

In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP 量子阱与体材料的 1 MeV 电子束辐照光致发光谱研究*

玛丽娅¹⁾²⁾ 李豫东¹⁾ 郭旗^{1)†} 艾尔肯¹⁾ 王海娇¹⁾²⁾
汪波¹⁾²⁾ 曾骏哲¹⁾²⁾

1) (中国科学院特殊环境功能材料与器件重点实验室, 新疆电子信息材料与器件重点实验室, 中国科学院新疆理化技术研究所, 乌鲁木齐 830011)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2014年12月29日收到; 2015年1月30日收到修改稿)

为获得对 In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP 材料在电子束辐照下的光致发光谱变化规律, 开展了 1 MeV 电子束辐照试验, 注量为 $5 \times 10^{12} \sim 9 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. 样品选取量子阱材料和体材料, 在辐照前后, 进行了光致发光谱测试, 得到了不同结构 In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP 材料在 1 MeV 电子束辐照下的不同变化规律; 对比分析了参数退化的物理机理. 结果显示: 试验样品的光致发光峰强度随着辐照剂量增大而显著退化. 体材料最先出现快速退化, 而五层量子阱在注量达到 $6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ 时, 就已经退化至辐照前的 9%. 经分析认为原因有: 1) 电子束进入样品后, 与材料晶格发生能量传递, 破坏晶格完整性, 致使产生的激子数量减少, 光致发光强度降低; 电子束辐照在材料中引入缺陷, 增加了非辐射复合中心密度, 导致载流子迁移率降低. 2) 量子阱的二维限制作用使载流子运动受限, 从而能够降低载流子与非辐射复合中心的复合概率; 敏感区域截面积相同条件下, 体材料比量子阱材料辐射损伤更为严重. 3) 量子阱的层数越多, 则异质结界面数越多, 相应的产生的界面缺陷数量也随之增多, 辐射损伤越严重.

关键词: In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP, 量子阱, 电子束辐照, 光致发光谱

PACS: 42.88.+h, 78.67.-n, 61.82.-d, 61.80.-x

DOI: 10.7498/aps.64.154217

1 引言

低维半导体材料在新型半导体器件开发上具有广阔的应用前景, 近年来一直是半导体科学技术领域的研究热点. 量子阱材料适合于制作低阈值、窄谱线的发光器件^[1]. InGaAs/InP 系体材料和量子阱、超晶格材料是制作激光器、调制器和光波导器件的基本材料^[2], 具有重要的应用前景. 与 InP 匹配的 In_{0.53}Ga_{0.47}As 的室温禁带宽度为 0.75 eV, 可以制作石英光纤最低损耗和最低色散波段工作的光探测器^[3-5]. 而对空间应用的光电器件来说, 空间辐射环境是所面临的最大威胁. 在人造卫星运

行轨道主要为范艾仑辐射带, 它是地球磁场俘获宇宙射线中的带电粒子形成的磁致浓缩区, 以电子束和质子束为主. 研究辐照效应对量子阱材料光学性质的影响, 直接关系到半导体激光器等众多其他光电器件在空间技术中应用的稳定性和寿命. 对量子阱材料辐照效应国内外已开展不少研究工作.

Leon 等研究了 InGaAs/GaAs 量子阱和量子点在 1.5 MeV 质子辐照下的光致发光谱, 观察到了在低注量下 InGaAs/GaAs 量子点的 PL 增强现象^[6]; Aierken 等研究了 γ 射线和电子束辐照下的 InGaAs/GaAs 量子阱和量子点材料的光致发光谱和时间分辨光致发光谱, 发现经辐照后所有样品的光致发光强度和载流子寿命都呈现衰降的现象^[7];

* 国家自然科学基金 (批准号: 11275262) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: guoqi@ms.xjb.ac.cn

Guffarth等对质子辐照的自组织InGaAs/GaAs量子点的点缺陷和激子之间的相互作用进行了研究,发现在辐射剂量高达 10^{14} p/cm²时激子基态仍没有受到影响^[8].在国内低维半导体结构的辐射效应研究方面,车驰,马晶,周彦平等开展了一些工作,集中在量子点激光器、LED等器件的电学特性的损伤特性及规律^[9-11];邹睿、张猛等对GaAs系量子阱材料的辐射效应开展了初步研究,得到了一些规律性的结果^[12,13].

