

ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ РЕЛЯТИВИСТСКИМИ ЭЛЕКТРОНАМИ НА МИКРОХРУПКОСТЬ МОНОКРИСТАЛЛОВ СЕЛЕНИДА ЦИНКА

А.В.Мазиллов¹, В.П.Мигаль², В.А.Стратиенко¹, Е.И.Луговская²

¹Национальный научный центр “Харьковский Физико-технический институт”, г.Харьков, Украина. E-mail: mazilov@kipt.kharkov.ua

²Национальный аэрокосмический университет им. Н.Е.Жуковского “ХАИ”, г.Харьков, Украина

Вивчається вплив опромінення електронами з енергією 90 Мев в інтервалі флюенсів $10^9 \dots 10^{16}$ ел/см² на мікротвердість селеніду цинку n-типу з структурою сфалериту. Встановлено, що опромінення призводить до збільшення довжин тріщин при постійному навантаженні. В інтервалі флюенсів $10^9 \dots 10^{13}$ ел/см² спостерігалось підвищення критичного навантаження, при якому утворювались тріщини. Показано, що домінуючий вплив на механічні властивості селеніду цинку справляють кластери дефектів, для утворення яких потрібна енергія вища за 400 еВ.

Исследовано влияние облучения электронами с энергией 90 МэВ в интервале флюенсов $10^9 \dots 10^{16}$ эл/см² на микрохрупкость селенида цинка n-типа со структурой сфалерита. Установлено, что облучение вызывает увеличение длин трещин при постоянной нагрузке. В интервале флюенсов $10^9 \dots 10^{13}$ эл/см² наблюдалось повышение критической нагрузки, при которой образовывались трещины. Показано, что доминирующее влияние на механические свойства селенида цинка оказывают кластеры дефектов, для образования которых требуется энергия выше 400 эВ.

The influence of 60 MeV electron irradiation (fluences between 10^9 and 10^{16} el/sm²) on the microbrittleness of n-type sphalerite-structure zinc selenide has been investigated. It was found that irradiation caused the crack lengths to increase under constant load. In the fluence range of 10^9 to 10^{13} el/sm², an increase was observed in the critical load, at which cracks were formed. It is shown that the mechanical properties of zinc selenide are dominantly influenced by the defect clusters, for the formation of which an energy over 400 eV is needed.

ВВЕДЕНИЕ

Развитие радиационных методов в полупроводниковой технологии, позволяющих управлять электрофизическими свойствами кристаллов, обусловило необходимость детального исследования микропроцессов, ответственных за изменение механических характеристик при облучении материалов. Помимо широко используемых в электронике методов ионного легирования, эффективными во многих случаях являются радиационные технологии модифицирования материалов, основанные на накоплении радиационных нарушений и пространственном перераспределении компонентов мишени [1,2]. Представляет особый интерес изучение влияния на механические свойства облучения электронами в интервале энергий $10 \dots 10^2$ МэВ, которые имеют большие длины пробега в твердых телах, относительно низкие сечения ядерных реакций, создающих наведенную активность, и обеспечивают получение однородного распределения радиационных нарушений [2-4].

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

В настоящей работе приводятся результаты исследования влияния облучения релятивистскими электронами на микрохрупкость кристаллов селенида цинка. Были изучены особенности трещинообразования образцов ZnSe n-типа, имеющих структуру сфалерита, выращенных из расплава под давлением в инертной среде, при микровдавливании пирамидального индентора. Исследования проводили

с помощью микротвердомера ПМТ-3, снабженного поляризационной приставкой и специально сконструированным устройством, позволяющим производить микроиндентирование в процессе наблюдения под микроскопом. Нагружение индентора осуществлялось с помощью прогреваемой биметаллической пластины со скоростью $10^{-3} \dots 10^{-2}$ см/с. Точность измерений микротвердости составляла $8 \dots 10$ %.

