

Влияние нейтронного облучения на фотоэлектрические параметры структур ИТО–GaSe

© З.Д. Ковалюк[†], П.Г. Литовченко*, О.А. Политанская, О.Н. Сидор, В.Н. Катеринчук,
В.Ф. Ластовецкий*, О.П. Литовченко*, В.К. Дубовой*, Л.А. Полищев*

Институт проблем материаловедения им. И.Н. Францевича Национальной академии наук Украины,
Черновицкое отделение,
58001 Черновцы, Украина

* Институт ядерных исследований Национальной академии наук Украины,
03028 Киев, Украина

(Получена 12 апреля 2006 г. Принята к печати 21 августа 2006 г.)

Исследовано влияние быстрых нейтронов с энергией 1 МэВ на фотоэлектрические параметры гетероструктур ИТО–GaSe. Показано, что наблюдаемые изменения вольт-амперных характеристик обусловлены действием проникающего излучения на обе компоненты структуры, с чем связан рост сопротивления гетероструктур. Наличие тонкой структуры экситона в спектрах фоточувствительности после облучения показывает, что, несмотря на внесенные радиационные дефекты, GaSe сохраняет структурное совершенство. Полученные результаты объясняются пространственным перераспределением легирующей примеси в GaSe и структурными изменениями в пленках ИТО.

PACS: 61.80.Hg, 73.40.Cg, 73.40.Lq, 73.50.Pz

1. Введение

Электрофизические свойства полупроводников могут существенно изменяться под влиянием высокоэнергетического излучения. Поэтому поиск материалов, где эти изменения были бы минимальными, является актуальной задачей. Наряду с широко исследуемыми полупроводниками с однотипной химической связью атомов интерес вызывают кристаллы с двумя типами химической связи, в частности полупроводник GaSe. Монокристаллы селенида галлия, как и весь класс слоистых кристаллов, имеют ярко выраженную структурную анизотропию. Особенностью структуры является наличие пакетов атомных плоскостей (слоев) с сильной ионно-ковалентной связью внутри слоя, которые взаимодействуют между собой слабыми силами Ван-дер-Ваальса. Это свойство слоистых кристаллов приводит к различному пространственному размещению примесей. Например, в монокристаллах GaSe, легированных диспрозием, примесь интеркалируется в межслоевое пространство, создавая ковалентные мостики между слоями. При этом удельное сопротивление GaSe уменьшается на 2–3 порядка [1].

Другим интересным свойством слоистых кристаллов является большое количество собственных структурных дефектов, которые обуславливают низкую подвижность и малую диффузионную длину носителей заряда в направлении кристаллографической оси *C* [2]. Поэтому количество радиационных дефектов должно быть намного меньше (или одного порядка) по сравнению с плотностью собственных дефектов в GaSe и не может существенным образом влиять на исходные фотоэлектрические характеристики структур.

Ранее было показано, что при облучении селенида галлия γ -квантами дозами $> 10^6$ Р наблюдается снижение подвижности носителей тока [3]. Облучение γ -квантами и нейтронами при потоках нейтронов 10^{14} см⁻² практически не влияет на удельное сопротивление образцов, но приводит к небольшому увеличению подвижности носителей тока [3]. Интенсивность люминесценции образцов GaSe : Sn после облучения потоком нейтронов 10^{14} см⁻² уменьшалась [4]. Такие результаты в основном объяснялись возникновением большого количества радиационных дефектов.

В данной работе исследовалось влияние облучения быстрыми нейтронами на фотоэлектрические характеристики гетероструктур ИТО–GaSe.

2. Эксперимент

Монокристаллы ϵ -GaSe выращивались методом Бриджмена и имели четко выраженную слоистую структуру. С целью увеличения электропроводности селенида галлия проводилось легирование полупроводника диспрозием в количестве 0.1 ат%. Легирование монокристаллов диспрозием не изменяет исходной дырочной проводимости GaSe. Концентрация и подвижность носителей заряда составляли при комнатной температуре $\sim 10^{15}$ см⁻³ и 35–50 см²/В · с соответственно.

