Н.М. Литовченко¹, Ю.Н. Насека¹, А.В. Прохорович¹, Л.В. Рашковецкий¹, О.Н. Стрильчук¹, Ф.Ф. Сизов¹, О.О. Войциховская², Б.А. Данильченко²

АНАЛИЗ ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КРИСТАЛЛОВ *p*-Cd_{1-x}Zn_xTe, ОБЛУЧЕННЫХ γ-КВАНТАМИ

Изучено влияние облучения потоками γ -квантов (доза 10—500 кГр) на низкотемпературную (T = 5 К) фотолюминесценцию кристаллов Cd_{1-x}Zn_xTe (x = 0,04). Наблюдались стимулированные γ -облучением: а) существенное уменьшение интенсивностей исходных (ростовых) полос люминесценции, обусловленных донорно-акцепторными парами ($hv_m = 1,552$ эВ), мелкими акцепторами ($hv_m = 1,578$ зВ), а также связанными на мелких нейтральних акцепторах ($hv_m = 1,585$ эВ и $hv_m = 1,591$ зВ) и донорах ($hv_m = 1,592$ зВ и $hv_m = 1,595$ зВ) экситонами вследствие уменьшения концентрации соответствующих центров люминесценции, из-за их взаимодействия с радиационными дефектами; б) появление новых полос люминесценции, обусловленных, вероятнее всего, радиационно-стимулированными вакансиями кадмия (V_{Cd}), связанными с иными дефектами (донорноакцепторными парами, $hv_m = 1,550$ зВ) и изолированными вакансиями кадмия ($hv_m = 1,568$ зВ). Интенсивность радиационно-стимулированных полос немонотонно изменяется с возрастанием дозы γ облучения: сначала увеличивается при низких Φ_{γ} (из-за повышения концентрации вакансий кадмия), а затем значительно уменьшается при высоких Φ_{γ} (из-за генерации значительного количества эффективных центров безизлучательной рекомбинации избыточных носителей тока).

Ключевые слова: кристаллы Cd_{1-x}Zn_xTe, γ-облучение, радиационные дефекты, низкотемпературная фотолюминесценция.

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время одним из основных требований, предъявляемых к изготовителям детекторов инфракрасного излучения на основе монокристаллов тройных соединений CdZnTe, является их безотказная работоспособность в условиях повышенного радиационного фона. Это и обусловливает постоянно возрастающий интерес к изучению влияния облучения высокоэнергетическими частицами на физические свойства интерметаллических соединений CdZnTe. Результаты исследований позволяют сделать важные выводы о радиационном дефектообразовании в них, что помогает оптимально скорректировать технологию изготовления детекторов инфракрасного излучения на их основе с учетом минимизации влияния радиации на функциональные возможности указанных приборов [1—5]. В настоящей работе приведены сведения о влиянии облучения γ -квантами на фотолюминесценцию указанного соединения. Покажем, что γ -облучение существенно влияет на люминесцентные характеристики кристаллов CdZnTe и обсудим физическую модель процессов, приводящих к этому.

2. МЕТОДИКА

Исследования проводились на кристаллах *p*-Cd_{1-x}Zn_xTe, выращенных методом Бриджмена. Перед исследованиями кристаллы ориентации (111) подвергались химико-механической обработке в травителе бром-метанол [6]. Содержание цинка в исследуемых кристалах определя-

