

Микроскопическое исследование влияния γ -излучения на эпитаксиальные пленки $Pb_{1-x}Mn_xSe$

И. Р. Нуриев^a, Р. М. Мамишова^b, Н. Н. Гаджиева^b, М. А. Рамазанов^c, Р. М. Садыгов^a

^aИнститут физики НАН Азербайджана,

пр. Г. Джавида, 33, г. Баку, AZ-1143, Азербайджанская Республика

^bИнститут радиационных проблем НАН Азербайджана,

ул. Б. Вагабзаде, 9, г. Баку, AZ-1143, Азербайджанская Республика

^cБакинский государственный университет,

ул. Г. Джавида, 23, г. Баку, AZ-1148, Азербайджанская Республика,

e-mail: asi_mr@mail.ru, rexsane@yandex.ru

Методом атомно-силовой микроскопии исследована морфология поверхности эпитаксиальных пленок n - и p -типов селенида марганца свинца ($Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$)) на подложках фторида бария ориентации (111) в исходном состоянии и после воздействия гамма-облучения. Показано, что модификация рельефа поверхности происходит в области поглощенной дозы $5 \leq D_\gamma \leq 35$ кГр. На основе особенностей поверхностных структур установлена инверсия $p \Leftrightarrow n$ переходов при значениях $10 \leq D_\gamma \leq 25$ кГр, что подтверждается электрофизическими измерениями. Выявлено, что выше 35 кГр нарушается радиационная стойкость этих пленок.

УДК 621-315; 548-552; 546-28

ВВЕДЕНИЕ

Поиск радиационно стойких материалов различного типа и разработка новых оптоэлектронных приборов на их основе, предназначенных для инфракрасной области спектра, – важнейшие задачи, стоящие перед современной наукой и техникой. Среди этих материалов особый интерес представляют соединения типа $A^{IV}B^{VI}$ и твердые растворы на их основе. Наличие в кристаллической решетке полупроводников такого типа ионов элементов тяжелых металлов (свинец, олово) обеспечивает высокую радиационную и термическую устойчивость изготовленных на их основе приборов. Указанные полупроводниковые соединения и их твердые растворы в течение долгого времени широко применяются в приборах ИК-техники, работающих в области длин волн 3–5 и 8–14 мкм [1]. Так, за прошедшие годы разработана технология получения эпитаксиальных пленок этих материалов с высокой степенью кристаллического совершенства на различных подложках [2–9]. К ним, в частности, относятся эпитаксиальные пленки твердых растворов $Pb_{1-x}Mn_xSe$. Ионы марганца в составе этих твердых растворов выявляют в них наличие новых качеств, свойственных полумагнитным полупроводникам, и предоставляют широкие возможности для создания на их основе магнитоуправляемых диодов, работающих в ИК-области длин волн 3–5 мкм [10–11]. Ввиду того, что современные оптоэлектронные приборы изготавливаются в основном на поверхности кристаллов, большое значение приобретает ее диагностика [12]. Отслеживание изменений, происходящих на ней под воздействием гамма-

излучения, и выбор эксплуатационных характеристик диодов, изготовленных с использованием этих твердых растворов, с учетом влияния наблюдаемых изменений на физические свойства последних, позволяют прогнозировать их рабочие режимы. С этой точки зрения исследование изменений, происходящих на поверхности эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$), подвергнутых воздействию γ -излучения, в сравнении с исходными образцами представляет особый интерес. В настоящей работе получены трехмерные изображения поверхности и кривые распределения элементов поверхностных изображений по размерам – гистограммы для исходных и подвергнутых воздействию γ -излучения ($D_\gamma = 5–35$ кГр) эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$).

