

УДК 535.3

ИЗЛУЧЕНИЕ КРЕМНИЯ ПРИ ДАВЛЕНИИ УДАРНОГО СЖАТИЯ 68 ГПа И В ПРОЦЕССЕ РАЗГРУЗКИ В ВАКУУМ

© 2021 г. М. И. Кулиш¹, *, В. Б. Минцев¹, С. В. Дудин¹,
Д. Н. Николаев¹, И. В. Ломоносов¹, В. Е. Фортгов¹

¹Институт проблем химической физики РАН, г. Черноголовка, Россия

*E-mail: kulishm@icp.ac.ru

Поступила в редакцию 09.04.2021 г.

После доработки 24.10.2021 г.

Принята к публикации 23.11.2021 г.

В работе проведены измерения яркостных температур кремния, ударно-сжатого до давления $P=68$ ГПа, и эволюции его температуры в процессе разгрузки. Измерения проводились в инфракрасном диапазоне $\Delta\lambda_1 = 1.1\text{--}1.7$ мкм, в котором кремний оптически прозрачен, и в видимом диапазоне $\Delta\lambda_2 = 0.32\text{--}1.06$ мкм. Изэнтропическая разгрузка ударно-сжатого кремния в вакуум сопровождалась аномальным ростом наблюдаемой температуры.

DOI: 10.31857/S0040364421060119

ВВЕДЕНИЕ

Прямые измерения излучения с фронта ударной волны позволяют получить важную информацию о температуре ударно-сжатого вещества и, следовательно, в совокупности с измерениями кинематических параметров ее распространения определить термодинамически полное уравнение состояния вещества в условиях высоких динамических давлений [1]. Вместе с тем эксперименты такого рода оказываются возможными только в оптически прозрачных материалах [2]. В настоящей работе проведены исследования теплового излучения кремния в процессе ударного сжатия в диапазоне его оптической прозрачности в нормальных условиях $\Delta\lambda_1 = 1.1\text{--}1.7$ мкм и разгрузки в диапазонах $\Delta\lambda_1 = 1.1\text{--}1.7$ мкм и $\Delta\lambda_2 = 0.32\text{--}1.06$ мкм. Интерес к исследованию кремния вызван широкой областью его использования в различных современных технологиях [3], в связи с чем необходимо понимание его физических свойств в широком диапазоне параметров, включая высокие давления гигапаскального уровня, где кремний претерпевает ряд фазовых превращений [4, 5], наиболее интересным из которых представляется его металлизация при $P \sim 10\text{--}15$ ГПа. При прохождении по кремнию ударной волны при давлении до 78 ГПа наблюдается многоволновая конфигурация [6–9]. В настоящей работе параметры взрывного генератора обеспечивали формирование в кремнии двухволновой конфигурации при скорости ударного фронта $D_{sh} = 8.0$ км/с и давлении $P = 68$ ГПа.

ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Схема эксперимента представлена на рис. 1. Экспериментальная сборка состоит из ударно-сжимаемой медной мишени 1 толщиной 1 мм, ударная волна в которой создается стальным ударником толщиной 1 мм. Массовая скорость разлета медной мишени в вакуум $U_s = 5 \pm 0.15$ км/с. На поверхности медной мишени с помощью цианоакрилатного клея закреплен диск из монокристаллического кремния 2 толщиной 350 ± 20 мкм. Ориентация кристалла — $\langle 111 \rangle$. Для экспериментов в видимой области спектра $\Delta\lambda_2 = 0.32\text{--}1.06$ мкм устанавливался цилиндрический экран 3 из зачерненного дюралюминия. Далее через

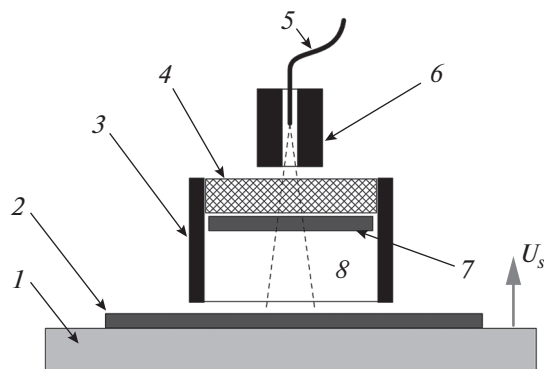


Рис. 1. Схема эксперимента: 1 — медная мишень, 2 — первая пластина из кремния, 3 — цилиндрический экран, 4 — стеклянное окно, 5 — кварцевый световод, 6 — цилиндрический канал, 7 — вторая пластина из кремния, 8 — вакуумный объем.

