

Обобщенный характер диэлектрического отклика кристаллов CdTe, выращенных из расплава

© И.А. Клименко, В.П. Мигаль

Национальный аэрокосмический университет им. Н.Е. Жуковского "ХАИ",
61070 Харьков, Украина

(Получена 23 августа 2001 г. Принята к печати 27 сентября 2001 г.)

Установлено, что особенности фотодиэлектрического отклика кристаллов CdTe, выращенных из расплава, обусловлены ансамблями макроскопических ростовых дефектов. Показано, что анализ диаграмм $\varepsilon^*(\lambda)$ и $\varepsilon^*(X)$, характеризующих зависимости комплексной диэлектрической проницаемости от длины волны и координаты, как графических образов последовательностей индуцированных состояний кристалла, позволяет идентифицировать ансамбли макроскопических ростовых дефектов — источников внутренних полей.

Выращенные из расплава кристаллы CdTe являются перспективными высокоомными полупроводниковыми материалами для γ -спектроскопии. Они обычно содержат различные типы макроскопических ростовых дефектов (МРД), которые представляют собой источники внутренних взаимосвязанных упругих и электрических полей и существенно влияют на транспортные свойства [1]. Выявление и идентификация таких дефектов, а также определение их зарядового состояния традиционными для полупроводников методами исследования затруднены из-за высокого удельного сопротивления материала. Упругие и электрические поля, порожденные МРД в пьезоэлектрических кристаллах $A^{IV}B^{VI}$, определяют особенности зависимостей действительной (ε') и мнимой (ε'') частей комплексной диэлектрической проницаемости (ε^*) от длины волны фотовозбуждения (λ) и температуры (T), которые наиболее полно отражают диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$ и $\varepsilon^*(T)$ на фазовой плоскости $\{\varepsilon', \varepsilon''\}$ [2–4]. В работе [2] показано, что вид диаграмм $\varepsilon^*(\lambda)$ зависит от интенсивности фотовозбуждения, а также от размеров и координаты светового зонда. Сложность энергетического и релаксационного спектров данных кристаллов, а также индивидуальный характер их диэлектрического отклика обуславливают необходимость развития обобщенного подхода к обработке и анализу экспериментальных результатов, что являлось основной целью данной работы.

Исследовались кристаллы CdTe, выращенные при различных условиях методом вертикальной кристаллизации из расплава под высоким давлением инертного газа (до 100 атм). МРД выявляли и исследовали методами травления, инфракрасной микроскопии и теневым методом. Остаточные напряжения, создаваемые ростовыми дефектами в исследованных образцах, определяли оптико-поляризационным методом. На противоположные грани образцов, имеющих размеры $11 \times 11 \times 2$ и $5 \times 5 \times 2$ мм³, были нанесены индий-галлиевые или золотые контакты. Диэлектрическую проницаемость ε' и коэффициент диэлектрических потерь ε'' измеряли в диапазоне частот $f = 10^2$ – 10^7 Гц по емкостной методике. Фотодиэлектрический отклик исследовали в области низкочастотной дисперсии. Удельное сопротив-

ление ρ образцов измеряли четырехзондовым методом ($\rho < 10^{10}$ Ом · см).

Установлено, что условия выращивания существенно влияют на форму фронта кристаллизации и обуславливают многообразие типов МРД. В кристаллах CdTe, выращенных при большой кривизне фронта кристаллизации, наблюдаются преципитаты Te и Cd, трубчатые и сферические поры. Эти кристаллы также обладают разнообразием двумерных дефектов структуры (декорированные примесями межблочные границы, двойники и полосы скольжения и др.) и флуктуациями состава, которые обнаруживаются методом травления, а также в теневых и оптико-поляризационных картинах [1].

Характер распределения МРД и порождаемых ими взаимосвязанных упругих и электрических полей определяет особенности низкочастотного диэлектрического отклика кристаллов CdTe [3]. Это обуславливает индивидуальность диаграмм $\varepsilon^*(\lambda)$ каждого отдельного образца [3,4]. У образцов, содержащих множество МРД, выявляемых оптическими и другими методами, диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$, полученные при интегративном фотовозбуждении всего образца, состоят из разного количества дугообразных участков (рис. 1, кривая 1). Они могут также содержать обособленные частные диаграммы, а также участки, где $d\varepsilon''/d\varepsilon' < 0$. Существенные различия диаграмм наблюдаются даже у образцов, изготовленных из одного слитка, однако диаграммы образцов, изготовленных из близлежащих областей слитка, часто оказываются подобными. Для их сопоставительного анализа оказалось возможным использовать критерии геометрического подобия, рассматривая диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$ как своеобразные графические образы, обобщенно характеризующие фотодиэлектрический отклик кристалла. Диаграммы $\varepsilon_x^*(\lambda)$, полученные при фотовозбуждении монохроматическим зондом шириной менее 100 мкм близлежащих участков кристалла, геометрически более подобны, чем диаграммы, измеренные при возбуждении пространственно удаленных участков или разных образцов. Их геометрическая форма более проста и симметрична, чем у диаграмм, полученных при интегративном фотовозбуждении (рис. 1, кривые 2, 3). Такие диаграммы различаются лишь приращениями ε' и ε'' на свету, а

