

中子辐照 GaAs 快速退火行为的低温光荧光研究

刘 健 王佩璇

(北京科技大学材料物理系, 北京 100083)

摘要 用低温(10K)光荧光(PL)的方法对中子辐照砷化镓中的缺陷及嬗变掺杂进行了研究. 结果表明: 低温 PL 实验可观察到中子嬗变掺杂效应, 嬗变掺杂使近导带施主增加从而使与 C_{As} 有关的跃迁峰向低能移动. 辐照剂量较低时, 嬗变原子 Ge 占居 Ga 位; 当辐照剂量较大时, 部分嬗变原子 Ge 占居 As 位. 在高剂量($10^{17}n/cm^2$)辐照情况下, 经 800 (20 秒)退火, 仍有反位缺陷 $G_{As}(E_V+200meV)$ 和复合缺陷 $I_{Ga-V_{As}}$ 存在, 在低剂量($10^{14}n/cm^2 \sim 10^{16}n/cm^2$)辐照情况下, 经此退火过程, 未观察到这两种缺陷的 PL 峰.

关键词 GaAs, 中子辐照, 光荧光

1 引 言

砷化镓材料由于其优越的性能而广泛应用于军事和空间通讯. 在这些领域中, GaAs 器件容易受到粒子辐照产生的缺陷引起器件参数变坏而失效. 因此, 研究 GaAs 的中子辐照效应对研制 GaAs 的抗辐照器件具有指导意义.

关于中子辐照 GaAs 的低温光荧光(PL)研究已有一些实验结果^[1,2]. 如中子嬗变掺杂后, 不仅引入施主, 而且还有少量的受主杂质. 又如中子辐照引入双受主 $G_{As}(E_V+30meV; E_V+200meV)$, 其中, 只有当 $E_V+30meV$ G_{As} 的能级全部或部分填充电子之后, 才能观察到导带到 $E_V+200meV$ G_{As} 能级的跃迁. 此外, M. Satoh 等人的 PL 实验^[3]表明: 在快中子剂量为 $3.7 \times 10^{18}n/cm^2$ 的情况下, 辐照缺陷引起带边弯曲, 造成导带到 G_{As} 受主能级的跃迁 $[Ge(B-A)]$ 向低能移动. 但关于缺陷的恢复机理尚不清楚. 本实验的目的是研究辐照引入的缺陷在快速退火过程中的消除行为.

2 实 验

样品是采用液态密封直拉法生长的半绝缘 SI-GaAs. 电阻率为 $1 \sim 2 \times 10^8$ $\Omega \cdot cm$, 电子迁移率为 6×10^3 cm^2/Vs .

中子辐照在中国原子能科学研究院 101 反应堆上进行. 辐照剂量为 $10^{14}n/cm^2 \sim 10^{17}n/cm^2$, 其中能量大于 0.1MeV 的中子剂量为 $10^{13}n/cm^2 \sim 10^{16}n/cm^2$. 辐照后的样品进行卤钨灯快速退火, 退火温度为 200~800 $^{\circ}C$, 恒温时间均为 20 秒.

测量系统采用 IFS120HR 付立叶红外荧光光谱仪. 样品冷却用闭循环低温恒温系统, 测量时温度为 10K. 荧光激发采用 Ar^+ 激光器, 波长 514.5nm. 激发功率 5mW. 采用 GaAlAs 探测器接收信号.

3 结果和讨论

图 1 是辐照前 SI-GaAs 的 PL 谱. 其中只存在 1.5130eV (12210cm^{-1}) 和 1.4956eV (12070cm^{-1}) 两个荧光峰. 前者对应带边峰. 它是与自由激子及各种束缚激子有关的跃迁. 1.4956eV 峰实际上由十分靠近的两个峰组成, 是导带到 C_{As} 受主的跃迁 $\text{C}(\text{B}-\text{A})$ 和残余的近导带施主到 C_{As} 受主的跃迁 $\text{C}(\text{D}-\text{A})$ [3, 4]. 而出现在 1.4596eV (11779cm^{-1}) 的小峰是其 LO 声子伴线.

图 2 和图 3 是辐照剂量分别为 10^{14} n/cm^2 和 10^{15} n/cm^2 , 经 800°C 退火的 PL 谱. 可以看到, 与辐照前相比没有出现新的跃迁峰, 但是图 3 与图 2 相比, 与 C_{As} 有关的峰向低能方向略有移动, 即由 1.4956eV 变为 1.4917eV (12038cm^{-1}), 详见图 4.

