Терагерцовая фотопроводимость в $Hg_{1-x}Cd_xTe$ вблизи перехода от прямого к инверсному спектру

А. В. Галеева^{*a*}, А. И. Артамкин^{*a*}, Н. Н. Михайлов^{*b*}, С. А. Дворецкий^{*b*}, С. Н. Данилов^{*c*}, Л. И. Рябова^{*d*}, Д. Р. Хохлов^{*a*,e1}

^а Физический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^bИнститут физики полупроводников СО РАН, 630090 Новосибирск, Россия

 $^c\,University$ of Regensburg, D-93053 Regensburg, Germany

^dХимический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^е Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 6 июня 2017 г. После переработки 22 июня 2017 г.

Показано, что в структурах с активным элементом на основе $Hg_{1-x}Cd_xTe$ переход от прямого к инверсному спектру сопровождается изменением знака сигналов терагерцовой фотопроводимости и магнетофотогальванического эффекта. В области составов, соответствующих инверсному спектру, кинетика фотопроводимости обнаруживает особенности, которые могут быть связаны с поверхностными топологическими состояниями.

DOI: 10.7868/S0370274X17150061

Полупроводниковые твердые растворы, в которых наблюдается инверсия зон при изменении состава, представляют интерес с нескольких позиций. Вблизи бесщелевого состояния характерные энергии электронного спектра невелики и могут отвечать терагерцовому диапазону длин волн, что существенно для практических приложений терагерцовой оптоэлектроники [1]. Фундаментальный интерес к твердым растворам с инверсным спектром связан также с формированием топологических поверхностных состояний [2, 3].

По сравнению с известными топологическими изоляторами (соединениями на основе Bi₂Se₃, Bi₂Te₃) твердые растворы $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ имеют ряд отличительных особенностей. При T = 0 бесщелевое состояние с инверсным спектром в объеме в этой системе реализуется в достаточно протяженной области составов x < 0.17 [4]. При x > 0.17спектр становится прямым, положительная ширина запрещенной зоны увеличивается с ростом содержания CdTe. На поверхности бесщелевого полупроводника HgTe предсказано наличие делокализованных состояний [5]. Топологическая фаза была зарегистрирована методом ARPES в работах [6,7]. Весьма существенно, что, в отличие от большинства 3D топологических изоляторов, в твердых растворах $Hg_{1-x}Cd_x$ Te удается реализовать низкие значения концентрации свободных носителей в объеме. Это важно, поскольку высокие степени вырождения электронного газа создают дополнительные сложности при определении вклада топологического поверхностного слоя в транспорт.

В настоящей работе представлены результаты экспериментального исследования терагерцовой фотопроводимости (ФП) и фотогальванического эффекта в магнитном поле (магнетофотогальванический (МФГ) эффект) в полупроводниковых структурах на основе $\operatorname{Hg}_{1-x}\operatorname{Cd}_x\operatorname{Te}$ как с прямым, так и инверсным энергетическим спектром. Эффективность использованного подхода была продемонстрирована при изучении особенностей релаксации носителей в приповерхностном слое [8–10]. В частности, был обнаружен эффект замедленной термализации неравновесных электронов в некоторых топологических фазах. Однако вопрос, насколько общими являются выявленные закономерности релаксации фотовозбужденных носителей, остается открытым.

Образцы были синтезированы методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке GaAs в направлении (013). Последовательно выращивали буферные слои ZnTe, CdTe, варизонный $Hg_{1-y}Cd_yTe$, рабочий слой $Hg_{1-x}Cd_xTe$ толщи-

¹⁾e-mail: khokhlov@mig.phys.msu.ru

ной около 4мкм и верхний барьер – варизонный $Hg_{1-y}Cd_yTe$. Составы твердых растворов контролировали с помощью эллипсометрии.

Выбранные для данной работы составы соответствовали значениям x = 0.131; 0.151 (бесщелевой энергетический спектр с инверсной структурой зон) и x = 0.175 (тривиальный энергетический спектр). Исследование электрофизических и гальваномагнитных свойств проведено в диапазоне температур 4.2– 300 К в магнитных полях до 4 Тл. Все образцы обладали электронной проводимостью, их основные характеристики (удельное сопротивление ρ , холловская концентрация n и подвижность μ при T = 4.2 К) представлены в табл. 1. Значения энергии Ферми $E_{\rm F}$ относительно дна зоны проводимости оценивались в рамках двухзонного приближения [11, 12].