Для создания структур использовались пластинки GaSe толщиной ~ 300 мкм, которые скалывались вдоль плоскости слитка (0001). Они имели зеркальные поверхности и не нуждались ни в каких подготовительных обработках при формировании гетероструктур (ГС). Пластинки нагревались до 400°C на воздухе, и методом пульверизации растворов хлоридов индия и олова [5] наносился вырожденный полупроводник In₂O₃ : Sn (ИТО). Омический контакт к GaSe создавался при помощи

[†] E-mail: chimsp@ukrpost.ua

(In–Ga)-эвтектики, а со стороны ИТО — пайкой чистым индием.

Гетероструктуры ИТО–GaSe облучались в горизонтальном канале ГК-6 реактора ВВР-М Института ядерной физики НАН Украины. Интенсивность потока быстрых нейтронов составляла $(2.2\text{--}2.4) \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ при эффективной энергии 1 МэВ. Время облучения выбиралось таким образом, чтобы флюенсы составили $\Phi = 1.1 \cdot 10^{15}$ и $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$. Для предотвращения нежелательных ядерных реакций на медленных нейтронах, вследствие которых в объеме кристаллов создаются легирующие и радиоактивные примеси, использовался кадмиевый фильтр толщиной 0.5 мм, который задерживал частицы с энергией < 0.4 МэВ. Температура образцов при облучении не превышала 25°C .

Через наведенную высокую радиоактивность после облучения структуры выдерживались в специальных боксах на протяжении 2–3 месяцев, в зависимости от полученного флюенса, а затем проводились измерения их параметров.

Вольт-амперные (ВАХ) и вольт-фарадные характеристики (ВФХ) исследовались с помощью амплитудно-частотного анализатора Schlumberger SI 1255 & 1286.

Спектры фототока исследовались при комнатной температуре при помощи монохроматора МДР-3 с разрешающей способностью 26 \AA . Все спектры нормировались относительно количества падающих фотонов.

3. Результаты и обсуждение

Для определения изменения с облучением высоты потенциального барьера структур ИТО–GaSe и концентрации ионизованных акцепторов исследовались ВФХ $C(V)$, которые представлены на рис. 1.

В координатах $1/C^2 - V$ характеристики до облучения были линейными, что свидетельствует о резком

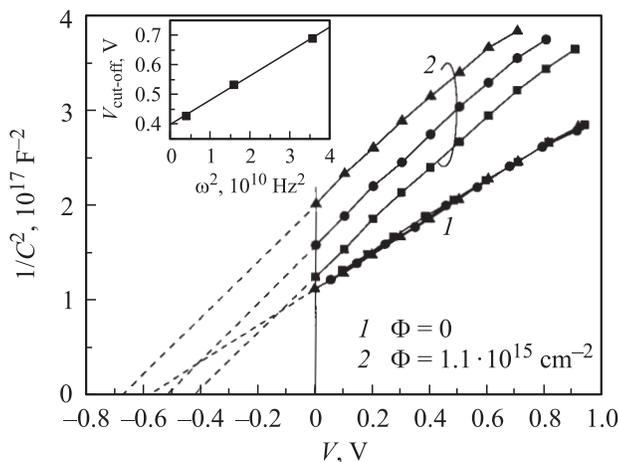


Рис. 1. ВФХ гетероструктур ИТО–GaSe в зависимости от дозы облучения при частотах 10, 20, 30 кГц. На вставке — частотная зависимость емкостного напряжения отсечки. Температура измерения $T = 293 \text{ K}$.