Облучение образцов проводили на линейном ускорителе ННЦ ХФТИ [3,4] электронами с энергией 90 МэВ в интервале флюенсов $10^9 \dots 10^{16}$ эл/см². Температуру во время облучения контролировали термпарой. При максимальных плотностях потока 10^{13} эл/см²·с она не превышала 320 К. Измерения микротвердости производили при комнатной температуре. Контрольные измерения показали, что нагрев образцов на $45 \dots 50$ К с последующим охлаждением не приводил к изменению микромеханических характеристик облученных кристаллов ZnSe. Это указывает на отсутствие эффектов возврата в процессе облучения при больших плотностях потока.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Было установлено, что при нагружении грани скола (110) в интервале нагрузок ($2 \cdot 10^{-2} - 1$)Н образуются трещины по плоскостям спайности (110), нормальным к поверхности, и по пересекающимся плоскостям (101), (011), $(01\bar{1})$ и $(10\bar{1})$, аналогично описанному в [5]. При нагрузках выше 1Н наблюда-

ли подповерхностные трещины. Трещины, выходящие на поверхность, образовывались и удлинялись непосредственно в процессе нагружения индентора. Облучение электронами не изменяло существенно характер трещинообразования (вид розеток микрохрупкости сохранялся неизменным). В исходных и облученных кристаллах наиболее четко выражено трещинообразование по плоскостям (110), характеризующееся относительно большими значениями длин трещин l . Зависимости длин трещин, ориентированных вдоль плоскости (110), от нагрузки P для исходного (кривая 1), облученных до флюенсов 10^{15} эл/см² (кривая 2) и $6 \cdot 10^{16}$ эл/см² (кривая 3) приведены на рис. 1.

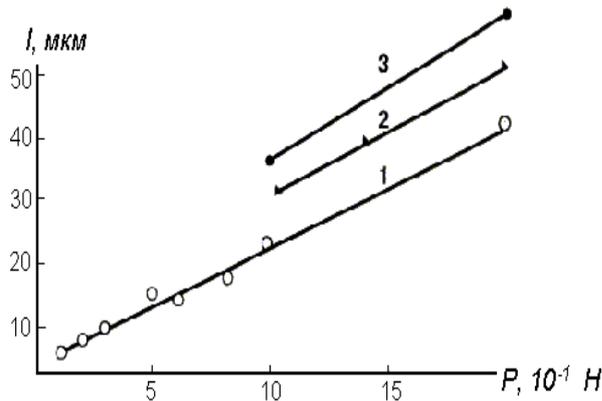


Рис.1. Зависимость длин трещин l от нагрузки P при $\Phi=0$ (1), $\Phi=10^{15}$ эл/см² (2) и $\Phi=6 \cdot 10^{16}$ эл/см² (3)

С увеличением флюенса электронов при нагрузках выше 1Н наблюдается возрастание микрохрупкости, проявляющееся в увеличении длин трещин при постоянной нагрузке. Зависимость длин трещин от нагрузки в исходных и облученных во всем исследованном интервале флюенсов кристаллах селенида цинка носила линейный характер. Облучение релятивистскими электронами существенно изменяло зависимость вероятности трещинообразования от нагрузки. Зависимости отношения количества отпечатков с трещинами к общему числу испытаний от нагрузки для исходного (кривая 1) и облученного до флюенса 10^{15} эл/см² кристаллов селенида цинка представлены на рис. 2.

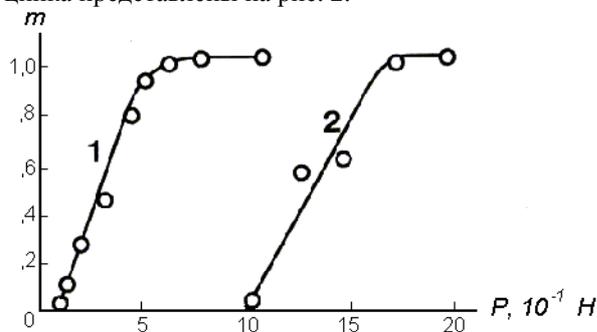


Рис.2. Зависимость вероятности образования трещин от нагрузки для исходного (1) и облученного (2) до флюенса 10^{15} эл/см² кристалла

Вероятность трещинообразования определялась по данным порядка 10^2 экспериментов при каждой нагрузке. Облучение приводило к изменению вероятности трещинообразования в широком интервале нагрузок. Наблюдалось возрастание минимальной нагрузки P_c , при которой происходит образование первых трещин, - величины, используемой для количественного описания микрохрупкости при стандартных испытаниях микровдавливанием [5].

