

УДК 535.33

ПЬЕЗОСПЕКТРОСКОПИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ МЕХАНИЧЕСКИХ НАПРЯЖЕНИЙ В Si_3N_4 И ALN, ОБЛУЧЕННЫХ ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ

Жумажанова Айнаш Турлыбековна

ainashzhumazhanova@gmail.com

Докторант ЕНУ им. Л.Н.Гумилева, Нур-Султан, Казахстан

Научный руководители – А.Т. Акылбеков, В.А. Скуратов

Введение.

Воздействие тяжелых заряженных частиц на твердые тела, как правило, сопровождается генерацией в облучаемом слое механических напряжений, которые, в свою очередь оказывают влияние на процессы дефектообразования. Оценка уровня напряжений и установление взаимосвязи между характером радиационных повреждений и напряжениями очень важны для корректного описания эволюции дефектной структуры в различных экспериментальных условиях. Прежде всего, такие задачи рассматривались для низкоэнергетической ионной имплантации в полупроводниковые материалы. В наименьшей степени эти вопросы изучены для высокоэнергетического ($E > 1$ МэВ/аеи) ионного облучения, возможности которого для решения практических задач начинают быть востребованными только в последнее время. В

качестве основных экспериментальных методов измерения механических напряжений обычно применяются следующие - метод измерения кривизны, методы рентгеновской, электронной и нейтронной дифракции, электромагнитные методы, ультразвуковой метод [1].

Уровень напряжений в целом ряде материалов может быть определен с помощью метода, основанного на использовании пьезоспектроскопического эффекта. Как известно, этот эффект связывает изменения в оптических спектрах поглощения, люминесценции или Рамановского рассеяния с величиной механических напряжений. Как известно, в общем виде изменение частоты излучения в зависимости от напряжения определяется следующим выражением [2]:

$$\Delta\nu = \Pi_{ij} \times \sigma_{ij} \quad (1)$$

где Π_{ij} – так называемые пьезоспектроскопические коэффициенты, а σ_{ij} компоненты тензора напряжений. Пьезоспектроскопические коэффициенты определяются посредством соответствующих калибровок, в процессе которых к материалу прикладывается известное напряжение и регистрируется соответствующее изменение частоты относительно ненапряженного состояния [2,3]. В отличие от перечисленных выше методов, дающих информацию о напряжениях во всем исследуемом объеме образца, пьезоспектроскопия позволяет определить уровень напряжений с пространственным разрешением вплоть до нескольких сотен нанометров, что особенно важно в случае облучения материалов ионами с энергиями осколков деления, для которых проективный пробег не превышает 10 микрон. В работе [4] этот подход был использован для измерения профилей напряжений в Si_3N_4 , облученном высокоэнергетическими ионами ксенона и висмута. Как известно, нитрид кремния является единственной нитридной керамикой, в которой были обнаружены латентные треки быстрых тяжелых ионов [5]. В тоже время, треки не были обнаружены в нитриде алюминия даже при очень высоких уровнях удельных ионизационных потерь энергии [6]. В настоящей работе представлены результаты сравнительного анализа профилей остаточных механических напряжений в AlN и полученными ранее данными по Si_3N_4 [2] – нитридных керамиках с разным структурным откликом на воздействие тяжелых ионов высоких энергий.

Материалы и методы

Объектами исследования данной работы были поликристаллические образцы нитридов кремния и алюминия производства MGI Corporation. Размеры зёрен варьировались от нескольких сотен нанометров до нескольких микрон. Образцы облучались ионами ^{209}Bi с энергией 710 МэВ при комнатной температуре до флюенсов 1×10^{12} , 2×10^{12} и 1×10^{13} см^{-2} . Эксперименты по облучению проводились на циклотроне У-400 ЛЯР ОИЯИ (Дубна, Россия). Согласно расчетам, проективный пробег ионов висмута в AlN составлял 29,8 мкм.

Облученные образцы изучались методами рамановской спектроскопии на лазерном конфокальном сканирующем микроскопе Solver Spectrum, NT-MDT. Спектры комбинационного рассеяния, возбуждаемые на длине волны $\lambda=473$ нм, регистрировались на поперечных отполированных сколах образцов вдоль траектории движения ионов с пространственным разрешением ~ 1 мкм. Время измерения было оптимизировано для получения максимальной интенсивности и составляло 60 секунд.

