# Фоточувствительность пленок $Pb_{1-x}Sn_xTe\langle In \rangle$ в терагерцовой области спектра

© А.Н. Акимов, В.Г. Ерков, В.В. Кубарев\*, Е.Л. Молодцова, А.Э. Климов<sup>¶</sup>, В.Н. Шумский

Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия \* Институт ядерной физики Сибирского отделения Российской академии наук,

630090 Новосибирск, Россия

(Получена 6 июня 2005 г. Принята к печати 21 июня 2005 г.)

В жидком гелии в пленках  $Pb_{1-x}Sn_xTe\langle In \rangle/BaF_2$  обнаружено увеличение тока под воздействием лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 336.8$  мкм (частота ~  $0.9 \cdot 10^{12} \Gamma \mu$ ), которое не может быть объяснено разогревом образца. Наблюдаемое время релаксации фотосигнала не превосходит постоянной времени *RC* измерительной цепи, составлявшей доли секунды, и значительно меньше, чем при освещении в фундаментальной полосе поглощения  $Pb_{1-x}Sn_xTe\langle In \rangle$ . Полученные результаты объясняются увеличением низкочастотной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon$  вследствие возбуждения фотонами субмиллиметрового диапазона длин волн одного или двух поперечных оптических фононов вблизи центра зоны Бриллюэна на ветви, ответственной за сегнетоэлектрический фазовый переход. Это приводит к увеличению ограниченного объемным зарядом инжекционного тока из контактов без генерации свободных носителей заряда в объеме.

PACS: 78.66.Li

#### 1. Введение

Изменение проводимости соединений группы А<sup>IV</sup>В<sup>VI</sup> под воздействием излучения дальнего инфракрасного (ИК) лиапазона наблюлалось в работах [1.2]. В [1] была обнаружена фотопроводимость (ФП) в PbTe(Ga) в области частот 100−460 см<sup>-1</sup>. Возникновение ФП авторы связали с резонансным возбуждением локальной моды колебаний, соответствующей метастабильному примесному состоянию и переходу в зону проводимости электронов, до того локализованных на примесном центре. О фотопроводимости  $Pb_{1-x}Sn_xTe\langle In \rangle$  (COT $\langle In \rangle$ ) на длинах волн  $\lambda = 90$  и 116 мкм сообщалось в работе [2]. Чувствительность в этих диапазонах спектра определялась с помощью набора оптических фильтов. Авторы указывают, что фототок наблюдается при энергии фотонов, значительно меньших, чем термическая активационная энергия основного примесного состояния, и объясняют эффект, как и в [1], возбуждением электронов, находящихся на локальных метастабильных состояниях.

В работах [3–5] было установлено, что вольт-амперные характеристики (ВАХ) и вольт-фарадные характеристики в темноте и при освещении в пленках COT $\langle In \rangle$ связаны с инжекционным механизмом протекания тока при его ограничении объемным зарядом (ТООЗ) и наличии ловушек для электронов, а также с сегнетоэлектрическим фазовым переходом (СЭФП) с точкой Кюри  $T_C$ вблизи 18–20 К.

В [6] было показано, что зависимость фотосигнала от температуры источника излучения типа "абсолютно черное тело" в интервале  $T_{bb} = 20-70$  К объясняется наличием фоточувствительности COT $\langle In \rangle$  в диапазоне длин волн 300–400 мкм.

Цель данной работы заключалась в исследовании особенностей фотоответа при воздействии на  $COT\langle In \rangle$  субмиллиметровым лазерным излучением (СЛИ).

#### 2. Эксперимент

В качестве источника СЛИ использовался универсальный непрерывный терагерцовый лазер с высокочастотной накачкой [7]. В описываемом эксперименте он работал как HCN-лазер с длиной волны 336.8 мкм и пониженным уровнем выходной мощности, составившей 0.03–0.04 Вт при диаметре луча ~ 5 см. Образец представлял собой пленку  $Pb_{0.74}Sn_{0.26}Te\langle In \rangle$  толщиной 1 мкм с содержанием индия ~ 2 ат%, к которой были сформированы два индиевых контакта с расстоянием между ними (шириной зазора) 0.15 см и длиной зазора 0.2 см. Для обеспечения хорошего теплоотвода образец был закреплен на медном основании с использованием индий-галлиевой эвтектики, а контроль разогрева основания под действием СЛИ осуществлялся с помощью германиевого датчика температуры (рис. 1).