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Эпитаксиальные пленки $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$) были получены на подложках BaF_2 (111) методом конденсации из молекулярного пучка при давлении 10^{-4} Па на стандартной вакуумной установке УВН71-РЗ. Источником служили синтезированные твердые растворы $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$). Совершенство этих пленок исследовалось электронно-графическим, электронно-микроскопическим и рентгенодифрактометрическим методами. Степень кристаллического совершенства, то есть полуширина кривого качания рентгеновского максимума, выраженная в угловых секундах, определена на трехкристальном рентгеновском спектрометре (ТРС) и ДРОН-3. Электронограмма отражения от пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ получена на электронографе (ЭМР-100), и в ре-

зультате ее расшифровки (рис. 1а) установлен параметр ячейки ($a = 6,11\text{\AA}$). В процессе роста по разработанной методике с использованием дополнительного источника Se были получены эпитаксиальные пленки n - и p -типов проводимости с кубической структурой ($a = 6,11\text{\AA}$), толщиной $0,5\text{--}1$ мкм, с высокой степенью кристаллического совершенства ($W_{1/2} = 90\div 100''$) и электрофизическими параметрами ($\mu_{n,p}$ (77 К) = $=(2,5\text{--}3)\cdot 10^4$ см²/(В·с)) (рис. 1). Электрофизические параметры пленок (проводимость, ЭДС Холла), полученные на диэлектрических подложках, измерялись потенциометрическим методом в постоянном магнитном поле напряженностью 2500 Э в откачанном до $2\cdot 10^{-4}$ мм рт.ст. криостате при температуре кипения жидкого азота (77 К).

Полученные образцы облучались дозой $D_\gamma = 5\text{--}35$ кГр на установке MRX γ -25 с изотопным источником Co^{60} ($E = 1,25$ МэВ). Мощность дозы поглощения источника составляла $dD_\gamma/dt = 0,40$ Гр/с. Поверхности эпитаксиальных пленок до и после гамма-облучения исследовались на атомно-силовом микроскопе СЗМУ-Л15. Получены трехмерные изображения поверхности пленок, их гистограммы, а также Фурье-спектры. Инверсия проводимости в облученных образцах контролировалась микроскопическим и электрофизическим методами.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На атомно-силовом микроскопе (АСМ) отслежены исходные поверхности эпитаксиальных пленок селенида марганца свинца и изменения, происходящие на поверхности этих образцов после воздействия гамма-облучения. С целью выявления динамики морфологических изменений поверхности и изучения пострадиационных эффектов, то есть эффектов, наблюдаемых после прекращения воздействия γ -квантов на образцы, получены трехмерные (3D) поверхностные изображения и их гистограммы (кривые распределения элементов поверхностных изображений по размерам) эпитаксиальных пленок n - и p -типов, которые представлены на рис. 2–5.

На рис. 2 и 3 показаны трехмерные АСМ-изображения поверхности образцов n - и p -типов до (а) и после γ -облучения при дозах $D_\gamma = 10$ (б) и 25 кГр (с) соответственно. Как видно из трехмерных изображений, поверхности исходных (необлученных) образцов характеризуются наличием равномерно распределенных структурных (биографических) дефектов, обусловленных предысторией получения эпитаксиальных пленок (рис. 4–5а). Основными структурными дефектами являются дислокации, кластеры, комплексы собственных точечных дефектов селенида мар-

ганца свинца и примесей и др. При облучении сравнительно мягкими гамма-квантами ($E = 1,25$ МэВ < 5 МэВ) образуются вторичные электроны, что приводит к ионизации поверхности и изменению ее зарядового состояния. Причем степень дефектности образцов в зависимости от типа проводимости различается, а высота наночастиц (зерен) для p -типа по сравнению с n -типом уменьшается в $\sim 2,5$ раза. Степень дефектности материалов оценивается по величине плотности дислокаций, представляющей собой линейные дефекты структуры кристалла, что определено количеством и размером наночастиц элементов поверхностных изображений в зависимости от типа проводимости.

Как показывают гистограммы АСМ-изображений поверхностей исходных эпитаксиальных пленок селенида марганца свинца n - и p -типов, если в формировании поверхности образцов n -типа в основном участвуют наночастицы одного вида, преимущественно размером 35 нм (число которых составляет 16000 ед.) (рис. 4а), то гистограмма поверхности пленок p -типа характеризуется широкой областью распределения различных видов наночастиц с размерами от 35 до 100 нм, что подтверждается также и их Фурье-спектрами. При этом число основных наночастиц размером 35 нм уменьшается в $\sim 2,5$ раза и составляет около 6000 ед. (рис. 5а).