国内在低维半导体材料辐射效应方面的研究尚不够全面和深入,与国外研究水平差距较大.为获得半导体量子阱材料生长参数、结构与辐照效应相关性,为具有抗辐射能力的量子阱器件工艺选择及优化提供基础研究依据,本文对In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP量子阱与体材料1 MeV电子束辐照前后的光致发光谱进行了研究.

2 材料制备与辐照试验

2.1 材料制备

本实验所用样品为芬兰赫尔辛基理工大学提供的用金属有机化合物化学气相沉积(MOCVD)法生长的In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP量子阱和体材料,样品结构如图1所示.

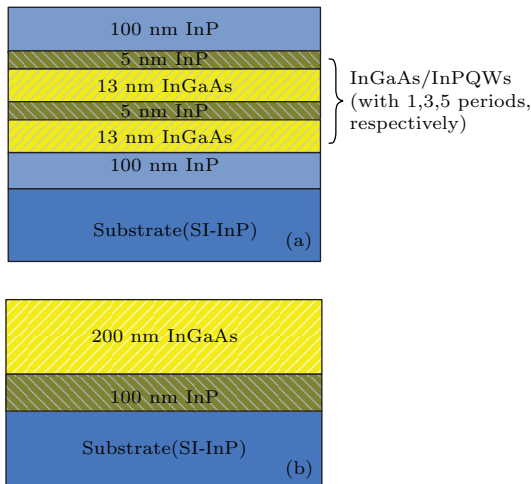


图1 样品结构图 (a)量子阱; (b)体材料

Fig. 1. The sample chart of (a) quantum well (b) bulk.

在半绝缘InP衬底上生长100 nm厚的InP外延层,再生长周期分别为1, 3, 5的In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP(13 nm/5 nm)量子阱结构,如图1(a);图1(b)中的体材料则是直接在InP衬底上生长一个In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP (200 nm/100 nm)

的异质结.其中,(a)量子阱中按照In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP量子阱的周期数目分别为1, 3, 5,标记为lw105, lw106, lw107,体材料(b)标记为lw108.

2.2 辐照试验

辐照试验在中国科学院新疆理化技术研究所ELV-8型2 MeV电子加速器上完成,选取入射电子能量为1 MeV,注量率为 1.075×10^{10} cm⁻²·s⁻¹,当累积辐照达到一定注量时将样品取出进行参数测试,最大注量为 9×10^{14} cm⁻².

3 测试系统及测试结果

辐照前后对样品的光致发光谱(photoluminescence, PL)进行了测试.光致发光是在光生非平衡载流子对的复合过程中伴随发生的现象,是光电导的互补效应.

3.1 测试系统

光致发光谱的测试是在中科院新疆理化所光电材料与器件光谱测试系统上完成的,如图2所示.

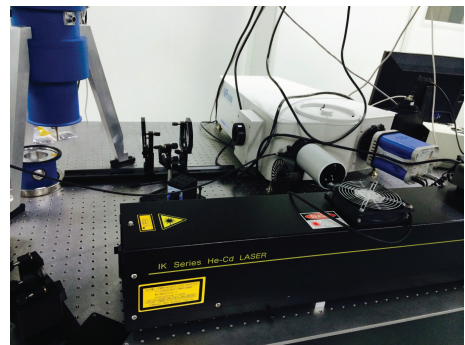


图2 测试系统实物图

Fig. 2. picture of test system.

样品的光致发光谱(PL)测试选取波长为532 nm的激光作为激发光源,光谱仪为HORIBA JOBIN YVON系列光栅光谱仪.测试在室温(300 K)环境下进行.

3.2 测试结果

3.2.1 量子阱材料和体材料对比

经过对样品辐照前后的光致发光谱(PL)测试,可得室温下样品PL随辐照注量变化曲线.如图3所示,给出了(a)单层量子阱(b)体材料的PL

随辐照注量的变化情况. 可以看出, 量子阱和体材料 PL 强度都随着辐照注量的增加而降低, 且程度有所不同.