Образец с основанием и датчиком был экранирован от фонового излучения двойным слоем черной бумаги и размещался в криостате непосредственно в жидком гелии напротив пластмассовых оптических окон. Коэффициент пропускания СЛИ двумя окнами криостата (теплым и холодным) и черной бумагой был измерен непосредственно и составил ~ 5%. Освещенность СЛИ в месте расположения образца составляла 0.005 Вт/см<sup>2</sup>, изменение температуры германиевого датчика, расположенного на медном основании, при открытой заслонке лазера составляло  $\Delta T_{Ge} \approx 0.0025$  К.

Вольт-амперная характеристика образца при температуре T = 4.2 К без освещения  $I_0(V)$  и относительное изменение тока при освещении  $(I - I_0)/I_0$  приведены на рис. 2.

<sup>¶</sup> E-mail: klimov@thermo.isp.nsc.ru



**Рис. 1.** Схема расположения экспериментального образца: I — пленка COT $\langle In \rangle$ , 2 — подложка BaF<sub>2</sub>, 3 — индиевые контакты, 4 — слой индий-галлиевой эвтектики, 5 — медное основание, 6 — германиевый датчик температуры.



**Рис. 2.** Экспериментальная вольт-амперная характеристика образца без освещения (*I*), относительное изменение тока  $(I - I_0)/I_0$  под действием СЛИ (*2*) и расчетное относительное изменение тока  $(I - I_0)/I_0$  вследствие увеличения температуры образца под действием лазерного излучения на величину  $\Delta T = 0.045 \text{ K}$  (*3*) и 0.14 K (*4*).

Характерной особенностью экспериментальных данных является то, что отношение  $(I - I_0)/I_0$  уменьшается с ростом напряжения. Это качественно соответствует представлениям об инжекционном характере измеряемых токов [5] в предположении заметного разогрева образца под действием СЛИ. Согласно этим представлениям, наклон температурной зависимости тока уменьшается с ростом напряжения, что должно вести и к уменьшению  $(I - I_0)/I_0$ .

#### 3. Обсуждение результатов

Таким образом, основной вопрос обсуждения связан с тем, является ли изменение тока при освещении СЛИ следствием только роста температуры образца или имеются и другие механизмы его увеличения. Ответом на этот вопрос может служить сравнение эксперимента с расчетными характеристиками, построенными на основе измеренных температурных зависимостей  $I_0$ .

Измерение температурных зависимостей тока через образец без освещения было проведено в той же конфигурации, что и на рис. 1, на отдельном держателе. На рис. 3 приведены зависимости  $I_0$  от обратной температуры вблизи T = 4.2 К при различных напряжениях V на образце, которые можно аппроксимировать выражением

$$I_0(T) = I_0|_{T=4.2\,\mathrm{K}} \exp\left(-\frac{\Delta E(T,V)}{kT}\right).$$

Значения "эффективной энергии активации"  $\Delta E(T, V)$  рассчитывались для каждых двух соседних экспериментальных точек соответствующих кривых на рис. 3, и с использованием полученных зависимостей  $\Delta E(T)$  определялись значения  $\Delta E(V)$  при T = 4.2 К. Полученная зависимость  $\Delta E(V)$  при температуре жидкого гелия показана на рис. 4.



**Рис. 3.** Температурные зависимости тока без освещения при напряжении на образце V = 6.22 (1), 10.3 (2), 15.2 (3), 19.9 (4), 24.5 (5), 30 (6), 35.1 B (7).



**Рис. 4.** Зависимость "эффективной энергии активации"  $\Delta E$  от напряжения на образце при T = 4.2 К без освещения.

Физика и техника полупроводников, 2006, том 40, вып. 2

Относительное расчетное изменение тока вследствие увеличения температуры образца выражается как

$$\frac{I - I_0}{I_0} = \exp\left(\frac{\Delta E}{kT_0} \cdot \frac{\Delta T}{T_0}\right) - 1$$

где I — ток после включения СЛИ, а  $T_0 = 4.2$  К.