вакуумный промежуток δ на расстоянии ~ 5 мм располагалось стеклянное окно 4 толщиной 1.55 мм. Объем между мишенью 1 и окном 4 вакуумировался с откачкой до давления, не превышающего 0.0005 бар. За стеклянным окном 4 располагался цилиндрический канал из эбонита 6, ограничивающий поле зрения световода 5 на поверхности кремниевой пластины 2 диаметром менее 5 мм. Угол зрения световода на рис. 1 условно показан пунктиром. Для экспериментов в инфракрасной области спектра $\Delta\lambda_1 = 1.1\text{--}1.7$ мкм устанавливалась вторая кремниевая пластина 7 толщиной 350 мкм.

Разгрузка медной мишени 1 в пластину кремния 2 приводит к формированию ударно-волновой конфигурации в кремнии. При измерениях в полосе $\Delta\lambda_1 = 1.1\text{--}1.7$ мкм в качестве фотоприемника использовался InGaAs PIN-фотодиод ДФД500ТО, нагруженный на сопротивление 50 Ом, с характерной полосой чувствительности $\Delta\lambda_1 = 0.95\text{--}1.7$ мкм. Временное разрешение фотоприемника и осциллографа — не хуже 10 нс (паспортное значение). При регистрации три канала осциллографа с разными чувствительностями включались параллельно для обеспечения записи сигнала, меняющегося в широком динамическом диапазоне. Вторая кремниевая пластина 7 применена в качестве оптического фильтра, через который наблюдалось излучение кремния при прохождении волн по пластине 2 и при ее разгрузке в вакуум δ .

Для видимого диапазона $\lambda = 0.32\text{--}1.06$ мкм применялся фотоприемник S7836-01 (Hamamatsu Si PIN-фотодиод) с характерной полосой чувствительности $\lambda_2 = 0.32\text{--}1.06$ мкм, ограниченной снизу пропусканием кварцевого световода. Фотодиод, нагруженный на сопротивление 50 Ом, обеспечивал полосу пропускания не уже 150 МГц (по паспорту). Дополнительно был установлен зачерненный цилиндрический экран 3 из дюралюминия. Экран применялся после проведения предварительных экспериментов, в которых было обнаружено возникновение засветки от периферийной части сборки, где возможен прорыв мишени при ее разгрузке. По данным работы [10], коэффициент поглощения молекулярных компонент воздушной плазмы, которая может попадать в сборку по периметру мишени, заметно растет в коротковолновой части диапазона $\lambda_2 = 0.32\text{--}1.06$ мкм. Расстояние между нижним краем цилиндрического экрана 3 и поверхностью кремниевой пластины 2 составляло $d = 0.8 \pm 0.2$ мм. В сборке для измерений в видимом диапазоне устанавливалась только одна кремниевая пластина 2.

Фотоприемник калибровался по излучению ленточной вольфрамовой лампы с температурой $T = 2700$ К с использованием кремниевой пластины и стекла, аналогичных примененным в сборке. При расчетах температуры учитывалась степень черноты вольфрама в ленточной лампе,

которая меняется в широком диапазоне чувствительности фотоприемника. Учтены также френелевское отражение от поверхностей кремния и от поверхностей стекла и коэффициент поглощения кремния в зависимости от длины волны. Показатель преломления и коэффициент экстинкции кремния в широком диапазоне длин волн взяты из работ [11, 12].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результат обработки экспериментальных данных для диапазонов $\Delta\lambda_1 = 1.1\text{--}1.7$ мкм и $\Delta\lambda_2 = 0.32\text{--}1.06$ мкм приведен на рис. 2.

