

ВЛИЯНИЕ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА ОПТИЧЕСКИЕ, АКУСТИЧЕСКИЕ И ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА АЛМАЗА

В.Г. Ральченко¹⁾, А.Е. Карькин²⁾, А.В. Хомич³⁾, А.Ю. Клоков⁴⁾, А.И. Шарков⁴⁾, Д.Ф. Аминев⁴⁾,
Н.А. Поклонский⁵⁾, И.И. Власов¹⁾, А.А. Хомич^{1,3)}, Ю.С. Поносов²⁾, О.Н. Поклонская⁵⁾,
Н.И. Горбачук⁵⁾, А.Ф. Попович³⁾

¹⁾Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН,
ул. Вавилова 38, Москва, 119991, Россия, ralchenko@nsc.gpi.ru

²⁾Институт физики металлов УрО РАН,
ул.С.Ковалевской 18, Екатеринбург 620219, Россия, aekarkin@rambler.ru

³⁾Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН,
пл. Введенского 1, Фрязино, 141190, Россия, alex-khomich@mail.ru

⁴⁾Физический Институт им. П.Н. Лебедева РАН,
Ленинский проспект 53, Москва, 119991, Россия, klokov@lebedev.ru

⁵⁾Белорусский государственный университет,
пр. Независимости 4, 220030, Минск, тел. 2095110, poklonski@bsu.by

Исследовано влияние облучения быстрыми реакторными нейтронами на спектры ИК поглощения, комбинационного рассеяния света, фотолюминесценции, акустические и электрические свойства поликристаллических алмазных пленок, осажденных из газовой фазы.

Введение

Алмаз обладает рекордно высокими атомной плотностью, теплопроводностью, скоростью звука и твердостью, оптически прозрачен от ультрафиолета до дальнего ИК и способен работать в экстремальных условиях — в агрессивных средах, при высоких температурах и уровнях радиации, что делает алмаз перспективным материалом для изготовления электронных устройств с экстремальными параметрами [1] и датчиков ионизирующего излучения. Радиационное разупорядочение, индуцированное облучением быстрыми нейтронами и другими высокоэнергетическими частицами, широко используется как метод изучения исходного состояния широкозонных кристаллов, а также как способ модификации их структуры и физических свойств.

Образцы

Полированные пластины синтезированного в СВЧ плазме поликристаллического CVD (*chemical vapor deposition*) алмаза толщиной 0.4 мм облучались в мокром канале ядерного реактора ИВВ-2М в потоке быстрых нейтронов $\sim 10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ (с энергиями больше 0.1 МэВ) флюенсами $3 \cdot 10^{18}$ и $2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ при температуре облучения $(325 \pm 10) \text{ K}$, что заметно ниже температур ($\sim 650 \text{ K}$), при которых становится существенной диффузия точечных дефектов [2]. Структурное состояние, теплоемкость, электрические и магнитные свойства облученных быстрыми нейтронами в области флюенсов $\Phi = (1-5) \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ CVD-алмазов были исследованы нами в работе [3].

Оптические спектры

Облученные нейтронами алмазные пленки (АП) были непрозрачны в УФ-видимом диапазоне [4] из-за высокой концентрации вакансий и образования неупорядоченных областей. В ИК спектрах поглощения (рис. 1,а) видны интенсивные полосы в области однофононного поглощения, запрещенные правилами отбора в бездефектных

алмазах (здесь α — коэффициент поглощения света). С увеличением флюенса нейтронов спектральная форма [5] однофононной полосы искажается, а полосы собственного двухфононного поглощения алмаза ($1800-2350 \text{ см}^{-1}$) в ИК спектрах не проявляются. Лазерный отжиг ($\lambda = 488 \text{ нм}$, $P = 16 \text{ МВт/см}^2$, 1 минута) приводит к уменьшению индуцированного быстрыми нейтронами поглощения и появлению в ИК спектрах узких полос в диапазоне от 1450 до 1950 см^{-1} .