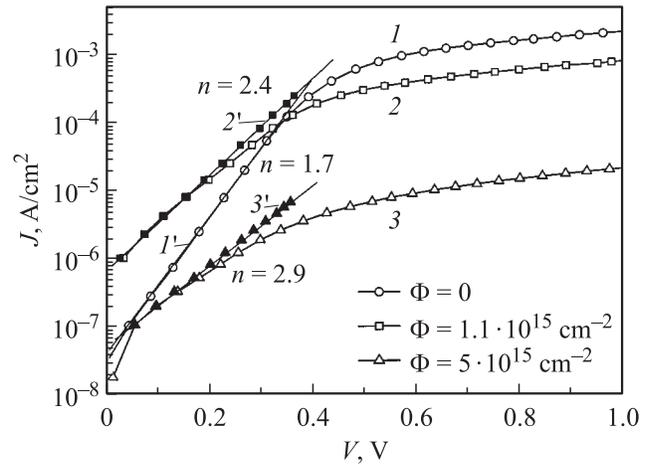


Рис. 2. Прямые ветви ВАХ гетероструктур ИТО–GaSe в зависимости от дозы облучения (1–3). (1'–3') — участки ВАХ, построенные с учетом последовательного сопротивления R_s , прямые линии отвечают зависимости $J \propto \exp[q(V - JR_s)/nkT]$. Температура измерения $T = 293 \text{ K}$.

характере p – n -перехода, и не зависели от частоты тестирующего сигнала. Величина диффузионного потенциала V_D составляла 0.6 В. Концентрация нескомпенсированных акцепторных примесей N_a , определенная из наклона ВФХ, составляла $1.1 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ и практически совпадала с концентрацией носителей заряда, полученной из холловских измерений.

Особенностью ВФХ структур ИТО–GaSe после воздействия быстрых нейтронов с флюенсом $\Phi = 1.1 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ является то, что при разных частотах тестирующего сигнала емкостное напряжение отсечки $V_{\text{cut-off}}$ различно. Это вызвано влиянием на измерение емкости последовательного сопротивления гетероперехода, основной вклад в которое дает объемная часть GaSe. Согласно [6], для определения истинного значения V_D необходимо полученные отсечки емкостного напряжения экстраполировать к нулевой частоте по закону $V_{\text{cut-off}} \propto \omega^2$, где $\omega = 2\pi f$, f — частота тестирующего сигнала. Такая зависимость показана на вставке к рис. 1. Полученное значение составляет 0.4 В. Концентрация нескомпенсированных акцепторных примесей в этом случае равнялась $6 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$.

Исследование ВФХ для случая флюенса $\Phi = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ показало, что высота потенциального барьера для серии структур колеблется в пределах 2–3 эВ и не имеет воспроизводимого характера. В используемом частотном диапазоне измерения ВФХ наблюдалась слабая зависимость емкости от напряжения смещения, что является следствием значительного роста последовательного сопротивления структуры.

Уменьшение напряжения холостого хода исследуемых ГС также отображает динамику изменения высоты потенциального барьера с облучением.

Результаты исследований темновых ВАХ $J(V)$ структур ИТО–GaSe для разных флюенсов приведены на

рис. 2. Начальный участок ВАХ при малых прямых смещениях можно сопоставить с зависимостью [7]

$$J = J_0[\exp(qV/nkT) - 1], \quad (1)$$

где J_0 — ток, зависимостью которого от напряжения V можно пренебречь, q — заряд электрона, k — постоянная Больцмана, T — температура. Диодный коэффициент n , входящий в формулу (1), составлял для серии необлученных структур ~ 1.7 . Отличный от единицы коэффициент n наблюдается в том случае, когда наряду с диффузионным током

$$J_d = (qD_p p_{n0}/L_p + qD_n n_{p0}/L_p)[\exp(qV/kT) - 1]$$

существенным становится протекание рекомбинационного тока [8]

$$J_{gr} = (qn_i W/2\tau_i)[\exp(qV/2kT) - 1].$$

Общий ток тогда можно представить в виде

$$J = J_d + J_{gr}.$$

На значение диодного коэффициента в реальных структурах также влияют шунтирующие токи, величина которых зависит от тщательности приготовления образцов ГС. Они приводят к росту темнового тока насыщения, не зависят от полярности приложенного напряжения и могут иметь разную полевую зависимость для разных образцов.

Вольт-амперные характеристики при больших прямых напряжениях отклоняются от экспоненциального закона, что связано с перераспределением падения напряжения между барьерной и квазилинейными областями ГС. Поэтому для больших плотностей тока ВАХ отображают в основном перенос заряда через последовательное сопротивление, а не истинный механизм прохождения тока через потенциальный барьер. В этом случае ВАХ следует закону Ома $V = JR_s$, где R_s определяет сопротивление квазинейтральных областей GaSe. Величина R_s для необлученных образцов находилась в пределах 100–200 Ом·см².