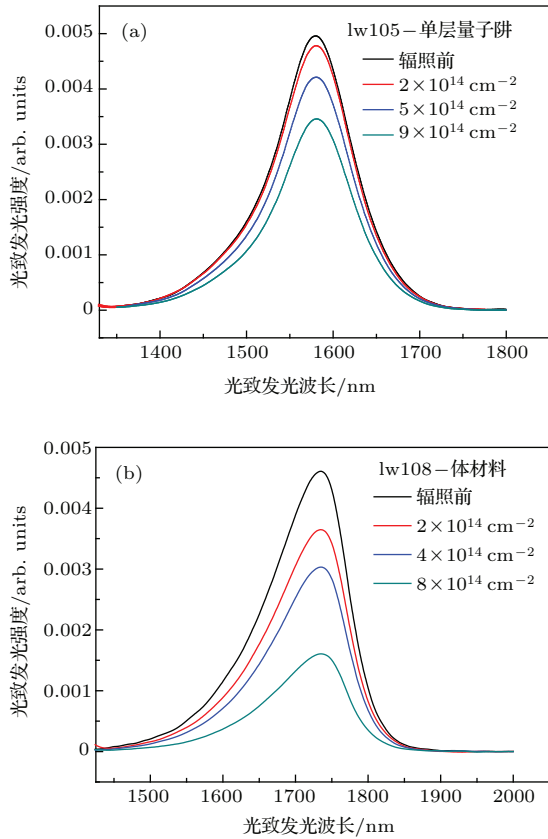


图3 光致发光谱随辐照注量变化 (a) 单层量子阱; (b) 体材料

Fig. 3. Variation of photoluminescence with irradiation fluence of (a) single quantum well (b) bulk.

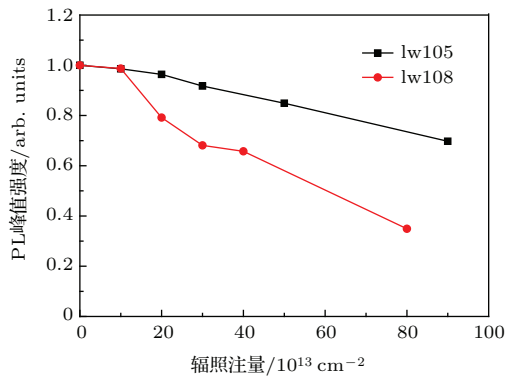


图4 量子阱 lw105 和体材料 lw108 的光致发光峰值强度随辐照注量变化

Fig. 4. variation of photoluminescence intensity with irradiation fluence of single quantum well lw105 and bulk lw108.

单层量子阱材料(图3(a))的PL强度在辐照注量累积到 $9 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ 时也只是出现了30%的衰减; 而体材料(图3(b))则在辐照注量累积到 $4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ 时就衰减了35%, 在达到 8×10^{14}

cm^{-2} 时 PL 光强衰减了将近70%. 相对于单层量子阱材料, 体材料经过电子辐照后 PL 光强衰减更为严重.

图4对比了敏感区域截面积相同的单层量子阱 lw105 和体材料 lw108 的 PL 峰值强度随辐照注量的变化情况. 可以看出当注量开始大于 10^{14} cm^{-2} 时, 体材料就出现了比量子阱材料更为严重的退化.

3.2.2 不同阱层数量量子阱材料对比

本文对电子束辐照对不同阱层数量量子阱材料光致发光特性的影响进行了对比. 如图5(a)给出了在相同辐照注量下, 不同阱层数量量子阱材料层数越多, 损伤越严重; 其中, 五层量子阱 lw107 损伤最为严重, 在注量达到 $6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ 时, 就已经退化至辐照前的9%. 图5(b)给出了三种量子阱材料的 PL 峰值强度随辐照注量的变化, 可以看到, 五层量子阱 lw107 还未达到最大注量前就已经损失了90%的 PL 光强度. 表1详细列出了等注量下 ($2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) 不同阱层数量量子阱退化情况.