© <u>Н.М. Литовченко</u>, Ю.Н. Насека, А.В. Прохорович, Л.В. Рашковецкий, О.Н. Стрильчук, Ф.Ф. Сизов, О.О. Войциховская, Б.А. Данильченко, 2010 лось методом рентгеновской дифрактометрии (x = 0,04). Кристаллы облучались источником ⁶⁰Со (с энергией квантов 1,2 МэВ) в интервале доз 10—500 кГр (поток γ -квантов $N_{\gamma} = 1,69 \cdot 10^{15}$ —8,5 $\cdot 10^{16}$ кв/см²) при комнатной температуре. Спектры фотолюминесценции исследуемых кристаллов p-Cd_{1—x}Zn_xTe изучались при температуре T = 5 К. Люминесценция возбуждалась He—Ne-лазером ЛГH-222 (интенсивность возбуждения $L = 10^{19}$ кв/см² с), энергия квантов hv = 1,96 эВ). Для получения спектров низкотемпературной фотолюминесценции в интервале 1,3—1,7 эВ использовался монохроматор МДР-23, регистрация сигнала осуществлялась охлаждаемым ФЭУ-62.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 приведены спектры низкотемпературной фотолюминесценции кристаллов Cd_{1-x}Zn_xTe (x = 0,04): исходных и облученных различными дозами γ -квантов ($\Phi_{\gamma} \leq 500 \text{ кГр}$), а также их разложение на элементарные составляющие [7—9]. Анализируя наблюдаемые в них полосы люминесценции (их интенсивности *I*, положение максимумов излучения hv_m и полуширины *w*), получаем:

1. В исходных кристаллах наблюдаются такие полосы люминесценции: а) полоса люминесценции с $hv_m = 1,552$ эВ и w = 17,7 мэВ, обусловленная рекомбинацией в созданных мелкими нейтральними донорами D^0 и акцепторами A^0 донорноакцепторных парах (далее полоса D^0A^0), а также две ее фононные реплики, которые смещены относительно основной полосы в область меньших энергий соответственно на 22 и 44 мэВ; б) полоса люминесценции с $hv_m = 1,578$ эВ и w = 18 мэВ, обусловленная переходами свободных электронов *e* на мелкие нейтральные акцепторы A^0 (далее полоса eA^0); в) полосы люминесценции с $hv_m = 1,585$ эВ и w = 7,1мэВ, а также $hv_m = 1,591$ эВ и w = 7,1 мэВ, обусловленные аннигиляцией экситонов *X*, связанных соответственно на мелких нейтральних акцепторах A_1^0 (далее полоса

 $A_1^0 X$) и A_2^0 (далее полоса $A_2^0 X$); г) полосы люминесценции с $hv_m = 1,592$ эВ и w = 2,3 мэВ, а также $hv_m = 1,595$ эВ и w = 5 мэВ, обусловленные аннигиляцией экситонов X, связанных соответственно на мелких нейтральних донорах D_1^0 (далее полоса $D_1^0 X$) и D_2^0 (далее полоса $D_2^0 X$)¹. В диапазоне энергий излучения $hv_m = 1,4$ — 1,5 эВ в спектрах рассмотренных кристаллов полосы люминесценции не наблюдаются. Это указывает на то, что в структуре исходных кристаллов нет глубоких дефектов связанных с А-центрами.

2) Облучение кристаллов $Cd_{1-x}Zn_xTe \gamma$ -квантами приводит: а) к существенному уменьшению интенсивностей исходных полос люминесценции — примесных D^0A^0 , eA^0 и экситонных A_1^0X , A_2^0X , D_1^0X и D_2^0X , вследствие взаимодействия соответствующих люминесцентных центров с радиационными дефектами; б) к появлению новых (с иным по отношению

¹ Экспериментальные значения $h\mathbf{v}_m$ (A^0X , D^0X) при T = 5 К несколько отличаются от ожидаемых для $Cd_{1-x}Zn_x$ Te (x = 0,04) [10, 11]. Это, повидимому, связано с наличием хвостов плотности состояний. Они возникают при сильном легировании либо при большой концентрации дефектов, сильно уменьшая ширину запрещенной зоны указанных кристаллов и поэтому понижая энергетическое положение созданных связанными экситонами центров. Не исключено, что отличие величин $h\mathbf{v}_m$ (A^0X , D^0X), T = 5 К, в данных кристаллах p-Cd_{1-x}Zn_xTe обусловлено тем, что либо они определяются неизвестными, более глубокими примесями, либо существует ряд неизвестных, трудно контролируемых факторов, влияющих на $h\mathbf{v}_m$ [10, 11].



