

А. В. СЕМЕНОВ<sup>1,2</sup>, А. В. ЛОПИН<sup>1</sup>, В. Н. БОРИСКИН<sup>3</sup>

Украина, г. Харьков, <sup>1</sup>Институт монокристаллов НАНУ, <sup>2</sup>НТУ «Харьковский политехнический институт», <sup>3</sup>ИИЦ «Харьковский физико-технический институт» НАНУ

E-mail: savladi@ukr.net

## ВЛИЯНИЕ ЭЛЕКТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ПЛЕНОК НАНОКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО SiC НА ПОДЛОЖКАХ ИЗ МОНОКРИСТАЛЛА Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

*Исследована радиационная стойкость пленок нанокристаллического карбида кремния nc-SiC на подложке из монокристалла сапфира в условиях облучения высокоэнергетическими (10 МэВ) электронами в диапазоне флюенса 5·10<sup>14</sup>–2·10<sup>20</sup> см<sup>-2</sup>. Установлено, что радиационные изменения в пленках nc-SiC в первую очередь проявляются в УФ-области спектра поглощения, обусловленной межзонными переходами. Показано, что вслед за начальной разупорядоченностью пленок nc-SiC, полученной при флюенсе 5·10<sup>14</sup>–1·10<sup>16</sup> см<sup>-2</sup>, происходит упорядочение структуры при дозах облучения (1–5)·10<sup>17</sup> см<sup>-2</sup>. Установлено, что начало отжига дефектов в облученных пленках наблюдается уже при 200°С. Существенные изменения оптических свойств в сапфире начинаются при флюенсе 5·10<sup>17</sup> см<sup>-2</sup>, что следует учитывать при использовании этих материалов для оптоэлектронных приборов в условиях интенсивных радиационных воздействий.*

*Ключевые слова:* нанокристаллические пленки SiC, монокристаллы Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, спектры поглощения, облучение электронами, радиационные дефекты, радиационное упорядочение, отжиг дефектов.

Одним из первоочередных требований к перспективным электронным приборам является повышение их стойкости к интенсивным радиационным воздействиям. В связи с этим, внимание разработчиков обращено к нанокристаллическим полупроводниковым материалам, обладающим исключительно высокими порогами радиационных деградации и аморфизации по сравнению с монокристаллами [1–3]. Это обусловлено высокой концентрацией интерфейсных областей в виде границ нанокристаллов, которые могут выступать в качестве поглотителей точечных дефектов и обеспечивать ускорение их рекомбинации [4, 5]. Материалы на основе нанокристаллического карбида кремния nc-SiC привлекают особое внимание в связи с комплексом уникальных свойств SiC, таких как высокие значения пороговой энергии дефектообразования (25–35 эВ) [6, 7], высокотемпературная стабильность, химическая инертность и отличные механические свойства [8, 9]. Кроме фундаментальных свойств слой nc-SiC, полученные прямым ионным осаждением [10], обладают рядом свойств, связанных с такими квантовыми эффектами в нанокристаллах, как аномально высокая нелинейно оптическая восприимчивость [11, 12], коллективные магнитные свойства [13], многоступенчатая межкристаллитная туннельная проводимость [14]. Эти свойства обуславливают перспективы широкого применения пленок во многих областях микроэлектроники, оптоэлектро-

ники, квантовой электроники в условиях внешних жестких воздействий.

Исследования влияния облучения пленок nc-SiC высокоэнергетическими (10 МэВ) электронами, выполненные ранее в [15], показали высокую радиационную стойкость материала и немонотонную зависимость свойств от флюенса облучения. При этом было установлено, что более слабым звеном в радиационной стабильности оптических свойств системы «nc-SiC-пленка + подложка Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>» является подложка: несмотря на то, что монокристалл Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> является одним из наиболее радиационно стойких кристаллических материалов, сапфировая подложка проявила более высокую зависимость изменения оптической плотности от флюенса облучения по сравнению с nc-SiC пленками. Поэтому в настоящей работе более детально исследовано влияние высокоэнергетического (10 МэВ) электронного облучения и восстанавливающего отжига на оптические свойства системы, состоящей из пленки nc-SiC произвольного ромбоэдрического полимера и подложки Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

### Экспериментальные образцы и методика измерений

Проводилось облучение электронами с энергией 10 МэВ нанокристаллических пленок карбида кремния толщиной 1,2 мкм, осажденных на подложки из сапфира методом прямого ионного осаждения [10]. В исследуемых пленках со-

держание кристаллической фазы SiC (преимущественно кристаллитов политаипа 21R размером 4–5 нм) составляло 80% [16].

Образцы пленок *nc*-SiC на подложках из сапфира поэтапно облучали на ускорителе электронов КУТ [17] сканирующим импульсным пучком электронов со следующими параметрами:

- частота сканирования пучка 3 Гц;
- количество импульсов в секунду 200;
- длительность импульса 3,6 мкс;
- амплитуда импульса тока 0,5 А;
- энергия электронов 10 МэВ.

Небольшая толщина пленок и подложек (0,5 мм) и высокая энергия облучающих электронов обеспечивали полный пролет электронов через пленки и подложки. Одни и те же образцы облучали поэтапно тринадцать раз с нарастающим флюенсом  $F_i$  (см. табл. 1). Оптические свойства пленок измеряли после каждого облучения.

Для определения температуры отжига радиационных дефектов после набора образцами флюенса  $3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$  часть образцов была ступенчато отожжена в вакууме в температурном диапазоне 200–1200 °С.

Для определения изменений оптических свойств пленок *nc*-SiC в системе «пленка – подложка» отдельно измеряли оптические характеристики чистого сапфира при тех же условиях облучения.

Оптические параметры пленок и подложек изучали спектрофотометрическими методами с использованием современных методик обработки спектров. Спектральные измерения проводились на спектрофотометре Lambda 35 фирмы Perkin Elmer в диапазоне 190–1100 нм.

Измеряли коэффициенты пропускания и отражения (в том числе и диффузного) пленок *nc*-SiC на подложке. Из спектров отражения вычисляли толщину пленки SiC  $d$  и ее показатель преломления  $n$  [18]. Из спектров пропускания вычисляли оптическую плотность, коэффициент поглощения и дифференциальную оптическую плотность

$$\Delta D = D_i(\lambda) - D_0(\lambda) = \lg [T_i(\lambda) / T_0(\lambda)], \quad (1)$$

где  $D_0(\lambda)$ ,  $D_i(\lambda)$  и  $T_0(\lambda)$ ,  $T_i(\lambda)$  – соответственно, оптическая плотность и коэффициент пропускания образца в исходном состоянии и после  $i$ -го флюенса (либо отжига) на длине волны  $\lambda$ .

Для того чтобы проанализировать спектр поглощения в пленках *nc*-SiC, из спектров исходных пленок на подложках вычитали поглощение и отражение в подложках  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

### Исследование оптических параметров пленки *nc*-SiC

На рис. 1 представлены спектры пропускания, оптической плотности и отражения исходных образцов и после каждого этапа облучения.

