Релаксационный характер диэлектрического отклика кристаллов Cd_{1-x}Zn_xTe, выращенных из расплава

© И.А. Клименко, В.К. Комарь*, В.П. Мигаль, Д.П. Наливайко*

Государственный аэрокосмический университет им. Н.Е. Жуковского "ХАИ",

61070 Харьков, Украина

* НТК "Институт монокристаллов" Национальной академии наук Украины,

61001 Харьков, Украина

(Получена 14 августа 2000 г. Принята к печати 16 августа 2000 г.)

Показано, что низкочастотный диэлектрический отклик кристаллов $Cd_{1-x}Zn_xTe$, выращенных из расплава, определяется макроскопическими ростовыми дефектами и их упругими и электрическими полями. Взаимосогласованная перестройка этих полей при внешнем воздействии обусловливает изменение характера диэлектрического отклика, в котором отражаются особенности изменения крупномасштабного потенциального рельефа.

Удачное сочетание высоких транспортных свойств неравновесных носителей заряда и большого удельного сопротивления кристаллов Cd_{1-x}Zn_xTe (CZT) делает их наиболее перспективным материалом для детектирования ионизирующих излучений при комнатной температуре. Однако кристаллы CZT, занимая промежуточное положение между полупроводниками и диэлектриками, вследствие существенно неравновесных условий роста характеризуются многообразием ростовых дефектов. Это обусловливает необходимость применять для их исследования и контроля качества как методы, традиционные для полупроводников [1], так и для диэлектриков [2]. Цель данной работы — выявление тех особенностей диэлектрического отклика кристаллов CZT, которые связаны с взаимодействием упругих и электрических полей, порождаемых в пьезоэлектрическом кристалле многообразием ростовых дефектов.

Исследовались кристаллы $Cd_{1-x}Zn_xTe$ (x = 0.1-0.2), выращенные методом вертикальной кристаллизации из расплава под давлением инертного газа. Для указанного интервала составов характерно оптимальное сочетание высокого удельного сопротивления с необходимыми для детектирования излучения транспортными свойствами неравновесных носителей. Многообразие дефектов роста создает геометрический микрорельеф на поверхности химически полированного кристалла, который визуализировали теневым методом. Остаточные напряжения ростовых дефектов в исследованных образцах выявляли оптико-поляризационным методом. На противоположные грани образцов, имеющих размеры $11 \times 11 \times 2 \,\mathrm{MM}^3$ и $5 \times 5 \times 2$ мм³, были нанесены индий-галлиевые или золотые контакты. Диэлектрические параметры ε' и ε'' образцов измеряли в диапазоне 10²-10⁷ Гц по емкостной методике. Для исследования температурных зависимостей вещественной ε' и мнимой ε'' частей комплексной диэлектрической проницаемости ε^* образцы помещали в термостат, температуру в котором изменяли в диапазоне от 290 до 440 К с постоянной скоростью 0.5 К/мин.

Результаты темновых и оптико-поляризационных исследований показали, что большинство образцов характеризуется сложным неоднородным распределением ростовых дефектов по кристаллу. В этих образцах выявлены границы блоков, включений, а также отдельных полос двойникования и скольжения. Такие дефекты порождают в пьезоэлектрическом кристалле крупномасштабные упругие и электрические поля.

В частотных зависимостях $\varepsilon'(\omega)$ и $\varepsilon''(\omega)$ образцов, измеренных при подсветке излучением из области фоточувстительности, выявлена область дисперсии релаксационного типа. Как показал анализ этих зависимостей в комплексной плоскости (с помощью диаграмм Коул-Коула), она характеризуется непрерывным распределением времен релаксации, для которого свойственно уменьшение наиболее вероятного времени релаксации при увеличении интенсивности фотовозбуждения. При этом глубина дисперсии и наиболее вероятное время релаксации являются индивидуальной характеристикой образца. Подобные зависимости наблюдались нами ранее на кристаллах $ZnS_{1-x}Se_x$, и, как было показано в работе [3], они отражают особенности крупномасштабного потенциального рельефа (КПР). Отметим, что при малых интенсивностях возбуждения характер частотных зависимостей ε' и ε'' не зависит от длины волны, а спектральные зависимости ε' и ε'' подобны.

