

УДК 530.136

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ РАДИАЦИОННЫХ ДЕФЕКТОВ ПО ГЛУБИНЕ ПРИ ИОННОМ ОБЛУЧЕНИИ КРЕМНИЯ

© 2023 г. Н. В. Новиков^а, *, Н. Г. Чеченин^а, А. А. Широкова^а

^аМосковский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
НИИЯФ им. Д.В. Скобельцына, Москва, 119991 Россия

*e-mail: nvnovikov65@mail.ru

Поступила в редакцию 26.06.2022 г.

После доработки 20.07.2022 г.

Принята к публикации 20.07.2022 г.

Плотность распределения дефектов достигает максимума на глубине, которая зависит от энергии и массы иона. Эта глубина уменьшается с увеличением угла падения из-за многократного рассеяния первичных ионов в поверхностных слоях мишени. С увеличением массы иона максимальная плотность дефектов увеличивается по степенному закону. Асимметрия максимума в распределении дефектов по глубине связана с увеличением упругих потерь энергии при замедлении иона и уменьшением коэффициента прохождения ионов при увеличении глубины слоя.

Ключевые слова: облученный материал, ионно-индуцированный дефект, смещение на атом, упругие потери энергии ионов.

DOI: 10.31857/S1028096023010181, **EDN:** BLSFQY

ВВЕДЕНИЕ

Радиационные эффекты под действием ионного облучения используются для создания композиционных материалов с определенными свойствами [1]. Под воздействием радиационной среды происходит не только распыление материала мишени и изменение рельефа поверхности, но и повреждение облученного материала — появление в нем точечных дефектов [2, 3], связанных с нарушением периодической структуры кристалла. Со временем накопление таких дефектов в материале в виде вакансий, межузельных атомов и замещений может привести к образованию пустот, аморфизации отдельных областей и радиационно-индуцированной сегрегации в сплавах [4]. Как правило, локальные неоднородности в материалах ухудшают их характеристики, вызывая пластические деформации, набухание, появление пор и трещин. Однако контролируемое создание дефектов, их эволюция, перестройка и аннигиляция с учетом поглощенной дозы, температуры, межфазовых границ и морфологии образца является инструментом для изменения свойств материала [4]. Выбирая подходящие сорта ионов, их энергию, заряд и флуенс, можно контролировать в образце распределение поглощенной дозы и концентраций дефектов, объем дислокаций, размер зерна и расположение фазовых границ [5, 6]. Распределение поглощенной энергии и дефектов в поверхностных слоях облученной мишени

зависит не только от их количества и толщин, но и их последовательности [7]. Актуальность таких исследований связана с развитием методики легирования полупроводниковых материалов, обеспечением стабильной работы электронной компонентной базы космических аппаратов и авиационных радиоэлектронных комплексов [8].

Степень первичных радиационных повреждений в единице объема оценивается в количестве смещений на атом (сна), которое вызывает один первичный ион с энергией E_0 и массой A , а также в распределении плотности этих смещений по глубине мишени x . Теоретические оценки рассеяния и прохождения ионизирующего излучения через мишень определенного состава и толщины проводят для эффекта от одной первичной частицы с известной энергией и углом падения α на поверхность. Легкие ионы характеризуются большой глубиной проникновения, что увеличивает вероятность создания дислокаций в глубоких слоях мишени. В общем случае эволюция первичных дефектов в облученном материале связана с процессами их дрейфа, диффузии, рекомбинации и зависит от времени и температуры. При комнатной температуре процессы диффузии межузельных атомов и вакансий, их рекомбинация и кластеризация в виде обедненных и обогащенных областей медленные. Такие структурные изменения в облученном материале могут сохраняться годами и накапливаться при увеличении

флуенса первичных ионов в виде протяженных макроскопических скоплений (дислокационных петель).