Возрастание критической нагрузки трещинообразования P_c происходило при увеличении флюенса в интервале $10^9 \dots 10^{14}$ эл/см² (рис.3). Дальнейшее облучение приводило к снижению критической нагрузки и возрастанию микротвердости (рис. 4).

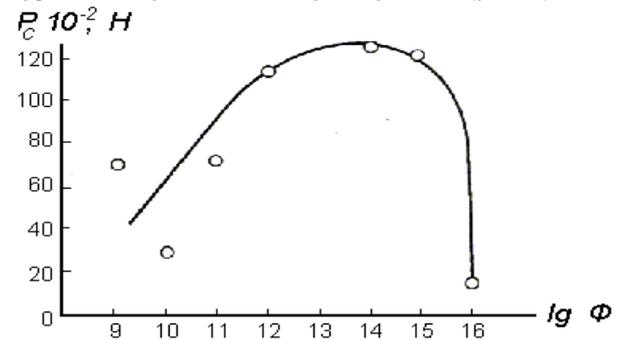


Рис.3. Зависимость критической нагрузки трещинообразования P_c от флюенса при облучении электронами

В [6, 7] разработаны модели микроразрушения хрупких кристаллов под действием сосредоточенной нагрузки и проанализированы критические условия, необходимые для возникновения поверхностных трещин. Было установлено, что критическая нагрузка P_c связана с микротвердостью H_v и критическим коэффициентом интенсивности напряжений K_{ic} соотношением

$$P_c = 885 (K_{ic} / H_v)^3 K_{ic} \quad (1)$$

Критический коэффициент интенсивности напряжений K_{ic} соответствует разрушению кристалла с идеальной структурой в устье трещины.

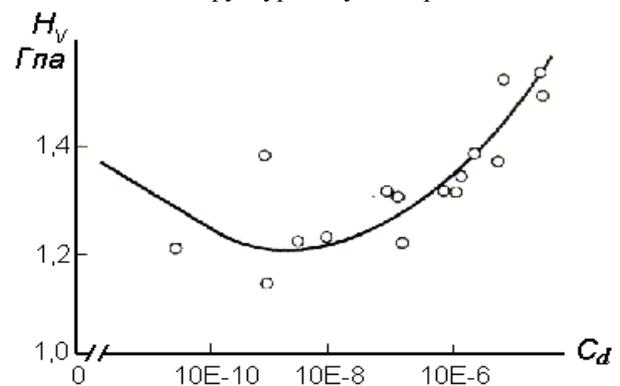


Рис.4. Изменение микротвёрдости селенида цинка от флюенса электронов, выраженного в числе смещений на атом C_d

Все виды радиационного воздействия, сопровождающегося накоплением в материале дефектов решетки, могут лишь снижать идеальную прочность и соответственно K_{ic} . В связи с этим в рамках рассмотренных [6, 7] моделей не может быть объяснено наблюдавшееся при проведении настоящего исследования возрастание критической нагрузки трещинообразования при облучении релятивистскими электронами в интервале флюенсов $10^9 \dots 10^{14}$ эл/см² (рис. 3). Возможной причиной неприменимости теории хрупкого разрушения при индентировании [6, 7] облученных кристаллов является то обстоятельство, что в исходных моделях микроразрушения не учитывалось влияние напряжения сопротивления движению дислокаций σ_o (сила трения) на конфигурацию дислокационных скоплений. Учитывая, что напряжения в окрестности дислокационного скопления в хрупком материале практически не релаксируют, для вычисления величины напряжения σ_s , необходимого для образования трещины, можно воспользоваться результатами расчетов локальной концентрации напряжения в голове скопления дислокаций, на которые действует сила трения [8]

$$(\sigma_s - \sigma_o)^2 = EG/[4l(1+\nu)] , \quad (2)$$

где E - модуль Юнга, ν - коэффициент Пуассона, l - длина дислокационного скопления, G - скорость выделения энергии деформации.