На рис. 1 показаны температурные зависимости удельного сопротивления ρ образцов с различным



Рис. 1. Температурная зависимость удельного сопротивления образцов $Hg_{1-x}Cd_x$ Те составов x = 0.131, 0.151, 0.175. На вставке внизу: зависимость удельного сопротивления образца с x = 0.175 от обратной температуры. На вставке вверху схематично показана диаграмма, иллюстрирующая перестройку энергетического спектра в твердых растворах $Hg_{1-x}Cd_x$ Те при изменении состава

составом x. Вид зависимости $\rho(T)$ качественно отличается для образцов с инверсным и прямым энергетическим спектром. Наблюдаемое уменьшение величины ρ с ростом температуры по закону $\sim T^{-3/2}$ для составов x = 0.131 и 0.151 в низкотемпературной области $T < \sim 100$ К типично для бесщелевых полупроводников [4]. Минимум на температурной зависимости сопротивления, наблюдаемый при $T \sim 77$ К для x = 0.151 и при $T \sim 120$ К для x = 0.131, соот-

ветствует точке топологического фазового перехода при инверсии энергетических зон [13].

Температурная зависимость проводимости образца с x = 0.175 качественно отличается и характеризуется наличием продолжительного активационного участка при T > 25 К. Ширина щели E_g , определенная с использованием соотношения $\rho \sim \exp(E_g/2kT)$, равна 10 мэВ и согласуется со значением, рассчитанным с помощью эмпирической формулы для $E_q(x,T)$ [11].

Как показала оценка значений энергии Ферми $E_{\rm F}$, во всех исследованных твердых растворах уровень Ферми лежит на несколько мэВ выше дна зоны проводимости (см. табл. 1). В таких условиях представляется особенно интересным изучение фотоэлектрических явлений, индуцированных терагерцовым излучением с низкими значениями энергии кванта $(\sim 5 \text{ мэВ})$. Фотопроводимость (ФП) в отсутствие магнитного поля и МФГ-эффект в магнитных полях до 3 Тл исследованы при $T = 4.2 \,\mathrm{K}$ в условиях воздействия импульсным лазерным излучением с длиной волны 280 мкм (энергия кванта 4.4 мэВ). Геометрия эксперимента соответствовала нормальному падению излучения на поверхность образца. При измерениях МФГ-эффекта магнитное поле было направлено в плоскости образца, перпендикулярно к падающему излучению. Длительность импульса составляла ~100 нс. Мощность падающего излучения не превышала 0.7 кВт. Более подробно методика измерений изложена в работах [8, 14, 15].

На рис. 2 представлена кинетика относительного фотоотклика $\Delta\sigma/\sigma_0$, где σ_0 – значение проводимости



Рис. 2. Кинетика относительного фотоотклика $\Delta\sigma/\sigma_0$ в структурах на основе $\mathrm{Hg}_{1-x}\mathrm{Cd}_x\mathrm{Te}$ с x = 0.131; 0.151; 0.175. Пунктиром показана форма лазерного импульса. На вставке представлена схема измерений

N⁰	x	ρ (мОм см)	$n ({\rm cm}^{-3})$	$\mu ~(\mathrm{cm}^2/\mathrm{B}~\mathrm{c})$	$E_{\rm F}$ (мэВ)
образца					
1	0.131	10	$5.2\cdot 10^{14}$	$1.20\cdot 10^6$	2
2	0.151	14	$3.7\cdot 10^{14}$	$1.16\cdot 10^6$	4
3	0.175	23	$4.1\cdot 10^{14}$	$0.58\cdot 10^6$	5

Таблица 1. Характеристики исследованных образцов $Hg_{1-x}Cd_xTe$ при T = 4.2 K

до начала прохождения лазерного импульса, $\Delta \sigma$ – изменение проводимости в условиях подсветки. Для всех исследованных структур кинетические зависимости ФП достаточно сложны. Важно, что знак фотоотклика, следующего непосредственно за фронтом лазерного импульса, отрицателен в образце с прямым энергетическим спектром и положителен в образцах с инверсным спектром. При этом амплитуда относительного фотоотклика практически одинакова для составов с x = 0.131 и x = 0.151 и в несколько раз превышает амплитуду отрицательного фотоотклика в образце с x = 0.175. Обращает на себя внимание, что в структурах с инверсным спектром кинетика нарастания фотопроводимости слегка запаздывает по отношению к импульсу лазера, в то время как кинетика фотоотклика в образце с прямым спектром полностью повторяет форму лазерного импульса и воспроизводит детали его структуры.