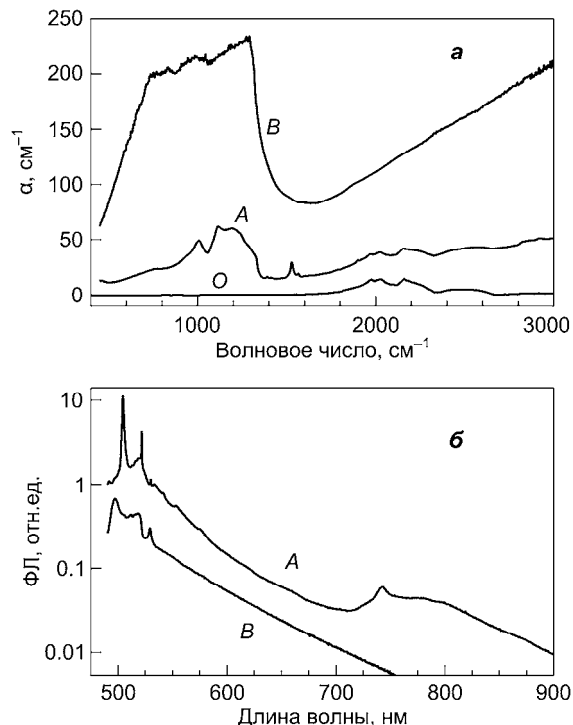


Рис. 1. Спектры ИК поглощения (а) и фотолюминесценции (ФЛ) (б) CVD АП, облученных быстрыми нейтронами с флюенсами $3 \cdot 10^{18}$ (А) и $2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ (В). (О) — спектр ИК поглощения CVD АП до облучения (а).

В спектрах ФЛ (рис. 1, б) присутствуют полосы GR1 (бесфононная линия на ~ 742 нм), 3Н (~ 504 нм), а также полоса центра окраски на ~ 533 нм [6]. У АП, облученной с $\Phi = 2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$, полосы ФЛ и алмазная полоса комбинационного рассеяния света (КРС) не видны (см. рис. 1, б и 2, а), а сам спектр КРС характерен для материала, в котором отсутствует трансляционная симметрия [2–3]. В отличие от аморфного кремния [7], для облученного алмаза увеличение флюенса не вызывает существенных изменений в спектрах КРС (рис. 2, а). Отжиг приводит к структурному упорядочиванию облученного алмаза и появлению алмазного пика в спектрах КРС. Форма дифференциального спектра КРС (рис. 2, б) определяется эффектом пространственного ограничения фононной волновой функции при размерах области когерентности 1–2 нм [8].

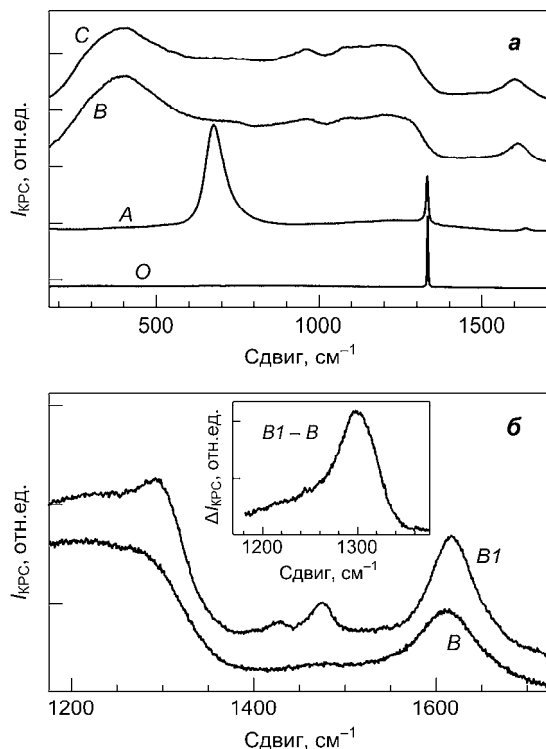


Рис. 2. а — Спектры комбинационного рассеяния света CVD АП до (О) и после облучения быстрыми нейтронами с флюенсами $3 \cdot 10^{18}$ (А), $2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ (В) и $2 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ (С). б — Влияние лазерного отжига ($\lambda = 488$ нм, $P = 16 \text{ МВт/см}^2$, 1 минута) на спектры КРС АП, облученной с флюенсом $2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$. На вставке — разность спектров КРС после (В1) и до (В) лазерного отжига.

Транспорт неравновесных акустических фононов

Методом тепловых импульсов исследован транспорт неравновесных акустических фононов при гелиевых температурах в CVD АП, облученных быстрыми нейтронами. Неравновесные фононы генерировались при фотовозбуждении одной из поверхностей образца импульсами АИГ лазера (длительность импульса 5 нс, длина волны 355 нм) и после распространения сквозь пластину детектировались с помощью сверхпроводникового болометра [9].

В образце с флюенсом $3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ при низких уровнях возбуждения (энергетическая экспозиция менее 0.2 мДж·см^{-2}) обнаружен вклад в отклик от баллистически распространяющихся ФТ (быстрых поперечных) фононов. С ростом уровня возбуждения форма фононного отклика существенно изменяется, в частности увеличивается задержка максимума (рис. 3). Это позволяет предположить, что в образце создается область локального теплового квазиравновесия фононов — так называемое «горячее фононное пятно» [10, 11].

В образце с $\Phi = 2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ в диапазоне энергетических экспозиций $1\text{--}150 \text{ мДж·см}^{-2}$ распространение фононов носит диффузионный характер (вставка на рис. 3). Вклад от баллистически распространяющихся фононов зарегистрировать не удалось. Таким образом, флюенс $2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ предположительно можно считать «критическим» с точки зрения образования в алмазе дефектов, влияющих на фононный транспорт.

