

P14-2002-238

В. А. Алтынов, А. Ю. Дидык

**ВЛИЯНИЕ ЗАРЯДНОСТИ ИОНОВ
НА ФОРМИРОВАНИЕ ПРОФИЛЯ ПЕРВИЧНЫХ
ПОВРЕЖДЕНИЙ В КРИСТАЛЛАХ,
ОБЛУЧАЕМЫХ ИОНАМИ**

Направлено в журнал «Вопросы атомной науки и техники.
Серия: физика радиационных повреждений
и радиационное материаловедение»

ВВЕДЕНИЕ

Образование дефектов кристаллической структуры при прохождении через нее тяжелых заряженных частиц может происходить как вследствие прямого взаимодействия ядер ионов с ядрами мишени, так и опосредованным путем – через ионизацию электронных оболочек атомов мишени с последующим кулоновским расталкиванием образовавшихся ионов.

Такой механизм дефектообразования рассмотрен в работах Варли [1] для ионных кристаллов, Карпова и Клингера [2] для кристаллов, содержащих положительно заряженные примеси, Двуреченского и др. [3] для случая ионизации двух собственных атомов, расположенных в соседних узлах решетки. Все эти модели объединяет предположение о том, что дефект образуется после ионизации одного или двух атомов мишени, которые после оже-каскада становятся положительно заряженными до величины в несколько единиц элементарного заряда. Образовавшаяся группа ионов (состоящая из ионизованного атома и катиона кристаллической решетки в модели Варли или же ионизованного атома и положительно заряженной примеси в модели Карпова и Клингера) будет неустойчивой вследствие кулоновского расталкивания, что и приводит к образованию дефекта. В модели Двуреченского происходит расталкивание двух собственных атомов решетки, ионизованных пролетающей частицей.

В наших предыдущих работах [4,5] было показано, что в такого рода моделях помимо прямой кулоновской ионизации следует учитывать и ионизацию вследствие захвата электронов атомов мишени на уровне пролетающего иона. В соответствии с этим длина свободного пробега L заряженной частицы между последовательными актами ионизации электронных оболочек мишени должна зависеть не только от сечения кулоновской ионизации σ_i , но и от сечения захвата σ_c , то есть

$$L = [(\sigma_i + \sigma_c)N_a]^{-1}, \quad (1)$$

где N_a – число атомов в единице объема.

В формуле (1) предполагалось, что сечение σ_c не зависит от структуры иона, в частности от его заряда q . Дальнейшее развитие положений, высказанных в наших предыдущих статьях [4,5], является целью настоящей работы.

ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

При рассмотрении процесса последовательной ионизации соседних атомов кристаллической решетки мишени следует принимать во внимание тот факт, что повторный захват электрона на уровне иона возможен только в случае, когда эти уровни еще не полностью заполнены. Так, например, ион He^+ только в одном из двух столкновений сможет захватить электрон, а в общем случае два захвата подряд возможны только тогда, когда заряд иона больше, чем +2. Процессы, приводящие к ионизации можно схематически представить следующим образом:

$$\begin{aligned}
1) \quad & I^{+k} + A_1 \xrightarrow{c} A_1^{+1} + (I^{+(k-1)} + A_2) \xrightarrow{c} A_1^{+1} + A_2^{+1} + I^{+(k-2)}, \quad k \geq 2, \\
2a) \quad & I^{+k} + A_1 \xrightarrow{c} A_1^{+1} + (I^{+(k-1)} + A_2) \xrightarrow{i} A_1^{+1} + A_2^{+1} + I^{+(k-1)}, \quad k \geq 1, \\
2b) \quad & I^{+k} + A_1 \xrightarrow{i} A_1^{+1} + (I^{+k} + A_2) \xrightarrow{c} A_1^{+1} + A_2^{+1} + I^{+(k-1)}, \quad k \geq 1, \\
3) \quad & I^{+k} + A_1 \xrightarrow{i} A_1^{+1} + (I^{+k} + A_2) \xrightarrow{i} A_1^{+1} + A_2^{+1} + I^{+k}, \quad k \geq 0.
\end{aligned} \tag{2}$$

В приведенных выше формулах I^{+k} – ион зарядности k , A – атом мишени, i и c – процессы ионизации и захвата соответственно.