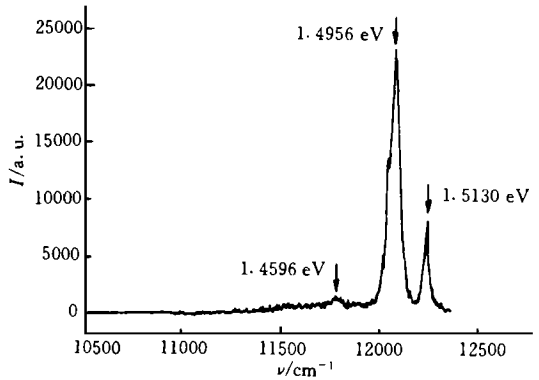


图 1 半绝缘 GaAs 的光荧光 (10K). 激发功率 5 mW
Fig. 1 PL spectrum for SI-GaAs taken at 10K.

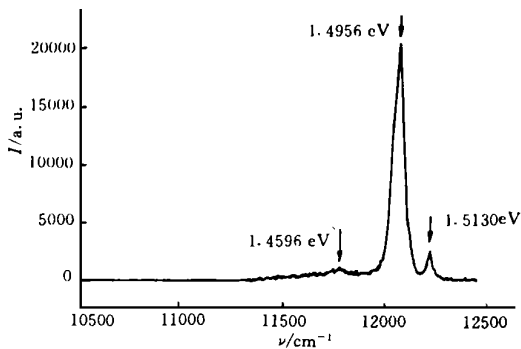


图 2 中子辐照半绝缘 GaAs 的光荧光谱 (10K). 激发功率 5 mW . 辐照剂量 $1 \times 10^{14}\text{ n/cm}^2$, 退火温度 800°C (20 秒)

Fig. 2 PL spectrum for SI-GaAs after irradiation with $1 \times 10^{14}\text{ n/cm}^2$ and annealing at 800°C (20s) taken at 10K.

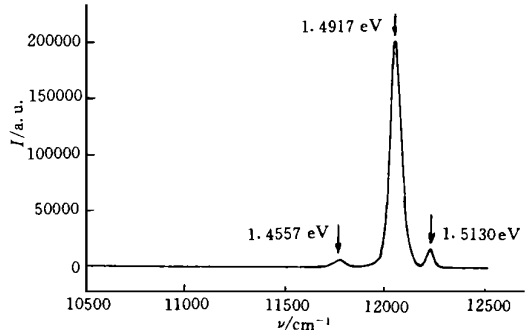


图 3 中子辐照半绝缘 GaAs 的光荧光谱 (10K). 激发功率 5 mW . 辐照剂量 $1 \times 10^{15}\text{ n/cm}^2$, 退火温度 800°C (20 秒).

Fig. 3 PL spectrum for SI-GaAs after irradiation with $1 \times 10^{15}\text{ n/cm}^2$ and annealing at 800°C (20s) taken at 10K.

图 5 是 10^{16} n/cm^2 辐照后经 600°C 退火的 PL 谱. 图中除与图 3 相同的带边峰、与 C 有关的跃迁之外, 还出现与嬗变掺杂受主 Ge_{eAs} 有关的强跃迁峰 [1, 5], 即 $\text{Ge}(\text{B}-\text{A})$ [1.4783eV (11931cm^{-1})]. 随着波数降低, 在 1.4557eV (11748cm^{-1}) 和 1.4419eV (11636cm^{-1}) 有两个小峰. 其中, 1.4557eV 是与 C_{As} 有关的跃迁 (1.4917eV) 的声子伴线, 与其零声子线能量相差 0.036eV . 关于 1.4419eV 线有人 [6, 7] 认为是导带到 Ga_{As} ($E_{\text{V}} + 30\text{meV}$) 能级的跃迁, 但本实验中, 我们认为也可能是导带到 Ge_{eAs} 的声子伴线. 除考虑它

与 $\text{Ge}(\text{B}-\text{A})$ 能量相差正好 0.036eV 的原因外, 还由于低剂量 ($10^{14}\text{n}/\text{cm}^2 \sim 10^{15}\text{n}/\text{cm}^2$) 辐照的谱中未出现 $\text{B}-\text{Ge}_{\text{As}}$ 的跃迁峰, 同时也未出现 1.4419eV 的峰. 另外还出现 1.4092eV (11372cm^{-1}) 的跃迁峰. 有文献^[5]报道: 它对应导带到复合缺陷 $\text{V}_{\text{As}}-\text{I}_{\text{As}}$ 能级的跃迁, I 代表杂质原子. 关于这种复合缺陷有待进一步的研究.