Результаты и обсуждение

В пьезоспектроскопических исследованиях наиболее часто используется измерение положения пиков 862 см^{-1} (Si_3N_4) [7] и 658 см^{-1} (AlN) [8]. Пьезоспектроскопические коэффициенты для этих пиков равны $2,22 \text{ ГПа/см}^{-1}$ и 2 ГПа/см^{-1} , соответственно [2,7]. Данная линия при 658 см^{-1} E_2 (high) является более значимой, так как это полоса для измерения остаточных напряжений демонстрирует наибольшую чувствительность к напряжениям, что приводит к наименьшему времени сбора данных для рамановских измерений и наибольшему отношению сигнал/шум. Другим преимуществом использования данной полосы частота моды E_2 (high) в отличие от $A_1(\text{LO})$ фононной моды, не зависит от концентрации свободных носителей, следовательно, только напряжение будет влиять на эту фононную частоту для измерений остаточного напряжения.

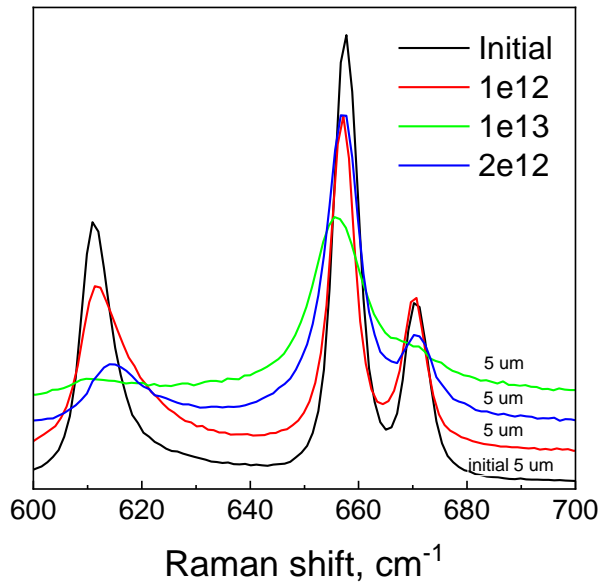


Рисунок 1 - Спектры КР AlN, спектральная область вблизи линии 658 см⁻¹

На рисунке 1 показаны изменения положения пика 658 см⁻¹ (AlN), которые были измерены на глубине 5 мкм. Прежде всего необходимо отметить, что механическая полировка AlN вносит дефекты, что приводит как к уширению, так и смещению основного пика относительно исходного положения с 658.26 см⁻¹ на 657.78 см⁻¹. Для учета этого обстоятельства, за исходное положение пика принималось значение частоты, измеренное на расстоянии ~ 100 микрон от поверхности, что значительно превышает глубину облученного слоя. Как видно из части спектра, представленного на вставке, облучение ионами висмута приводит к снижению интенсивности сигнала и уширению пика, что связано с общим разупорядочением кристаллической решетки. Кроме этого наблюдается также и смещение пика в сторону меньших частот. Отрицательное значение $\Delta\nu$ свидетельствует о том, что на данной глубине облученного слоя образца нитрида алюминия регистрируются сжимающие механические напряжения.