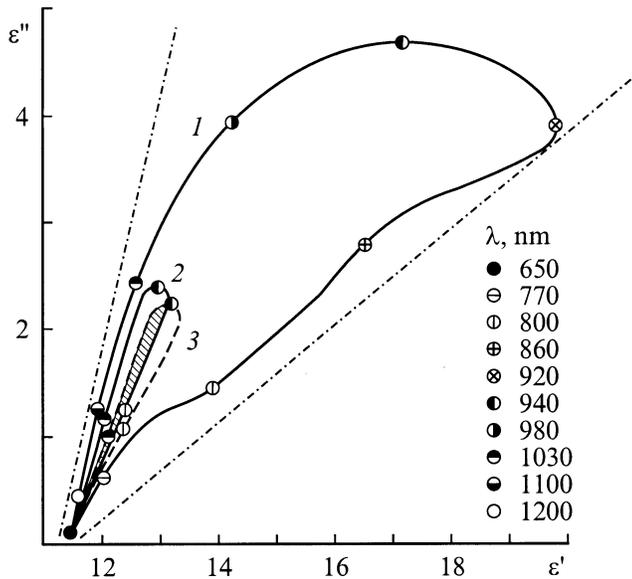


Рис. 1. Диаграммы $\varepsilon^*(\lambda)$, полученные при фотовозбуждении всего образца (1), а также диаграммы $\varepsilon_X^*(\lambda)$, полученные при зондовом фотовозбуждении (2,3). Частота $f = 10^3$ Гц, температура $T = 293$ К. Указаны длины волн λ .

также охватываемыми ими областями на фазовой плоскости. При этом площадь перекрытия диаграмм ΔS , полученных при фотовозбуждении близлежащих участков образца X_n и X_{n+1} (заштрихованная область на рис. 1), изменяется с координатой зонда X сложным образом. Установлено также, что при увеличении ширины зонда подобие диаграмм $\varepsilon_X^*(\lambda)$ нарушается. Это наводит на мысль о связи выявленных особенностей этих диаграмм с влиянием внутренних полей, порожденных МРД, на зарядовое состояние сложных центров, ответственных за фоточувствительность. Так, полученные при сканировании световым зондом шириной 100 мкм на длине волны вблизи собственного максимума фоточувствительности координатные зависимости $\varepsilon'(X)$ и $\varepsilon''(X)$ содержат ряд локальных экстремумов, количество и распределение которых являются индивидуальными характеристиками кристалла (рис. 2, кривые 1,2). При этом оказалось, что диаграммы $\varepsilon^*(X)$ на фазовой плоскости, полученные на основе этих зависимостей, представляют собой совокупность макроскопических участков разного характера (линейных, ступенеобразных, дугообразных, петелевидных и др.) (рис. 3). Подчеркнем, что некоторые участки имеют вид обособленных частных диаграмм (они отмечены на рисунке стрелками), что позволяет рассматривать их как отображение своеобразных ансамблей МРД. Увеличение интенсивности фотовозбуждения приводит к изменению диаграмм $\varepsilon^*(X)$. При этом до некоторого критического уровня интенсивности Φ_c геометрическое подобие сохраняется.

Такой характер изменения диэлектрического отклика по образцу, отображаемый диаграммой $\varepsilon^*(X)$, свиде-

тельствует о зональном распределении некоторых совокупностей МРД, что частично подтверждают результаты оптико-поляризационных и теневых исследований. Сложный, индивидуальный характер диаграмм и их зависимость от многих факторов обуславливают необходимость поиска обобщенного подхода к анализу особенностей диэлектрического отклика данных кристаллов. В частности, такой подход может основываться на представлениях о метастабильных и индуцированных состояниях кристалла. Ведь все образцы из слитка CdTe находятся в разных метастабильных состояниях, которые отображаются множеством точек ε_T^* в секторе фазовой плоскости и могут быть изменены термообработкой [4]. С другой стороны, в кристалле селенида цинка при внешнем воздействии F (фотовозбуждение, термическое воздействие, давление и т. п.) индуцируется состояние, которое также отображается точкой ε_T^* в