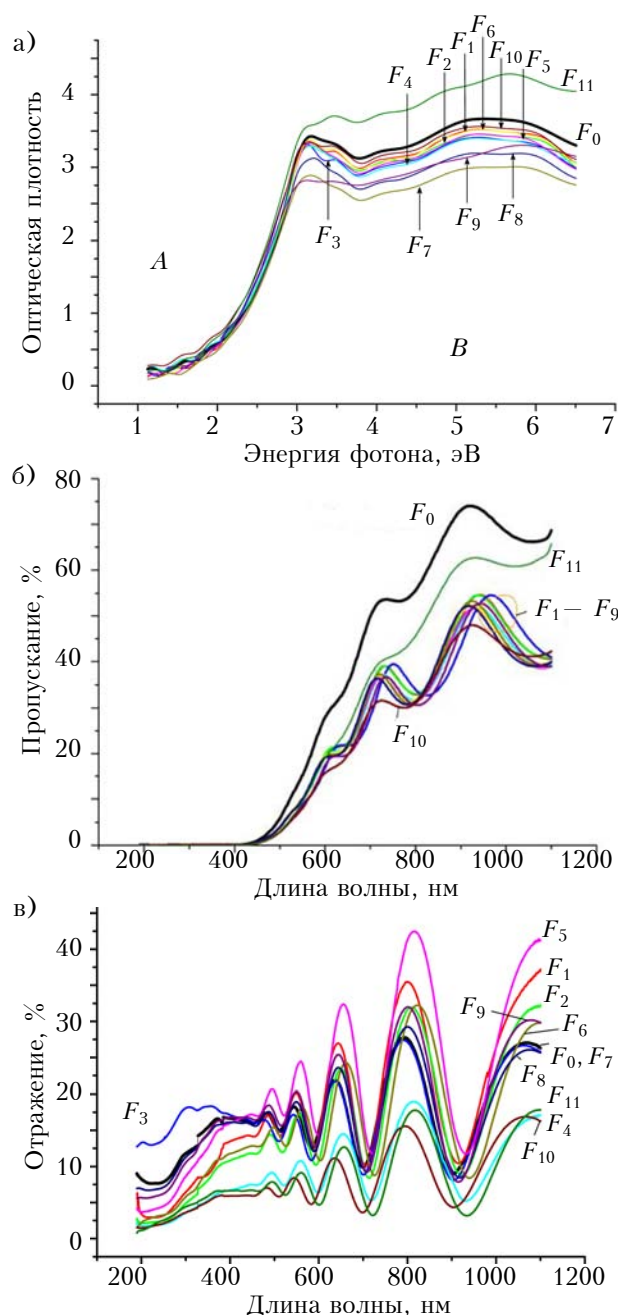


Рис. 1. Спектры оптической плотности (а), пропускания (б) и отражения (в) исходной *nc*-SiC-пленки на подложке из  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $F_0$ ) и после облучения различным флюенсом электронов

Таблица 1

Величина флюенсов, которыми поэтапно облучали исследуемые образцы (в  $\text{см}^{-2}$ )

$F_1$	$F_2$	$F_3$	$F_4$	$F_5$	$F_6$	$F_7$	$F_8$	$F_9$	$F_{10}$	$F_{11}$	$F_{12}$	$F_{13}$
$5 \cdot 10^{14}$	$1 \cdot 10^{15}$	$5 \cdot 10^{15}$	$1 \cdot 10^{16}$	$5 \cdot 10^{16}$	$1 \cdot 10^{17}$	$5 \cdot 10^{17}$	$1 \cdot 10^{18}$	$3 \cdot 10^{18}$	$9 \cdot 10^{18}$	$1,23 \cdot 10^{19}$	$2 \cdot 10^{19}$	$9 \cdot 10^{19}$

Приведенные на рис. 1, а спектры отражают структурно чувствительные зависимости максимумов оптической плотности (ОП) от флюенса облучения. Выполненный нами ранее [15] детальный анализ таких зависимостей поглощения облученных пленок при энергиях фотонов ниже и выше края фундаментального поглощения позволяет сделать вывод, что накопление радиационных дефектов в граничных разупорядоченных областях пленок нанокристаллического SiC происходит медленнее, чем в кристаллической фазе SiC. Такое заключение хорошо согласуется с общей моделью радиационной устойчивости нанокристаллических материалов.

Из спектров пропускания на рис. 1, б видно, что положение края фундаментальной полосы поглощения зависит от уровня флюенсов электронного облучения, а прозрачность облученных пленок уменьшается во всем спектральном диапазоне, при этом наблюдается некоторое насыщение от флюенса. Из рисунка также видно, что угол наклона краевого участка кривой пропускания уменьшается с увеличением электронных флюенсов, что указывает на изменение границы запрещенной зоны. В то же время, значительная величина пропускания облученных с максимальным флюенсом образцов в длинноволновой области (около 700 нм) основной полосы поглощения (более 40%) и четкая интерференционная картина свидетельствуют о сохранении структурного совершенства нанокристаллической фазы в пленках, прозрачность которых чувствительна к изменению коэффициента поглощения.

Для однозначного определения параметров энергетической структуры полупроводника было проанализировано поглощение и определена ширина запрещенной зоны. В общем виде взаимосвязь между шириной запрещенной зоны  $E_g$ , коэффициентом поглощения  $\alpha$  и частотой излучения  $\nu$  может быть представлена выражением [19]

$$d(\ln(\alpha E))/dE = m/(E - E_g), \quad (2)$$

где  $m$  — коэффициент, отражающий природу оптических переходов. Для непрямых разрешенных переходов в карбиде кремния  $m = 2$  [18].

Экстремумы этой функции указывают на значения энергии оптических переходов, соответствующие зонной структуре исследуемой пленки [19], поэтому спектры поглощения были перестроены в координатах  $d(\ln(\alpha E))/dE$  и  $E$  — см. **рис. 2**. В этом случае оценку величины запрещенной зоны в общем виде проводили по положению максимума спектра поглощения, т. е. по положению пика, соответствующего переходу электрона в зону проводимости. Наличие нескольких максимумов на полученных графиках

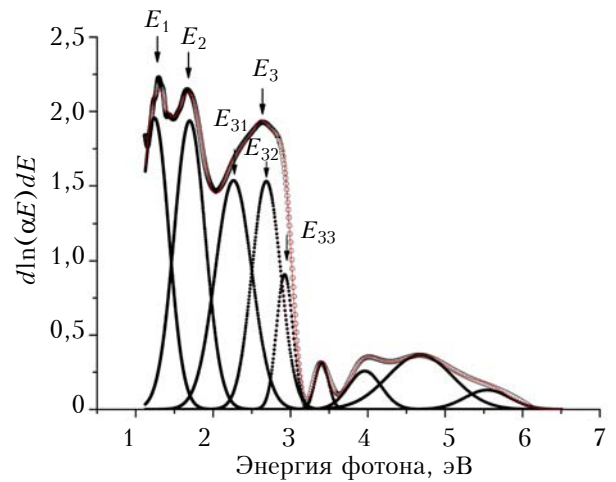


Рис. 2. Зависимость  $d(\ln(\alpha E))/dE$  от энергии фотона, полученная из спектров на рис. 1, а

свидетельствует о присутствии нескольких переходов в энергетическом спектре нанокристаллической системы. Из приведенных на рис. 1, а спектров ОП видно, что пленка имеет сложную структуру края собственного поглощения. Характерными особенностями и отличиями спектров поглощения пленок *nc*-SiC является протяженность спектров в длинноволновую область с перекрытием запрещенных зон соответствующих политипов. Согласно [19] наличие максимумов на графиках рис. 2 соответствует переходам электрона в зону проводимости.