Принимая во внимание, что критический коэффициент интенсивности напряжений связан со скоростью выделения энергии деформации соотношением [7]

$$K_{ic}^2 = EG/(1-\nu^2), \quad (3)$$

получаем

$$l = ((1-\nu)K_{ic}^2) / (4(\sigma_s - \sigma_o)^2).$$

Так как длина дислокационного скопления, при которой образуется трещина, может приниматься равной $1.4d$, где d - полудиагональ отпечатка [7], приближенно равная $(P_c / 2H_v)^{1/2}$, а максимальная величина сдвиговых напряжений σ_s при микро-индентировании равна пределу текучести, составляющему обычно $0.1H_v$ [7], окончательно получим:

$$P_c = [K_{ic} / (0.1H_v - \sigma_o)]^4 H_v (1-\nu)^2 \beta , \quad (4)$$

где β - численный коэффициент.

Сопоставление соотношений (1) и (4) показывает, что при условии малых значений напряжений сопротивления перемещению дислокаций ($\sigma_o \ll 0.1H_v$) они с точностью до численного множителя эквивалентны. Однако для описания микрохрупкости полупроводниковых веществ, обладающих ионноко-

валентными связями, характеризующимися высокими значениями сил Пайерлса, соотношение (1) должно давать заниженные значения критической нагрузки трещинообразования. Наблюдавшееся возрастание P_c при увеличении флюенса от 10^9 до 10^{15} эл/см² (рис. 3), согласно соотношению (4), может быть связано с увеличением напряжения сопротивления перемещению дислокаций σ_o при радиационном генерировании точечных дефектов решетки. Уменьшение P_c при больших флюенсах электронов, наблюдавшееся экспериментально (рис. 3), свидетельствует о том, что при флюенсах ϕ выше 10^{14} эл/см² напряжение сопротивления перемещению дислокаций возрастает с увеличением флюенса медленнее, чем микротвердость (рис. 4). Этот вывод подтверждается, в частности, тем, что снижение критической нагрузки трещинообразования вплоть до значения в необлученном кристалле наблюдается при флюенсах электронов, соответствующих резкому возрастанию микротвердости.

Для оценки влияния радиационного воздействия на перемещение дислокаций можно воспользоваться выражением для критического напряжения сдвига, действующего на дислокацию, перемещающуюся через точечные стопоры, равномерно распределенные в плоскости скольжения [8]

$$\sigma = 0.81(\mu b) / P ,$$

где μ - модуль сдвига; b - вектор Бюргерса; P - среднее расстояние между препятствиями. При хаотическом распределении радиационных нарушений

$$P \approx n^{-1/3}$$

где n - концентрация стопоров дислокаций радиационного происхождения, и соответственно

$$n = [\sigma / (0.81\mu b)]^3 . \quad (5)$$

В предположении, что радиационные нарушения, являющиеся дислокационными стопорами, неподвижны при комнатной температуре, концентрация стопоров определяется выражением [9]

$$n = \phi \sigma_s n_o V , \quad (6)$$

где σ_s - поперечное сечение смещения; n_o - число частиц в единице объема образца; V - среднее число стопоров, образованных одним первично выбитым атомом.

Для точечных стопоров

$$V = E_e / 2E_d ,$$

где E_e - средняя энергия, передаваемая электро-

ном атому; E_d - пороговая энергия смещения.

Средняя передаваемая энергия E_e связана с пороговой энергией E_d соотношением

$$E_e = E_d \ln[561 \varepsilon_e (\varepsilon_e + 2) / E_d M], \quad (7)$$

где $\varepsilon_e = E_d / mc^2$ - для электрона с энергией E_e ; m - масса покоя электрона; c - скорость света; M - масса атома мишени.

При облучении электронами с $E_e = 90$ МэВ максимальная передаваемая атомам энергия много больше E_d и, следовательно, для расчета сечения смещения применимо соотношение [10, 11]

$$\sigma_s = (8\pi d_o^2 z^2 E_R^2) / (Mc^2 E_d), \quad (8)$$

где d_o - боровский радиус атома водорода; E_R - постоянная Ридберга; z - зарядное число атомов мишени.