Поскольку сечения захвата электронов зависят от электронной конфигурации иона, то выражение $dN/dx \propto (\sigma_c + \sigma_L)^2$ (формула в работе [5]) следует заменить на

$$dN/dx \propto \sum_2 n_q \sigma_c(q) \sigma_c(q-1) + \sum_1 n_q \sigma_c(q) [\sigma_i(q-1) + \sigma_i(q)] + \sum_0 n_q \sigma_i^2(q). \tag{3}$$

Следовательно, расчет профиля повреждений по рассматриваемому в настоящей работе механизму должен учитывать зависимость σ_c от q и распределение ионов по зарядностям. Рассмотрим сначала вопрос о распределении ионов по зарядностям. Обычно предполагают, что оно имеет гауссову форму. Как известно, это распределение симметрично относительно максимума, однако при малом числе зарядовых состояний такая симметрия может и не иметь места. Поэтому мы использовали биномиальную формулу, а именно

$$n_q = C_Z^q p^q (1-p)^{Z-q}, \tag{4}$$

при этом параметр p определяется из условия

$$p = \bar{q}/Z. \tag{5}$$

В приведенных формулах n_q – доля ионов с зарядом q , C_Z^q – биномиальный коэффициент, Z – атомный номер иона (заряд ядра иона), \bar{q} – средний заряд иона на данной глубине (при данной скорости), который может быть вычислен.

Очевидно, что $\sum_q n_q = 1$, как это и должно быть из физических соображений.

Дисперсия распределения ионов по зарядам в случае биномиального распределения будет определяться выражением

$$d = \bar{q}(1 - \bar{q}/Z). \tag{6}$$

Формула (6) по своему виду близка к формуле для дисперсии, предложенной Бором [6]

$$d = 0.5 \cdot \left[\bar{q} \cdot \left(1 - \bar{q}/Z \right)^{5/3} \right]^{1/2}. \tag{7}$$

Зависимость же σ_c от q проявляется через зависимость сечения от энергии уровня, на который происходит захват (см. [7])

$$\sigma_c \propto [(E_i - E_a - mv^2/2)^2 + (hvZ_i/n_i a_B)^2]^{-5}. \tag{8}$$

При этом, если энергии уровней атомов хорошо известны и табулированы (см., например, [8]), то для энергий ионов, особенно сильно ионизированных, приходится использовать различные приближения. В частности, одно из приближений предложено нами в работе [5].

Зависимость сечения захвата от атомного номера определяется, во-первых, видом волновых функций начального i и конечного f состояний, между которыми происходит переход, и, во-вторых, потенциалом взаимодействия V для рассматриваемого электронного перехода, т.е.

$$\sigma_c = (2\pi\eta^2 v) \sum_f \int dp_{\perp} | \langle f | V | i \rangle |^2, \quad (9)$$

где суммирование проводится по всем состояниям, из которых происходит захват. Для легких ионов в работе [7] дается выражение

$$\sigma_c \propto \frac{Z_1^3}{n_1^3} \cdot \frac{Z_2^5}{n_2^3}, \quad (10)$$

где Z_1, Z_2 – атомные номера иона и мишени соответственно, n_1 и n_2 – главные квантовые числа уровней.

Мы предлагаем использовать формулу (10) с заменой Z на Z_{eff} , определяемое как $Z_{eff} = (Z - S_{nl})$. Постоянные S_{nl} определяются в виде суммы вкладов от всех $n'l'$ -электронов, вычисленных Бернсом [9] (см. таблицу). Не приведенные в таблице вклады от электронов, для которых $n' < n$, равны единице, а для которых $n' > n$, – нулю.