Рис. 1. Спектры фотолюминесценции при T = 5 К исходного (a) и облученных потоками γквантов Φ_γ = 10 (δ), 50 (в), 100 (г) и 500 кГр (д) кристаллов Cd_{1-x}Zn_xTe (x = = 0,04). Пунктиром обозначен результат разложения экспериментальной кривой на элементарные составляющие, которые имеют форму гаусса. Спектры показывают истинные соотношения интенсивностей полос в разных кристаллах

к исходным кристаллам положением максимума люминесценции) интенсивных полос люминесценции, обусловленных радиационно-стимулированными дефектами вакансионного типа, по-видимому, радиационно-индуцированными вакансиями кадмия, которые, как известно, являются мелкими акцепторами в CdTe [12] и, вероятно, в CdZnTe также. О достаточно высокой вероятности выполнения данного предположения свидетельствует следующее: а) концентрация радиационно-созданных вакансий кадмия в облученных кристаллах несколько выше концентрации вакансий теллура [13] (последние индуцируют в Cd_{0.9}Zn_{0.1}Te полосу люминесценции с $hv_m = 1,1$ эВ при T = 4,2 К [12, 14], т. е. полосу люминесценции, которая существенно отличается от наблюдаемой в облученных кристаллах), а также выше концентрации вакансий цинка (это связано с достаточно малым содержанием цинка в исследуемых кристаллах Cd_{0.96}Zn_{0.04}Te); б) следует ожидать, что созданные при уоблучении изолированные и связанные в комплексы с примесями и другими дефектами межузельные атомы решетки Cd_{0.96}Zn_{0.4}Te, как следует из известных для некоторых из них положений созданных ими уровней [4, 12] (они существенно отличаются от соответствующих для наблюдаемых нами у-индуцированных центров люминесценции), не вносят заметного вклада в у-индуцированную люминесценцию. При идентификации схемы електронных переходов, которые приводят к формированию радиационно-стимулированных полос, исходили из того, что указанные значения енергий hv_m характерны для люминесценции, обусловленной рекомбинацией в донорно-акцепторных парах и переходами свободных электронов на мелкие нейтральные акцепторы [4, 7]. Из изложенного выше следует, что урадиация индуцирует появление таких полос люминесценции: a) полосу с $hv_m = bv_m$ 1,550 эВ и w = 16 мэВ, обусловленную ре-комбинацией в донорно-акцепторных парах $D^* V_{Cd}^0$, созданных исходны-



Рис. 2. Дозовые зависимости низкотемпературных (T = 5 К) интенсивностей радиационностимулированных полос люминесценции $D^*V_{Cd}^0$ (1), eV_{Cd}^0 (2), наблюдаемых в γ -облученных кристаллах $Cd_{1-x}Zn_xTe$ (x = 0,04), а также радиационно-стимулированные изменения интенсивностей исходных полос люминесценции $D^0A^0(I')$, $eA^0(2')$, $A_1^0X(3)$, $A_2^0X(4)$, $D_1^0X(5)$ и $D_2^0X(6)$ в исследуемых кристаллах (приведенные зависимости $I(\Phi_{\gamma})$ отображают истинные соотношения между величинами I исходных и облученных кристаллов $Cd_{1-x}Zn_xTe$)



Рис. 3. Дозовые зависимости низкотемпературных (T = 5 К) положений максимума hv_m радиационно-стимулированных полос $D^*V_{Cd}^0$ (I), е V_{Cd}^0 (2), наблюдаемых в γ -облученных кристаллах Cd_{1—x}Zn_xTe (x = = 0,04), а также низкотемпературные значения величин hv_m для исходных полос люминесценции $D^0A^0(I')$, $eA^0(2')$ в необлученных кристаллах Cd_{1—x}Zn_xTe ($\Phi_\gamma = 0$)

ми дефектами (или примесями) донорной природы D^* и радиационноиндуцированными вакансиями кадмия V_{Cd}^0 (далее полоса $D^*V_{Cd}^0$); б) полосу с $hv_m =$ 1,568 эВ и w = 18,3 мэВ, обусловленную переходами свободных електронов на мелкие нейтральные акцепторы, радиационно-стимулированные вакансии кадмия (далее полоса $e V_{Cd}^0$, см. рис. 1, δ).