Релаксационный характер диэлектрического отлика кристаллов CZT при фотовозбуждении проявляется в различии спектральных зависимостей низкочастотной диэлектрической проницаемости $\varepsilon'(\lambda)$ и коэффициента диэлектрических потерь $\varepsilon''(\lambda)$. Эти зависимости, представленные в виде диаграмм на комплексной плоскости $\varepsilon^*(\lambda)$, дают возможность выявить влияние упругих полей ростовых дефектов на фотодиэлектрический отклик [4]. Так, диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$ образцов CZT с разной плотностью ростовых дефектов принципиально отличаются. Для наиболее оптически однородных образцов характерны диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$ в виде отрезка прямой (рис. 1, кривая 1), которые отличаются лишь наклоном. Диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$ образцов, содержащих одиночные ростовые дефекты, состоят из дугообразных участков разной кривизны (рис. 1, кривая 2). Установлено, что количество дуг в них, степень их выраженности и площадь диаграмм явно коррелируют с плотностью



Рис. 1. Диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$ для образцов $Cd_{1-x}Zn_xTe$, отличающихся плотностью ростовых дефектов. Параметры измерений: $f = 10^3 \Gamma \mu$, T = 293 K, значения длин волн λ соответствуют различным значкам, как указано на рисунке.

ростовых двумерных дефектов структуры, создающих остаточные напряжения второго рода. Отметим, что диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$ индивидуальны для каждого отдельного кристалла. Вид диаграмм $\varepsilon^*(\lambda)$ кристаллов CZT с повышенной плотностью ростовых дефектов свидетельствует о сложном характере релаксационных процессов при фотовозбуждении. Во-первых, у этих кристаллов на диаграммах проявляются участки кривых, где $d\varepsilon''/d\varepsilon' < 0$ (рис. 1, кривые 3–5). Во-вторых, у образцов с большими темновыми диэлектрическими потерями значение ε'' вблизи собственного максимума меньше темнового уровня ε'' (рис. 1, кривые 4, 5). Более того, у нескольких образцов значение ε'' на свету во всем диапазоне фоточувствительности меньше "стартового" темнового значения, т.е. наблюдаются "отрицательные" фотодиэлектрические потери (рис. 1, кривая 5).

Такой характер фотодиэлектрического отклика, очевидно, связан с тем, что заполнение КПР неравновесными носителями заряда сопровождается его перестройкой. При этом характер перестройки определяется:

а) размахом и масштабом флуктуаций потенциала, определяемых типом и плотностью ростовых дефектов,

 б) степенью взаимосвязи между упругим и электрическим полями, порождаемыми ростовыми дефектами,

 в) электрическим состоянием кристалла, которое изменяется с увеличением концентрации неравновесных носителей заряда.

Естественно, что в таком пьезоэлектрическом кристалле существенное влияние на степень противодействия упругой и электрической подсистем кристалла изменению своего состояния (согласно пьезоэлектрического аналога закона Ленца) оказывают тип и плотность доминирующих ростовых дефектов. Следовательно, особенности низкочастотного диэлектрического отклика тесно связаны с внутренними полями, а те в свою очередь оказывают существенное влияние на процессы транспорта, накопления и рекомбинации неравновесных носителей заряда. Поэтому, на наш взгляд, особенности диэлектрического отклика отражают информацию об условиях роста, адаптация к которым и обусловила взаимосвязь перекрывающихся полей ростовых дефектов.

Исходя из этого изменение знака приращения ε'' на свету, наблюдающееся на некоторых кристаллах, очевидно, объясняется тем, что диэлектрический отклик кристаллов при фотовозбуждении связан с двумя конкурирующими процессами. С увеличением экранирования неравновесными носителями заряда внутреннего поля и изменением граничных условий в кристалле один процесс может плавно переходить в другой. Поэтому следовало ожидать, что диэлектрический отклик будет иметь подобный характер и при повышении температуры, при котором уменьшается уровень остаточных напряжений и увеличивается экранирование внутреннего поля. Действительно, при нагреве кристалла диэлектрические потери сначала нелинейно возрастают и при достижении некоторого значения температуры, индивидуального для каждого образца, прирост ε'' сменяется убылью, т.е. зависимость $\varepsilon''(T)$ содержит максимум. Отметим, что именно в области максимума наблюдается наиболее быстрое увеличение ε' . Примечательно, что зависимости $\varepsilon'(T)$ и $\varepsilon''(T)$, полученные при нагреве образца, несколько отличаются от таких же, полученных при охлаждении, что свидетельствует о зависимости диэлектрического отклика от термической предыстории. На диаграммах $\varepsilon^*(T)$ цикла нагрев-охлаждение, полученных на основе зависимостей $\varepsilon'(T)$ и $\varepsilon''(T)$ для наиболее неоднородных образцов, можно выделить дугообразные участки с $d\varepsilon''/d\varepsilon' < 0$ и > 0 (рис. 2, кривая 1), которые по аналогии с дугообразными участками диаграмм $\varepsilon^*(\lambda)$



Рис. 2. Диаграммы $\varepsilon^*(T)$ (кривые 1, 7, штриховые линии) и диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$ (кривые 2–6) образцов $Cd_{1-x}Zn_xTe$ ($f = 10^3 \Gamma \mu$). Значения длин волн λ и температуры T соответствуют различным значкам, как указано на рисунке.

