

ФИЗИЧЕСКИЕ ПРОЦЕССЫ В ЭЛЕКТРОННЫХ ПРИБОРАХ

УДК 53.08

ВРЕМЯРАЗРЕШАЮЩАЯ РЕНТГЕНОАКУСТИЧЕСКАЯ ДИФРАКТОМЕТРИЯ ПЕРСПЕКТИВНЫХ КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ В УСЛОВИЯХ ОДНООСНЫХ МЕХАНИЧЕСКИХ НАГРУЗОК¹

© 2021 г. В. И. Аккуратов^{a, b, *}, А. Е. Благов^{a, b}, Ю. В. Писаревский^{a, b}, А. В. Таргонский^{a, b},
Я. А. Элиович^{a, b}, Н. А. Моисеева^a, М. В. Ковальчук^{a, b}

^aФедеральный научно-исследовательский центр “Кристаллография и фотоника” РАН,
Ленинский просп., 59, стр. 1, Москва, 119333 Российская Федерация

^bНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт”,
пл. Академика Курчатова, 1, Москва, 123182 Российская Федерация

*E-mail: akkuratov.val@gmail.com

Поступила в редакцию 21.04.2021 г.

После доработки 20.05.2021 г.

Принята к публикации 01.06.2021 г.

Предложена времяразрешающая методика исследования перспективных кристаллических материалов для компонент микро- и оптоэлектронных приборов в условиях внешней механической нагрузки с помощью специально разработанного рентгеноакустического дифрактометра. Методика позволяет проводить быстрые (вплоть до миллисекунд) измерения кривых дифракционного отражения исследуемых кристаллов с использованием специального модуля для создания одноосной механической нагрузки. Показана возможность проведения исследований обратимых и необратимых процессов, возникающих в кристаллах в условиях внешних воздействий, что может быть использовано для диагностики и прогнозирования отказоустойчивости электронных компонент, изготовленных на их основе.

DOI: 10.31857/S0033849421100016

ВВЕДЕНИЕ

Кристаллические материалы играют решающую роль для развития информационных технологий, микро- и оптоэлектронной промышленности.

Требования к параметрам таких материалов делятся на три группы. К первой группе относятся параметры материалов, определяющие эффективность работы устройств, например, проводимость или оптическая плотность. Часто эта совокупность параметров называется “коэффициентом качества”. Вторая группа параметров определяется технологиями изготовления на основе кристаллических материалов микро- и оптоэлектронных компонент и приборов. К третьей группе относятся параметры условий эксплуатации таких материалов — рабочий диапазон температур, вибрации, влажность, давление, радиация и др. Контроль параметров обеспечивается специальными

методиками и оборудованием, которые в настоящее время наиболее развиты для первой и второй групп.

В данной работе предложена модификация методики рентгеноакустической дифрактометрии для исследования влияния внешних воздействий на кристаллические материалы. Рентгеновская дифракция является эффективным и распространенным методом характеристики дефектной структуры материалов, позволяющим проводить высокоточные и неразрушающие измерения [1, 2]. Применяя методы рентгеновской дифрактометрии можно получать интегральную информацию о дефектах кристаллической структуры в области, засвечиваемой рентгеновским пучком. Используя двухкристальную рентгеновскую дифракцию и вращая кристалл-образец в окрестности угла Брэгга, можно получить зависимость интенсивности дифрагированного пучка рентгеновского излучения от угла падения на образец — кривую дифракционного отражения (КДО). Анализ параметров КДО и сравнение с теоретическими моделями позволяет сделать выводы об упорядоченности и дефектной структуре образца.

¹ Работа доложена на Четвертой Международной молодежной конференции “Информационные технологии и технологии коммуникации: современные достижения” (Астрахань, 5–8 октября 2020 г.).