Облучение сравнительно мягкими γ -квантами ($E < 5$ МэВ) эпитаксиальных пленок селенида марганца свинца и образование вторичных электронов приводят к ионизации поверхности и изменению ее зарядового состояния [13]. При этом в зависимости от типа проводимости исходных образцов происходят перераспределение зарядов, сопровождающееся образованием доменоподобной структуры, накопление зарядов на ее границе вплоть до полной их компенсации [13]. При облучении образцов селенида марганца свинца малыми дозами ($D_\gamma = 5\text{--}35$ кГр) могут образовываться и радиационные дефекты различного типа, в том числе пар Френкеля [14]. По сравнению с другими радиационными дефектами образование пар Френкеля является наиболее вероятным, поскольку сечение электронного взаимодействия проникающего излучения с эпитаксиальной пленкой малой толщины соизмеримо с энергией смещения атома. Радиационно-стимулированная модификация поверхностей сопровождается изменением их трехмерных изображений и гистограмм (рис. 4–5б,в). При этом динамика изменения рельефа поверхности существенно зависит как от поглощенной дозы гамма-облучения, так и типа проводимости эпитаксиальных пленок $\text{Pb}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ ($x = 0,01$).

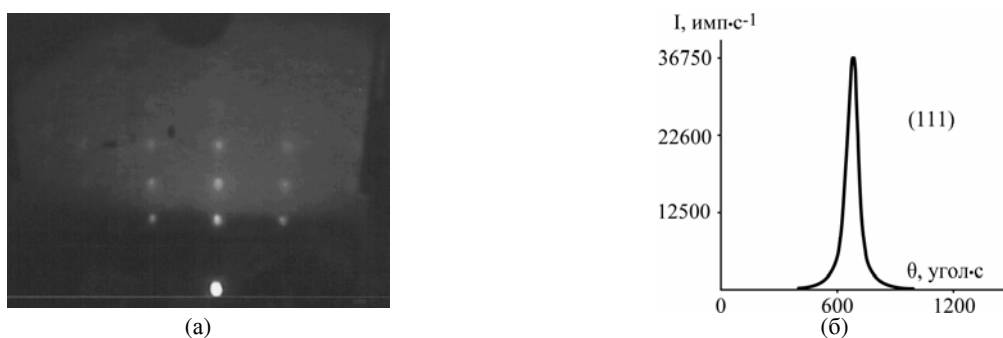


Рис. 1. Электронограмма (а) и рентгенодифракционная кривая (б) эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$).