Образование вторичных частиц, изменение структуры мишени и ее нагрев вблизи трека иона приводит к модификации механических, тепловых и электрофизических свойств материала. Ион в упругом столкновении передает часть своего импульса атому мишени, и если величина этого импульса превышает пороговое значение ϵ_d , то атом мишени может покинуть свое положение в узле кристаллической решетки. Порог для образования точечного дефекта для большинства материалов составляет $\epsilon_d = 15\text{--}50$ эВ [4], а энергия выбитых атомов может достигать сотен эВ [9], что делает их источником каскада упругих столкновений и наряду с первичным ионом еще одной причиной рождения новых дислокаций. Когда энергия первичного иона и выбитых атомов в атомном каскаде уменьшается до значения, близкого к ϵ_d , то при взаимодействии с атомом мишени они могут потерять всю энергию. Если размер замедлившегося атома не превышает размера атома в узле кристаллической решетки, то такой атом в каскаде столкновений может занять одну из имеющихся вакансий в кристаллической решетке, передав остаток своей энергии фононам, что приводит к нагреву мишени. Такие замещения тоже считают точечными дефектами в облученном материале [9], плотность распределения которых выражается отношением количества сна к толщине dx этого слоя. Формирование в облученном материале областей с неравномерным распределением межузельных атомов и вакансий модифицирует не только теплофизические, но и механические свойства материала, изменяя его упругость и прочность.

Для описания количества дефектов во всем материале $N(E_0, A)$ и плотности их распределения $n(x)$ по глубине слоя x используют методы молекулярной динамики (МД) [10] и Монте-Карло [9, 11]. Метод МД рассматривает взаимодействие налетающего иона со всем ансамблем атомов в выбранном фрагменте мишени с учетом их взаимодействия друг с другом. Неупругие потери энергии ионов $S_e(E, A)$ в этом методе рассматривают как поправку к упругим потерям энергии $S_n(E, A)$, и следовательно, применимость метода МД ограничена диапазоном энергии ионов:

$$S_n(E_0, A) > S_e(E_0, A) \text{ при } E_0 < E^*. \quad (1)$$

Считают, что неупругие $S_n(E, A)$ и упругие $S_e(E, A)$ потери энергии ионов не коррелируют. В этом случае при замедлении быстрых тяжелых ионов с энергией E ($E > E^*$) их основные потери энергии связаны с созданием электронно-дырочных пар, и только когда энергия иона уменьшается до значения $E \sim E^*$, начинается процесс образования

вакансий и межузельных атомов. Метод Монте-Карло учитывает как упругие, так и неупругие потери энергии ионов [12] и основан на бинарном приближении рассеяния первичной частицы одним из атомов, взаимодействие которого с соседними атомами мишени в момент столкновения не учитывается. Область применимости этого метода в ионно-атомных столкновениях ($E_0 \geq 1$ кэВ) ограничена влиянием теплового движения атомов.

Программа SRIM [9] в режиме детального учета полных каскадов (full cascades) позволяет провести моделирование столкновений и создание дефектов в облученном материале, регистрируя все события, которые происходят с каждым из вторичных атомов. Преимущество такого подхода по отношению к методам МД состоит в детальном учете всей предыстории замедления быстрого иона до энергии E^* . Для расчета количества точечных дефектов в программе SRIM есть также упрощенный метод расчета на основе модели Кинчина–Пиза [13]. Он оценивает приближенную зависимость количества вакансий от величины переданной атому мишени энергии в столкновении с первичным ионом. В этом случае расчеты каскада упругих столкновений по сравнению с режимом детального учета полных каскадов становятся на порядок быстрее, но не учитывают распределение выбитых атомов и процесс замещения атома мишени в узлах кристаллической решетки.

Целью работы было исследование закономерностей распределения дефектов по глубине слоя кремния в зависимости от угла падения, энергии и массы иона.

КОЛИЧЕСТВО ДЕФЕКТОВ В ПОЛУПРОСТРАНСТВЕ

Расчеты распределения количества дефектов $N(E_0, A)$ в кремнии ($\epsilon_d = 25$ эВ) были выполнены с помощью программы SRIM. Количество дефектов $N(E_0, A)$, под которыми кроме вакансий понимают также замещения атомов первичными ионами и вторичными атомами, а также образование межузельных атомов, вычисляли в режиме детального учета атомных каскадов. Результаты расчетов показали, что вклад количества замещений и создание межузельных атомов не превышает 12% от общего количества дефектов $N(E_0, A)$ во всем диапазоне энергии рассматриваемых ионов. Если все падающие на мишень ионы поглощаются, то количество дефектов в облученном материале не зависит от толщины мишени d и угла падения α .