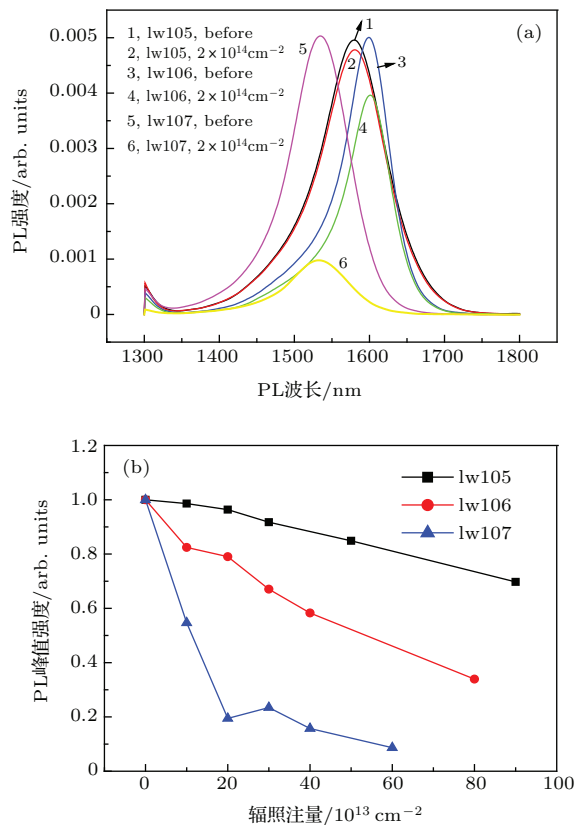


图5 不同层数量量子阱材料 PL 峰值强度随辐照注量的变化 (a) PL 光谱; (b) PL 峰值强度

Fig. 5. variation of photoluminescence intensity with irradiation fluence of quantum well with different number of layer: (a) photoluminescence spectra; (b) photoluminescence intensity.

表1 等注量下 ($2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) 不同阱层数量量子阱退化比较

Table 1. comparison of degradation of different kind of quantum well.

样品编号	lw105	lw106	lw107
量子阱周期数	1	3	5
PL 峰值强度比 (辐照后/辐照前)/%	96.37	79.04	19.44

3.3 讨论

半导体超晶格、量子阱材料是由两种或两种以上性质不同的薄膜相互交替生长而形成的多层结构的晶体. 当势垒足够厚和高时, 相邻阱中的电子波函数不发生交叠, 则这种结构材料中的电子行为如同单个阱中电子行为的简单的总和. 半导体材料的光致发光过程蕴含着材料结构与组分的丰富信息, 是多种物理过程的综合反映, 因而利用光致发光光谱可以获得被研究材料的多种信息. 一般而言, 光谱的峰值位置可以确定发光的频率, 进而知道是何种复合, 发光峰强度可以确定光生载流子的强弱, 也可以由此知道晶格的完整性, 晶格越完整, 发光峰越强. 而一定能量的电子入射到材料中, 使晶格原子获得可能脱离正常晶格点位置的能量, 导致原子的位移, 在材料体内形成缺陷, 破坏晶格的完整性, 从而影响发光强度.

GaAs量子阱的光跃迁过程, 是自由激子起主要作用的本征过程. 当一定波长的激发光照射样品时, 电子吸收光子能量以后, 从价带跃迁到导带, 在价带中产生空穴, 它和导带电子之间由库仑引力可能形成电子和空穴束缚状态的激子, 激子中的电子不能稳定地存在, 它通过从导带跃迁回价带和空穴复合而放出能量, 并发射光子.

激子态的类氢方程如下^[14]:

$$\left[-\frac{1}{2\mu} \nabla^2 - \frac{e^2}{\epsilon_0 r} \right] \varphi_n(r) = \epsilon_n \varphi(r), \quad (1)$$

式中 $\mu = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}$, 是电子和空穴的折合质量; ϵ_0 为真空介电常数; r 为原子半径; $\epsilon_n = E_n - E_g$, 是激子的结合能, E_n 是激子态本征能量, E_g 是能隙; 求得本征能量和本征波函数:

在三维情况下为

$$\epsilon_n^{3D} = -\frac{R_y^*}{n^2}, \quad (2)$$

$$\varphi_{1s}^{3D} = \frac{1}{\sqrt{\pi} a_B^{3/2}} e^{-\frac{r}{a_B}}, \quad (3)$$

其中,

$$R_y^* = \frac{\mu e^4}{2\hbar^2 \epsilon_0^2}, \quad (4)$$

$$a_B^* = \frac{\epsilon_0 \hbar^2}{\mu e^2}. \quad (5)$$

R_y^* 为有效里德伯常数, a_B^* 为有效玻尔半径. 由于在半导体(例如GaAs)中, 电子、空穴折合质量 $\mu \approx m_e = 0.067m_0$, 介电常数 $\epsilon_0 \approx 12$, 因此 $R \approx 4 \text{ meV}$, $a_B^* \approx 10 \text{ nm}$.