Таблица

Вклады в S_{nl} волновых функций от каждого из $n'l'$ -электронов атома

S_{ns}	- $1,0(n-2)s$ $0,85(n-1)s$ $0,35ns$	- $1,0(n-2)p$ $0,65(n-1)p$ $0,2np$	$1,0(n-3)d$ $0,75(n-2)d$ $0,25(n-1)d$ $0,1nd$	$0,75(n-3)f$ $0,25(n-2)f$ $0,05(n-1)f$ -
S_{np}	- - $1,0(n-1)s$ $0,5ns$ $0,15(n+1)s$	- - $1,0(n-2)p$ $0,7(n-1)p$ $0,35np$ $0,05(n+1)p$	$1,0(n-3)d$ $0,85(n-2)d$ $0,5(n-1)d$ $0,15nd$ -	$0,85(n-3)f$ $0,50(n-2)f$ $0,15(n-1)f$ - -
S_{nd}	- $1,0(n-1)s$ $0,75ns$ $0,15(n+1)s$	- $1,0(n-1)p$ $0,5np$ $0,05(n+1)p$	$1,0(n-2)d$ $0,55(n-1)d$ $0,35nd$ $0,05(n+1)d$	$0,75(n-2)f$ $0,4(n-1)f$ $0,05nf$ -
S_{nf}	- $1,0ns$ $0,5(n+1)s$	$1,0(n-1)p$ $0,75np$ $0,15(n+1)p$	$0,85(n-1)d$ $0,5nd$ $0,05(n+1)d$	$0,85(n-1)f$ $0,35nf$ $0,05(n+1)f$

Для $1s$ -, $2p$ - и $3d$ -электронов постоянные экранирования, вычисленные таким образом, наиболее близки к постоянным экранирования Хатри – Фока [10].

Сечения ионизации тяжелыми заряженными частицами хорошо передаются моделью парных столкновений (binary encounter approximation), изложенной в работах [11, 12]. В них табулирована так называемая универсальная кривая зависимости приведенного сечения от относительной скорости иона. С целью автоматизации расчетов нами была произведена аппроксимация табулированных значений гладкой непрерывной функцией вида

$$\sigma(V) = V^8 \cdot \exp\left(\sum_{i=0}^6 B_i V^i\right), \quad (11)$$

где V – отношение скорости иона к скорости орбитального электрона.

Поскольку зависимость сечения ионизации легкими ионами от их зарядового состояния невелика (ион должен проникнуть глубоко в оболочку ионизируемого атома, где существенно только взаимодействие ядро иона - электрон мишени [11,12]), то для них выражение (3) можно заменить на

$$dN/dx \propto \sum_2^Z n_q \sigma_C(q) \sigma_C(q-1) + \sigma_i \sum_1^Z n_q \sigma_C(q) + \sigma_i^2, \quad (12)$$

поскольку $\sum n_q = 1$.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

С учетом указанных предположений нами были произведены расчеты профиля первичных повреждений, образующихся в кремнии при облучении ионами He с энергией от 0.4 до 4 МэВ. Результаты расчетов представлены в виде графиков на рисунках 1 и 2. Индексы 0.4, 1.0, 2.0 и 4.0 около кривых означают энергию ионов в МэВ соответственно. Глубина мишени измеряется в долях проективного пробега. При проведении расчетов принято во внимание то соображение, что в кремнии при удалении электронов из L -оболочки оже-переходы возможны только при ионизации (любым способом) L_I –подоболочки, то есть переходы $L_I \rightarrow L_{III}, M_{II}$. В соответствии с этим вычислялись сечения захвата и кулоновской ионизации именно для этой подоболочки. Энергия связи для L_I –уровня кремния составляет согласно [8] 152 эВ. Энергия связи электронов гелия полагалась равной 24.59 эВ для нейтрального гелия [8] и 54.4 эВ для ионов He^+ .

Каждая группа кривых на рис. 1 демонстрирует вклад отдельных слагаемых уравнения 12 в результирующий профиль – последовательная ионизация (а), ионизация и захват (б), последовательный захват с учетом изменения состояния иона (в).