В начале записи для ИК-диапазона до момента $t = 0$ мкс наблюдается шумовая полоса, величина которой $T_{N1} < 1000$ К. Когда температура превышает уровень шумовой полосы, отношение сигнал/шум становится достаточным для уверенной регистрации температуры, так как зависимость интенсивности от температуры нелинейна. В момент времени a (рис. 2) ударная волна выходит в объем первой кремниевой пластины, а в момент времени b возникает разгрузка кремния в вакуум. Возмущения и форма сигнала на границах a и b связаны со слоями окисленного кремния на поверхности пластины и со слоем цианоакрилатного клея со стороны медной мишени. Узкие пики a и b несколько уширены из-за перекоса ударной волны на наблюдаемом размере пластины (~ 5 мм). При прохождении ударной волны по кремнию регистрируется яркостная температура $T_{sh} = 1250 \pm 200$ К. По-

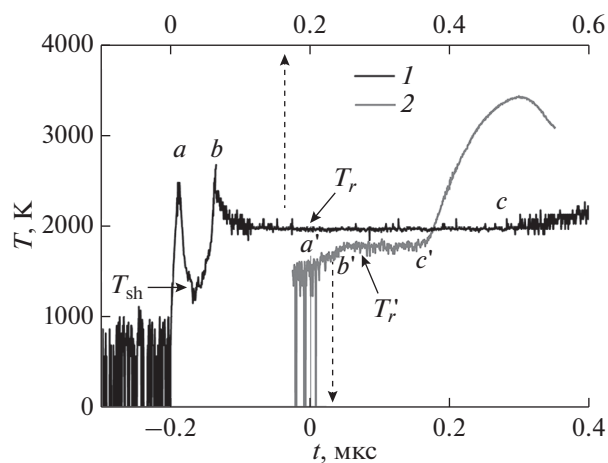


Рис. 2. Экспериментальные записи: 1 — яркостная температура в эксперименте в ИК-диапазоне; 2 — яркостная температура в эксперименте в видимом диапазоне; указатели со штрихом относятся к эксперименту в видимом диапазоне; a, a' — выход волны в кремний; b, b' — начало разгрузки кремния; c, c' — возникновение засветок от периметра сборки; показаны уровни температур ударной волны в кремнии T_{sh} и в разгрузке T_r, T_r' .

сле момента b при формировании волны разгрузки температура T_r должна падать относительно T_{sh} , так как при разгрузке вещество охлаждается. Однако наблюдается противоположное: температура разгруженного вещества $T_r = 2000 \pm 200$ К, т.е. $T_r > T_{sh}$. Интенсивность излучения при формировании волны разгрузки возрастает больше чем на порядок (в зависимости от длины волны). Рост температуры мог бы быть объяснен расширением излучаемого спектра в коротковолновую область после выхода волны из кремния. Но этот эффект подавляется установкой второй пластины кремния, которая ограничивает расширение спектра в коротковолновую область. Температура разгруженного кремния остается практически постоянной до момента c , после которого осциллограмма возмущена засветками от боковых поверхностей сборки.

Для видимого диапазона (обозначения со штрихом на рис. 2) до момента a' наблюдается шумовая полоса $T_{N2} < 1600$ К. На участке $a'-b'$ сигнал растет по мере прохождения волны по кремнию, так как невозмущенный кремний заметно поглощает свет в видимой области. От момента b' до момента c' наблюдается температура разгруженного кремния, которая составляет $T_r' = 1780 \pm 200$ К. От момента c' и далее излучение возмущено засветками от столкновения кремния с цилиндрическим экраном.

Наблюдаемый эффект роста яркостной температуры в разгрузке может быть объяснен наличием многоволновой структуры ударной волны в кремнии при исследованных параметрах. Дело в том, что кремний имеет сложную фазовую диаграмму. В настоящее время известно 11 стабильных и метастабильных кристаллических модификаций кремния, существующих при температурах от комнатной до 2000 К и давлениях до 80 ГПа [4, 5]. Экспериментально было выявлено [6–9], что ударные волны в кремнии до давлений 78 ГПа расщепляются на упругий предвестник и несколько пластических волн. Весь экспериментальный массив ударной сжимаемости при невысоких давлениях хорошо описывается первопринципными расчетами по методу функционала плотности [13]. В условиях настоящего эксперимента реализуется двухволновая конфигурация. Впереди движется упругая волна со скоростью ~ 8.5 км/с. Вторая пластическая ударная волна, обладающая скоростью 8.0 км/с, переводит кремний в жидкое состояние с давлением $P_{sh} = 68 \pm 3$ ГПа, вычисленным по ударной адиабате [6].