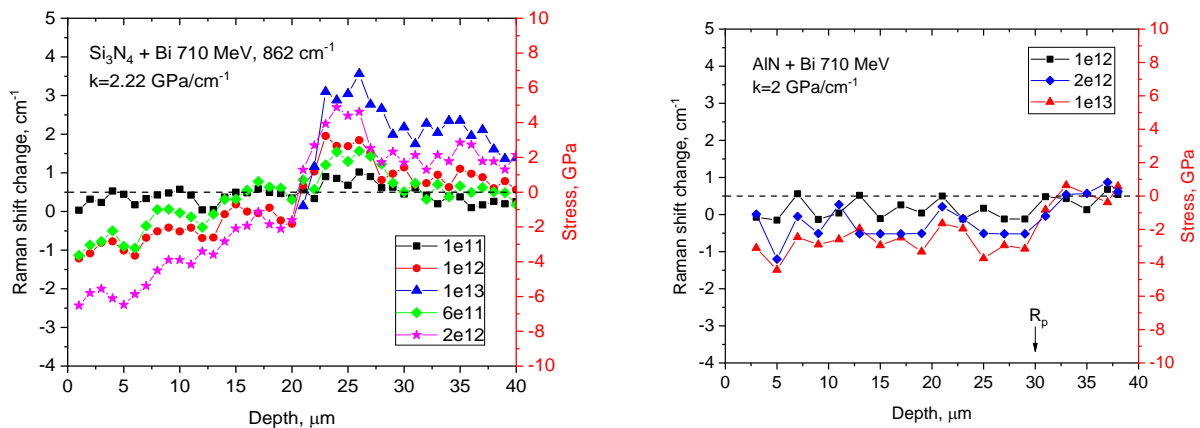


Рисунок 2 – а, б Вариация спектрального положения линий 862 см⁻¹ (Si₃N₄) и 658 см⁻¹ (AlN) с флюенсом ионов Bi по глубине облученного слоя

На рисунках 2а и 2б показано, как изменяется спектральное положение линий, которые использовались для определения уровня напряжений в нитридах кремния (а) и алюминия (б), облученных ионами висмута, по отношению к значениям для необлученного материала. Как видно, напряжения в AlN детектируются только при самом высоком флюенсе ионов висмута

- 1×10^{13} см⁻², что наглядно свидетельствует о различиях в формировании структурных нарушений в этих керамиках. Данные, приведенные на рис. 2б, не позволяют также сделать вывод о корреляции профиля напряжений в AlN, полученного для флюенса 1×10^{13} см⁻², с профилями ионизационных и ядерных потерь энергии. Несмотря на то, что треки в нитриде алюминия не регистрируются, нельзя исключать, что высокий уровень удельных ионизационных потерь энергии может влиять на эволюцию дефектной структуры, что требует дальнейших детальных исследований.

Заключение

Поликристаллические Si₃N₄ и AlN облученные высокоэнергетическими ионами висмута с энергией 710 МэВ до флюенсов 1×10^{12} , 2×10^{12} и 1×10^{13} см⁻¹ были изучены методом рамановской пьезоспектроскопии с пространственным разрешением. В облученном слое нитрида кремния формируются поля напряжений различного знака, разделенные буферной зоной, находящейся на глубине, совпадающей с толщиной слоя образца, аморфизованного при высоких флюенсах ионов за счет многократного перекрытия трековых областей. На больших глубинах регистрируются растягивающие напряжения, уровень которых достигает максимального значения в области конца пробега ионов. По сравнению с Si₃N₄, механических напряжения в AlN регистрируются только при флюенсе ионов висмута 1×10^{13} см⁻².

Список использованных источников

1. Withers P.J., Bhadeshia H. K, Residual stress. Part 1 – Measurement techniques // Materials Science and Technology. 2001. V.17. P.355-465.
2. Murari, N., Sergo, V., Pezzotti, G., Katagiri, G., Meriani, S., Nishida, T. Raman Piezo-Spectroscopic Behavior of Aluminum Nitride // Appl. Spectrosc. 1997. V. 51. P. 1761–1765.
3. Pezzotti, G. Measurements of microscopic stresses in Si-based polycrystalline ceramics // Key Eng. Mater. 2005. Vol. 287. P. 438-448.
4. Zhumazhanova A., Mutali A., Ibrayeva A., Skuratov V., Dauletbekova A., Korneeva E., Akilbekov A., Zdorovets M. Raman Study of Polycrystalline Si₃N₄ Irradiated with Swift Heavy Ions // J. Crystals. 2021. Vol. 11. P. 1313.
5. Zinkle S.J., Skuratov V.A., Hoelzer D.T. On the conflicting roles of ionizing radiation in ceramics. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At. 2002. V.191. P. 758–766.
6. Skuratov V.A., Uglov V.V., Sokhatsky A.S., Zlotski S.V., Janse van Vuuren A., Neethling J. O’Connell J. Radiation stability of nanocrystalline ZrN coating irradiated with energy Xe and Bi ions. International Conference “Interaction of Radition with Solids”, Belarus. 2011. С. 91-93.
7. Muraki, N., et al. Mapping of residual stresses around an indentation in β-Si₃N₄ using Raman spectroscopy // Journal of materials science. 1997. P. 5419-5423.
8. Lugh V., Clarke D.R. Defect and stress characterization of AlN films by Raman spectroscopy // Appl. Phys. Lett. 2006. Vol. 89. P. 241911