Оптические переходы  $E_1$  и  $E_2$  соответствуют непрямым разрешенным переходам, характеризующим длинноволновой хвост, связанный с появлением дополнительного поглощения как дефектами в запрещенной зоне SiC, так и материалом граничных межкристаллитных областей. Оптический переход  $E_3$  характеризует оптическую ширину запрещенной зоны. Поскольку этот пик значительно уширен, он был аппроксимирован тремя гауссианами с энергиями  $E_{31} = 2,35$  эВ,  $E_{32} = 2,67$  эВ и  $E_{33} = 2,89$  эВ, которые близки к энергиям запрещенных зон в SiC кубического и ромбоэдрического политипа [20]. Усредненное значение энергии прямого перехода составляет  $E = 2,63$  эВ, что совпадает с измерениями в координатах  $(\alpha E)_2$  и  $E$ .

Для количественного определения характеристик пленки в окрестности границы фундаментального поглощения используем выражение для коэффициента поглощения в этой области при  $h\nu < E_g$  в виде [21, 22]

$$\alpha(h\nu) = B \cdot \Delta E_0^{3/2} \cdot \exp(h\nu / \Delta E_0). \quad (3)$$

Здесь предэкспонента  $\Delta E_0$  — эмпирический параметр, имеющий размерность энергии и описывающий ширину полосы локализованных со-

стояний в энергетической щели, который отражает влияние различных дефектов, приводящих к размытию границы полосы. Показатель степени  $3/2$  учитывает прямые запрещенные переходы, для непрямозонных полупроводников (при непрямых запрещенных переходах) он будет равен 3 [23].

Входящий в выражение (3) коэффициент  $B$  пропорционален концентрации включений и дефектов, образованных в пленке, и определяет наклон краевого участка фундаментальной полосы поглощения.

С помощью этой формулы было оценено изменение концентрации дефектов в пленке  $nc$ -SiC в зависимости от электронных флюенсов, которое иллюстрируется рис. 1, а. В соответствии с данными структурного анализа [16, 24] модель пленки SiC представляется в виде совокупности нанокристаллов различного типа: преимущественно ромбоэдрического политипа 21R-SiC, других сопутствующих политипов (например, кубического 3C-SiC с размерами кристаллов от 4 до 6 нм), нанокристаллов кремния и межграницной областью, содержащей разупорядоченные фазы карбида кремния и оксидов, таких как  $SiO_x$ .

На кривых рис. 1, а можно выделить две области оптического поглощения. Область  $A$  находится в области энергий фотонов  $E < E_g$ , она обусловлена переходами, непосредственно включающими дефектные состояния. В области  $B$  ( $E > E_g$ ) оптическое поглощение связано с переходами в полностью координированной системе, до некоторой степени возмущенной дефектами. Край поглощения, соединяющий две эти области, является сложным. При низких энергиях фотонов появляется хвост, обусловленный дефектами. Оптическая плотность экспоненциально зависит от энергии фотона при небольших значениях  $E$ , а при более высоких изменяется по степенному закону.

Поскольку при облучении электронами с энергией 10 МэВ генерируются точечные радиационные дефекты (междоузельные атомы, ва-

кансии и их комплексы), в спектрах оптической плотности облученных пленок должны наблюдаться соответствующие изменения. Для количественного описания этих изменений краевые участки спектральных кривых были аппроксимированы функцией (3) — из значений ОП вычислены и затем аппроксимированы коэффициенты поглощения ( $h\nu$ ).

Из табл. 2 видно, что при последовательном облучении пленок нанокристаллического карбида кремния происходит рост параметров аппроксимации  $B$  и  $\Delta E_0$  вплоть до флюенса  $F_4$ , уменьшение до минимума ( $F_6$ ), а затем постепенное увеличение в 1,2–1,7 раза. Увеличение  $B$  и  $\Delta E_0$  отражает не только уширение полосы локализованных состояний в энергетической щели, связанное с увеличением концентрации различных дефектов, но и существенное изменение наклона края полосы поглощения.

При больших концентрациях дефектов кривая оптической плотности становится более пологой и протяженной в длинноволновую область видимого участка спектра, что приводит к известным затруднениям при определении величины оптической щели. В первом приближении оценить влияние дефектной составляющей пленок на спектры поглощения можно путем взаимного вычитания спектров оптической плотности пленок  $nc$ -SiC, полученных при различных флюенсах.

На рис. 3 показаны спектры дифференциальной ОП пленок  $nc$ -SiC, полученные относительно спектров ОП исходных образцов. Из рисунка видно, что вначале происходит существенный рост поглощения в так называемом хвосте, уходящем в запрещенную зону, благодаря возникновению в запрещенной зоне новых дефектов. Затем начинает происходить радиационный отжиг дефектов и при шестом флюенсе разностный спектр поглощения стремится к нулю. Эти результаты согласуются и дополняют данные о радиационном отжиге дефектов в пленке  $nc$ -SiC при флюенсе  $10^{16} \text{ см}^{-2}$ , представленные в [15].