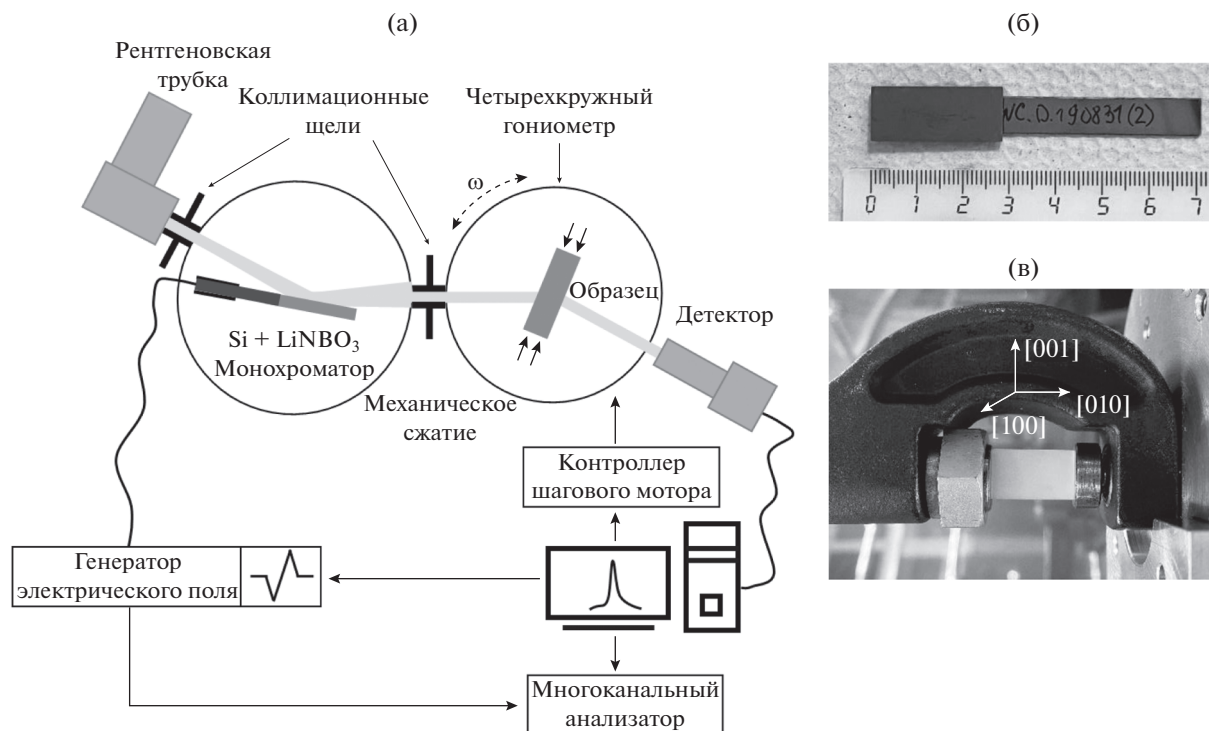


Рис. 1. Двухкристальная рентгенооптическая схема (а), адаптивный изгибный элемент из пьезокристалла ниобата лития (узкий кристалл) и кристалла кремния (широкая пластина) (б), пресс для одноосной нагрузки с монокристаллом кварца, установленным для измерений в геометрии Лауэ с указанными кристаллографическими направлениями (в).

Под нагрузкой в кристаллах происходит образование дефектов, смещение и деформация кристаллических плоскостей, что напрямую влияет на физические свойства. Особый интерес представляет переходная область между упругой и пластической деформацией кристаллических материалов, когда начинается интенсивный рост количества дефектов, но структурные изменения могут являться обратимыми. Для исследования обратимых процессов в этой области деформаций необходимы времяразрешающие методы, позволяющие получать информацию о структуре в режиме реального времени.

Ранее в работах авторского коллектива была предложена методика времяразрешающей дифрактометрии, основанная на применении адаптивных изгибных элементов [3]. Была показана ее эффективность при проведении ряда тестовых экспериментов, в том числе при исследовании кристалла кремния в условиях одноосной механической нагрузки [4, 5].

В данной работе на основе полученных ранее результатов предложена и реализована методика исследования кристаллической структуры в условиях механической нагрузки при помощи рентгеновской дифракции, позволяющая добиться секундного временного разрешения на лабораторном рентгеновском источнике.