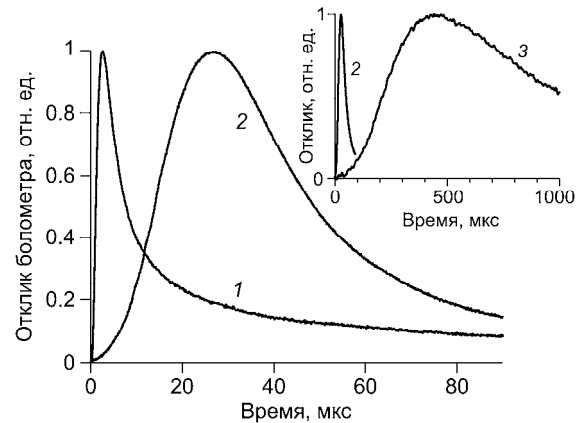


Рис. 3. Нормированный отклик болометра на приход неравновесных акустических фононов при оптическом возбуждении CVD АП, облученных быстрыми нейтронами с флюенсами $3 \cdot 10^{18}$ (кривые 1, 2), $2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ (кривая 3). Уровень оптического возбуждения для кривых 2 и 3 — 150 мДж·см^{-2} , для кривой 1 — 1.5 мДж·см^{-2} .

Электрические свойства

На рис. 4, а, б представлены зависимости от частоты действительной Z' и мнимой Z'' частей импеданса $Z = Z' + iZ''$ облученной нейтронами ($2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$) поликристаллической алмазной пленки и аппроксимации экспериментальных данных, полученные для эквивалентных схем замещения 1–3 (см. рис. 4, в), где R_{loss} и C_{loss} — сопротивление и емкость электрических потерь в алмазной пленке. Лучшее совпадение экспериментальных и расчетных данных $Z''(f)$ наблюдается для схемы 3 на рис. 4, в, в которой проводимость вдоль границ зерен, ориентированных перпендикулярно поверхности, «моделируется» резистором R_{gb} , а емкость зерен — конденсатором C . Элемент постоянной фазы (CPE), адмитанс $1/Z$ которого степенным образом зависит от частоты, учитывает разброс постоянных времени каналов проводимости вдоль границ зерен (кристаллитов). Отклонения расчетных значений $Z''(f)$ в области частот больше 1 МГц связано с неучитываемой эквивалентной схемой 3 зависимостью прыжковой

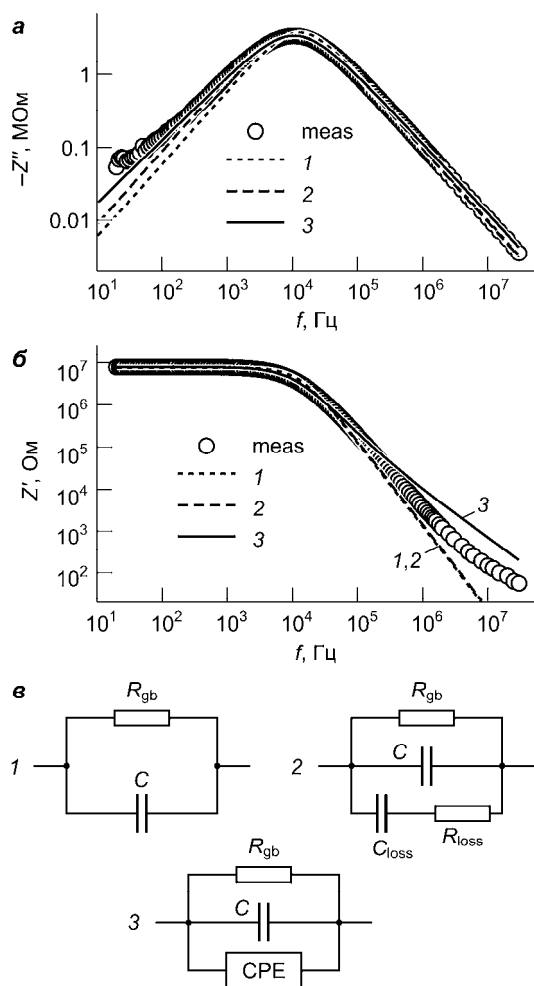


Рис. 4. Зависимость мнимой Z'' (а) и действительной Z' (б) части импеданса от частоты переменного тока f . Линии 1–3 — расчеты по эквивалентным схемам 1–3 соответственно (в).

электропроводности по дефектам АП от частоты тока [12].