Таблица 2

Параметры аппроксимации представленных на рис. 3 спектров оптической плотности пленок  $nc$ -SiC при различных флюенсах

Флюэнс	$F_0$	$F_1$	$F_2$	$F_3$	$F_4$	$F_5$
$B, \text{ см}^{-1}\text{эВ}^{3/2}$	0,038	0,0537	0,058	0,061	0,058	0,0573
$\Delta E_0, \text{ эВ}$	0,566	0,6255	0,6309	0,6351	0,6344	0,633
Флюэнс	$F_6$	$F_7$	$F_8$	$F_9$	$F_{10}$	$F_{11}$
$B, \text{ см}^{-1}\text{эВ}^{3/2}$	0,0533	0,0613	0,062	0,065	0,0672	0,0658
$\Delta E_0, \text{ эВ}$	0,629	0,6487	0,6634	0,668	0,6758	0,6549

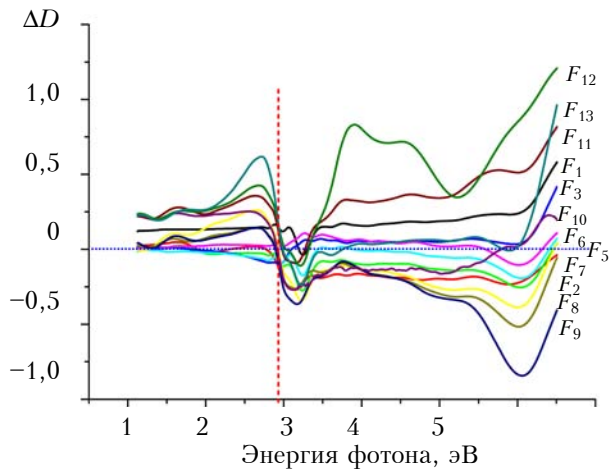


Рис. 3. Спектры дифференциальной оптической плотности облученных различными флюенсами пленок *n*-SiC, полученные относительно исходных образцов

В [25] было показано, что при толщине пленок *n*-SiC от 1 до 2 мкм наблюдается устойчивая интерференция, особенно четко наблюдаемая в спектре отражения при  $\lambda > 500$  нм. Используя результаты измерения коэффициента отражения после проведенного облучения (рис. 1, в), были рассчитаны показатель преломления и коэффициент экстинкции пленки в диапазоне  $\lambda = 788 - 818$  нм. Именно в этой области происходят смещения интерференционного максимума с порядком интерференции  $N = 8$ , а следовательно, оптической толщины  $\delta = nd$ . Значит,

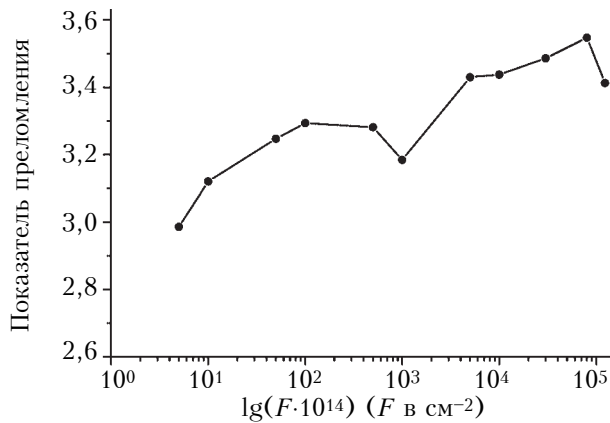


Рис. 4. Зависимость показателя преломления пленки *n*-SiC от флюенса при поэтапном облучении

поскольку флюенсы электронного облучения не влияют на геометрическую толщину пленки, изменяется показатель преломления пленки.

Если проанализировать приведенную на рис. 4 зависимость, рассчитанную из спектров отражения по интерференционной кривой, можно говорить о корреляции этой зависимости с вышеприведенными данными. Из графика видно, что по мере увеличения флюенса облучения происходит усиление разупорядоченности структуры в пленках SiC и рост показателя преломления от 2,8816 до 3,2805, достигающего максимума при флюенсах  $5 \cdot 10^{15} - 1 \cdot 10^{16}$  см<sup>-2</sup>. Далее, при флюенсе  $1 \cdot 10^{17}$  см<sup>-2</sup> происходит радиационное упорядочение, обусловленное уменьшением концентрации радиационных дефектов за счет их аннигиляции. После этого зависимость показателя преломления от дозы облучения электронами проходит через минимум, указывая тем самым на некоторое структурное упорядочение. Все измеренные оптические величины подтверждают радиационное упорядочение при дозах облучения  $1 \cdot 10^{17} - 5 \cdot 10^{17}$  см<sup>-2</sup>.

На рис. 5 представлены спектры ОП пленок *n*-SiC, облученных флюенсом  $F_{11} = 1,23 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup> и отожженных при различной температуре, а в табл. 3 – параметры аппроксимации, полученные при обработке спектров с помощью формулы (3).

На рис. 5 видно, что с повышением температуры отжига оптическая плотность пленки

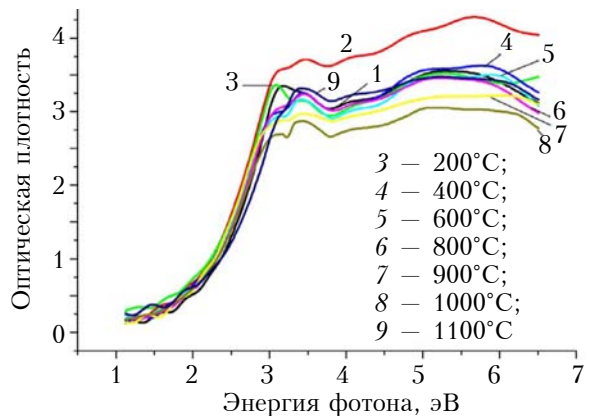


Рис. 5. Спектры ОП исходных пленок (1) и облученных флюенсом  $F_{11}$  до отжига (2) и отожженных в вакууме при различных температурах (3–9)

Таблица 3

Параметры аппроксимации представленных на рис. 3 спектров ОП пленок *n*-SiC (кривые 2–9)

Температура отжига, °С	—	200	400	600	800	900	1000	1100
$B, \text{ см}^{-1} \cdot \text{эВ}^{3/2}$	0,065	0,059	0,0551	0,053	0,052	0,048	0,041	0,04
$\Delta E_0, \text{ эВ}$	0,6549	0,661	0,6435	0,6373	0,6289	0,6244	0,5851	0,5846

уменьшается немонотонно. После первого отжига при температуре 200°C наблюдается значительное уменьшение поглощения, связанное, видимо, с отжигом дефектов на основе вакансий углерода, имеющих наименьшую энергию активации диффузии. Затем при общей тенденции к уменьшению оптической плотности наблюдаются ее колебания в другую сторону при температуре отжига 800°C.

При температуре отжига 1100°C ОП обработанной пленки практически совпадает с ОП исходной пленки. Эти данные хорошо коррелируют со значениями параметров  $B$  и  $\Delta E_0$ , представленными в табл. 3. Уже при 200°C начинаются изменения в облученных пленках, что свидетельствует о больших концентрациях вакансий с малой энергией активации диффузии. Из литературы известно, что такими радиационными дефектами в карбиде кремния являются вакансии углерода  $V_c$ , которые начинают отжигаться при 200°C [26].

Линейно уменьшаясь при уменьшении температуры отжига в диапазоне 200–1200°C, значения  $B$  и  $\Delta E_0$  достигают минимума, т. е. достигается максимальное упорядочение структуры пленки при температуре 1100–1200°C. Таким образом, существенных деградационных ее изменений не наблюдается, в отличие от сапфира, оптические свойства которого начинают существенно изменяться уже при флюенсе  $5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ .

### Исследование оптической плотности подложки $\text{Al}_2\text{O}_3$

Дополнительно было проведено исследование радиационной стойкости сапфира, поскольку изменение его оптических свойств влияет на результаты измерений спектральных зависимостей коэффициентов пропускания и отражения системы «пленка — подложка».

Известно, что  $\text{Al}_2\text{O}_3$  устойчив к ионизирующим излучениям, а существенная перестройка дефектной структуры и изменения его электрофизических свойств наблюдается лишь при облучении высокоэнергетическими частицами, которые вызывают прямые смещения атомов [27]. Такое облучение приводит к появлению серии центров окраски, ответственных за многочисленные полосы анизотропного поглощения и люминесценции в ультрафиолетовой и видимой областях спектра [28]. Поэтому необходимо знать степень деградации чистой сапфировой подложки для последующего корректного учета изменений оптических свойств при электронном облучении самой пленки  $nc\text{-SiC}$ .

На рис. 6 представлены спектры оптической плотности чистой сапфировой подложки (участка без  $nc\text{-SiC}$  пленки) при различных флюенсах облучения и температурах отжига. Из полученных зависимостей было установлено, что изме-

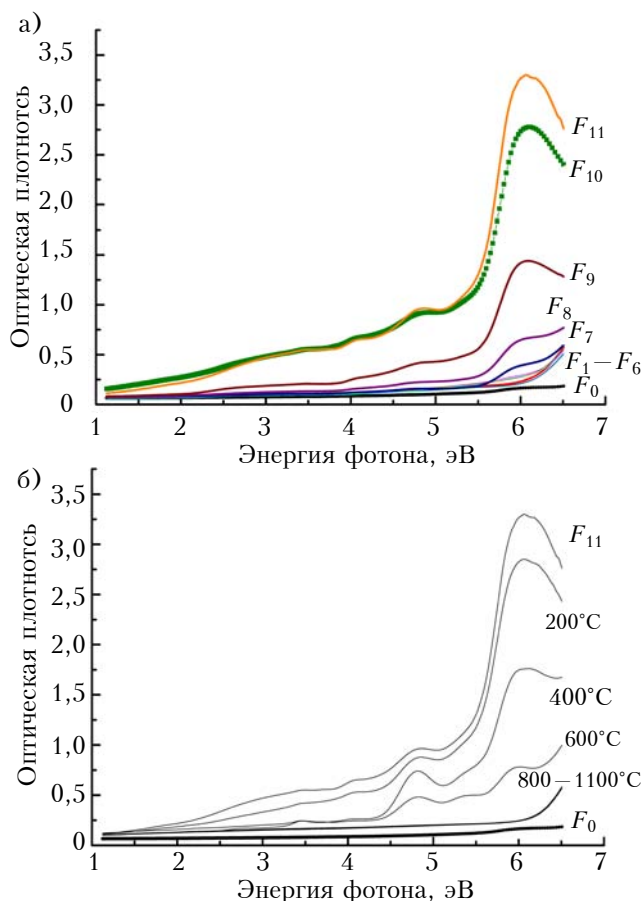


Рис. 6. Спектры ОП чистой сапфировой подложки (без пленки) при различных флюенсах облучения (а) и температурах отжига, проведенного после облучения флюенсом  $F_{11}$  (б)

нение оптических свойств подложки из  $\text{Al}_2\text{O}_3$  начинает проявляться уже при первом электронном флюенсе (рис. 6, а). Пропускание уменьшается на 6,2% (на длине волны 327 нм) для флюенса  $F_1$  и на 8,4% для флюенса  $F_6$ . С флюенса  $F_7$  ( $5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ) начинают формироваться полосы поглощения возникших дефектов. Наибольший пик поглощения приходится на энергию фотона 6 эВ. Меньшие по интенсивности пики поглощения находятся на 4,06 и 4,85 эВ. Поглощение  $\text{Al}_2\text{O}_3$  при 6 эВ (205 нм) и связанная с ним люминесценция при 3 эВ (415 нм) обусловлены переходами в энергетической структуре  $F$ -центра между  $p$ -подобным возбужденным состоянием, лежащим вблизи дна зоны проводимости, и  $s$ -подобным основным состоянием.

Характерные полосы поглощения при 4,8 эВ (260 нм) и 5,4 эВ (230 нм) связаны с  $F^+$ -центром [28]. Для восстановления свойств монокристаллической подложки был проведен ряд отжигов в вакууме образца  $\text{Al}_2\text{O}_3$  после облучения флюенсом  $F_{11}$ . Результаты показали, что при температурах отжига 800°C и выше сапфир практически восстанавливает свои оптические характери-

ки, как это видно из рис. 6, б. При этом, однако, оптические свойства у отожженных подложек близки к свойствам подложек, облученных флюенсами  $F_1$  и  $F_2$ , поскольку их пропускание на 6–7% меньше, чем для исходного образца.

#### Исследование оптической плотности системы «пленка — подложка»

На рис. 7 приведены спектры оптической плотности после флюенса  $F_9$  системы «пленка *nc*-SiC — подложка  $Al_2O_3$ » и ее составляющих. Начиная примерно с флюенса  $10^{18}$  см<sup>-2</sup>, оптическая плотность системы «пленка — подложка» существенно увеличивается за счет того, что растет оптическое поглощение радиационных дефектов в подложке  $Al_2O_3$ .

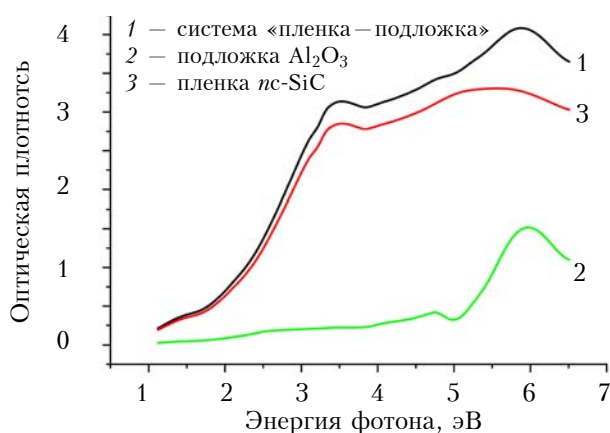


Рис. 7. Спектры ОП системы «пленка *nc*-SiC — подложка  $Al_2O_3$ » и ее составляющих

Из приведенных зависимостей видно, что поглощение в сапфире в результате облучения усиливается в области фундаментального поглощения SiC (>2 эВ). Особенно значительный вклад поглощение в сапфире вносит в общее поглощение системы «пленка *nc*-SiC — подложка  $Al_2O_3$ » в области 6–30%, что следует учитывать при разработке приборов на основе такой системы для эксплуатации в жестких радиационных условиях.