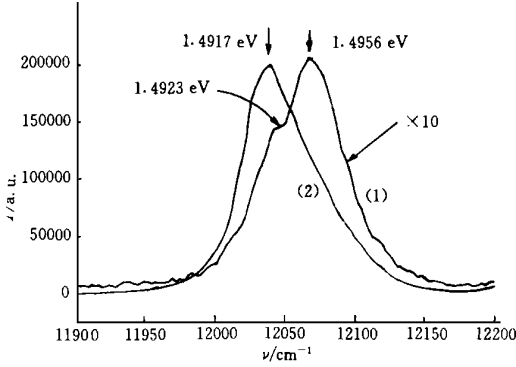


图 4 与 C_{As} 有关的 PL 光谱. (1) $1 \times 10^{14}\text{n}/\text{cm}^2$; (2) $1 \times 10^{15}\text{n}/\text{cm}^2$

Fig. 4 PL spectra related to C_{As} for SI-GaAs after irradiation and annealing at 800 (20s) taken at 10K. (1) $1 \times 10^{14}\text{n}/\text{cm}^2$; (2) $1 \times 10^{15}\text{n}/\text{cm}^2$.

图 6 是 $10^{17}\text{n}/\text{cm}^2$ 辐照后不同温度退火的结果. 200 退火后未出现任何 PL 峰, 说明辐照后的严重损伤未恢复. 400 退火后出现强度很低的 1.4917eV 的跃迁峰, 说明损伤有所恢复, 但仍不完全. 温度升高到 600, 损伤恢复较好, 出现带边峰. 与 C 有关的跃迁和与嬗变掺杂受主 Ge_{As} 有关的跃迁 $\text{Ge}(\text{B}-\text{A})$. 在 1.4419eV 也出现一个明显的小峰. 800 退火后出现以上各峰, 并且除强度增大外, 还在 1.3223eV (10671cm^{-1}) 和 1.3575eV (10955cm^{-1}) 处出现两个明显的 PL 峰. 其中 1.3223eV 可指认为 $\text{B}-\text{Ge}_{\text{As}}$ ($E_{\text{V}} + 200\text{meV}$) 的跃迁峰. 1.3575eV 对应导带到复合缺陷 $\text{I}_{\text{Ga}}-\text{V}_{\text{As}}$ 的跃迁^[8], I 代表杂质原子. 尽管有文献^[9]报道 1.3575eV (10955cm^{-1}) 处出现的 PL 峰

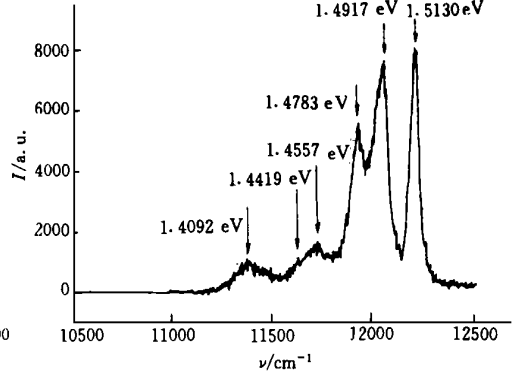


图 5 中子辐照半绝缘 GaAs 的光荧光谱 (10K). 激发功率 5mW. 辐照剂量 $1 \times 10^{16}\text{n}/\text{cm}^2$, 退火温度 600 (20 秒).

Fig. 5 PL spectrum for SI-GaAs after irradiation with $1 \times 10^{16}\text{n}/\text{cm}^2$ and annealing at 600 (20s) taken at 10K.

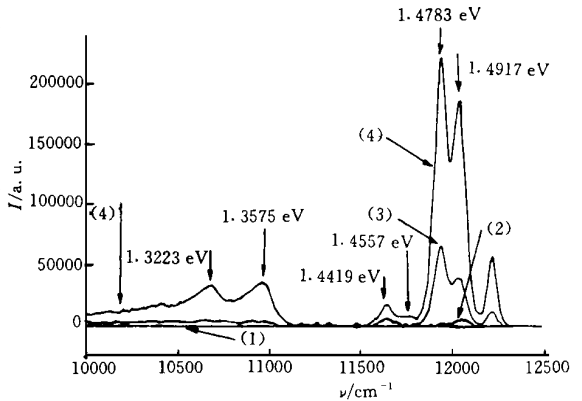


图 6 中子辐照 SI-GaAs 的光荧光谱 (10K). 激发功率 5mW. 辐照剂量 $1 \times 10^{17}\text{n}/\text{cm}^2$, 不同退火温度 (20 秒). (1) 200 ; (2) 400 ; (3) 600 ; (4) 800

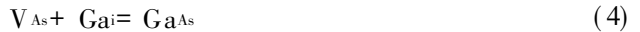
Fig. 6 PL spectra for SI-GaAs after irradiation with $1 \times 10^{17}\text{n}/\text{cm}^2$ and different temperature annealing (20s) taken at 10K. (1) 200 ; (2) 400 ; (3) 600 ; (4) 800 .