Анализ приведенных ВАХ дает возможность сделать вывод, что при облучении флюенсом $\Phi = 1.1 \cdot 10^{15}$ см⁻² значительно возрастают токи при малых прямых смещениях. Диодный коэффициент n увеличивается от 1.7 до 2.4 и 2.9 для облученных разными флюенсами структур (рис. 2). Рост n указывает на рост шунтирующих токов ГС после облучения, причиной которого является дополнительное дефектообразование, вызванное радиацией. Для флюенсов $\Phi = 1.1 \cdot 10^{15}$ и $5 \cdot 10^{15}$ см⁻² токи, которые определяются квазинейтральными областями, уменьшаются соответственно в 10 и 100 раз.

На рис. 2 показано изменение кривых ВАХ с учетом последовательного сопротивления R_s . Величина R_s , определенная из импедансных исследований ГС, при разных частотах составляла $\sim 10^4$ Ом·см² при температуре

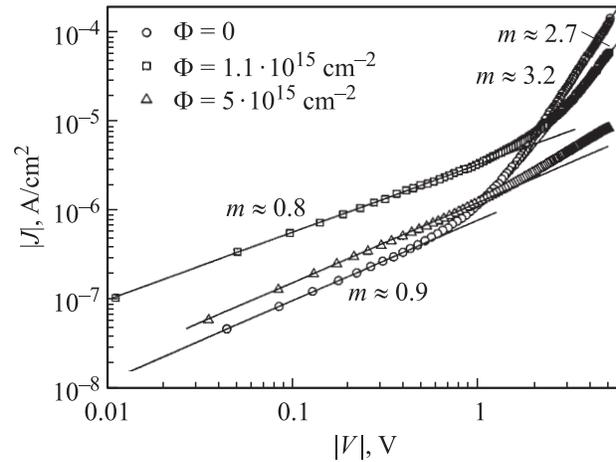


Рис. 3. Обратные ветви ВАХ гетероструктур ИТО–GaSe в зависимости от дозы облучения. Температура измерения $T = 293$ К.

$T = 293$ К. Тогда зависимость (1) можно представить в виде

$$J = J_0\{\exp[q(V - JR_s)/nkT] - 1\}. \quad (2)$$

На рис. 2 показаны ВАХ, перестроенные в координатах J от $V - JR_s$ (точки и прямые 1'–3'). Хорошо видно, что пологие кривые трансформируются в линейные зависимости.

На увеличение последовательного сопротивления структуры могут влиять много факторов. Обычно изменение R_s при росте флюенса нейтронов связывают с уменьшением проводимости материала базы [9]. Однако, как показано в [3], нейтронное облучение нелегированного GaSe при потоках $10^{11} - 10^{14}$ см⁻² существенно не влияет на величину удельного сопротивления полупроводника, хотя приводит к уменьшению подвижности носителей тока и концентрации акцепторов. Поэтому для выяснения причины существенного уменьшения прямых токов в облученных образцах было исследовано также влияние быстрых нейтронов на вырожденный полупроводник ИТО. Результаты измерения поверхностного сопротивления напыленных пленок показывают, что его начальная величина 80 Ом/□ возрастает до 500 Ом/□ для флюенса $\Phi = 1.1 \cdot 10^{15}$ см⁻² и до 2000 Ом/□ при $\Phi = 5 \cdot 10^{15}$ см⁻². Возможной причиной роста сопротивления является структурная деградация ИТО. Вследствие малой толщины нейтронное облучение приводит к многочисленным разрывам пленки и образованию „островковой“ структуры.