С увеличением энергии иона E_0 количество дефектов во всем облученном материале $N(E_0, A)$ возрастает (рис. 1), что связано с увеличением длины трека иона. Зависимость $N(E_0, A)$ от массы

иона A определяется прежде всего упругими потерями энергии медленных ионов ($E < E^*$) и приближенно может быть описана отношением

$$N(E, A_1)/N(E, A_2) \approx S_n(E, A_1)/S_n(E, A_2). \quad (2)$$

Влияние неупругих потерь энергии ионов $S_e(E, A)$ на создание дефектов при $E < E^*$ в этом приближении не учитывается. Результаты на рис. 1 показывают, что количество дефектов, создаваемых протонами и ионами ^{40}Ar в диапазоне $E_0 < 100$ кэВ, отличается на два порядка, но в случае быстрых ионов эта разница уменьшается до одного порядка.

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ПЛОТНОСТИ ДЕФЕКТОВ ПО ГЛУБИНЕ СЛОЯ

Рассмотрим прохождение быстрых ионов через тонкую бесструктурную мишень толщиной d из кремния при угле падения α относительно нормали. Если толщина мишени d меньше пробега иона $R(E_0)$, то количество точечных дефектов в облученном материале зависит от угла падения и толщины мишени:

$$N(E_0, A, d, \alpha) = \int_0^d dx n(x) \text{ при } d < R(E_0), \quad (3)$$

где плотность дефектов в слое толщиной Δx на глубине x определяется отношением:

$$n(x) = [N(E_0, A, x, \alpha) - N(E_0, A, x - \Delta x, \alpha)]/\Delta x. \quad (4)$$

Количество точечных дефектов $N(E_0, A, x, \alpha)$ на глубине x зависит от распределения энергии ионов на этой глубине $E_{tr}(x, \alpha)$ и потока первичных ионов, который пропорционален коэффициенту прохождения ионов $\Phi_{tr}(x, \alpha)$. Следовательно, распределение $N(E_0, A, x, \alpha)$ учитывает всю "предысторию" замедления первичного иона и его неупругие потери энергии $S_e(E, A)$ при $E > E^*$.

Распределение плотности дефектов $n(x)$ достигает максимального значения n_{\max} в слое на глубине $x_{\max}(E_0, \alpha)$. При падении по нормали к поверхности ($\alpha = 0$) величина $x_{\max}(E_0, \alpha)$ близка к значению пробега иона (рис. 2):

$$n(x) \rightarrow n_{\max} \text{ при } x_{\max}(E_0, \alpha = 0^\circ) \rightarrow R(E_0). \quad (5)$$

Из определения пробега ионов следует, что поток первичных ионов в этой области мишени еще значительный ($\Phi_{tr}(R, \alpha = 0^\circ) \approx 1/2$). Однако первичный ион на этой глубине x уже потерял большую часть своей энергии, и $E_{tr}(x) < E^*$. Используя далее приближение, в котором плотность дефектов в облученном материале $n(x)$ пропорциональна потоку ионов на этой глубине x и упругим потерям энергии, получим:

$$n(x) \sim S_n(E_{tr}(x), A) \Phi_{tr}(x, \alpha). \quad (6)$$

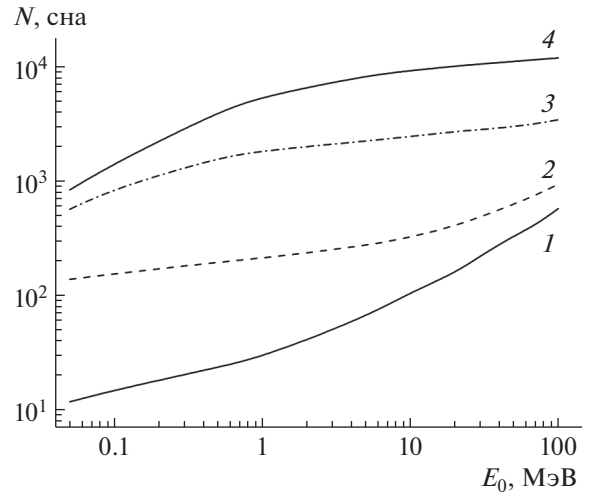


Рис. 1. Зависимость количества дефектов в мишени из кремния от энергии ионов ^1H (1), ^4He (2), ^{16}O (3), ^{40}Ar (4), падающих по нормали к поверхности ($\alpha = 0^\circ$).