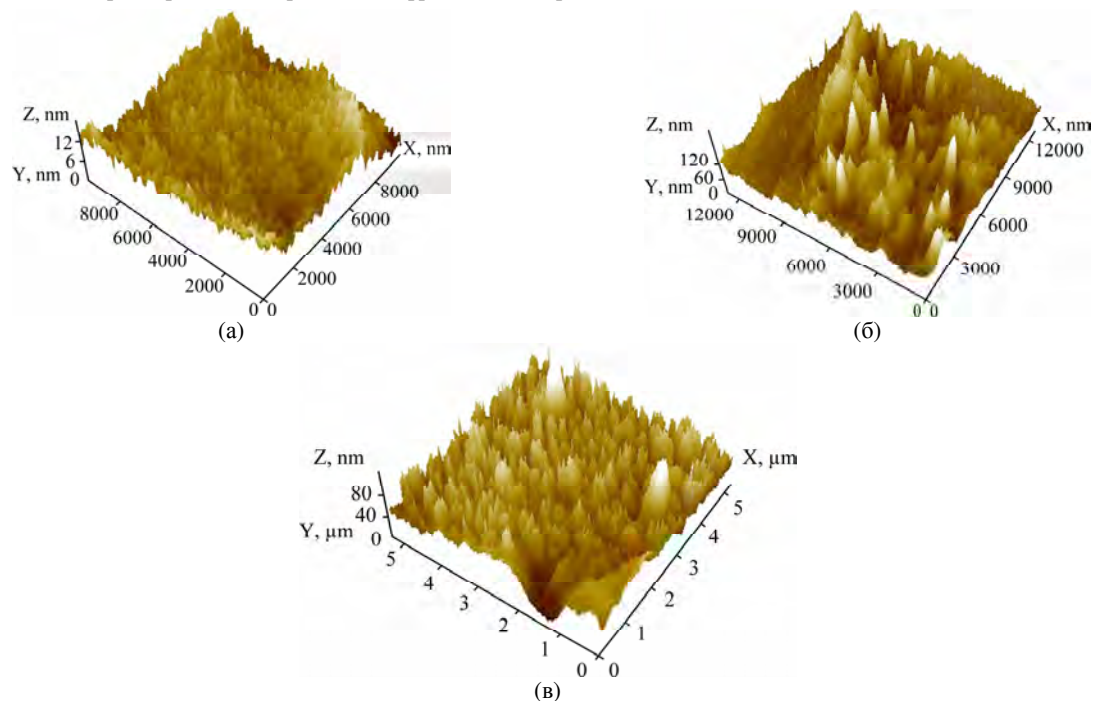


Рис. 2. Трехмерные АСМ-изображения поверхности эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$) *n*-типа до (а) и после γ -облучения при $D_\gamma = 10$ (б) и 25 кГр (в).

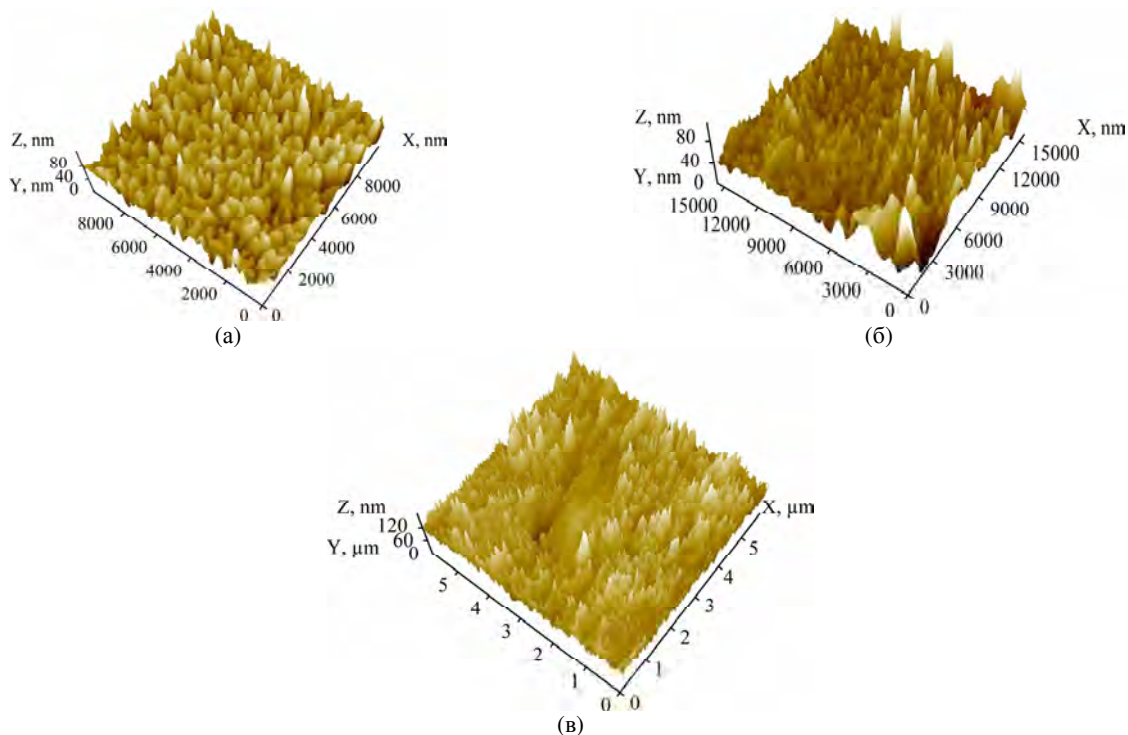


Рис. 3. Трехмерные АСМ-изображения поверхности эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$) *p*-типа до (а) и после γ -облучения при $D_\gamma = 10$ (б) и 25 кГр (в).