Полученные экспериментальные данные по температуре ударно-сжатого и разгруженного кремния приведены на рис. 3 в зависимости от его относительного удельного объема. Простые оценки температуры кремния по значениям тепловой составляющей удельной энергии на ударной

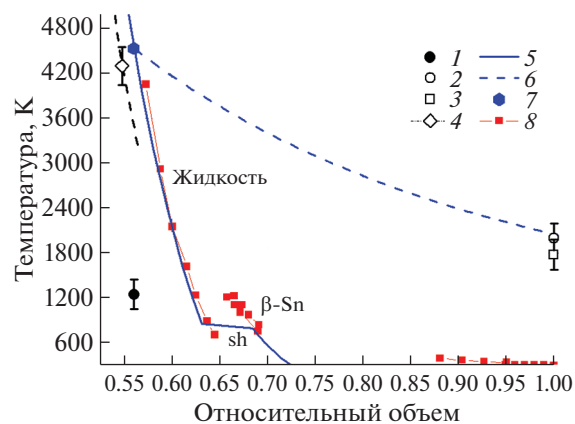


Рис. 3. Температура ударно-сжатого и разгруженного кремния в зависимости от относительного удельного объема: эксперимент, настоящая работа: 1 — яркостная температура ударно-сжатого кремния, 2 — яркостная температура кремния при разгрузке в вакуум в ИК-диапазоне спектра, 3 — в видимом диапазоне спектра; расчет, настоящая работа: 4 — по данным [6], 5 — температура на ударной адиабате кремния по многофазному УРС, 6 — в волне разгрузки, 7 — точка с давлением ударного сжатия 68 ГПа; 8 — расчет температуры ударно-сжатого кремния методом функционала плотности [13].

адиабате [6, 14, 15] и теплоемкости [16] дают значения $T_{sh} \sim c_p \sim 4300$ К. Расчетные величины температуры кремния на ударной адиабате, полученные на основе первопринципного моделирования кремния, претерпевающего последовательный ряд фазовых превращений до сжимающих давлений ~ 70 ГПа, обозначены на рисунке кривой 8 [13]. Также в настоящей работе использовалось построенное для кремния по аналогии с [17] многофазное полуэмпирическое уравнение состояния (УРС), включающее в себя кривую плавления, кривую кипения и критическую точку. Подробное сравнение рассчитанных по нему ударных адиабат приведено в работах [18, 19]. Значения температуры ударно-сжатого и расширяющегося кремния, полученные с использованием такого УРС, приведены на рис. 3 — кривые 5 и 6 соответственно. Видно, что экспериментально измеренная яркостная температура ударно-сжатого кремния оказывается значительно меньше расчетной. Такое расхождение можно объяснить наличием в условиях эксперимента двухволновой конфигурации. В распространяющейся со скоростью $D_1 = 8.5$ км/с упругой волне коэффициент поглощения достаточно велик $\sim 10^4$ см $^{-1}$ [20], так что интенсивность излучения с фронта пластической волны значительно ослабевает в $I/I_0 = \exp(-d) \sim 3.5$ раза за счет увеличения толщины поглощающего слоя $d = d(t)$, нарастая при выходе упругой волны на свободную поверхность. Значения измеренной яркостной температуры в волне разгрузки