Кинетика спада фотопроводимости имеет сложный характер и может быть описана как суперпозиция быстрых и медленных релаксационных процессов. При этом знак компоненты фотоотклика, соответствующей долговременным релаксационным эффектам, положителен как для образцов с инверсным, так и с прямым спектром. Наличие положительной остаточной фотопроводимости во всех исследованных структурах указывает на то, что процесс фотовозбуждения может определяться несколькими механизмами, причем соотношение вкладов в интегральный сигнал резко меняется при переходе через точку инверсии зон.

Измерения магнетофотогальванического (МФГ) эффекта были проведены в соответствии со схемой, представленной на вставке рис. 3. Важно, что знаки МФГ-эффекта в образцах с инверсной и прямой структурой зон оказались противоположны. Абсолютное значение амплитуды эффекта (максимальное абсолютное значение фотоЭДС в процессе прохождения лазерного импульса) в структуре с x = 0.175 заметно ниже по сравнению с образцами с инверсным спектром. Для всех исследованных структур наблюдается качественно аналогичное немонотонное изменение амплитуды эффекта с увеличением магнитного поля *В*. В малых полях $B < \sim 0.1$ Тл амплитуда МФГ-эффекта линейно возрастает с ростом напря-



Рис. 3. Полевые зависимости магнетофотогальванического эффекта в структурах на основе $Hg_{1-x}Cd_xTe$ для x = 0.131; 0.151; 0.175. На вставках представлены схема измерений (вверху) и кинетика магнетофотогальванического эффекта в магнитном поле B = 0.12 Тл (внизу)

женности магнитного поля. При дальнейшем увеличении магнитного поля полевая зависимость амплитуды эффекта характеризуется наличием экстремума в поле ~ 0.1 Тл, по порядку величины совпадающем с полем ультраквантового предела, и последующим резким снижением фото ЭДС почти до нуля (см. рис. 3).

Отметим, что, в отличие от кинетики фотопроводимости, кинетика М $\Phi\Gamma$ -эффекта хотя и повторяет в целом форму импульса (вставка на рис. 3), тем не менее, не отражает детали его структуры.

Обсудим наиболее важные особенности наблюдаемых фотоэлектрических явлений.

Прежде всего, обращает на себя внимание смена знака фотопроводимости с положительного на отрицательный при инверсии зон. Поскольку при x < 0.16энергетический спектр является бесщелевым, а энергия кванта излучения сопоставима с энергией Ферми (см. табл. 1), есть основания считать, что основная часть положительного фотоотклика связана с генерацией носителей. В случае твердого раствора с x = 0.175 с прямой структурой зон энергия кванта падающего излучения становится меньше ширины запрещенной зоны, и межзонная генерация становится маловероятной. Отрицательный фотоотклик в этом случае может быть вызван разогревом электронного газа лазерным импульсом.

Нетривиальным представляется наблюдаемое запаздывание кинетики нарастания положительной фотопроводимости по отношению к возбуждающему лазерному импульсу в образцах с инверсным спектром, в то время как в структуре с x = 0.175 (прямой энергетический спектр) такое запаздывание отсутствует. Следует обратить особое внимание на тот факт, что такая запаздывающая кинетика нарастания сигнала принципиально отличается от эффекта задержанной фотопроводимости. В последнем случае рекомбинация фотовозбужденных носителей заряда подавлена, поэтому сигнал фотопроводимости постоянно возрастает в течение импульса подсветки, и его форма определяется интегралом от временного профиля возбуждающего светового импульса [16]. В рассматриваемой же в настоящей работе ситуации нарастание сигнала быстрой положительной фотопроводимости в целом повторяет форму лазерного импульса, но оказывается смещенной по времени. Можно предположить, что структура имеет некий "резервуар", в котором часть фотовозбужденных электронов накапливается, не принимая участия в формировании фотоотклика. Электроны в резервуаре обладают несколькими характерными особенностями. Во-первых, релаксация фотовозбужденных носителей заряда в резервуаре должна быть подавлена, по сравнению с электронами, в объеме образца. Во-вторых, проводимость по резервуару должна быть существенно ниже проводимости по объему. Наконец, переход носителей заряда из резервуара в объем должен быть замедлен. Перечисленные особенности могут быть связаны со спецификой поверхностных состояний именно в области инверсного спектра. Согласно теоретическим представлениям, развитым в работе [5], на поверхности бесщелевого НgTe формируются делокализованные состояния. Согласно экспериментальным данным, полученным с использованием ARPES [6,7], поверхностные состояния в НgTe являются топологическими. Ранее было установлено, что скорость термализации горячих носителей заряда в топологическом слое существенно ниже, чем для случая тривиального диэлектрика [9]. Значит, электроны, разогретые терагерцовым лазерным импульсом, релаксируют к равновесному состоянию значительно медленнее, чем горячие электроны в объеме полупроводника. Переход электронов из топологического слоя в объем также подавлен, поскольку при таком переходе должно из-