Анализ обратных ветвей ВАХ дает возможность сделать вывод, что полевые зависимости обратных токов испытывают незначительные изменения. Как видно из рис. 3, ток возрастает для облученных образцов, что указывает на рост шунтирующих токов, как и в случае прямых ветвей ВАХ. Обратные токи во всем диапазоне напряжений подчиняются закону $J \propto V^m$. Для смещений $|V| < 1$ В показатель m не изменяется с об-

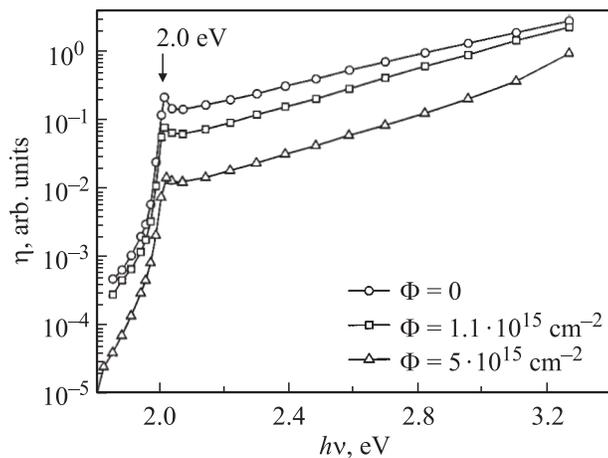


Рис. 4. Спектры квантовой эффективности фотопреобразования гетероструктур ИТО–GaSe в зависимости от дозы облучения.

лучением и равняется 0.8–0.9, причем для флюенса $\Phi = 1.1 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ сублинейный ход кривой ВАХ наблюдается во всем интервале исследуемых напряжений. При больших обратных смещениях показатель степени возрастает до $m \approx 2.7\text{--}3.2$. Теория токов, ограниченных пространственным зарядом, предусматривает случай наблюдения омического участка ВАХ и кубической зависимости тока от напряжения [10].

Гетероструктуры ИТО–GaSe проявляют фоточувствительность в широкой области энергий фотонов $h\nu$ (рис. 4). В результате нейтронного облучения наблюдалась общая тенденция к снижению фоточувствительности. В коротковолновой области спад квантовой эффективности фотопреобразования η составил 20 и 70% для флюенсов $\Phi = 1.1 \cdot 10^{15}$ и $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ соответственно в сравнении с начальным значением. Тем не менее видно, что даже для максимальных значений флюенса $\Phi = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ спектральный контур не только не изменяется принципиально, но даже сохраняет все детали. В области примесной проводимости, независимо от величины Φ , с $h\nu \gtrsim 1.7 \text{ эВ}$ начинается рост квантовой эффективности фотопреобразования. До энергии фотонов $h\nu \approx 2 \text{ эВ}$ эффективность возрастает относительно медленно. При $h\nu > 2 \text{ эВ}$ в спектрах $\eta(h\nu)$ наблюдается быстрый экспоненциальный рост, что отвечает краю собственного поглощения в GaSe. Для необлученного образца крутизна составляет $S_0 = d \ln \eta / d h \nu \approx 96 \text{ эВ}^{-1}$. Значения крутизны S незначительно уменьшаются с ростом величины флюенса (не больше 30% от S_0). Дальнейший рост фоточувствительности для энергий $h\nu > 2.0 \text{ эВ}$ связан с монотонным ростом коэффициента поглощения [7] и свидетельствует о высоком качестве гетеропереходов, в частности об инертности границы раздела ИТО–GaSe по отношению к проникающему излучению.

Как видно из рис. 4, для ГС ИТО–GaSe наблюдается тонкая структура спектра в длинноволновой области,

которая отвечает экситонному поглощению света в GaSe. Известно, что в несовершенных кристаллах тонкая структура экситонных спектров исчезает. В нашем случае зарегистрировано только незначительное уменьшение интенсивности экситонного пика с облучением, которое свидетельствует о сохранении структуры слоистого полупроводника на фоне внесенных радиационных дефектов. В сравнении с необлученными структурами квантовая эффективность фототока облученных гетеропереходов ИТО–GaSe уменьшается практически одинаково во всем диапазоне энергий фотонов.