在量子阱中的激子和体材料中的激子有着本质的区别. 半导体体材料中的激子是三维的, 电子和空穴在三维空间中可自由运动. 量子阱中的激子由于受势垒的限制作用, 只在平行于界面的平面内可自由运动, 而在量子阱生长方向上(假设为 z 方向)运动受到限制. 考虑一种理想的极限情况: 势垒高度趋于无穷, 同时势阱宽度趋于零, 则电子和空穴在 z 方向的运动完全被禁止, 这时就变成二维激子.

二维情况下则有

$$\epsilon_n^{2D} = -\frac{R_y^*}{\left(n - \frac{1}{2}\right)^2}, \quad (6)$$

$$\varphi_{1s}^{2D} = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{2}{a_B^*} e^{-\frac{2r}{a_B^*}}. \quad (7)$$

可以看出, 二维激子基态 ($n = 1$) 的结合能是三维激子的4倍, 达几十毫电子伏, 不容易离解, 在室温下也能观察到激子效应, 而其波函数的范围是三维激子的一半 ($a_B^*/2$).

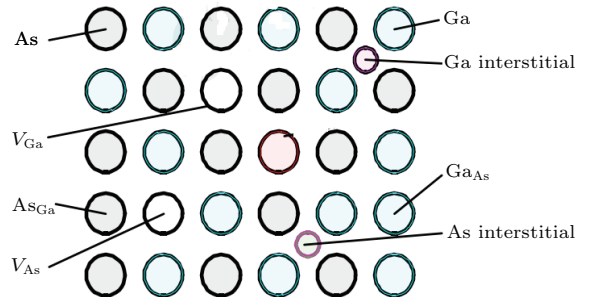


图6 由电子束辐照引起的晶格原子位移示意图

Fig. 6. The lattice atom displacement caused by electron beam irradiation.

辐照的电子轰击半导体材料, 使晶格原子获得可能脱离正常晶格点位置的能量, 导致晶格原子的位移, 在材料体内形成缺陷, 如图6所示; 且在注量不太高的情况下, 缺陷浓度与注量的大小成正比. 由于缺陷的引入, 形成非辐射复合中心所增强的散射现象使迁移率及载流子浓度下降^[7], 且下降的程

度与辐照形成的缺陷浓度成正比, 因此也与辐照注量的大小成近似线性关系.

在量子阱中, 激子的玻尔半径约为 10 nm. 因此量子阱经过电子辐照后, 引入大量缺陷, 产生散射中心, 破坏了 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 量子阱材料晶格空间的完整性, 导致激子的有效玻尔半径增大, 波函数减小, 从而使光跃迁强度减弱. 且随着辐照注量的增大, 晶格空间完整性得到进一步的破坏, 产生的激子数进一步减少, 相应的量子阱的荧光峰强度变弱. 在超晶格量子阱等准二维体系中, 激子的基态束缚能趋近三维系中的 4 倍, 因而激子效应很明显. 激子数量的减少直接影响光致发光的强度.

由于体材料中载流子的扩散性好于量子阱结构, 所以体材料中的非辐射复合中心更容易俘获载流子, 而量子阱的二维限制作用使载流子运动受

限, 从而能够降低载流子与非辐射复合中心的复合概率 [6]. 因此在异质结面积相同的条件下, 相对于量子阱材料, 体材料对于辐射损伤更为敏感.

在相同辐照注量下, 量子阱层数越多, 损伤越严重是由于电子束辐照会在量子阱结构材料的界面 (如图 7 (a) 中所示) 处引入界面缺陷, 对沿界面迁移的载流子发生散射作用而使迁移率下降. 同时, 界面缺陷也使界面处的能量形状发生变化. 由于载流子陷入界面陷阱后出现了附加电荷, 而削弱了所形成的内建电场, 致使能带弯曲程度降低, 也使异质结界面处的三角势变浅, 造成二维电子气的载流子浓度降低 (图 7 (b)). 而量子阱的层数越多, 则异质结界面数越多, 相应的产生的界面缺陷数量也随之增多, 因此出现如图 7 所示的随量子阱层数增加, 退化加剧的现象.