Письма в ЖЭТФ том 106 вып. 3-4 2017

мениться соотношение между направлением квазиимпульса электрона и направлением его спина: для топологического слоя эти направления жестко связаны, а для электронов из объема полупроводника – нет. Наконец, это же обстоятельство препятствует внесению вклада в проводимость фотовозбужденными электронами, находящимися в топологическом слое. Поскольку толщина этого слоя (около 2 нм) очень мала по сравнению с толщиной пленки, то его вклад в общую проводимость образца ничтожен, однако при переходе фотовозбужденных электронов из топологического слоя в объем концентрация объемных электронов возрастает, что и вызывает запаздывающую положительную фотопроводимость.

Положительный фотоотклик, наблюдаемый после окончания импульса как в образцах с прямым, так и с инверсным спектром, дает основания полагать, что такая остаточная фотопроводимость не связана с особенностями зонного спектра, а может быть обусловлена генерацией носителей и последующим их захватом на дефекты на гетерогранице или в объеме активного слоя [17, 18].

Таким образом, наблюдаемые особенности положительной фотопроводимости в твердых растворах $Hg_{1-x}Cd_xTe$, скорее всего, определяются совокупностью трех описанных выше механизмов, а именно межзонной генерацией носителей заряда, диффузией горячих электронов из поверхностного слоя и медленной рекомбинацией фотовозбужденных электронов с участием примесей и дефектов.

Переходя к обсуждению особенностей МФГэффекта, прежде всего, отметим, что наблюдаемый характер изменения амплитуды МФГ-эффекта с ростом магнитного поля качественно отличается от типичной полевой зависимости амплитуды фотоэлектромагнитного (ФЭМ) эффекта [19], исследованного нами ранее в других полупроводниковых твердых растворах с топологическими свойствами [8–10], что, по-видимому, указывает на иной механизм возникновения фотоЭДС в пленках $Hg_{1-x}Cd_xTe$.

Резкое падение амплитуды МΦГ-эффекта в поле, превышающем ультраквантовый предел, в образцах с инверсным спектром может быть связано с открытием щели в энергетическом спектре в магнитном поле [20].

В случае образца с прямым спектром уменьшение амплитуды МФГ-эффекта в магнитном поле является не столь радикальным, поэтому, не исключено, что значительный вклад в формирование сигнала вносит напряжение эффекта Кикоина–Носкова (ФЭМ-эффекта). В то же время необходимо иметь в виду, что МФГ-эффект может в значительной степени зависеть от изменения относительного положения уровня ловушек, обеспечивающем эффективный захват носителей, и уровня Ферми в магнитном поле [20]. На существенное влияние уровней ловушек, в частности, указывает совпадение полевых зависимостей амплитуды МФГ-эффекта при B > 1.2 Тл для образцов разного состава.

Важным отличием кинетики МФГ-эффекта и фотопроводимости является отсутствие временного сдвига между максимумом отклика и пиком лазерного импульса. Это может быть обусловлено принципиально различными механизмами возникновения разности потенциалов, соответствующей явлению фотопроводимости и МФГ-эффекту. Как указывалось выше, заметное запаздывание фронта фотоотклика по отношению к вызывающему его импульсу, наблюдаемое на кинетических зависимостях фотопроводимости в образцах с инверсным спектром, может объясняться замедленным вовлечением фотовозбужденных носителей в процессы транспорта. Такое эффективное замедление процессов вовлечения носителей в транспорт, по-видимому, не сказывается на процессах разделения зарядов, обеспечивающих возникновение ЭДС МФГ-эффекта.