Вычисления на основании соотношений (6)–(8) показывают, что при облучении селенида цинка электронами флюенсом 10^{16} эл/см² полные поперечные сечения σ_s смещения атомов цинка и селена равны соответственно 192 и 236 барн; средняя энергия, передаваемая первично выбитым атомам, равна 90 эВ; максимальная энергия - $2.7 \cdot 10^5$ эВ. Среднее число смещений, создаваемых первично выбитым атомом, равно 5.1, а ожидаемая концентрация точечных дефектов - $2.2 \cdot 10^{17}$ см⁻³. Расчет же концентрации стопоров по формуле (5) в предположении, что $\sigma_o \approx 0.1 N_v$, дает величину $n = 4 \cdot 10^{15}$ см⁻³. Это несоответствие, по-видимому, указывает на то, что за изменение механических свойств селенида цинка ответственны радиационные нарушения, сечение образования которых существенно ниже сечения смещения. Из условия (5), используя соотношение (8), можно показать, что повышение микротвердости вызывается дефектами, для образования которых необходима энергия $4 \cdot 10^2 \dots 2 \cdot 10^5$ эВ. Таким образом, полученные результаты свидетельствуют о возможном влиянии кластеров дефектов, для образования которых требуется минимальная энергия, на два порядка превышающая пороговую энергию смещения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Облучение релятивистскими электронами монокристаллов селенида цинка приводит к увеличению длин трещин, создаваемых при микроиндентировании. С ростом флюенса облучения до 10^{15} эл/см² наблюдалось повышение критической нагрузки трещинообразования. Дальнейшее увеличение флюенса электронов, сопровождающееся повышением микротвердости, приводило к снижению критической

нагрузки. Обсуждены возможные механизмы радиационно-стимулированного изменения механических свойств в условиях воздействия сосредоточенной нагрузки.

Работа выполнена при частичной поддержке Проекта УНТЦ №1804.

ЛИТЕРАТУРА

1. Б.Я.Бер, Е.Е.Журкин, Ю.А.Кудрявцев и др. Динамическое моделирование радиационного дефектообразования на каскадной стадии в многоатомных слоистых материалах // *Неорганические материалы*, 1998, т. 34, №10, с.1237–1244.
2. В.Ф.Зеленский, И.М.Неклюдов, Т.П.Черняева. *Радиационные дефекты и набухание металлов*. Киев: “Наукова Думка”, 1988, с. 293.
3. В.А.Стратиенко. О зависимости радиационной эффективности релятивистских электронов от энергии // *Вопросы атомной науки и техники. Серия “Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение”*, 1974, вып. 1(1), с. 38–41.
4. В.А.Стратиенко, А.Н.Довбня, Е.И.Луговская, Г.И.Мазилова. Исследование действия высокоэнергетических электронов на тугоплавкие металлы // *Тез. докл. XV международного семинара по линейным ускорителям заряженных частиц*. Алушта, 16–21 сентября 1997, с. 99.
5. Л.В.Атрошенко, Б.Л.Тиман, О.А.Федоренко. Влияние примеси на микрохрупкость монокристаллов Cu_2S // *Известия АН СССР. Неорган. материалы*. 1981, т.17, № 4, с.579–582.
6. В.R. Lawn, A.G. Evans. A model for crack initiation in elastick-plastic indentation fields // *J. Mater. Sci.*, 1977, v.12, № 11, p.2195–2199.
7. J.M.Hagan. Micromechanics of crack nucleation during indentations // *J. Mater. Sci.*, 1979, v.14, № 12, p. 2975–2980.
8. Ж.Фридель. *Дислокации*. М.: “Мир”, 1967, с. 644 (J. Friedel. *Dislocations*. Oxford: Pergamon Press, 1964.)
9. А.Формен, М.Мэйкин. Движение дислокации сквозь хаотические сетки препятствий. В кн. *Актуальные вопросы теории дислокаций*. Под ред. А.Н.Орлова. М.: “Мир”, 1968, с. 200–215.
10. К.Лейман. *Взаимодействие излучения с твердым телом и образование элементарных дефектов*. М.: “Атомиздат”, 1979. 296 с. (Chr. Lehmann. *Interaction of radiation with solids and elementary defect production*. Amsterdam, New York, Oxford: North-Holland Publishing Company, 1977.)