1. МЕТОДИКА

Предложенная методика основана на применении адаптивных элементов рентгеновской оптики (АЭРО). Принципиальная двухкристальная рентгенооптическая схема эксперимента представлена на рис. 1а. АЭРО был установлен в положении монохроматора, он состоит из изгибного пьезоактуатора [3] и прикрепленного к нему рентгенооптического кристалла (рис. 1б). Такие элементы дают возможность осуществлять быструю и контролируемую перестройку углового положения рентгеновского пучка, позволяя проводить оперативную и прецизионную регистрацию КДО.

Эти особенности могут использоваться для получения уникальной информации при исследовании эффектов, возникающих, например, при воздействии интенсивного ультразвука на монокристаллы парателлурита и фторида лития, которые ранее наблюдались в работах [6, 7]. Модельные эксперименты, результаты которых представлены в [4, 5], показали, что предложенный комплекс методик обеспечивает выигрыш, как по скорости проведения измерений, так и по точности получаемых результатов по сравнению с традиционными гониометрическими системами. В данной статье представлен эксперимент по се-

Таблица 1. Численные параметры отдельных КДО при различной нагрузке

Параметры	Нагрузка, кг					
	20	55	65	70	65	20
ω , угл. с	57.1	112.4	147.3	180.8	163.5	67.8
Ω , угл. с	0	42.3	90.2	141.1	112.8	5.6
$\Delta d/d$, отн. ед.	0	0.00121	0.00258	0.00403	0.00322	0.00016

рийной записи КДО, являющийся дальнейшим развитием предложенного ранее подхода.

Применение АЭРО в резонансном режиме [8] позволяет сканировать угловой диапазон до 1 град с временным разрешением вплоть до микросекунд, однако при работе с лабораторной рентгеновской трубкой из-за интенсивности временное разрешение лимитировано секундными значениями. Сканируемый угловой диапазон остается постоянным при проведении измерений, что позволяет точно оценивать не только численные параметры кривых, но и смещение максимума (Ω) дифракционного пика (табл. 1). Ширина пика на полувысоте ω КДО позволяет интегрально оценить степень совершенства кристаллической структуры. Из динамической теории дифракции можно определить вклад одноосной нагрузки в увеличение ширины на полувысоте экспериментально полученной КДО:

$$\omega = (\omega_m^2 + \omega_0^2 + D^2)^{-1/2},$$

$$D = \frac{\Delta\lambda}{\lambda(\operatorname{tg}\theta_m - \operatorname{tg}\theta_0)},$$

где D — дисперсия рентгенооптической схемы, $\Delta\lambda/\lambda$ — дисперсия длины волны для $K\alpha_1$ -линии, $\theta_{m,0}$ — угол Брэгга для монохроматора и образца, $\omega_{m,0}$ — ширина на полувысоте собственной кривой дифракционного отражения монохроматора и образца.

Смещение максимума дифракционного пика позволяет определить относительное изменение межплоскостного расстояния ($\Delta d/d$) в результате приложения одноосной нагрузки из закона Вульфа–Брэгга:

$$d = \frac{\lambda}{2 \sin \theta_B},$$

$$\frac{\Delta d}{d} = \frac{d_2 - d_1}{d_1} = \frac{\sin \theta_{B1}}{\sin \theta_{B2}} - 1,$$

где $d_{1,2}$ — межплоскостное расстояние кристалла без нагрузки и с нагрузкой, $\theta_{B1,2}$ — углы Брэгга кристалла без нагрузки и с нагрузкой.