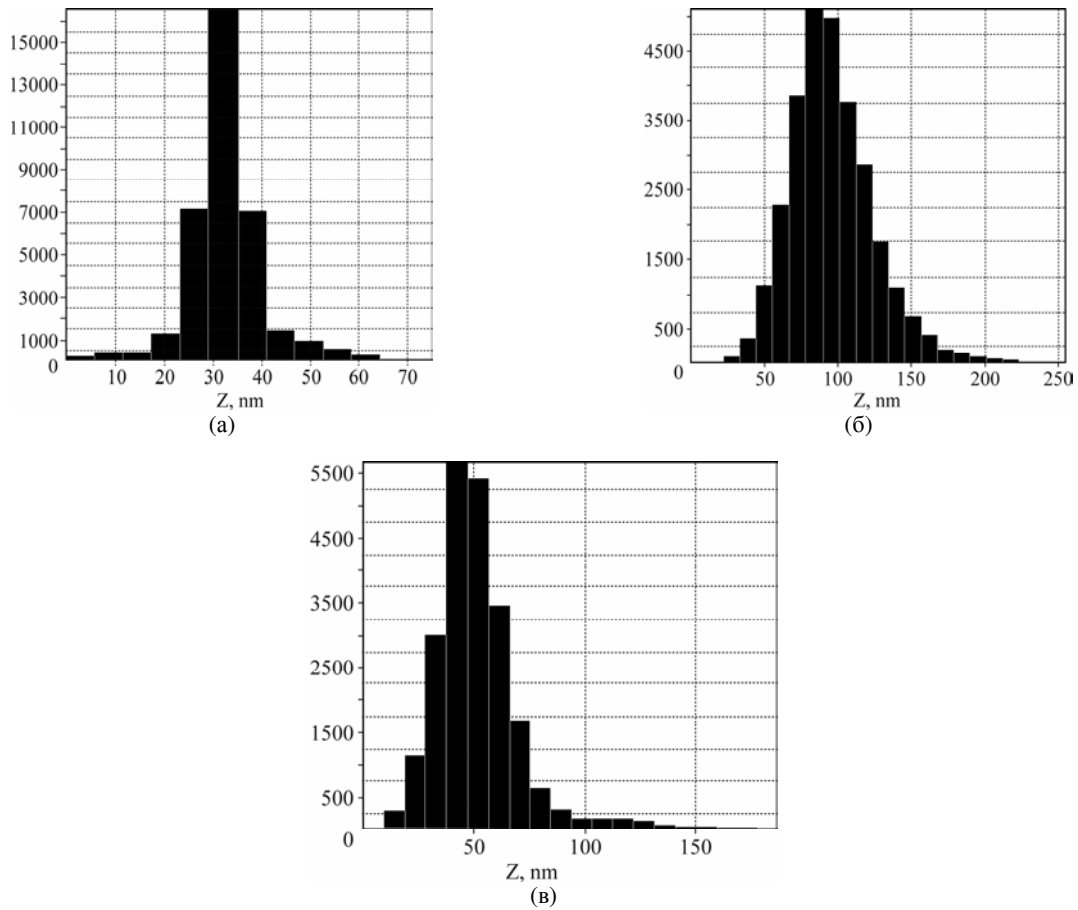


Рис. 4. Гистограммы АСМ-изображения поверхности эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$) n -типа до (а) и после γ -облучения при $D_\gamma = 10$ (б) и 25 кГр (в).