与 Cu 受主有关, 但我们认为: 在我们的实验中此峰与 Cu 受主无关. 因为在我们实验中, 此峰在辐照前及低剂量 ($10^{14} \text{ n/cm}^2 \sim 10^{16} \text{ n/cm}^2$) 辐照下同样的退火处理后都没有出现, 说明辐照前的样品中没有 Cu 杂质, 且退火中也未受到 Cu 的污染.

比较 800 与 600 退火情况可以看到: 600 辐照损伤恢复较好, 出现几个跃迁峰. 但未出现 1.3223eV 和 1.3575eV 的跃迁. 800 (20 秒) 退火后, 几种跃迁的强度都有不同程度的提高, 特别不同的是出现了强度较大的 1.3223eV 和 1.3575eV 的跃迁. 我们认为这两个在 800 (20 秒) 退火后出现的 PL 峰可能是由于短时退火增加了反位缺陷 Ga_{As} ($E_{\text{V}} + 200 \text{ meV}$) 和复合缺陷 $\text{I}_{\text{Ga}} - \text{V}_{\text{As}}$ 的浓度的结果. A. Goltzene^[10] 等人得到结果表明: 约 600 30 分钟的退火. 其损伤恢复过程对应 Ga_{As} 的消除. 显然, 这一结论与我们在 600 退火后, 相对低温退火情况反位缺陷 Ga_{As} 浓度增大的实验结果不一致. 为了解释这一矛盾, 我们下面分析中子辐照后的退火过程. 中子辐照后产生大量间隙原子 Ga_{i} , As_{i} 和空位 V_{Ga} , V_{As} . 由于间隙原子的迁移激活能较低^[11] (0.5 eV), 而间隙原子与空位的复合主要取决于间隙原子的迁移过程, 即间隙原子与空位的复合激活能为 0.5 eV ; 反位缺陷 Ga_{As} 的湮没激活能相对较高^[3] (0.9 eV). 所以退火的开始阶段主要是间隙原子与空位的复合:



另外还有一种形成反位缺陷的复合模式:



由于 Ga_{As} 是一种不稳定缺陷, 在间隙原子与空位的复合过程中产生的部分反位缺陷 Ga_{As} 也发生恢复. 其机理如下:



但由于 Ga_{As} 的湮没激活能较高, Ga_{As} 的恢复过程要滞后于间隙原子与空位的复合过程. 所以在退火的开始阶段主要恢复过程是间隙原子与空位的复合. 相对而言, Ga_{As} 的恢复过程是次要的. 这是退火的第一阶段. 其结果表现为反位缺陷浓度增大. 随着退火时间的延长, 间隙原子与空位的复合过程逐渐减弱, 这时反位缺陷的恢复成为主要过程. 这是退火的第二阶段. 表现为反位缺陷的浓度随退火时间延长而降低. 显然我们的快速退火时间短, 应处于退火的第一阶段. 表现为反位缺陷 Ga_{As} 浓度随退火温度升高而增大. 而 A. Goltzene 等人的长时间退火应该处于第二阶段, 这样我们与 A. Goltzene 等人的实验矛盾就完全可以理解了.

比较不同剂量的 PL 谱, 可以看到 $10^{14} \text{ n/cm}^2 \sim 10^{15} \text{ n/cm}^2$ 较低剂量下, 未出现 B- Ge_{As} 的跃迁峰, 而高剂量 ($10^{16} \text{ n/cm}^2 \sim 10^{17} \text{ n/cm}^2$) 下, 则有很明显的 B- Ge_{As} 的跃迁峰. 说明辐照剂量低时, Ge 可能占居 Ga 位; 辐照剂量高时, 部分 Ge 占居 As 位, 形成受主. 而且, 10^{16} n/cm^2 辐照剂量下 B- Ge_{As} 的跃迁峰的强度低于与 C_{As} 有关的峰强度, 而 10^{17} n/cm^2 辐照剂量下 B- Ge_{As} 跃迁峰的强度高于与 C_{As} 有关的峰强度, 说明辐照剂量越大, Ge 占居 As 位的比例越大. 我们知道: Ga 和 As 经热中子辐照可嬗变为 Ge_{Ga} 和 Se_{As} , 占 Ga 及 As 位