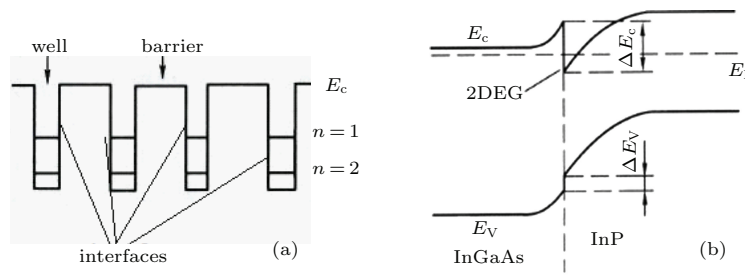


图7 (a) 多量子阱示意图; (b) InGaAs/InP 异质结二维电子气

Fig. 7. Schematic diagram of (a) quantum wells interface (b) InGaAs/InP 2DEG.

4 结 论

本实验对 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 材料进行了 1 MeV 电子辐照, 注量为 $5 \times 10^{12} \sim 9 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. 样品选取量子阱材料和体材料作为对比, 在辐照前后, 对样品进行了 PL 谱 (光致发光谱) 测试, 得到了不同结构 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 材料在 1 MeV 电子束辐照下的不同变化规律. 测试结果显示: 试验样品的光致发光峰强度随着辐照剂量增大而退化加重. 在相同辐照条件下, 体材料在较低注量条件下就出现了明显的退化, 而单层量子阱材料在较高注量下退化开始明显; 而不同量子阱层数的材料也表现出了不同程度的损伤. 经分析认为: 1) 一定能量的电子束进入样品后, 与材料晶格发生能量传递, 致使产生的激子数量减少, 因而材料的光致发光峰强度变弱, 且随剂量增大退化加剧. 电子束辐照在材料

禁带中引入缺陷能级, 增加了非辐射复合中心密度, 导致载流子扩散长度减小, 迁移率降低, 最终导致光致发光峰的强度显著退化; 2) 由于体材料中载流子的扩散性好于量子阱结构, 所以体材料中的非辐射复合中心更容易俘获载流子, 而量子阱的二维限制作用使载流子运动受限, 从而能够降低载流子与非辐射复合中心的复合概率, 因此量子阱材料比体材料抗辐照能力强; 3) 量子阱的层数越多, 则异质结界面数越多, 相应的产生的界面缺陷数量也随之增多, 辐射损伤越严重.

相对于体材料, 量子阱结构的室温激子效应很明显, 在相同激发光功率条件下发光强度比体材料大一个数量级, 且量子阱数目的增加在一定程度上可以进一步提高发光强度. 然而本实验结果表明, 在实际器件应用中, 增加量子阱数目可能会牺牲量子阱材料与器件的抗辐射能力.

参考文献

- [1] Zhang Z Y, Wang Z G, Xu B, Jin P, Sun Z Z, Liu F Q 2004 *IEEE Photonics Technol. Lett.* **16** 27
- [2] Temkin H, Dutta N K, Tanbun Ek T, Logan R A, Sergent A M 1990 *Applied physics letters* **57** 1610
- [3] Wake D, Walling R H, Sargood S K, Henning I D 1987 *Electronics Letters* **23** 415
- [4] Xing J L, Zhang Y, Xu Y Q, Wang G W, Wang J, Xiang W, Ni H Q, Ren Z W, He Z H, Niu Z C 2014 *Chin. Phys. B* **23** 017805
- [5] Li C, Xue C L, Li C B, Liu Z, Cheng B W, Wang Q M 2013 *Chinese Phys. B* **22** 118503
- [6] Leon R, Swift G M, Magness B, Taylor W A, Tang Y S, Wang K L, Dowd P, Zhang Y H 2000 *Applied Physics Letters* **76** 2074
- [7] Aierken A, Guo Q, Huhtio T, Sopanen M, He C F, Li Y D, Wen L, Ren D Y 2013 *Radiation Physics and Chemistry* **83** 42
- [8] Guffarth F, Heitz R, Geller M, Kapteyn C, Born H, Sellin R, Hoffmann A, Bimberg D, Sobolev N A, Carmo M C 2003 *Applied Phys. Lett.* **82** 1941
- [9] Che C, Liu Q F, Ma J, Zhou Y P 2012 *Acta Phys. Sin.* **62** 094219 (in Chinese) [车驰, 柳青峰, 马晶, 周彦平 2012 物理学报 **62** 094219]
- [10] Ma J, Che C, Han Q Q, Zhou Y P, Tan L Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 214211 (in Chinese) [马晶, 车驰, 韩琦琦, 周彦平, 谭立英 2012 物理学报 **61** 214211]
- [11] Zhou Y P, Hao N, Yang R, Che C, Jin H, Xu J 2013 *Infrared and Laser Engineering* **42** 454 (in Chinese) [周彦平, 郝娜, 杨瑞, 车驰, 靳浩, 徐静 2013 红外与激光工程 **42** 454]
- [12] Zou R, Lin L B 2002 *Research & Progress of SSE.* **22** 404 (in Chinese) [邹睿, 林理彬 2002 固体电子学研究与发展 **22** 404]
- [13] Zhang M, Lin L B, Zou R, Zhang G Q, Li Y G 2003 *Chinese Journal of Lasers* **7** 004 (in Chinese) [张猛, 林理彬, 邹睿, 张国庆, 李永贵 2003 中国激光 **7** 004]
- [14] Haug H, Schmitt-Rink S 1984 *Progress in Quantum Electronics* **9** 3