#### Выводы

Проведенные исследования влияния облучения системы, состоящей из пленки *nc*-SiC произвольного ромбоэдрического политаипа и подложки  $Al_2O_3$ , высокоэнергетическими ( $10$  МэВ) электронами на оптические свойства в широком диапазоне флюенсов (от  $5 \cdot 10^{14}$  до  $9 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>) показали, что радиационные изменения, в первую очередь, проявляются в УФ-области спектра, связанной с межзонными переходами, а затем в области спектра, обусловленной поглощением собственными дефектами и неупорядоченными областями. Вслед за некоторой начальной разупорядоченностью структуры пленок *nc*-SiC

при флюенсах  $5 \cdot 10^{14}$  —  $1 \cdot 10^{16}$  см<sup>-2</sup> происходит ее упорядочение при флюенсах  $(1-5) \cdot 10^{17}$  см<sup>-2</sup>. Начало отжига дефектов в облученных пленках наблюдается уже при  $200^\circ\text{C}$ , что свидетельствует о большой концентрации углеродных вакансий, имеющих наименьшие энергии активации диффузии. Поскольку существенные изменения оптических свойств в сапфире начинаются при флюенсе  $5 \cdot 10^{17}$  см<sup>-2</sup>, это следует учитывать при использовании системы «пленка *nc*-SiC — подложка  $Al_2O_3$ » для оптоэлектронных приборов и сенсоров, работающих в условиях интенсивных радиационных воздействий.

#### ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ

1. Ackland G. Controlling radiation damage // Science. — 2010. — Vol. 327, iss. 5973. — P. 1587–1588. — <http://dx.doi.org/10.1126/science.1188088>
2. Misra A., Demkowicz M., Zhang X., Hoagland R. The radiation damage tolerance of ultra-high strength nanolayered composites // JOM. — 2007. — Vol. 59, iss. 9. — P. 62–65. — <http://dx.doi.org/10.1007/s11837-007-0120-6>
3. Samaras M., Hoffelner, W., Victoria M. Irradiation of pre-existing voids in nanocrystalline iron // J. Nucl. Mater. — 2006. — Vol. 352, iss. 1–3. — P. 50–56. — <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2006.02.041>
4. Shen T.D., Feng Sh., Tang M., Valdez J.A., Wang Y., Sickafus K.E. Enhanced radiation tolerance in nanocrystalline  $MgGa_2O_4$  // Appl. Phys. Lett. — 2007. — Vol. 90, iss. 24. — P. 263115–263120. — <http://dx.doi.org/10.1063/1.3155855>
5. Hochbauer T., Misra A., Hattar K., Hoagland R. G. Influence of interfaces on the storage of ion-implanted He in multilayered metallic composites // J. Appl. Phys. — 2005. — Vol. 98, iss. 12. — P. 123516–123524. — <http://dx.doi.org/10.1063/1.2149168>
6. Properties of Advanced Semiconductor Materials: GaN, AlN, InN, SiC, SiGe // Ed. by M.E. Levinshstein, S.L. Rumyantsev, M.S. Shur. — USA, N.Y., John Wiley & Sons, 2001. — 216 p.
7. Barry A.L., Lehman B., Fritsch D., Brauning D. Mechanisms of unexpected reduction in hole concentration in Al-doped 4H-SiC 4H-SiC by 200 keV electron irradiation // IEEE Trans. Nucl. Sci. — 1991. — Vol. 38. — P. 1111–1119. — <https://doi.org/10.1109/IETNAE>
8. Kalinina E.V. The effect of irradiation on the properties of SiC and devices based on this compound // Semiconductors. — 2007. — Vol. 41, iss. 7. — P. 745–783. — <https://doi.org/10.1134/S1063782607070019>
9. Lebedev A.A., Ivanov A.M., Strokhan N.B. Radiation hardness of SiC and hard radiation detectors based on the SiC films // Semiconductors. — 2004. — Vol. 38, iss. 12. — P. 125–131.
10. Semenov A.V., Puzikov V.M., Dobrotvorskaya M.V., Fedorov A.G., Lopin A.V. Nanocrystalline SiC films prepared by direct deposition of carbon and silicon ions // Thin Solid Films. — 2008. — Vol. 516, iss. 10. — P. 2899–2905. — <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2007.05.059>
11. Brodyn M.S., Volkov V.I., Lyakhovetskii V.R., Rudenko V.I., Puzikov V.M., Semenov A.V., Nonlinear refraction in nanocrystalline silicon carbide films // JETP Letters. — 2008. — Vol. 88, iss. 6. — P. 442–444. — <https://doi.org/10.1134/S0021364008180094>
12. Borshch A.A., Brodyn M.S., Starkov V.N., Rudenko V.N., Volkov V.I., Boyarchuk A.Yu., Semenov A.V. Broadband optical limiting in thin nanostructured silicon carbide films and its nature // Optics Communication. — 2016. — Vol. 364. — P. 88–92. — DOI: 10.1016/j.optcom.2015.11.040
13. Semenov A.V., Pashchenko V.O., Khirnyi V.F., Kozlovskiy A.A., Mateichenko P.V. Magnetism in nanocrystalline SiC films // Physica E, Low-dimensional Systems and Nanostructures. — 2015. — Vol. 74. — P. 220–225. — <https://doi.org/10.1016/j.physe.2015.07.006>
14. Kozlovskiy A., Semenov A., Scoryk S. Electron transport in nanocrystalline SiC films obtained by direct ion deposition // Superlattices and Microstructures. — 2016. — Vol. 216. — P. 596–604. — <http://dx.doi.org/10.1016/j.spmi.2016.10.013>

15. Semenov A. V., Lopin A. V., Puzikov V. M., Boriskin V. N. Effect of irradiation on the properties of nanocrystalline silicon carbide films // Semiconductors. – 2009. – Vol. 43, iss. 10. – P. 1322–1327. – <https://doi.org/10.1134/S106378260910011X>

16. Semenov A. V., Puzikov V. M., Golubova E. P. et al. Low-temperature production of silicon carbide films of different polytypes // Semiconductors. – 2009. – Vol. 43, iss. 5. – P. 685–689. <https://doi.org/10.1134/S1063782609050273>

17. Ayzatsky M. I., Akchurin Yu. I., Beloglasov V. I. et al. Electron linacs in NSC KIPT: R&D and application. // Proc. of the 14<sup>th</sup> Conf. on Charged Particle Accelerators. – Russia, Protvino. – 1994. – Vol. 4. – P. 259–267.

18. Lopin, A. V., Semenov, A. V., Puzikov V. M. Optical properties of Silicon Carbide obtained by direct ion deposition // Functional materials. – 2006. – Vol. 15, iss. 4. – P. 631–636.

19. Chakrabarti S., Ganduli D., Chaudhuri S. Optical properties of  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles dispersed on sol-gel silica spheres // Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures. – 2004. – Vol. 24, iss. 3-4. – P. 333–342. – <https://doi.org/10.1016/j.physe.2004.06.036>.

20. Choyke W. J. Optical and electronic properties of SiC // The Physics and Chemistry of Carbides, Nitrides and Borides, NATO ASI Series. – 1990. – Vol. 185. – P. 563–587.