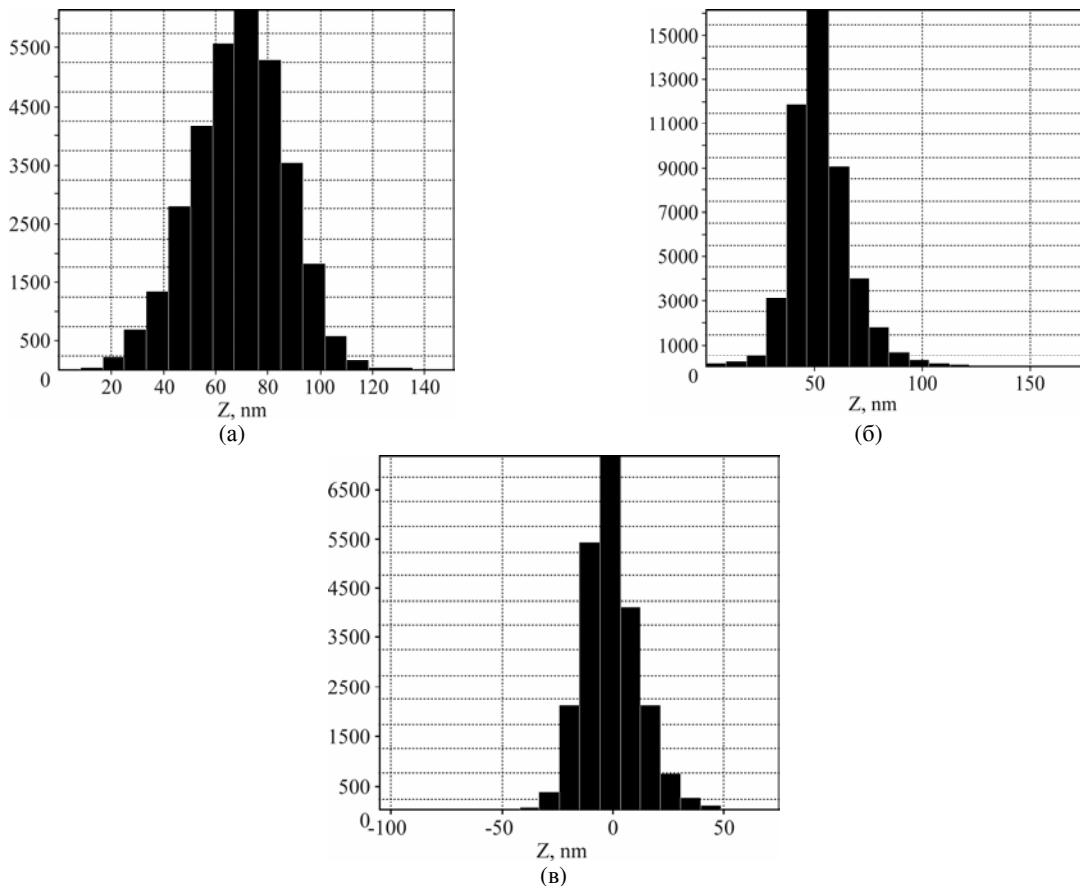


Рис. 5. Гистограммы АСМ-изображения поверхности эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$) p -типа до (а) и после γ -облучения при $D_\gamma = 10$ (б) и 25 кГр (в).

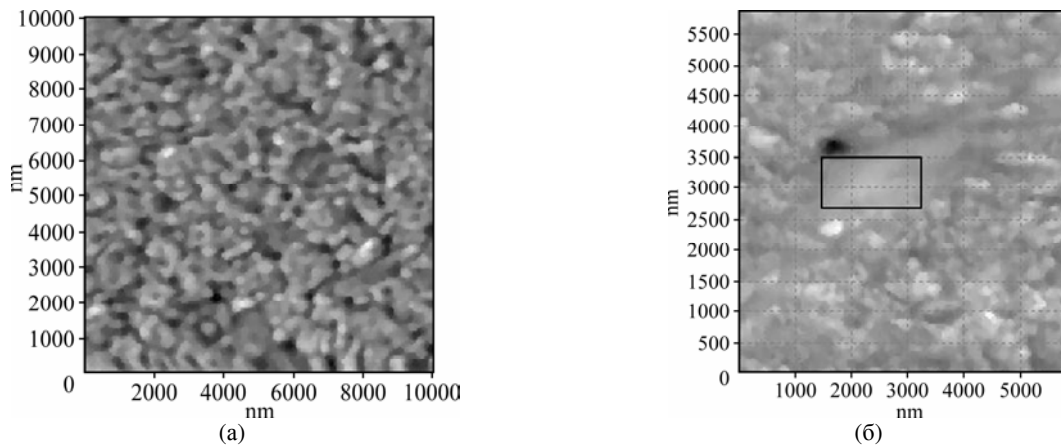


Рис. 6. Фурье-спектры эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$) p -типа до (а) и после γ -облучения, 25 кГр (б).