Из представленных результатов следует, что при определенных энергиях ионов в профиле первичных повреждений могут появляться дополнительные, помимо брегговского, пики, положение которых для данной пары ион - мишень зависит от энергии иона. Этот факт объясняется тем, что сечение захвата электронов имеет максимум при определенной скорости иона. Так как глубина, на которой такая скорость достигается, зависит от начальной энергии, то и максимум дефектообразования смещается в глубину мишени при увеличении начальной энергии. Вместе со смещением пика происходит и его уширение, что может быть вызвано различием зависимости скорости иона от глубины мишени. Следует обратить внимание и на то, что при фиксированной начальной энергии иона положение максимума для каждого из дефектообразующих процессов различно. Так, при энергии 2 МэВ вероятность образования дефекта максимальна на глубине $0,635R$ для последовательного захвата, на глубине $0,415R$ для захвата-ионизации и на глубине $0,245R$ для последовательной ионизации. Из приведенных результатов также следует, что появление дополнительных пиков при образовании дефектов по модели Двуреченского [3] возможно только начиная с определенной пороговой энергии ионов, определяемой условием равенства скоростей налетающей частицы и орбитального электрона. Для рассматриваемой пары эта энергия должна превышать 1 МэВ. Необходимо обратить внимание также и на тот факт, что для

рассматриваемой комбинации ион – мишень вклад каждого следующего слагаемого в результирующий профиль приблизительно на полтора порядка меньше. Поскольку каждое слагаемое достигает максимума на различной глубине, то исследование экспериментальных профилей распределения первичных дефектов позволит определить, какой именно из процессов имеет наибольшую вероятность при прохождении ионов через мишень.

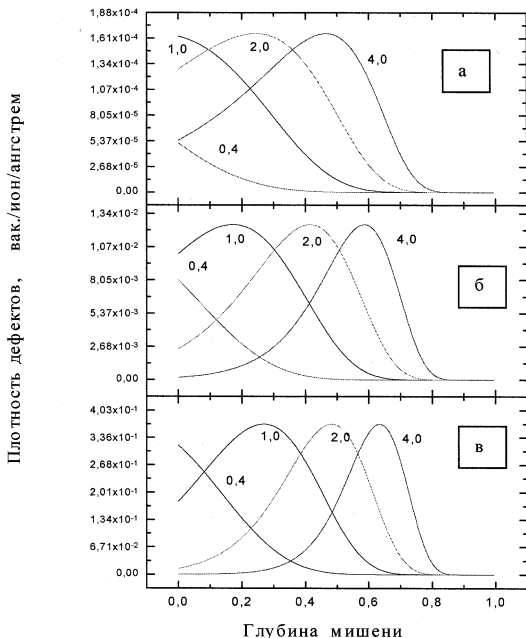


Рис.1. Вклад каждого из процессов в суммарный профиль дефектообразования

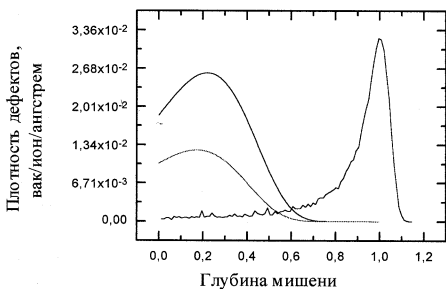


Рис.2. Сопоставление профилей, рассчитанных с учетом (нижняя кривая) и без учета зарядовых состояний ионов.

На рисунке 2 представлены расчетные профили дефектов, образующихся при облучении кремния ионами *He* с энергией 1 МэВ, как с учетом (нижняя кривая), так и без учета распределения ионов по зарядовым состояниям. Правая кривая на этом рисунке – результат расчета по программе SRIM-2000 [13] суммарной плотности дефектов, образованных ионами и атомами отдачи. Видно, что