21. Srikant V., Clarke D. R. On the optical band gap of zinc oxide // J. Appl. Phys. – 1997. – Vol. 81, iss. 10. – P. 6357–6364. – <http://dx.doi.org/10.1063/1.367375>.

22. Gorbatenko L. S., Novodvorsky O. A., Panchenko V. Ya. et al. Characterization of ZnO:Ga and ZnO:N films prepared by PLD // Laser Physics. – 2009. – Vol. 19,

iss. 5. – P. 1152–1157. <https://doi.org/10.1134/S1054660X11080019>

23. Mott N.F., Davis E.A. Electronic processes in non-crystalline materials. – Oxford: Seiten, 1971. – 437 p.

24. Семенов А.В., Лопин А.В., Пузиков В.М. Низкотемпературное получение и оптические свойства пленок карбида кремния // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. – 2004. – вып. 9. – С. 99–106.

25. Лопин А.В., Семенов А.В., Пузиков В.М. Оптический датчик температуры на основе нанокристаллической пленки SiC // Технология и конструирование в электронной аппаратуре. – 2007. – Вып. 4. – P. 22.

26. Bockstedte M., Mattausch A., Pankratov O. Ab initio study of the annealing of vacancies and interstitials in cubic SiC: Vacancy interstitial recombination and aggregation of carbon interstitials // Phys. Rev. B. – 2004. – Vol. 69. – P. 235202–235212. – <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.483-485.523>.

27. Evans B. D., Pogatschnik G. J., Chen Y. Optical properties of lattice defects in  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. – 1994. – Vol. 91. – P. 258–262. – [https://doi.org/10.1016/0168-583X\(94\)96227-8](https://doi.org/10.1016/0168-583X(94)96227-8).

28. Evans B. D., Stapelbroek M. Optical properties of the F<sup>+</sup>-center in crystalline Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> // Phys. Rev. B. – 1978. – Vol. 18, iss. 12. – P. 7089–7098. – <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.18.7089>.

Дата поступления рукописи  
в редакцию 01.12.2016 г.

О. В. СЕМЕНОВ<sup>1,2</sup>, О. В. ЛОПИН<sup>1</sup>, В. Н. БОРИСКИН<sup>3</sup>

Україна, м. Харків, <sup>1</sup>Інститут монокристалів НАНУ,  
<sup>2</sup>НТУ «Харківський політехнічний інститут»,  
<sup>3</sup>ННЦ «Харківський фізико-технічний інститут» НАНУ  
E-mail: savladi@ukr.net

## ВПЛИВ ЕЛЕКТРОННОГО ОПРОМІНЕННЯ НА ОПТИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ ПЛІВОК НАНОКРИСТАЛІЧНОГО SiC НА ПІДКЛАДКАХ З МОНОКРИСТАЛА Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Досліджено стійкість до радіації плівок нанокристалічного карбиду кремнію на підкладці з монокристала сапфіра в умовах опромінення високоенергетичними (10 MeV) електронами в діапазоні  $5 \cdot 10^{14}$ – $2 \cdot 10^{20}$  см<sup>-2</sup>. Встановлено, що радіаційні зміни в плівках nc-SiC в першу чергу проявляються в УФ-області спектра поглинання, яка пов'язана з міжзонними переходами. Показано, що слідом за початковою розупорядкованістю плівок nc-SiC при флюенсі  $5 \cdot 10^{14}$ – $1 \cdot 10^{16}$  см<sup>-2</sup> відбувається впорядкування структури при дозах опромінення  $(1-5) \cdot 10^{17}$  см<sup>-2</sup>. Встановлено, що початок відпаду дефектів в опроміненіх плівках спостерігається вже за температури 200°C. Істотні зміни оптичних властивостей в сапфірі починаються при флюенсі  $5 \cdot 10^{17}$  см<sup>-2</sup>, що слід враховувати при використанні цих матеріалів для оптико-електронних приладів і сенсорів в умовах інтенсивного радіаційного впливу.

Ключові слова: нанокристалічні плівки SiC, монокристали Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, спектри поглинання, опромінення електронами, радіаційні дефекти, радіаційне упорядкування, відпад дефектів.

DOI: 10.15222/TKEA2017.3.40  
UDC 539.216.281,261

A. V. SEMENOV<sup>1,2</sup>, A. V. LOPIN<sup>1</sup>, V. N. BORISKIN<sup>3</sup>

Ukraine, Kharkiv, <sup>1</sup>Institute for Single Crystals of NASU,  
<sup>2</sup>NTU «Kharkiv Polytechnic Institute»,  
<sup>3</sup>National Scientific Center «Kharkov Institute of Physics & Technology» of NASU  
E-mail: savladi@ukr.net

## EFFECT OF ELECTRON IRRADIATION ON THE OPTICAL PROPERTIES OF NANOCRYSTALLINE SiC FILMS ON SINGLE CRYSTAL Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> SUBSTRATES

It was studied the effect of irradiation with high-energy (10 MeV) electrons on the optical properties of nanocrystalline carbide film system silicon / sapphire substrates in a wide range of fluences of  $5 \cdot 10^{14}$  to  $9 \cdot 10^{19}$  cm<sup>-2</sup> and subsequent annealing in vacuum in the range of 200–1200°C. It was found that radiation-induced changes in the optical properties of nc-SiC films is primarily manifested in the UV region of the spectrum associated with interband transitions, as well as in the region of the spectrum due to the absorption of intrinsic



defects and disordered regions. It was established in the beginning of the annealing of defects in irradiated films has been observed at 200°C, which indicates the high concentration of carbon vacancies with the lowest activation energy. Significant changes in the optical properties of sapphire begin at fluence  $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ , which should be considered when using these materials under conditions of intense radiation impact.

**Keywords:** nanocrystalline SiC films, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> single crystals, absorption spectra, electron irradiation, radiation defects, radiation ordering, annealing of defects.