После гамма-облучения эпитаксиальных пленок дозой $D_\gamma = 10$ кГр в образцах n -типа на поверхности образуются нанокластеры, высота которых превышает исходные на порядок и составляет 120 нм (рис. 2б). При этом гистограммы этих пленок характеризуются наличием наночастиц с размерами от 50 до 150 нм. В основном образуются нанокластеры размерами 80–120 нм, эти значения в ~ 3 –4 раза больше размеров наночастиц в исходных образцах (рис. 3б). Наоборот, облучение образцов p -типа гамма-квантами дозой 10 кГр сопровождается образованием сравнительно зернистой структуры, размеры наночастиц которой равны 40–60 нм, а высота составляет 30 нм (в 2,5 раза меньше, чем у необлученных образцов) (рис. 4, 5б). При этом число этих наночастиц по сравнению с исходными образцами увеличивается в $\sim 2,8$ раза и составляет 16000 ед. Сравнение трехмерных (3D) изображений поверхностей и гистограмм (распределение элементов поверхностных изображений по размерам частиц) эпитаксиальных пленок n - и p -типов до и после гамма-облучения дозой 10 кГр показывает, что в них происходит частичная инверсия типа проводимости. Полная инверсия типа проводимости заканчивается при дозе гамма-облучения 25 кГр (рис. 2–5в). При этом следует обратить внимание на необычный вид распределения элементов изображений поверхности по размерам наночастиц (максимальное число частиц наблюдается при нуле) в гамма-облученных дозой 25 кГр образцах селенида марганца свинца p -типа, что, возможно, связано с полной компенсацией зарядов. Как видно из Фурье-спектра (рис. 6) этих пленок, в центре, где выделены прямоугольником области наночастиц, отсутствуют наночастицы с островками. Это отражается и на гистограмме, так как одновременно заметны nanoостровки как слева, так и справа с высотами ≈ 25 –30 нм. Дальнейшее увеличение дозы гамма-облучения до 35 кГр приводит к ухудшению поверхностного состояния образцов и указывает на радиационную неустойчивость эпитаксиальных пленок.

Возможно, при облучении гетероструктуры дозой больше 35 кГр начинаются частичный радиолиз подложки фторида бария и проникновение атомов (ионов) бария и фтора в пленку, что и приводит к радиационной неустойчивости вследствие этих примесей.

Прямым подтверждением результатов АСМ-измерений – об изменении типа проводимости (инверсии $n \leftrightarrow p$) в образцах $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$) после воздействия γ -облучения – служат также данные электрофизических измерений. Как показывают термоЭДС измерения эпитаксиальных пленок n - и p -типов до и после гамма-облучения, в зависимости от поглощенной дозы в образцах происходит частичное или же полное изменение знака заряда. Это свидетельствует о смешанной ($D_\gamma = 10$ кГр) или полной ($D_\gamma = 25$ кГр) инверсии типов проводимости. Например, значения подвижностей $\mu_{n,p}$, измеренных при температуре $T = 77$ К эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$) после гамма-облучения в зависимости от дозы облучения, в образцах n -типа по сравнению с необлученными образцами ($\mu_{n,p}(77\text{ К}) = (2-3) \cdot 10^4 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$) увеличиваются в ~ 2 –6 раз, в образцах p -типа, наоборот, уменьшаются в 1,5–2 раза.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, показана возможность применения АСМ-метода при изучении морфологических изменений поверхности и пострадиационных эффектов (подразумеваются эффекты, наблюдаемые после прекращения облучения образцов γ -квантами) в эпитаксиальных пленках селенида марганца свинца. Получены трехмерные (3D) поверхностные изображения и их гистограммы исходных и γ -облученных ($D_\gamma = 5$ –35 кГр) образцов эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0,01$) n - и p -типов. На основе АСМ-данных выявлено, что динамика изменения рельефа поверхности этих образцов зависит как от величины поглощенной дозы гамма-облучения, так и от типа проводимости.

Установлено, что облучение эпитаксиальных пленок селенида марганца свинца малыми дозами γ -квантов ($D_\gamma = 5\text{--}35$ кГр) позволит изменить тип проводимости (от смешанных типов до полной их инверсии) в этих образцах. При $D_\gamma \leq 35$ кГр формируется радиационно стойкая стабильная структура эпитаксиальных пленок. Электрофизические данные (термоЭДС измерения и значения подвижностей до и после γ -облучения) подтверждают наблюдаемые в микроскопических измерениях особенности поведения радиационно-структурированных пленок. Варьируя дозу γ -облучения, можно управлять изменением типа проводимости и получать радиационно-структурированные эпитаксиальные пленки с заданными свойствами.