учет распределения ионов по зарядностям дает меньшее значение в максимуме дефектообразования, а сам максимум располагается ближе к поверхности. Следует подчеркнуть, что вычисление плотности дефектов производилось с точностью до множителя, определяемого квадратом вероятности оже-перехода в ионизованных атомах и вероятностью образования дефекта, зависящей от времени существования заряда на этих атомах после ионизации и оже-каскада. Таким образом, приведенные численные значения плотности дефектов можно рассматривать как максимально возможные для обсуждаемого механизма

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе рассмотрено влияние зарядности ионов на процессы, приводящие к образованию первичных повреждений вследствие удаления электронов с внутренних оболочек атомов, расположенных в соседних узлах кристаллической решетки, и последующего смещения одного из ионизованных атомов из узла. Показано, что дискретность зарядовых состояний ионов существенно влияет на форму профиля образующихся дефектов – в первую очередь на положение максимума дефектообразования и на его ширину. Приведенные численные значения следует рассматривать как максимально возможное число дефектов, образующихся вследствие обсуждаемых в статье процессов. Вместе с тем, ход кривых хорошо коррелирует с экспериментальными результатами, в которых условия облучения, а именно, отношение разности энергий уровней, между которыми происходит «обмен» электронами, к начальной скорости иона, и сама эта скорость, близки к использованным в наших расчетах.

Литература

1. Varley J., Nucl. Energy **1**, p. 130 (1954), Nature, **174**, p. 886, (1954).
2. Карпов В.Г., Клиггер М.И., Физ. техн. полупроводников **12**, 1887 (1978).
3. Двуреченский А.В., Каранович А.А., Рыбин А.В., ЖЭТФ **107**, 493 (1995).
4. Altnov V.A., Didyk A.Yu., Heavy Ion Physics. JINR FLNR Sci. Rep. 1997-1998, Dubna, 2000, p.285.
5. V.A.Altynov, A.Yu.Didyk, *ibid*, p. 287.
6. Бор Н., Прохождение атомных частиц в веществе, М.,Изд-во иностр. лит. (1950).
7. Y.-H.Ohttsuki, Charged beam interaction with solids, Taylor&Francis Ltd, London and N.Y. (1983).
8. Блохин М.А, Швейцер И.Г., Рентгеноспектральный справочник, М., Наука, 1982.
9. Burns G., J. Chem. Phys., **41**, p. 1521, (1964).
10. Bloch V.J., Mendelsohn L.B., Phys. Rev., **A12**, p. 1197, (1975).
11. Garcia J.D, Fortner R.J., Kavanagh K., Rev. Mod. Phys., **45**, p. 111, (1973).
12. McGuire J.H., Richard P., Phys. Rev., **A8**, p. 1374, (1973).
13. Ziegler J. F., Biersack J.P., Littmark U., The Stopping and Range of Ions in Solids, N.-Y.,Pergamon Press, (1985)

Алтынов В. А., Дидык А. Ю.

P14-2002-238

Влияние зарядности ионов на формирование профиля
первичных повреждений в кристаллах, облучаемых ионами

Описана модель образования первичных повреждений при облучении кристаллов ионами. Основой модели является предположение о том, что дефекты образуются в результате кулоновского расталкивания соседних атомов кристаллической решетки, ионизированных движущимися ионами. В модели учитывается изменение среднего заряда ионов по мере проникновения в образец и распределение ионов по зарядам на данной глубине. Представлены результаты расчетов.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2002

Перевод авторов

Altynov V. A., Didyk A. Yu.

P14-2002-238

Influence of Ion Charge on Primary Defects Creation
in Crystals Irradiated by Ions

The model of primary defects formation under ion irradiation of crystals is described. The model is based on suggestion that defects are created as a result of Coulomb repulsion of neighbouring atoms at crystalline lattice ionized by bombarding ions. The changes of average charge of ions and the charge distribution of ions versus the depth of ion penetration to crystal are taken into account. The results of calculations are presented.

The investigation has been performed at the Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2002

Редактор *М. И. Зарубина*
Макет *Н. А. Киселевой*

Подписано в печать 04.11.2002.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,37. Уч.-изд. л. 0,44. Тираж 290 экз. Заказ № 53601.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@pds.jinr.ru

www1.jinr.ru