Таким образом, при времяразрешающих исследованиях с АЭРО по значениям ширины на полувысоте КДО и изменению межплоскостного расстояния можно точно оценивать эволюцию качества кристаллической структуры при воздействии механической нагрузки определенной величины и продолжительности в режиме реального времени.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Измерения проводили на трехкристальном рентгеновском спектрометре (ТРС) [9]. В качестве рентгенооптического кристалла в АЭРО был использован совершенный кристалл кремния с отражением 220, в качестве изгибного пьезоактуатора — кристалл ниобата лития с бидоменной структурой [10], размер $60 \times 11 \times 1$ мм. Исследуемый образец представлял собой монокристалл кварца (размер $15 \times 10 \times 1$ мм) с отражением 020 (угол Брэгга $\theta_B = 9.59^\circ$) с, закрепленный в специальном прессе (рис. 1в). На АЭРО подавался управляющий переменный электрический сигнал частотой 165 Гц и амплитудой 105 В, соответствующей первой резонансной гармонике собственных изгибных колебаний кристалла ниобата лития, что обеспечивало угловой диапазон сканирования с помощью АЭРО в 700 угл. с. Для дифрактометра была разработана система управления на базе свободного программного обеспечения с открытым исходным кодом TANGO (<https://www.tango-controls.org>), которая позволяет проводить автоматизированные эксперименты с АЭРО.

Применение модуля механической нагрузки, устанавливаемого на основной гониометр дифрактометра ТРС в положении образца, позволяет проводить исследования перспективных кристаллических материалов в условиях одноосной механической нагрузки в режиме реального времени. Непрерывное наблюдение за эволюцией структурных изменений в зависимости от вели-

чины прикладываемой нагрузки в исследуемых кристаллах осуществляется с помощью последовательной регистрации КДО (а в перспективе и карт обратного пространства [2], представляющих более подробную информацию о дефектной структуре). В гидравлическом прессе модуля можно исследовать кристаллы размерами до $20 \times 12 \times 12$ мм. Максимальная механическая одноосная нагрузка пресса составляет 5 т, регулировка величины нагрузки осуществляется механически при помощи винта. Одноосность нагрузки обеспечивается шарнирным основанием (см. рис. 1в). Нагрузку измеряют электронным тензодатчиком.

Перед измерениями при юстировке рентгено-оптической схемы образец устанавливали в точное брэгговское положение и фиксировали в прессе под небольшой нагрузкой.

Существует две принципиальные схемы рентгенодифракционных исследований кристаллических материалов, которые зависят от геометрии падения рентгеновского пучка на образец. В геометрии Лауэ пучок излучения падает на кристаллические плоскости, перпендикулярные поверхности образца под углом Брэгга. Образец просвечивается рентгеновским пучком, что позволяет увидеть структуру внутри объема кристалла. В геометрии Брэгга пучок рентгеновского излучения падает на кристаллические плоскости, параллельные поверхности кристалла под углом Брэгга и позволяет оценить структуру в небольшом приповерхностном объеме. Конструкцией предусмотрена возможность использования пресса для экспериментов и в геометрии Брэгга, и в геометрии Лауэ.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В ходе эксперимента на дифрактометре были записаны процессы, происходящие в кристалле кварца при приложении и снятии механической нагрузки. Для этого была зарегистрирована серия из 141 КДО с временным разрешением 3.55 с. Измерения проводили в геометрии Лауэ, дифракция осуществлялась на атомных плоскостях 020, наиболее нагруженных при используемой схеме крепления и сдавливания образца, что позволило наблюдать изменения в объеме кристалла (см. рис. 1в).

Изначально кристалл был закреплен в прессе под нагрузкой 20 кг, приложенной к торцевым граням пластины. Затем нагрузка увеличивалась до значения в 70 кг. На записи процесса на рис. 2а (двумерное представление серии КДО в зависимости от времени) можно наблюдать угловое смещение КДО, вызванное одноосным сжатием кристалла кварца, и ее уширение. При сжатии кристалла уменьшалось межплоскостное расстояние d (рис. 2б) и значительно ухудшалось совер-

шенство кристаллической структуры (рис. 2в–2е). Несимметричность формы КДО, которая увеличивалась при росте нагрузки, связана с изгибом кристаллической пластины.

Резкие “ступенчатые” изменения величины нагрузки (см. рис. 2б) связаны с ручным управлением гидравлического пресса, которое не позволяет плавно увеличивать и уменьшать нагрузку. На двумерной карте (см. рис. 2а) видны скачки интенсивности, представляющие собой КДО, зарегистрированные в момент изменения нагрузки. Они вызваны небольшим люфтом пресса с закрепленным образцом.