ЛИТЕРАТУРА

1. Сизов Ф.Ф. Твердые растворы халькогенидов свинца и олова и фотоприемники на их основе. *Зарубежная электронная техника*. 1977, **24**, 31–48.
2. Матвеев А.В., Медведев Ю.В., Берченко Н.Н. Термическое вакуумное напыление эпитаксиальных пленок полупроводниковых соединений группы $A^{IV}B^{VI}$. *Зарубежная электронная техника*. 1982, **11**, 54–115.
3. Салаев Э.Ю., Нуриев И.Р., Джалилова Х.Д., Фараджев Н.В. Особенности роста и электрофизические свойства эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Sn_xSe:In$. *Прикладная физика*. 1999, (3), 112–115.
4. Нуриев И.Р., Фарзалиев С.С., Садыгов Р.М. Рост эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xTe(Ga)$ на монокристаллах $PbTe_{1-x}Se_x$. *Поверхность*. 2004, (1), 113–115.
5. Нуриев И.Р., Фарзалиев С.С., Фараджев Н.В., Садыгов Р.М. Фотоэлектрические и оптические свойства эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xTe(Ga)$. *Прикладная физика*. 2006, (4), 106–108.
6. Нуриев И.Р., Гаджиев М.Б., Садыгов Р.М., Назаров А.М. Структура и фотоэлектрические свойства эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe$. *Прикладная физика*, 2007, (2), 132–135.
7. Нуриев И.Р., Садыгов Р.М., Назаров А.М. Рост и структура фоточувствительных эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xTe(Ga)$. *Кристаллография*, 2008, (2), 329–331.
8. Нуриев И.Р., Гаджиев М.Б., Садыгов Р.М. Рост и структура эпитаксиальных пленок $Pb_{1-x}Mn_xSe(Ga)$. *Кристаллография*. 2009, **54**(2), 331–333.
9. Нуриев И.Р. Структура и особенности морфологии поверхности эпитаксиальных пленок халькогенидов $A^{IV}B^{VI}$. *Кристаллография*. 2009, **54**(7), 1228–1229.
10. Засавицкий И.И., Ковальчик Л.Н., Мационалшвили Б.Н., Сазонов А.В. Фотолюминесценция полупроводников типа $A^{IV}B^{VI}$. *ФТП*. 1988,

2(12), 2118–2123.

11. Акимов Б.А., Львова Н.П., Рябова Л.И. Кинетика фотопроводимости в твердых растворах $Pb_{1-x}Mn_xTe(In)$ при изменении их состава. *ФТП*. 1996, **30**(9), 1647–1652.
12. Афанасьев А.М., Александров П.А., Имамов Р.М. *Рентгенодифракционная диагностика субмикронных слоев*. М.: Наука, 1989. 151 с.
13. Аккерман А.Ф., Грудский М.Я., Смирнов В.В. *Вторичное электронное излучение из твердых тел под действием гамма-квантов*. М.: Энергоатомиздат, 1984. 245 с.
14. Конобеевский С.Т. *Действие облучения на материалы. Введение в радиационное материаловедение*. М.: Атомиздат, 1967. С. 194–206.

Поступила 01.12.11
После доработки 06.04.12

Summary

In the present work the surface morphology of epitaxial $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ($x = 0.01$) films of n - and p -types, obtained on $BaF_2(111)$ substrates by the molecular beam condensation method, have been investigated on the atomic-force microscope (AFM) before and after influence of gamma-irradiation. It is shown that relief modification takes place in the $5 \leq D_\gamma \leq 35$ kGy dose regions. On the base of surface structures it is established that conductivity inversion $p \leftrightarrow n$ occurs after an irradiation with $10 \leq D_\gamma \leq 25$ kGy, which is confirmed by electrophysical measurements. It is established that after an irradiation with dose over 35 kGy epitaxial films lose their radiation resistance.