составили $T_r = 2000 \pm 200$ К в ИК-диапазоне и $T_r' = 1780 \pm 200$ К в видимом диапазоне. Данные результаты хорошо согласуются с расчетом по многофазному УРС. Занижение температуры фронта в кремнии наблюдалось и в экспериментах с одноволновой структурой фронта в работах [19, 21] при больших давлениях – до 600 ГПа.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Регистрируемая яркостная температура кремния $T_{sh} = 1250$ К при давлении ударного сжатия $P_{sh} = 68$ ГПа в диапазоне прозрачности кремния $\Delta\lambda_1 = 1.1\text{--}1.7$ мкм значительно ниже расчетных значений температуры кремния. Занижение температуры может быть вызвано поглощающим слоем перед фронтом второй ударной волны. Яркостная температура разгруженного кремния оказывается выше наблюдаемой температуры в ударной волне. Зарегистрированные температуры разгруженного кремния составили $T_r = 2000 \pm 200$ К в инфракрасной области и $T_r' = 1780 \pm 200$ К в видимой области спектра.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение с ОИВТ РАН № 075-15-2020-785). Все эксперименты проведены с использованием приборной базы Московского регионального взрывного центра коллективного пользования ИПХФ РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Фортвов В.Е.* Мощные ударные волны на Земле и в космосе. М.: Физматлит, 2019. 416 с.
2. *Кормер С.Б.* Оптические исследования свойств ударно сжатых конденсированных диэлектриков // УФН. 1968. Т. 94. № 4. С. 641.
3. *Cheng G.J., Cai M., Pirzada D., Guinel J.F., Norton M.G.* Plastic Deformation in Silicon Crystal Induced by Heat-Assisted Laser Shock Peening // J. Manuf. Sci. Eng. 2008. V. 130. № 1. P. 011008.
4. *Mujica A., Rubio A., Munoz A., Needs R.* High-pressure Phases of Group-IV, III–V, and II–VI Compounds // Rev. Mod. Phys. 2003. V. 75. P. 863.
5. *Li C., Wang C., Han J., Yan L., Deng B., Liu X.* A Comprehensive Study of the High-pressure–Temperature Phase Diagram of Silicon // J. Mater. Sci. 2018. V. 53. № 10. P. 7475.
6. *Павловский М.Н.* Образование металлических модификаций германия и кремния в условиях ударного сжатия // Физика твердого тела. 1967. Т. 9. № 11. С. 3192.
7. *Gust W.H., Royce E.B.* Axial Yield Strengths and Two Successive Phase Transition Stresses for Crystalline Silicon // J. Appl. Phys. 1971. V. 42. P. 1897.
8. *Goto T., Sato T., Syono Y.* Reduction of Shear Strength and Phase-Transition in Shock-Loaded Silicon // Jpn. J. Appl. Phys. 1982. V. 21. P. 369.
9. *Turneaure S.J., Sharma S.M., Gupta Y.M.* Nanosecond Melting and Recrystallization in Shock-Compressed Silicon // Phys. Rev. Lett. 2018. V. 121. P. 135701.
10. *Churchill D.R., Armstrong B.H., Johnston R.R., Müller K.G.* Absorption Coefficients of Heated Air: A Tabulation to 24000 K // JQSRT. 1966. V. 6. № 4. P. 371.
11. *Schinke C., Peest P.C., Schmidt J., Brendel R., Bothe K., Vogt M.R., Kroger I., Winter S., Schirmacher A., Lim S., Nguyen H.T., MacDonald D.* Uncertainty Analysis for the Coefficient of Band-to-band Absorption of Crystalline Silicon // Aip Adv. 2015. V. 5. № 6. P. 067168-1.
12. *Salzberg C.D., Villa J.J.* Infrared Refractive Indexes of Silicon, Germanium and Modified Selenium Glass // J. Opt. Soc. Am. 1957. V. 47. № 3. P. 244.
13. *Strickson O., Artacho E.* Ab Initio Calculation of the Shock Hugoniot of Bulk Silicon // Phys. Rev. B. 2016. V. 93. P. 094107.
14. *Olijnyk H., Sikka S.K., Holzapfel W.B.* Structural Phase Transitions in Si and Ge Under Pressures up to 50 GPa // Phys. Lett. A. 1984. V. 103. № 3. P. 137.
15. *Duclos S.J., Vohra Y.K., Ruoff A.L.*hcp-to-fcc Transition in Silicon at 78 GPa and Studies to 100 GPa // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 58. № 8. P. 775.
16. *Шелудяк Ю.Е., Кашипов Л.Я., Малинин Л.А., Цалков В.Н.* Теплофизические свойства компонентов горючих систем: Спр. / Под ред. Силина Н.А. М., 1992. 184 с.
17. *Lomonosov I.V.* Multi-phase Equation of State for Aluminum // Laser Part. Beams. 2007. V. 25. P. 567.
18. *Николаев Д.Н., Кулиш М.И., Дудин С.В., Минцев В.Б., Ломоносов И.В., Фортвов В.Е.* Ударная сжимаемость монокристаллического кремния в диапазоне давления 280–510 ГПа // ТВТ. 2021. Т. 59. № 6. С.
19. *Nikolaev D.N., Kulish M.I., Dudin S.V., Mintsev V.B., Lomonosov I.V., Fortov V.E.* Measurement of Dense Plasma Temperature of the Shock-compressed Silicon // Contrib. Plasma Phys. 2021. e202100113. <https://doi.org/10.1002/ctpp.202100113>
20. *Mintsev V.B., Zaporogets Y.B.* Reflectivity of Dense Plasma // Contrib. Plasma Phys. 1989. V. 29. № 4–5. P. 493.
21. *Lower T., Kondrashov V.N., Basko M., Kendl A., Meyerter-Vehn J., Sigel R., Ng A.* Reflectivity and Optical Brightness of Laser-induced Shocks in Silicon // Phys. Rev. Lett. 1998. V. 80. № 18. P. 4000.