На рис. 2 приведены зависимости интенсивностей исходных (D^0A^0 , eA^0 , A_1^0X , $A_{2}^{0}X, D_{1}^{0}X, D_{2}^{0}X$) и радиационно-стимулированных ($D^{*}V_{Cd}^{0}$, eV_{Cd}^{0}) полос люминесценции от дозы у-облучения. Как видим, интенсивность исходных полос сначала существенно уменьшается, а начиная с дозы $\Phi_{\gamma} = 10 \ \kappa \Gamma p$ — плавно уменьшается. Это указывает на то, что отмеченные полосы содержат некоторое количество радиационно более стойких центров, что и обусловливает слабую зависимость их интенсивности от дозы радиации. Интенсивность радиационно-стимулированных полос сначала возрастает при низких Φ_{γ} , а затем уменьшается при более высоких значениях Φ_{γ} по закону близкому к $1/\Phi_{\gamma}$ (положение максимума радиационностимулированных примесных полос фактически не изменяется с Ф_у (рис. 3)). Наблюдаемое возрастание интенсивностей полос $D^*V_{Cd}^0$, eV_{Cd}^0 с увеличением дозы увеличением γ-облучения обусловлено концентрации радиационностимулированных вакансий кадмия, а их понижение при високих Φ_{γ} — процессом генерации центров безизлучательной рекомбинации избыточных носителей тока, что приводит к существенному уменьшению концентрации последних.

выводы

 γ -Облучение кристаллов Cd_{1--x}Zn_xTe существенно изменяет вид их низкотемпературных спектров фотолюминесценции: оно приводит к значительному понижению интенсивностей исходных полос люминесценции вследствие уменьшения концентрации центров излучательной рекомбинации из-за их взаимодействия с радиационными дефектами, и к появлению новых люминесцентных полос, обусловленных, вероятнее всего, возникшими под воздействием радиации вакансиями кадмия. Анализ закономерностей изменений интенсивностей полос низкотемпературной фотолюминесценции, наблюдаемых при γ -облучении, является важным для понимания процессов взаимодействия дефектов, содержащихся в исходных кристаллах, и радиационных дефектов, а также для выяснения причин, которые приводят к различной радиационной стойкости интерметаллических полупроводников.

N.M. Litovchenko, Yu.M. Naseka, A.V. Prokhorovich, L.V. Rashkovetskyi, O.M. Strilchuk, F.F. Sizov, O.O. Voitsikhovska, B.O. Danilchenko

ANALYSIS OF PHOTOLUMINESCENCE OF *p*-Cd_{1-x}Zn_xTe CRYS-TALS IRRADIATED BY γ-QUANTA

The effect of irradiation by different doses of γ -quanta (10—500 kGy) at 300 K on the low-temperature (T = 5 K) photoluminescence of Cd_{1-x}Zn_xTe crystals (x = 0,04) has been studied. The following phenomena, stimulated by γ -irradiation, were observed: a) a substantial decrease of intensities of initial (as-grown) emission bands with the emission peak positions $hv_m = 1,552$ eV (caused by donor-acceptor pairs), $hv_m = 1,578$ eV (caused by shallow acceptors), $hv_m = 1,585$, 1,591 and $hv_m =$ 1,592, 1,595 eV (caused by excitons bound by shallow neutral acceptors and donors, accordingly), which originates from lowering of the concentration of the corresponding luminescence centers due to their interaction with radiation defects; b) an appearance of new luminescence bands caused probably by radiation-induced cadmium vacancies bound with defects (by donor-acceptor pairs, $hv_m = 1,550$ eV) and isolated cadmium vacancies ($hv_m = 1,568$ eV). Intensities of radiation-stimulated emission bands nonmonotonically change with the growth of γ -radiation dose: at first it increases at low Φ_{γ} (it is caused by an increase in the concentration of the considerable number of effective radiationless centers of excess charge carriers).

