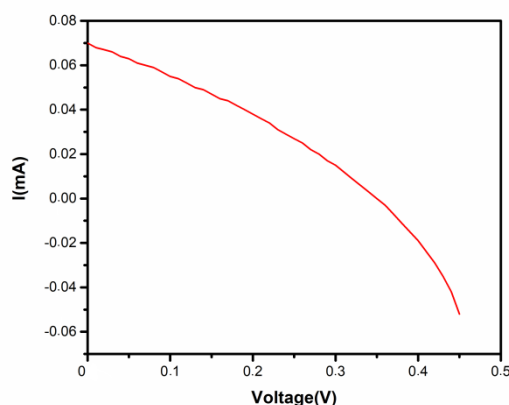
سپاسگزاری

همکاران این پژوهش از حمایت مالی دانشگاه تربیت مدرس (هسته پژوهشی نانوپلازما فوتونیک IG-39704) تشکر و قدردانی می‌کنند.

مراجع

- [1] H. Wei, Y. Fang, P. Mulligan, W. Chuirazzi, H. Fang, C. Wang, B.R. Ecker, Y. Gao, M.A. Loi, L. Cao, and J. Huang, "Sensitive X-ray detectors made of methylammonium lead tribromide perovskite single crystals," *Nature Photonics* 10, pp. 333–339, 2016.
- [2] S. Yakunin, M. Sytnyk, D. Kriegner, S. Shrestha, M. Richter, G.J. Matt, H. Azimi, C.J. Brabec, J. Stangl, M.V. Kovalenko and W. Heiss, "Detection of X-ray photons by solution-processed lead halide perovskites," *Nature Photonics* 9, pp. 444–449, 2015.
- [3] W. Wei, Y. Zhan, Q. Xu, H. Wei, Y. Fang, Q. Wang, Y. Deng, T. Li, A. Gruverman, L. Cao, and J. Huang, "Monolithic integration of hybrid perovskite single crystals with heterogenous substrate for highly sensitive X-ray imaging," *Nature Photonics* 11, pp. 315–321, 2017.

در ابتدا، مشخصات فتوولتائیکی افزاره ساخته شده با این لایه ۲۹ میکرومتری پروسکایت به عنوان سلول خورشیدی بررسی شد و از عملکرد صحیح نمونه‌ها اطمینان حاصل شد. شکل ۳ منحنی مربوط به جریان بر حسب ولتاژ را نشان می‌دهد. همانطور که مشاهده می‌شود این افزاره ولتاژ مدار باز در حد ۰/۳ ولت و جریان مدار کوتاه در حدود ۶۰ نانوآمپر را نشان می‌دهد. افت عملکرد افزاره به عنوان سلول خورشیدی به دلیل ضخامت بالای لایه پروسکایت است.



شکل ۳: منحنی جریان بر حسب ولتاژ افزاره تحت تابش نور خورشید

برای مشخصه‌یابی نمونه‌های آشکارساز تحت تابش پرتو ایکس از منبع پرتو ایکس و دستگاه پتانسیواستات به صورت هم زمان استفاده شد. نمونه‌ها تحت تابش پرتو ایکس در زمان‌های مختلف بررسی شد، شکل ۴، منحنی مربوط به زمان‌های قطع و تابش پرتو ایکس را نشان می‌دهد.

این نمونه‌ها با ضخامت ۲۹ میکرومتر لایه فعال تحت پرتو ایکس با انرژی ۳ کیلو الکترون‌ولت دارای جذب است. شکل ۴ جریان از مرتبه نانوآمپر را برای این افزاره نشان می‌دهد.