Таким образом, проведенные исследования показали, что переход от инверсного спектра к прямому сопровождается сменой знаков фотоотклика и МФГ-эффекта. Данное явление может быть обусловлено перестройкой энергетического спектра при изменении состава х твердого раствора в сочетании с изменением степени разогрева электронного газа лазерным импульсом. Однако, наиболее интересными нам представляются особенности кинетики нарастания сигнала фотопроводимости. Запаздывающая кинетика фотоотклика обнаружена только в образцах с инверсным спектром, причем в этом случае профили нарастания сигнала практически идентичны в образцах разного состава. Обстоятельство, что неравновесные носители не сразу вносят вклад в фотоотклик, может быть связано с наличием поверхностных топологических состояний, препятствующих быстрому установлению квазиравновесного состояния во всем объеме активного слоя. Поскольку все исследованные образцы являются слабовырожденными, существование свободных носителей должно быть следствием наличия мелких уровней или пограничных состояний элементов структуры. Медленные релаксационные процессы могут быть обусловлены этими состояниями. Следует также отметить, что все образцы характеризуются весьма высокой фоточувствительностью в терагерцовом диапазоне, важном для практических приложений.

Авторы выражают признательность Г.М. Минькову за полезные дискуссии и за техническую помощь. Работа выполнена при поддержке гранта $PH\Phi # 16-12-10071.$

- K. Sakai, Terahertz Optoelectronics, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg (2005).
- M. Z. Hasan and C. L. Kane, Rev. Mod. Phys. 82, 3045 (2010).
- A. Bansil, H. Lin, and T. Das, Rev. Mod. Phys. 88, 021004 (2016).
- Н. Н. Берченко, В. М. Пашковский, УФН 119, 223 (1976).
- М. И. Дьяконов, А. В. Хаецкий, Письма в ЖЭТФ 33, 115 (1981).
- C. Brüne, C.X. Liu, E.G. Novik, E.M. Hankiewicz, H. Buhmann, Y.L. Chen, X.L. Qi, Z.X. Shen, S.C. Zhang, and L.W. Molenkamp, Phys. Rev. Lett. 106, 126803 (2011).
- C. Liu, G. Bian, T.-R. Chang et al. (Collaboration), Phys. Rev. B 92, 115436 (2015).
- S.G. Egorova, V.I. Chernichkin, L.I. Ryabova, E.P. Skipetrov, L.V. Yashina, S.N. Danilov, S.D. Ganichev, and D.R. Khokhlov, Sci. Rep. 5, 11540 (2015).
- A.V. Galeeva, S.G. Egorova, V.I. Chernichkin, M.E. Tamm, L.V. Yashina, V.V. Rumyantsev, S.V. Morozov, H. Plank, S.N. Danilov, L.I. Ryabova, and D. R. Khokhlov, Semicond. Sci. Technol. **31**, 095010 (2016).
- A. V. Galeeva, I. V. Krylov, K. A. Drozdov, A. F. Knjazev, A. V. Kochura, A. P. Kuzmenko, V. S. Zakhvalinskii, S. N. Danilov, L. I. Ryabova, and D. R. Khokhlov, Beilstein J. Nanotechnol. 8, 167 (2017).
- G. L. Hansen and J. L. Schmit, J. Appl. Phys. 54, 1639 (1983).
- 12. A. Rogalski, Rep. Prog. Phys. 68, 2267 (2005).
- F. Teppe, M. Marcinkiewicz, S.S. Krishtopenko et al. (Collaboration), Nature Commun. 7, 12576 (2016).
- V. V. Bel'kov and S. D. Ganichev, Semicond. Sci. Technol. 23, 114003 (2008).
- S. D. Ganichev, Y. V. Terent'ev, and I. D. Yaroshetskii, Sov. Tech. Phys. Lett. 11, 20 (1985).
- 16. Л.И. Рябова, Д.Р. Хохлов, УФН 184, 1033 (2014).
- V. V. Rumyantsev, S. V. Morozov, A. V. Antonov, M. S. Zholudev, K. E. Kudryavtsev, V. I. Gavrilenko, S. A. Dvoretskii, and N. N. Mikhailov, Semicond. Sci. Technol. 28, 125007 (2013).
- Д. В. Козлов, В. В. Румянцев, С. В. Морозов, А. М. Кадыков, В. С. Варавин, Н. Н. Михайлов, С. А. Дворецкий, В. И. Гавриленко, F. Терре, ФТП 49, 1654 (2015).
- 19. И.К. Кикоин, С.Д. Лазарев, УФН 124, 597 (1978).
- 20. С. Г. Гасан-Заде, Е. А. Сальков, Г. А. Шепельский, ФТП **31**, 35 (1997).