Photoluminescence spectra of 1 MeV electron beam irradiated $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ quantum well and bulk materials*

Ma Li-Ya¹⁾²⁾ Li Yu-Dong¹⁾ Guo Qi^{1)†} Ai Er-Ken¹⁾ Wang Hai-Jiao¹⁾²⁾
Wang Bo¹⁾²⁾ Zeng Jun-Zhe¹⁾²⁾

1) (Key Laboratory of Functional Materials and Devices for Special Environments of CAS; Xinjiang Key Laboratory of Electronic Information Materials and Devices; Xinjiang Technical Institute of Physics and Chemistry of CAS, Urumqi 830011, China)

2) (Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(Received 29 December 2014; revised manuscript received 30 January 2015)

Abstract

Minimizing the impact of radiation-induced degradation on optoelectronic devices is important in several applications. Satellites and other spacecraft that fly in near-earth orbits (below 3.8 earth radius) are extremely susceptible to radiation damage caused by the high flux of electrons trapped in the earth's magnetosphere. Optoelectronic devices are particularly vulnerable to displacement damage caused by electrons and protons. Effects of 1 MeV electron beam irradiation on the photoluminescence properties of $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ quantum well (QW) and bulk structures, which are grown by metal-organic vapor phase epitaxy, are investigated. Samples are irradiated at room temperature using an ELV-8II accelerator with 1 MeV electron at doses ranging from 5×10^{12} to $9 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, and a dose rate of $1.075 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Photoluminescence measurements are made using a 532 nm laser for excitation and a cooled Ge detector with lock-in techniques for signal detection. Photoluminescence intensity of all the structures is degraded after irradiation, and its reduction increases with increasing total dose of irradiation. Electron beam irradiation causes a larger reduction in the photoluminescence intensity and carrier lifetime of the bulk than that of quantum well. Photoluminescence intensity of five-layer quantum wells degenerates to 9% that before irradiation as the fluence reaches $6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. As the electron beams bombard into the sample, the destruction of the lattice integrity will cause the decrease in the number of excitons and intensity of photoluminescence. Electron beam irradiation introduces defects in the samples, increases the density of the nonradiative recombination centers, and results in the decrease of carrier mobility. In a quantum well structure, due to the two-dimensional confinement, the probability of carrier nonradiative recombination at radiation-induced defect centers will be reduced. The reduction of photoluminescence intensity in the bulk is severer than in the quantum well while the cross-sectional area which is sensitive to radiation is kept the same. The number of interface defects which are produced by electron irradiation will increase with the number of layers in quantum well and the heterojunction interface of quantum wells, so is the degradation of photoluminescence intensity. The degradation is mainly due to the increase of non-radiative centers in the samples. By comparing the different structures, the quantum well structure shows a better radiation resistance.

Keywords: $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$, quantum well, electron beam irradiation, photoluminescence

PACS: 42.88.+h, 78.67.-n, 61.82.-d, 61.80.-x

DOI: 10.7498/aps.64.154217

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11275262).

† Corresponding author. E-mail: guoqi@ms.xjb.ac.cn