Keywords: $Cd_{1-x}Zn_xTe$ crystals, γ -irradiation, radiation defects, low-temperature photoluminescence.

- Castaldini A., Cavallini A., Fraboni B., Fernandez P., Piqueras J. Deep energy levels in CdTe and CdZnTe // J. Appl. Phys. — 1998. — 83, N 4. — P. 2121—2126.
- Cavallini A., Fraboni B., Dusi W., Zanarini M., Siffert P. Deep levels and compensation in γirradiated CdZnTe // Appl. Phys. Lett. — 2000. — 77, N 20. — P. 3212—3214.
- Вахняк Н.Д., Крилюк С.Г., Крюченко Ю.В., Купчак І.М. Вплив γ-опромінення на характеристики крайової фотолюмінесценції нелегованого CdTe // Журн. фізичних досліджень. — 2002. — 6, № 3. — С. 347—353.
- Cavallini A., Fraboni B., Dusi W., Zanarini M. Defective states induced in CdTe and CdZnTe detectors by high and low energy neutron irradiation // J. of Appl. Phys. 2003. 94, N 5. P. 3135—3142.
- Krylyuk S.G., Korbutyak D.V., Kryuchenko Yu.V., Kupchak I.M., Vakhnyak N.D. Gamma-radiation effect on donor and acceptor states in CdTe and CdTe:Cl // J. Alloys and Compounds. — 2004. — 371. — P. 142—145.
- 6. *Chen H., Tong J., Hu Z. et al.* Low-temperature photoluminescence of detector grade Cd_{1-x}Zn_xTe crystal treated by different chemical etchants // J. Appl. Phys. 1996. **80**, N 6. P. 3509—3512.
- Гавриленко В.И., Грехов А.М., Корбутяк Д.В., Литовченко В.Г. Оптические свойства полупроводников: Справочник. — Киев: Наук. думка, 1987. — 606 с.
- Hjelt K., Juvonen M., Tuomi T. et al. Photoluminescence of Cd_{1-x}Zn_xTe crystals grown by highpressure Bridgman technique // Physica status solidi. — 1997. — 162 (a). — P. 747—763.
- Глинчук К.Д., Герасименко А.С., Комарь В.К. и др. Влияние легирования различными примесями на спектрометрические характеристики кристаллов Cd_{1—x}Zn_xTe (x ≈ ≈ 0,1), используемых для изготовления детекторов ядерного излучения // ОПТ. — Киев: Наук. думка, 2007. — Вып. 42. — С. 65—71.
- Glinchuk K.D., Litovchenko N.M., Prokhorovich A.V., Strilchuk O.N. Analysis of luminescence method for determination of Cd_{1-x}Zn_xTe composition // Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics. — 2005. — 8, N 3. — P. 39—44.
- Glinchuk K.D., Litovchenko N.M., Strilchuk O.N. Analysis of luminescence method applicability for determination of Cd_{1-x}Zn_xTe composition // Ibid. — 2003. — 6, N 2. — P. 121—128.
- Schlesinger T.E., Toney J.E., Yoon H. et al. Cadmium zinc telluride and its use as a nuclear radiation detector material // Mater. Sci. and Eng.: R. — 2001. — 32. — P. 103—189.
- Caillot M. Defect creation rates in CdTe irradiated by electrons // Nuclear Instruments and Methods. — 1978. — 150. — P. 39—42.

14. Schieber M., Schlesinger T.E., James R.B., Goorsky M. Study of impurity segregation, crystallinity, and detector performance of melt-grown cadmium zinc telluride crystals // J. Crystal Growth. — 2002. — 237-239. — P. 2082—2090.

Получено 15.04.2010

¹ Институт физики полупроводников им. В.Е. Лашкарева НАН Украины Проспект Науки, 41 03028 Киев E-mail: <u>naseyur@meta.ua</u> ² Институт физики НАН Украины Проспект Науки, 46 03028 Киев