Полученные результаты можно свести к следующему. При влиянии нейтронного облучения наблюдается классическая картина возникновения значительной концентрации дефектов [11]. Как показано в [12], дефекты, возникающие при γ -облучении, содержат вакансии селена V_{Se} , что объяснялось особенностями слоистой структуры GaSe, которая предполагает более слабую связь селена в решетке. Как результат, существует большая вероятность выбивания селена при облучении. Наши экспериментальные данные позволяют утверждать, что примесь диспрозия, интеркалированная в межслоевое пространство при легировании, аннигилирует с дефектами в структуре полупроводника, в частности с вакансиями селена. При этом происходит внедрение атомов диспрозия в слои, и их роль как ковалентных мостиков, увеличивающих проводимость, аннулируется. Это приводит к росту с облучением удельного сопротивления полупроводниковой базы. При этом существенный вклад в повышение общего сопротивления структуры вносит увеличение сопротивления пленки вырожденного полупроводника ИТО.

4. Заключение

По результатам проведенных исследований можно сделать следующие выводы. Влияние нейтронного облучения сводится к образованию радиационных дефектов компенсирующего типа и структурным изменениям в пленках ИТО. Оно приводит к существенному увеличению сопротивления структур. Рост диодного коэффициента указывает на возрастающую роль шунтирующих токов после облучения. Вместе с тем незначительные изменения в спектрах фотоответа тонкой структуры экситона доказывают сохранение при облучении структурного совершенства GaSe на фоне внесенных радиационных дефектов.

Список литературы

- [1] К.Д. Товстюк. *Полупроводниковое материаловедение* (Киев, Наук. думка, 1984).
- [2] C. De Blasi, D. Manno, A. Rizzo. *J. Cryst. Growth*, **100**, 347 (1990).
- [3] Г.Б. Абдулаев, А.З. Абасова, К.А. Аскеров, Ф.А. Зайтов, Э.Ю. Салаев, В.И. Стафеев. *Неорг. матер.*, **19**(4), 679 (1983).

- [4] Г.Б. Абдулаев, А.З. Абасова, Ф.А. Зайтов, Л.С. Лепнев, В.И. Стафеев, В.Н. Чукунина. ФТП, **16** (6), 1136 (1982).
- [5] A.L. Dawar, J.C. Joshi, J. Review. J. Mater. Sci., **19** (1), 1 (1984).
- [6] A.M. Goodman. J. Appl. Phys., **34** (2), 329 (1963).
- [7] С. Зи. *Физика полупроводниковых приборов* (М., Мир, 1984) т. 2.
- [8] K.Ng Kwok. *Complete guide to semiconductor devices* (N. Y., McGraw-Hill, 1995).
- [9] A.Y.C. Yu, E.H. Snow. IEEE Trans., **NS-16** (6), 220 (1969).
- [10] Р. Ламберт, П. Марк. *Инжекционные токи в твердых телах* (М., Мир, 1973).
- [11] Ф.П. Коршунов, Г.В. Гатальский, Г.М. Иванов. *Радиационные эффекты в полупроводниковых приборах* (М., Наука и техника, 1978).
- [12] А.З. Абасова, Ф.А. Зайтов. ФТП, **20** (4), 613 (1986).

Редактор Л.В. Шаронова

Influence of the neutron irradiation on the photoelectrical parameters of ITO–GaSe structures

Z.D. Kovalyuk, P.G. Litovchenko*, O.A. Politanska, O.N. Sydor, V.N. Katerynychuk, V.F. Lastovetsky*, O.P. Litovchenko*, V.K. Dubovoy*, L.A. Polivtsev*

Institute for Problems of Materials Science,
Chernovtsy Department,
National Academy of Sciences of Ukraine,
58001 Chernovtsy, Ukraine

* Institute for Nuclear Research,
National Academy of Sciences of Ukraine,
03028 Kiev, Ukraine

Abstract An influence of fast neutrons with the energy of 1 MeV on photoelectric parameters of ITO–GaAs heterojunctions is investigated. It is shown that the observed changes of current–voltage characteristics are caused by the influence of penetrating irradiation of the both components of the structures that leads to a significant growth of the heterojunction resistance. The presence of the exciton fine structure in the photoresponse spectra after irradiation indicates that despite of introduced radiation defects GaSe keeps its structural perfection. The obtained results are explained by a spatial redistribution of the dopant in GaSe and structural changes in the ITO films.