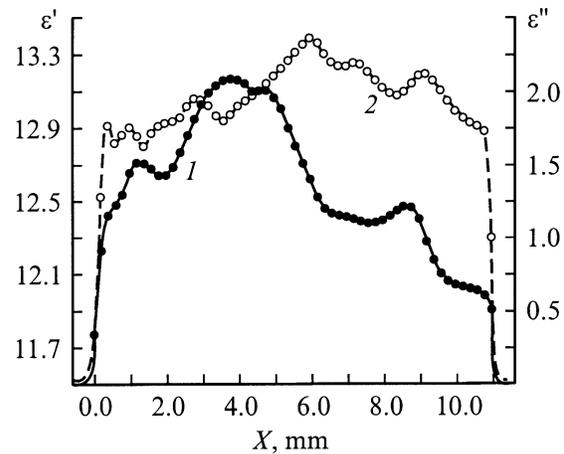


Рис. 2. Зависимости $\varepsilon'(X)$ (1) и $\varepsilon''(X)$ (2) образца CdTe, полученные при зондовом фотовозбуждении. Частота $f = 10^3$ Гц, температура $T = 293$ К, ширина зонда 100 мкм. Точки соответствуют разным положениям зонда с шагом 0.2 мм.

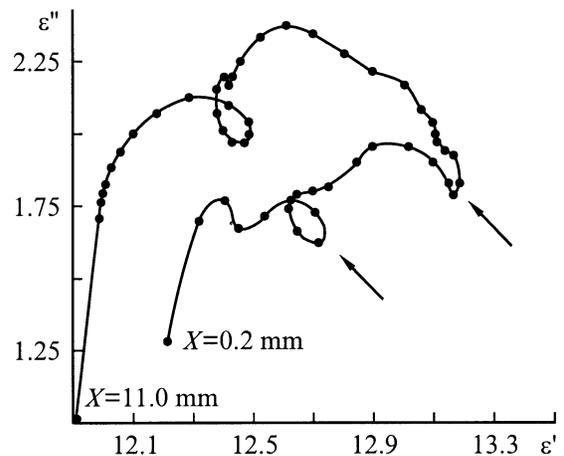


Рис. 3. Диаграмма $\varepsilon^*(X)$ образца CdTe. Частота $f = 10^3$ Гц, температура $T = 293$ К, ширина зонда 100 мкм. Точки соответствуют разным положениям зонда с шагом 0.2 мм.

фазовой плоскости, а диаграммы $\varepsilon^*(F)$ являются характеристическими признаками метастабильного состояния [5]. Тогда можно предположить, что совокупность точек в области, охватываемой диаграммой $\varepsilon^*(\lambda)$ (рис. 1, кривая 1), представляет собой подмножество энергетически разрешенных индуцированных состояний, которое в фазовой плоскости отображает соответствующий графический образ. Следовательно, площадь S , охватываемая диаграммой $\varepsilon_X^*(\lambda)$, полученной при локальном фотовозбуждении (рис. 1, кривая 2), представляет собой область или подмножество возможных индуцированных состояний $\varepsilon_1^*, \varepsilon_2^*, \dots$, имеющих свой обобщенный графический образ. Действительно, изменяя длину волны и уменьшая интенсивность зонда, можно получить любое значение ε_i^* из данного подмножества. В рамках данных представлений отношение площади перекрытия ΔS двух соседних диаграмм $\varepsilon_X^*(\lambda)$ к их средней площади $(S_1 + S_2)/2$, т.е. $2\Delta S/(S_1 + S_2)$, представляет собой некоторый корреляционный параметр K , определяющий долю "общих" индуцированных состояний. Очевидно, он характеризует степень взаимосвязи между определенными совокупностями МРД.