Если считать, что изменение температуры образца  $\Delta T$  равно полученному экспериментально значению изменения температуры германиевого термометра  $\Delta T_{\rm Ge} \approx 0.0025 \, {\rm K}$ , то даже для максимальных значений  $\Delta E \approx 0.0025$  эВ (рис. 2) относительное расчетное изменение тока составляет величину  $(I - I_0)/I_0 \approx 0.004$ и примерно на 2 порядка меньше наблюдаемого в эксперименте. Выделяемая на образце джоулева мощность даже при максимальных напряжениях смещения не превышала величину  $IV = 4 \cdot 10^{-6}$  Вт, что на 1.5 порядка меньше падающей на образец мощности, составившей  $P_{\text{SLI}} = 1.5 \cdot 10^{-4}$  Вт. Это означает, что даже если разогрев пленки COT(In) существенно выше разогрева датчика температуры из-за разных параметров теплообмена, то изменение температуры образца определяется в основном поглощением СЛИ и не зависит от напряжения.

В предположении постоянства  $\Delta T$  при любых значениях V не удается получить удовлетворительного согласия экспериментальных и расчетных кривых. Это видно из приведенных на рис. 2 расчетных зависимостей 3, 4, полученных с "привязкой" к экспериментальной кривой 2 при больших и малых напряжениях смещения. Таким образом, предположение о разогреве образца под воздействием СЛИ как о единственной причине увеличения тока не соответствует экспериментальным данным и, следовательно, существует другой механизм, обеспечивающий изменение тока.

При обсуждении такого механизма мы будем исходить из следующих положений.

1) При  $T_C \approx 18-20$  К в СОТ $\langle In \rangle$  с x = 0.25 происходит СЭФП, и статическая диэлектрическая проницаемость убывает от  $\varepsilon \approx 200\,000$  при  $T = T_C$  до  $\varepsilon \approx 2000$  при T = 4.2 К [3,4]. В соответствии с работами В.Л. Гинзбурга [8] и В. Кохрена [9] СЭФП происходит из-за ангармонизма одной из ветвей поперечных оптических колебаний в центре зоны Бриллюэна. Указанный ангармонизм приводит к нестабильности колебаний и уменьшению их частоты (размягчению моды) до нуля при  $T_C$ , ее возрастанию при дальнейшем уменьшении температуры и переходе в низко симметричную (сегнетоэлектрическую) фазу. Для СОТ это подтверждается данными [10].

2) Токи в пленках СОТ $\langle In \rangle$  после перехода в "диэлектрическое состояние" при  $T \leq 20$  К ограничены объемным зарядом и инжекцией носителей заряда из контактов [5], при этом в пленках имеются ловушки, на которые захватываются неравновесные электроны.

Физика и техника полупроводников, 2006, том 40, вып. 2

Ток, ограниченный объемным зарядом, на квадратичном участке до перехода к режиму полного заполнения ловушек записывается как

$$I = I_0 \theta = \varepsilon \varepsilon_0 \mu w \, \frac{V^2}{L^3} \, \frac{g N_c}{N_t} \, \exp\left(\frac{E_t - E_c}{kT}\right), \qquad (1)$$

где  $\varepsilon_0$  — электрическая постоянная,  $\varepsilon$  — статическая диэлектрическая проницаемость COT $\langle In \rangle$ ,  $\mu$  — подвижность электронов, w — длина зазора, V — приложенное напряжение, L — ширина зазора;

$$\theta = \frac{gN_c}{N_t} \exp\left(\frac{E_t - E_c}{kT}\right)$$

— величина, определяющая отношение токов, ограниченных объемным зарядом, до начала и после заполнения ловушек, g — коэффициент спинового вырождения,  $E_t$  и  $E_c$  — энергии залегания ловушек и дна зоны проводимости, а  $N_t$  и  $N_c$  — концентрации ловушек и эффективная плотность состояний в зоне проводимости.

В [5] было показано, что ВАХ пленок  $COT\langle In \rangle$  соответствует зависимости (1), причем только при учете температурной и полевой зависимости низкочастотной диэлектрической проницаемости.

Обсудим теперь возможные механизмы увеличения тока при воздействии СЛИ. В принципе не исключено, что в эксперименте может наблюдаться примесная фотопроводимость при возбуждении электронов с мелких ловушек. Однако из теории ТООЗ следует, что как в случае моноэнергетических ловушек, так и в случае ловушек, однородно или экспоненциально распределенных по запрещенной зоне, фототок должен быть пропорционален квадрату напряжения, что в эксперименте не наблюдается. Кроме того, глубина залегания ловушек, определенная в [5], составляет ~ 6 мэВ, в то время как энергия фотона в данной работе составляла  $\hbar\omega = 3.68$  мэВ и, по крайней мере при малых напряжениях, эти ловушки практически не заполнены.