После достижения величины нагрузки в 70 кг кристалл оставался под статической нагрузкой в течение 35 с. Изменения в параметрах КДО и на графике нагрузки в этот период вызваны перераспределением и релаксацией дефектной структуры внутри кристалла.

Затем нагрузку постепенно снижали до начального значения в 20 кг. При уменьшении нагрузки пик КДО возвращается в начальное угловое положение (рис. 2ж–2з), но сама КДО остается уширенной, что вызвано остаточной деформацией кристаллических плоскостей.

Показано, что изменения межплоскостного расстояния d и ширины на полувысоте КДО, отражающие относительную одноосную деформацию и совершенство кристаллической структуры, прямо зависят от величины механической нагрузки. Основываясь на данных о форме, ширине на полувысоте и угловом смещении КДО, полученных при помощи предложенной методики, можно получать информацию о структуре кристаллов в условиях внешних механических воздействий в режиме “рентгеновского кино”, отслеживая динамику структурных изменений непосредственно в процессе проведения эксперимента.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработана и реализована методика непрерывной регистрации серии КДО кристаллических материалов в условиях внешних механических воздействий с секундным временным разрешением в угловом диапазоне до 1 град на усовершенствованном трехкристальном дифрактометре ТРС. Дифрактометр с установленным на месте монохроматора АЭРО обладает всеми возможностями обычного трехкристального дифрактометра, а также может применяться для времяразрешающих исследований дефектной структуры, в том числе точечных дефектов, мозаичности монокристаллов и анализа искажений и внутренних напряжений многослойных кристаллических структур. Проведены исследования динамики структуры монокристалла кварца в условиях квазистатической одноосной механической нагрузки.