При зондовом фотовозбуждении в кристалле индуцируется i -е состояние, которое отображается в фазовой плоскости точкой $\varepsilon^*(X_i)$, а последовательность значений $\varepsilon^*(X_i)$ в пределах каждого указанного выше участка представляет собой подмножество разрешенных по координате X индуцированных состояний. В рамках данного подхода каждому из указанных выше участков диаграммы $\varepsilon^*(X)$ можно поставить в соответствие подмножество индуцированных состояний. При этом с каждым таким подмножеством связан соответствующий графический образ в фазовой плоскости, вид которого (линии, петли, дуги и т.п.) определяется характером взаимодействия совокупности МРД. Это позволяет по виду графического образа идентифицировать ансамбли МРД, а также определять координаты подобных им ансамблей. Так, участки, отмеченные на диаграмме $\varepsilon^*(X)$ стрелкой (рис. 3), которые отображаются обособленными графическими образами, естественно связать с включениями. Особого внимания заслуживают петлеобразные участки диаграммы, которые характеризуются прямой (по часовой стрелке) или обратной последовательностью индуцированных состояний, что можно рассматривать как противоположное зарядовое состояние совокупности МРД. Эти области кристалла являются как бы стоками или истоками внутренних полей, порождаемых совокупностью МРД. Макроскопические области кристалла, которым соответствуют выделенные участки диаграммы $\varepsilon^*(X)$, различаются также характером распределения сложных центров, ответственных за фоточувствительность. Очевидно также, что характер распределения этих центров и их зарядовое состояние определяются последовательностью МРД на конкретном участке образца. Отметим сохранение элементов подобия графических образов на диаграммах $\varepsilon^*(X)$ при увеличении интенсивности зонда Φ до некой критической Φ_c , которая явля-

ется индивидуальной характеристикой каждого образца, а также нахождение новых индуцированных состояний в пределах сектора, показанного на рис. 1 штрихпунктирной линией.

В ряде образцов с увеличением интенсивности зонда $\Phi > \Phi_c$ обнаружена трансформация некоторых участков диаграммы $\varepsilon^*(X)$, которая включает сглаживание и объединение некоторых участков, а также переход петель в частную диаграмму или наоборот. Установлено также, что трансформация тех же участков диаграмм происходит и при нагреве образца. Очевидно, кристалл как система противодействует изменению своего метастабильного состояния в соответствии с принципом Ле Шателье или пьезоэлектрическим аналогом закона Ленца. Существующая причинно-следственная связь между совокупностью ансамблей МРД, отображаемых подмножествами индивидуальных состояний, и условиями роста проявляется в характере последовательности графических образов, т.е. в диаграмме $\varepsilon^*(X)$, а также в структурированности отдельных ансамблей, отображаемой определенными графическими образами, например петлями. Как видим, декомпозицию системы "реальный кристалл" можно осуществить посредством разделения диаграммы $\varepsilon^*(X)$ на последовательность участков, каждый из которых отображается соответствующим графическим образом в фазовой плоскости. Это позволяет посредством сопоставительного анализа: а) определить количество ансамблей МРД в образце (слитке) и наличие среди них подобных, б) выявить стоки и истоки полей, создаваемых некой совокупностью МРД, в) определить координаты ансамблей МРД, изменяющих свои функции при интенсивной нагрузке, г) выявить элементы структурированности МРД кристаллов CdTe, связанные с сильно неравновесными условиями роста.

Таким образом, несмотря на разнообразие МРД в данных кристаллах и кажущийся случайный характер их распределения по объему, развиваемый подход к анализу обобщенного диэлектрического отклика открывает возможность не только идентифицировать отдельные совокупности МРД по их графическим образам и функциональным признакам, но и по их последовательности, а также по изменению ее при интенсивных нагрузках, выделить факторы роста, оказывающие доминирующее влияние на формирование электрофизических свойств данных кристаллов. Все это особенно важно для функциональных пьезоэлектрических кристаллов, исследование которых известными методами дает неоднозначные результаты. Полученные результаты положены в основу методики идентификации ростовых дефектов и диагностики качества данных кристаллов.

Список литературы

- [1] V. Komar, A. Gektin, D. Nalivaiko, I. Klimenko, V. Migal, O. Panchuk, A. Rybka. Nucl. Instr. Meth. A, 458, 113 (2001).
- [2] И.А. Клименко, В.К. Комарь, В.П. Мигаль, Д.П. Наливайко. ФТП, 35 (2), 139 (2001).

- [3] И.А. Клименко, В.К. Комарь, В.П. Мигаль, Д.П. Наливайко. ФТП, **35** (4), 403 (2001).
- [4] I.A. Klimenko, V.P. Migal. Functional materials, **8** (2), 395 (2001).
- [5] В.П. Мигаль, ФТП, **35** (10), 1188 (2001).

Редактор Л.В. Шаронова

Generalized features of the dielectric response of CdTe crystals grown from the melt

I.A. Klimenko, V.P. Migal

State Aerospace University "KhAI",
61070 Kharkov, Ukraine

Abstract It has been found that features of the photodielectric response of CdTe crystals grown from the melt are caused by macroscopic as-grown defect ensembles. It is shown that analysis of diagrams $\epsilon^*(\lambda)$ and $\epsilon^*(X)$ (the dependence of complex dielectric function on wavelength or coordinate) as graphic images of the sequences of induced states of the crystal allow us to identify macroscopic growth defect ensembles that are sources of internal fields.