В [3,4] было обнаружено, что освещение пленки СОТ $\langle In \rangle$  излучением за краем фундаментального поглощения приводит к возрастанию  $\varepsilon$  и соответственно емкостной компоненты проводимости при почти не изменяющейся активной компоненте, т. е. возможно поглощение излучения, не связанное с изменением активной проводимости.

Именно этот эффект, по нашему мнению, ответственен за избыточное по сравнению с влиянием изменения температуры образца увеличение тока при воздействии СЛИ.

Наше предположение заключается в том, что фотоны СЛИ с длиной волны 336.8 мкм ( $\hbar\omega = 3.68$  мэВ) могут поглощаться с рождением поперечного оптического фонона "мягкой" моды в центре зоны Бриллюэна. Вероятность поглощения кванта при таком однофононном процессе есть [11]

$$W \sim \left[\sum_{i} \frac{e_i^*}{\sqrt{M_i}}\right]^2 \frac{1}{\omega_{\rm TO}} (n_{\rm TO} + 1) \delta(\omega_{\rm TO} - \omega). \quad (2)$$

Множитель в квадратных скобках содержит заряд  $(e_i^*)$ и массу  $(M_i)$  иона и отличен от нуля в том случае, когда поперечные оптические колебания связаны с электрическим дипольным моментом, а  $\delta$ -функция определяет узкую полосу поглощения при частоте поперечного оптического фонона,  $\omega = \omega_{\text{TO}}$ . Формула (2) не учитывает обратные фонон-фотонные переходы, которые пропорциональны  $n_{\text{TO}}$  — числу фононов данной моды. С их учетом (2) не зависит от  $n_{\text{TO}}$ .

При T = 4.2 К пленка находится в низкосимметричной фазе, число поперечных оптических фононов очень мало, а их частота  $\omega_{\text{TO}}$  отлична от нуля, так как температура существенно ниже температуры СЭФП. Поглощение ИК фотонов приводит к рождению фононов с энергией  $\hbar\omega_{\text{TO}}$ , т. е. к возникновению колебаний моды, ответственной за СЭФП, и увеличению статической диэлектрической проницаемости. В свою очередь это ведет, в соответствии с (1), к возрастанию полного тока, который ограничен объемным зарядом.

Однако для эффективного поглощения фотонов необходимо, чтобы энергия оптического фонона в центре зоны Бриллюэна не сильно отличалась от энергии лазерного излучения и была по крайней мере меньше нее. Энергию оптического фонона можно найти из соотношения Лиддена–Сакса–Теллера

$$\omega_{\rm TO}^2 = \omega_{\rm LO}^2 \frac{\varepsilon_\infty}{\varepsilon}.$$
 (3)

Частота продольного оптического фонона, по данным работ [12,13], при T = 4.2 К составляет  $\omega_{\rm LO} = 105$  см<sup>-1</sup>, температурная зависимость  $\varepsilon$  известна из изменения емкости [3,4], а значение высокочастотной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{\infty}$  можно оценить следующим образом. Если принять, что для PbTe при T = 4.2 К  $\varepsilon_{\infty} = 40$  [12], и воспользоваться соотношением Мотта

$$\varepsilon_{\infty}^{2}(\text{Pb}_{0.25}\text{Sn}_{0.75}\text{Te}) = \varepsilon_{\infty}^{2}(\text{PbTe}) \frac{E_{g}(\text{Pb}_{0.25}\text{Sn}_{0.75}\text{Te})}{E_{g}(\text{PbTe})}$$

 $(E_g -$ ширина запрещенной зоны), то для (3) получим  $\varepsilon_{\infty} = 21.3$ . Отсюда значение энергии поперечного оптического фонона  $\hbar\omega_{\rm TO} = 1.8$  мэВ. Это значение близко к величине (1.55 мэВ), которую можно получить, например, из данных работы [10].

Если значение  $\hbar\omega_{TO}$  оценено верно, то однофононное поглощение для использованного в данной работе субмиллиметрового лазерного излучения должно отсутствовать. Однако вблизи центра зоны Бриллюэна может осуществляться и двухфононное поглощение с рождением фононов с противоположными значениями квазиимпульсов.