形成施主态, Ge 占居 As 位是由于中子辐照导入的 V_{As} 与 Ge 原子反应形成的. 显然在我们的实验中辐照剂量大导入的嬗变杂质浓度及空位浓度越大, 则 Ge_{As} 的浓度越大. 另外在高剂量 ($10^{17} n/cm^2$) 辐照情况下, 经 800 (20 秒) 退火, 有反位缺陷 $Ga_{As} (E_V + 200meV)$ 和复合缺陷 $I_{Ga-V_{As}}$ 存在, 在低剂量 ($10^{14} n/cm^2 \sim 10^{16} n/cm^2$) 辐照情况下, 经此退火过程, 未观察到这两种缺陷的 PL 峰, 说明这两种缺陷与损伤程度有关.

4 结 论

高剂量 ($10^{16} n/cm^2 \sim 10^{17} n/cm^2$) 可观察到导带到 Ge_{As} 受主的跃迁峰, 而在低剂量 ($10^{14} n/cm^2 \sim 10^{15} n/cm^2$) 下这种跃迁未出现. 说明辐照剂量低时, Ge 占居 Ga 位; 辐照剂量高时, 部分 Ge 占居 As 位, 形成受主. 而且辐照剂量越大, Ge 占居 As 位的比例越大.

在高剂量 ($10^{17} n/cm^2$) 辐照下出现的反位缺陷 $Ga_{As} (E_V + 200meV)$ 和复合缺陷 $I_{Ga-V_{As}}$ 是在短时退火 (800 20 秒) 过程中形成的, 并对反位缺陷的形成机理进行了讨论. 在低剂量 ($10^{14} n/cm^2 \sim 10^{15} n/cm^2$) 辐照情况下, 经此退火过程, 未观察到这两种缺陷的 PL 峰, 说明这两种缺陷与损伤程度有关.

参 考 文 献

- [1] Garrido J, Castano J L, Piqueras J. J. Appl. Phys., 1985, **57**(6): 2168.
- [2] Kuriyama K, Yokoyama K, Tomizawa K. J. Appl. Phys., 1991, **70**(12): 7315.
- [3] Satoh M, Kuriyama J. Appl. Phys., 1989, **65**(6): 2248.
- [4] 陈廷杰, 吴灵犀, 徐寿定, 孟庆惠, 于 鲲, 李永康. 半导体学报, 1982, **13**(3): 169.
- [5] Lum W Y. J. Appl. Phys., 1978, **49**: 3333.
- [6] Elliott K R. Appl. Phys. Lett., 1983, **42**: 274.
- [7] Satoh M, Yokoyama K, Kuriyama J. Appl. Phys., 1990, **68**: 363.
- [8] Hwang C J. Phys. Rev., 1969, **180**: 827.
- [9] Xin S H, Schaff W J, Word C E C *et al*, Appl. Phys. Lett., 1982, **41**: 742.
- [10] Goltzene A, Schwab C, David J P, Roizes A. Appl. Phys. Lett., 1986, **49**: 862.
- [11] Stievenard D, Boddaret X, Bourgoin J C. Phys. Rev. B, 1986, **34**(6): 4048.

PHOTOLUMINESCENCE OF DEFECTS IN NEUTRON-IRRADIATED SI-GaAs

Liu Jian Wang Peixuan

(Department of material physics, University of science and technology of Beijing, Beijing 100083)

Abstract

Photoluminescence of neutron irradiation-induced defects and neutron-transmuta-

tion-doping in GaAs was investigated at 10K. The results show that the neutron-transmutation-doping effect can be observed by low temperature photoluminescence. The shift of the C_{As} related PL peak is attributed to the increase of donors near conduct band after transmutation-doping. Under the conditions of low transmutation-doped concentration the transmuted Ge atoms occupy Ga sites; where as after high fluence irradiation and hence high transmutation-doped concentration obtained some part of the transmuted Ge atoms are placed in As sites. For the irradiation of high neutron fluence 10^{17} n/cm^2 and after rapid annealing at 800 for 20 seconds, there still exist antisite defects $Ga_{As}(E_V + 200\text{meV})$ and complex defects $I_{Ga-V_{As}}$, but under the neutron irradiation of fluence $10^{14} \text{ n/cm}^2 \sim 10^{15} \text{ n/cm}^2$ such defects (mentioned above) have not been found.

Key words GaAs, neutron irradiation, photoluminescence