## REFERENCES

- Ackland G. Controlling radiation damage. *Science*, 2010, vol. 327, iss. 5973, pp. 1587-1588. <http://dx.doi.org/10.1126/science.1188088>
- Misra A., Demkowicz M., Zhang X., Hoagland R. The radiation damage tolerance of ultra-high strength nanolayered composites. *JOM*, 2007, vol. 59, iss. 9, pp. 62-65. <http://dx.doi.org/10.1007/s11837-007-0120-6>
- Samaras M., Hoffelner, W., Victoria M. Irradiation of pre-existing voids in nanocrystalline iron. *J. Nucl. Mater.*, 2006, vol. 352, iss. 1-3, pp. 50-56. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2006.02.041>
- Shen T.D., Feng Sh., Tang M., Valdez J.A., Wang Y., Sickafus K.E. Enhanced radiation tolerance in nanocrystalline MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, vol. 90, iss. 24, pp. 263115-263120. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3155855>
- Hochbauer T., Misra A., Hattar K., Hoagland R. G. Influence of interfaces on the storage of ion-implanted He in multilayered metallic composites. *J. Appl. Phys.*, 2005, vol. 98, iss. 12, pp. 123516-123524. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2149168>
- Properties of Advanced Semiconductor Materials: GaN, AlN, InN, SiC, SiGe. Ed. by M.E. Levinshstein, S.L. Rumyantsev, M.S. Shur. USA, N.Y., John Wiley & Sons, 2001, 216 p.
- Barry A.L., Lehman B., Fritsch D., Brauning D. Mechanisms of unexpected reduction in hole concentration in Al-doped 4H-SiC 4H-SiC by 200 keV electron irradiation. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 1991, vol. 38, pp. 1111-1119, <https://doi.org/10.1109/IETNAE>
- Kalinina E.V. The effect of irradiation on the properties of SiC and devices based on this compound. *Semiconductors*, 2007, vol. 41, iss. 7, pp. 745-783. <https://doi.org/10.1134/S1063782607070019>
- Lebedev A. A., Ivanov A. M., Stokan N. B. Radiation hardness of SiC and hard radiation detectors based on the SiC films. *Semiconductors*, 2004, vol. 38, iss. 12, pp. 125-131.
- Semenov A.V., Puzikov V.M., Dobrotvorskaya M.V., Fedorov A.G., Lopin A.V. Nanocrystalline SiC films prepared by direct deposition of carbon and silicon ions. *Thin Solid Films*, 2008, vol. 516, iss.10, pp. 2899-2905. <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2007.05.059>
- Brodyn M.S., Volkov V.I., Lyakhovetskii V.R., Rudenko V.I., Puzikov V.M., Semenov A.V. Nonlinear refraction in nanocrystalline silicon carbide films. *JETP Letters*, 2008, vol. 88, iss. 6, p. 442-444. <https://doi.org/10.1134/S0021364008180094>
- Borshch A.A., Brodyn M.S., Starkov V.N., Rudenko V.N., Volkov V.I., Boyarchuk A.Yu., Semenov A.V. Broadband optical limiting in thin nanostructured silicon carbide films and its nature. *Optics Communication*, 2016, vol. 364, pp. 88-92. <https://doi.org/10.1016/j.optcom.2015.11.040>
- Semenov A.V., Pashchenko V.O., Khirnyi V.F., Kozlovskiy A.A., Mateichenko P.V. Magnetism in nanocrystalline SiC films. *Physica E, Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 2015, vol. 74, pp. 220-225. <https://doi.org/10.1016/j.physe.2015.07.006>
- Kozlovskiy A., Semenov A., Scoryk S. Electron transport in nanocrystalline SiC films obtained by direct ion deposition. *Superlattices and Microstructures*, 2016, vol. 216, pp. 596-604. <http://dx.doi.org/10.1016/j.spmi.2016.10.013>
- Semenov A. V., Lopin A. V., Puzikov V. M., Boriskin V. N. Effect of irradiation on the properties of nanocrystalline silicon carbide films. *Semiconductors*, 2009, vol. 43, iss. 10, pp. 1322-1327. <https://doi.org/10.1134/S106378260910011X>
- Semenov A.V., Puzikov V.M., Golubova E.P., Baumer V.N., Dobrotvorskaya M.V. Low-temperature production of silicon carbide films of different polytypes. *Semiconductors*, 2009, vol. 43, iss 5, pp. 685-689. <https://doi.org/10.1134/S1063782609050273>
- Ayzatsky M.I., Akchurin Yu.I., Beloglaso V.I., Biller E.Z., Boriskin V.N., Gurin V.A., Demidov N.V., Dovbnya A.N., Krivchikov B.P., Myfel V.B., Popenko V.A., Kushnir V.A., Levandovsky S.P., Mitrochenko V.V., Stepin D.L., Shendrik V.A., Savchenko A.N., Tolsto L.E., Terehov, B.A., Tur Yu.D., Vishnyakov V.A., Uvarov V.L., Zavada A.V. Electron linacs in NSC KIPT: R&D and application. *Proc. 14th Conf. on Charged Particle Accelerators*. Russia, Protvino, 1994, vol. 4, pp. 259-267.
- Lopin, A. V., Semenov A.V., Puzikov V. M. Optical properties of Silicon Carbide obtained by direct ion deposition. *Functional materials*, 2006, vol. 15, iss. 4, pp. 631-636.
- Chakrabarti S., Ganduli D., Chaudhuri S. Optical properties of  $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$  nanoparticles dispersed on sol-gel silica spheres. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 2004, vol. 24, iss. 3-4, pp. 333-342. <https://doi.org/10.1016/j.physe.2004.06.036>
- Choyke W.J. Optical and electronic properties of SiC. *The Physics and Chemistry of Carbides, Nitrides and Borides, NATO ASI Series*, 1990, vol. 185, pp. 563-587.
- Srikant V., Clarke D. R. On the optical band gap of zinc oxide. *J. Appl. Phys.*, 1997, vol. 81, iss. 10, pp. 6357-6364. <http://dx.doi.org/10.1063/1.367375>
- Gorbatenko L. S., Novodvorsky O. A., Panchenko V. Ya., Khramova O. D., Cherebilo Ye. A., Lotin A. A., Wenzel C., Trumpaicka N., Bartha J. W. Characterization of ZnO:Ga and ZnO:N films prepared by PLD. *Laser Physics*, 2009, vol. 19, iss. 5, pp. 1152-1157. <http://dx.doi.org/10.1134/S1054660X11080019>
- Mott N. F., Davis E. A. *Electronic Processes in Non-Crystalline Materials*. Oxford. Seiten, 1971, 437 p.
- Semenov A.V., Lopin A.V., Puzikov V.M. [Low-temperature production and optical properties of silicon carbide films]. *Poverkhnost'. Rentgenovskie, sinkhrotronnye i neutronnye issledovaniya*, 2004, iss. 9, pp. 99-106.
- Lopin A.V., Semenov A.V., Puzikov V.M. [Optical temperature sensor based on a nanocrystalline SiC film]. *Tekhnologiya i konstruirovaniye v elektronnoy apparature*, 2007, iss. 4, pp. 22.
- Bockstedte M., Mattausch A., Pankratov O. Ab initio study of the annealing of vacancies and interstitials in cubic SiC: Vacancy interstitial recombination and aggregation of carbon interstitials. *Phys. Rev. B*, 2004, vol. 69, pp. 235202-235212. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.483-485.523>
- Evans B. D., Pogatshnik G. J., Chen Y. Optical properties of lattice defects in  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ . *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, 1994, vol. 91, pp. 258-262. — [https://doi.org/10.1016/0168-583X\(94\)96227-8](https://doi.org/10.1016/0168-583X(94)96227-8)
- Evans B. D., Stapelbroek M. Optical properties of the F<sup>+</sup>-center in crystalline Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. *Phys. Rev. B*, 1978, vol.18, iss. 12, pp. 7089-7098. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.18.7089>