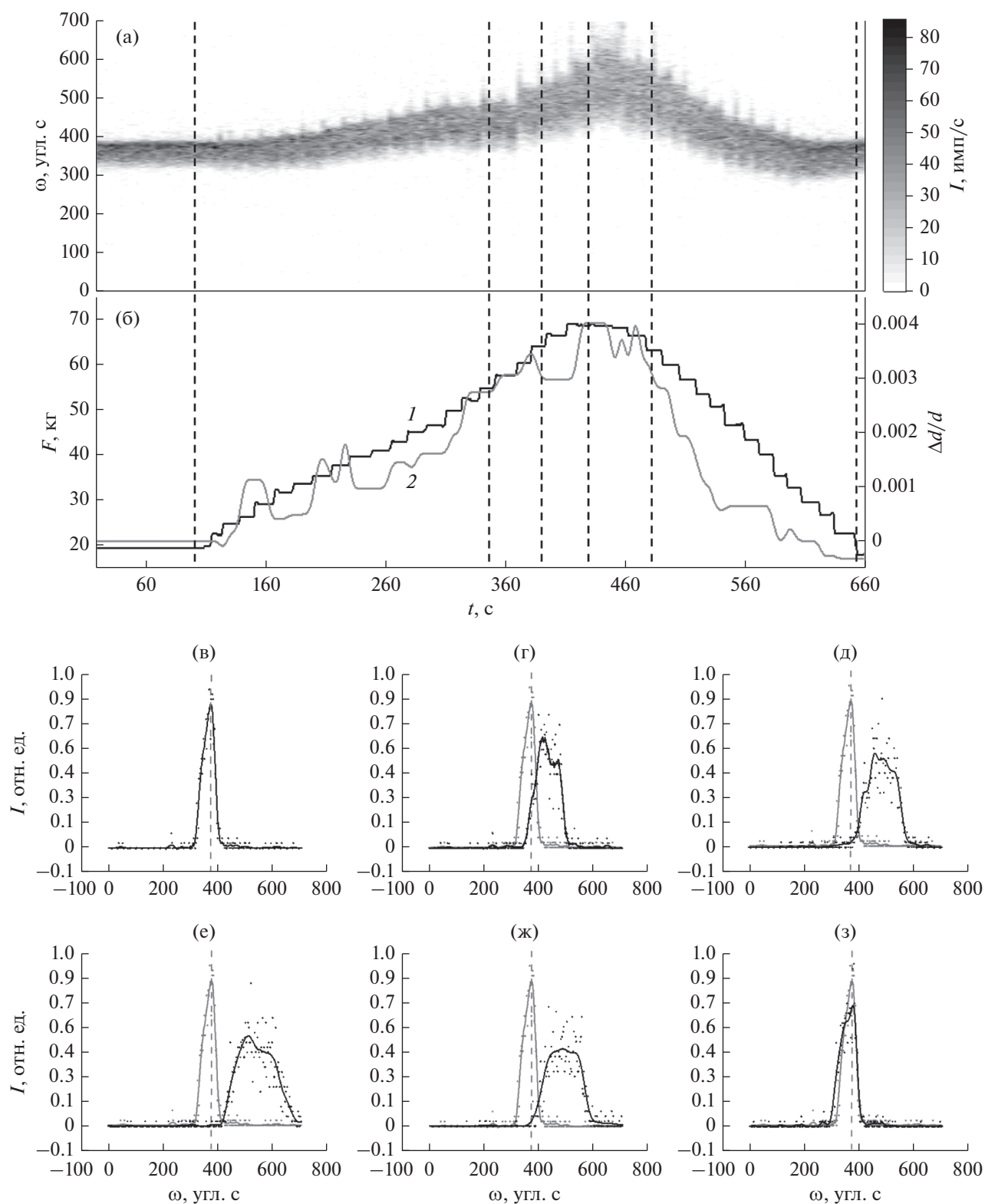


Рис. 2. Двумерная карта, представляющая временную динамику КДО кристалла кварца под квазистатической одноосной механической нагрузкой (а), график величины одноосной механической нагрузки F (кривая 1) и относительного изменения межплоскостного расстояния d (кривая 2) в зависимости от времени t (б), отдельные кривые дифракционного отражения кристалла кварца, представляющие собой зависимости интенсивности I пучка рентгеновского излучения от угла его падения на кристалл, в отмеченных пунктирной линией на графике моментах времени при различной нагрузке: 20 (в), 55 (г), 65 (д), 70 (е), 65 (ж) и 20 кг (з).

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (государственное задание ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН в части разработки аппаратно-методического комплекса) и при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты № 19-52-12029 НННО_а и № 19-29-12037мк в части подготовки экспериментальных образцов).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Guinier A.* X-Ray Diffraction in Crystals, Imperfect Crystals and Amorphous Bodies. San Francisco: W. H. Freeman and Comp., 1963.
2. *Боуэн Д.К., Таннер Б.К.* Высокоразрешающая рентгеновская дифрактометрия и топография. СПб: Наука, 2002.
3. *Благов А.Е., Быков А.С., Кубасов И.В. и др.* // Приборы и техника эксперимента. 2016. № 5. С. 109.
4. *Элиович Я.А., Аккуратов В.И., Таргонский А.В. и др.* // Кристаллография. 2018. Т. 63. № 5. С. 708.
5. *Элиович Я.А., Аккуратов В.И., Таргонский А.В. и др.* // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2020. № 8. С. 3.
6. *Благов А.Е., Писаревский Ю.В., Таргонский А.В. и др.* // Физика твердого тела. 2017. Т. 59. № 5. С. 947.
7. *Элиович Я.А., Таргонский А.В., Даринский А.Н. и др.* // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2019. № 7. С. 9.
8. *Marchenkov N.V., Kulikov A.G., Targonsky A.V. et al.* // Sensors and Actuators. A. 2019. V. 293. P. 48.
9. *Пинскер З.Г., Ковьев Э.К., Миренский А.В. и др.* Рентгеновский спектрометр. А.с. СССР № 463045. Оpubл. БИ № 9 от 05.03.1975.
10. *Малинкович М.Д., Антипов В.В., Быков А.С.* Способ формирования бидоменной структуры в пластинах монокристаллов: Патент РФ № 2492283. Оpubл. офиц. бюл. “Изобретения. Полезные модели”. № 25 от 10.09.2013.