В интервале температур 320–470 К энергия термической активации электрической проводимости, рассчитанная из измерений действительной части импеданса Z' на частоте $f = 1$ кГц, составила 450 мэВ. Измерения на постоянном токе в интервале температур 250–310 К дают энергию

активации 370 мэВ. Энергия активации электропроводности (как на постоянном, так и на переменном токе) уменьшается при понижении температуры измерения, что может рассматриваться как косвенное подтверждение гипотезы о прыжковом механизме переноса электронов по собственным дефектам структуры облученных нейтронами поликристаллических CVD алмазных пленок (см., например, [13]).

Работа выполнена при поддержке грантов 11-03-01247 и 11-02-01476 РФФИ, гранта Ф10Д-002 БелФФИ-РФФИ, Программы Президиума РАН «Квантовая физика конденсированных сред» (проект №09-П-2-1005 УрО РАН) и гранта ГПНИ «Функциональные и машиностроительные материалы, наноматериалы» Республики Беларусь.

Список литературы

1. Ральченко В., Конов В. // Электроника: Наука, технология, бизнес.— 2007.— № 4.— С. 58–67.
2. Orwa J.O., Nugent K.W., Jamieson D.N., Prawer S. // Phys. Rev. B.— 2000.— V. 62, № 9.— P. 5461–5472.
3. Karkin A.E., Voronin V.I., Berger I.F., Kazantsev V.A., Ponomov Yu.S., Ralchenko V.G., Konov V.I., Goshchitskii B.N. // Phys. Rev. B.— 2008.— V. 78, P. 033204 (4 pp.).
4. Хомич А.В., Хмельницкий Р.А., Дравин В.А., Гиппиус А.А., Заведеев Е.В., Власов И.И. // ФТТ.— 2007.— Т. 49, № 9.— С. 1585–1589.
5. Mita Y., Yamada Y., Nisida Y., Okada M., Nakashima T. // Physica B.— 2006.— V. 376–377.— P. 288–291.
6. Smith J.M., Grazioso F., Patton B.R., Dolan P.R., Markham M.L., Twitchen D.J. // New J. Phys.— 2011.— V. 13.— P. 045005 (13 pp.).
7. Lavrentiev V., Vacik J., Vorlicek V., Vosecek V. // Phys. Status Solidi B.— 2010.— V. 247, № 8.— P. 2022–2026.
8. Osswald S., Mochalin V.N., Havel M., Yushin G., Gogotsi Y. // Phys. Rev. B.— 2009.— V. 80.— P. 075419 (9 pp.).
9. Sharkov A.I., Galkina T.I., Klovov A.Yu., Khmel'nitskii R.A., Dravin V.A., Gippius A.A., Ralchenko V.G., Karabutov A.V. // Diam. Relat. Mater.— 2000.— V. 9, № 3–6.— P. 1100–1103.
10. Hensel J.C., Dynes R.C. // Phys. Rev. Lett.— 1977.— V. 39, № 15.— P. 969–972.
11. Казаковцев Д.В., Левинсон И.Б. // ЖЭТФ.— 1985.— Т. 88, № 6.— С. 2228–2243.
12. Shimakawa K., Miyake K. // Phys. Rev. B.— 1989.— V. 39, № 11.— P. 7578–7584.
13. Поклонский Н.А., Вырко С.А., Забродский А.Г. // ФТП.— 2008.— Т. 42, № 12.— С. 1420–1425.

EFFECT OF NEUTRON IRRADIATION ON OPTICAL, ACOUSTICAL AND ELECTRICAL PROPERTIES OF DIAMOND

V.G. Ralchenko¹⁾, A.E. Karkin²⁾, A.V. Khomich³⁾, A.Yu. Klovov⁴⁾, A.I. Sharkov⁴⁾, D.F. Aminev⁴⁾, N.A. Poklonski⁵⁾, I.I. Vlasov¹⁾, A.A. Khomich^{1,3)}, Yu.S. Ponomov²⁾, O.N. Poklonskaya⁵⁾, N.I. Gorbachuk⁵⁾, A.F. Popovich³⁾

¹⁾A.M. Prokhorov General Physics Institute, Vavilov str. 38, Moscow 119991, Russia, ralchenko@nsc.gpi.ru

²⁾Institute of Metal Physics UB RAS, S. Kovalevskoi Str. 18, Ekaterinburg 620219, Russia, aekarkin@rambler.ru

³⁾V.A. Kotelnikov Institute of Radioengineering and Electronics, sq. Vvedenskogo 1, Fryazino, Russia, alex-khomich@mail.ru

⁴⁾P.N. Lebedev Physical Institute, Leninsky av. 53, Moscow, 119991, Russia, klovov@lebedev.ru

⁵⁾Belarusian State University, Nezavisimosti av. 4. Minsk. 220030 Republic of Belarus, poklonski@bsu.by

Effects of fast neutron irradiation on spectra of IR absorption, Raman scattering, photoluminescence, acoustical and electrical properties of chemical vapor deposited polycrystalline diamond films have been studied.