Прояснить ситуацию могут измерения температурных зависимостей ВАХ при воздействии лазерного излучения, которые в настоящий момент готовятся.

## 4. Заключение

Обнаружен эффект увеличения тока в пленках COT(In) при воздействии лазерного излучения с длиной волны 336.8 мкм. Этот эффект не объясняется разо-

гревом образца излучением или генерацией свободных носителей заряда в объеме  $COT\langle In \rangle$ , а связан с поглощением фотона вблизи центра зоны Бриллюэна с образованием одного или, что более вероятно, двух поперечных оптических фононов на ветви, ответственной за сегнетоэлектрический фазовый переход. Образование фононов под действием излучения приводит к увеличению низкочастотной диэлектрической проницаемости и соответствующему возрастанию полного тока, который ограничен объемным зарядом.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 05-02-08022).

### Список литературы

- А.И. Белогорохов, И.И. Иванчик, С.В. Пономарев, Е.И. Слынько, Д.Р. Хохлов. Письма ЖЭТФ, 63, 342 (1996).
- [2] D.R. Khokhlov, I.I. Ivanchik, S.N. Rains, D.M. Watson, J.L. Pipher. Appl. Phys. Lett., 76, 2835 (2000).
- [3] А.Э. Климов, В.Н. Шумский. Автометрия, 3, 65 (2001).
- [4] A.E. Klimov, V.N. Shumsky. Optoelectronics Instrumentation and Date Processing, 3, 53 (2001).
- [5] А.Н. Акимов, В.Г. Ерков, А.Э. Климов, Е.Л. Молодцова, С.П. Супрун, В.Н. Шумский. ФТП, **39**, 563 (2005).
- [6] A.E. Klimov, V.N. Shumsky. Proc. SPIE, 5126, 341 (2003).
- [7] В.В. Кубарев. Квант электрон., 23, 197 (1996).
- [8] В.Л. Гинзбург. УФН, 38, 490 (1949).
- [9] W. Cochran. Adv. Phys., 9, 387 (1960).
- [10] А.И. Белогорохов, А.Г. Белов, И.Г. Неизвестный, Ю.А. Пусеп, М.П. Синюков. ЖЭТФ, 92, 869 (1987).
- [11] О. Маделунг. *Теория твердого тела* (М., Наука, 1980). [Пер. с нем.: О. Madelung. *Festkorpertheorie I, II* (Springer-Verlag, Berlin, N. Y., Heidelberg, 1972)].
- [12] S. Takaoka, T. Hamaguchi, S. Shimomura, K. Murase. Sol. St. Commun., 54, 99 (1985).
- [13] N. Romcevic, Z.V. Popovic, D.R. Khokhlov, A.V. Nikorich, W. Konig. Infr. Phys., **31**, 225 (1991).

Редактор Л.В. Шаронова

# Photosensitivity of $Pb_{1-x}Sn_xTe\langle In \rangle$ films within the terahertz spectral range

A.N. Akimov, V.G. Erkov, V.V. Kubarev\*, E.L. Molodtsova, A.E. Klimov, V.N. Shumsky

Institute of Semiconductor Physics, Russian Academy of Sciences, Siberian Branch, 630090 Novosibirsk, Russia \* Institute of Nuclear Physics, Russian Academy of Sciences, Siberian Branch, 630090 Novosibirsk, Russia

**Abstract** An increase of conductivity is observed under liquid helium temperatures in  $Pb_{1-x}Sn_xTe\langle In\rangle/BaF_2$  films illuminated with laser radiation of  $\lambda = 336.8 \,\mu\text{m}$  ( $f = 0.9 \cdot 10^{12} \,\text{Hz}$ ). This effect cannot be related to the sample heating. The measured photosignal relaxation time is no higher than the RC constant of the measuring equipment, which equals fractions of a second. It is also significantly shorter than the value measured for absorption in the fundamental range for  $Pb_{1-x}Sn_xTe\langle In\rangle$ . This can result from the increase of low-frequency permittivity  $\varepsilon$ , due to photonstimulated generation of one or two transverse optical phonons. The phonons are generated near the center of the Brilloin's zone on the branch, corresponding to the ferroelectric phase transition. This results in an increased injection from contacts limited by space charge without generation of free charge carriers in the bulk.