Физика и техника полупроводников, 2001, том 35, вып. 4

свидетельствуют о релаксационном характере диэлектрического отклика. Отметим также, что повышение температуры образцов, у которых диэлектрические потери на свету во всем диапазоне фоточувствительности меньше темновых, также приводит к уменьшению ε'' . Это дает основание утверждать, что стартовые значения ε' и ε'' , измеренные на частоте из области дисперсии, интегрально отражают термоупругую историю роста кристалла, которая и приводит к КПР.

Характер изменения формы диаграмм $\varepsilon^*(\lambda)$, полученных при нагреве образца, носит закономерный характер (рис. 2, кривые 2-6). Это проявляется в изменении приращений ε' и ε'' на свету, изменении кривизны и протяженности дугообразных участков, а также в изменении характеров приращений ε'' на свету. Так, при температуре образца, превышающей значение, соответствующее максимуму $\varepsilon''(T)$, воздействие света приводит к уменьшению коэффициента диэлектрических потерь во всем диапазоне фоточувствительности. Как было уже показано выше, подобный характер фотодиэлектрического отклика наблюдался на некоторых исследованных образцах при комнатной температуре. Примечательно, что если стартовые значения диэлектрических параметров увеличить с помощью подсветки, то диаграмма $\varepsilon^*(T)$ содержит участок убыли диэлектрической проницаемости, который плавно переходит в участок убыли диэлектрических потерь (см. кривую 7). Эти результаты подтверждают доминирующее влияние упругих полей ростовых дефектов на формирование КПР, вследствие чего распределения упругого и электрического полей в кристалле подобны. Об этом свидетельствует также то, что влияние фоновой подстветки на вид диаграмм $\varepsilon^*(\lambda)$ подобно влиянию нагрева образца. При фоновой подстветке повышаются стартовые уровни ε' и ε'' , а также в наибольшей мере изменяются участки диаграмм $\varepsilon^*(\lambda)$ вблизи краев полосы фоточувствительности. Более того, увеличивая интенсивность подсветки, можно в пределах всей полосы фоточувствительности получить значение ε'' меньше стартового.

Тот факт, что релаксационный характер фотодиэлектрического отклика некоторых кристаллов CZT может быть существенно изменен путем дополнительной фоновой подсветки, либо изменением температуры, указывает на самосогласованную перестройку электрических и упругих полей некоторых ростовых дефектов. Это приводит к изменению распределения времен релаксации, что проявляется в изменении дугообразных участков диаграмм $\varepsilon^*(\lambda)$. Можно предположить, что уменьшение диэлектрических потерь на свету в области собственного максимума, наблюдающееся на некоторых кристаллах, связано с увеличением при перестройке КПР отдельных барьеров, которые затрудняют протекание сквозных токов и одновременно способствуют росту поляризованности. Это подтверждают исследования фотодиэлектрического отклика оптически однородных образцов, снабженных блокирующими контактами. Вид полученной диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$ подобен кривой 1 на рис. 2.

Таким образом, индивидуальные черты, присущие диэлектрическому отклику некоторых кристаллов СZT, тесно связаны с многообразием макроскопических ростовых дефектов и порождаемых ими упругих и электрических полей. Взаимосогласованная перестройка этих полей при внешнем воздействии обусловливает изменение характера диэлектрического отклика и влияет на транспортные свойства данных кристаллов.

Список литературы

- V. Komar, A. Gektin, D. Nalivaiko, I. Klimenko, V. Migal, O. Panchuk, A. Rybka. *11th Int. workshop on room temperature semiconductor X- and gamma-ray detectors and associated electronics*, Oct. 11–15, Vienna, Austria (1999) p. 8.
- [2] I.A. Klimenko, V.K. Komar, V.P. Migal, D.P. Nalivaiko. Functional Materials, 7 (1), 1113 (2000).
- [3] В.П. Мигаль, А.Л. Рвачев, О.Н. Чугай. ФТП, 19 (8), 1517 (1985).
- [4] Ю.А. Загоруйко, В.К. Комарь, В.П. Мигаль. О.Н. Чугай. ФТП, 29 (6), 1065 (1995).

Редактор Т.А. Полянская

Relaxation character of the dielectric response of grown-from-the-melt $Cd_{1-x}Zn_xTe$ crystals

I.A. Klimenko, V.K. Komar*, V.P. Migal, D.P. Nalivaiko*

State Aerospace University "KhAI", 61070 Kharkov, Ukraine * STS Insitute for Single Crystals, Natioanl Academy of Sciences of Ukraine, 61001 Kharkov, Ukraine

Abstract It has been shown that the low-frequency dielectric response of grown-from-the-melt $Cd_{1-x}Zn_xTe$ crystals is determined by macroscopic as-grown defects and their elastic and electric fields. The relaxation of these fields under the action of external forces causes changes in the dielectric response according to the large-scale potential relief distortions.