Отметим, что для вычисления $S_n(E_{tr}(x), A)$ и $\Phi_{tr}(x, \alpha)$ учет каскада упругих столкновений не является обязательным, что может значительно ускорить расчеты нормированного распределения:

$$\begin{aligned} n(x)/n_{\max}(E_0, A, \alpha) &\approx \\ &\approx 2\Phi_{tr}(x, \alpha)S_n(E_{tr}(x), A)/S_n(E_{tr}(R), A) \quad (7) \\ &\text{при } x \approx x_{\max}(E_0, \alpha). \end{aligned}$$

Соотношения (6) и (7) объясняют причины асимметрии максимума на рис. 2. Упругие потери энергии $S_n(E_{tr}(x), A)$ возрастают при увеличении глубины слоя из-за замедления иона, а коэффициент прохождения $\Phi_{tr}(x, \alpha)$, наоборот, быстро уменьшается при $x > x_{\max}(E_0, \alpha)$ в соответствии с распределением Гаусса. Сравнение двух вариантов расчета на рис. 2 демонстрирует еще одну особенность. Детальный учет атомных каскадов приводит к увеличению количества точечных дефектов при $x > x_{\max}(E_0, \alpha)$ и смещению вероятности образования дефектов к более глубоким слоям мишени.

Максимальная плотность дефектов при прохождении протонов через мишень из кремния быстро уменьшается с увеличением энергии E_0 (рис. 3). Объясняется этот эффект увеличением разброса средних потерь энергии $E_{tr}(x) \pm \delta E_{tr}(x)$ при увеличении толщины мишени, что приводит к разбросу величины $S_n(E_{tr}(x), A)$ и уширению пика в распределении $n(x)$. Важно также отметить, что при $\alpha < 75^\circ$ максимальная плотность точечных дефектов слабо зависит от угла падения $n_{\max}(E_0, A, \alpha) \approx \text{const}$. При больших углах падения ($\alpha > 75^\circ$) увеличивается поток первичных ионов

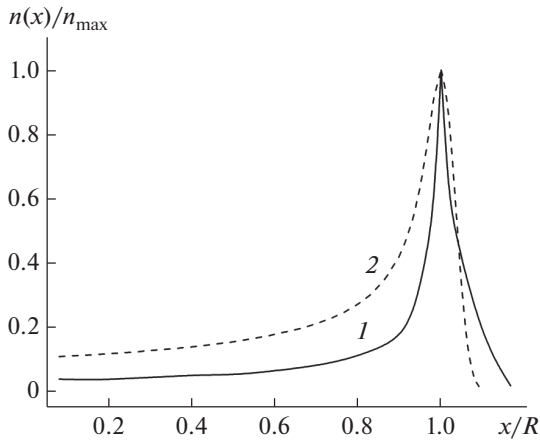


Рис. 2. Распределение плотности дефектов по глубине слоя при падении протонов с энергией 0.5 МэВ по нормали к поверхности мишени из кремния: 1 – расчет с детальным учетом атомных каскадов; 2 – упрощенный вариант расчета по модели [13].

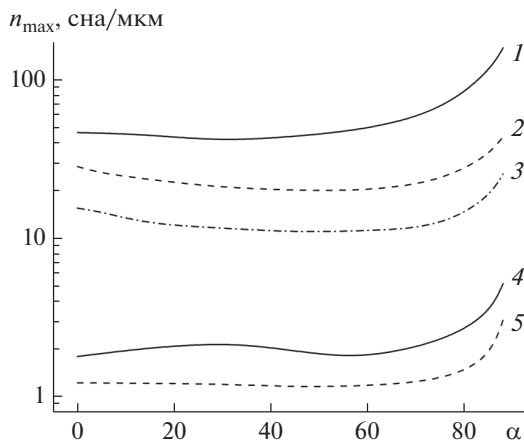


Рис. 3. Зависимость максимальной плотности дефектов при прохождении протонов через кремний от угла падения при энергии E_0 : 0.1 (1); 0.5 (2); 1 (3); 5 (4); 10 МэВ (5).

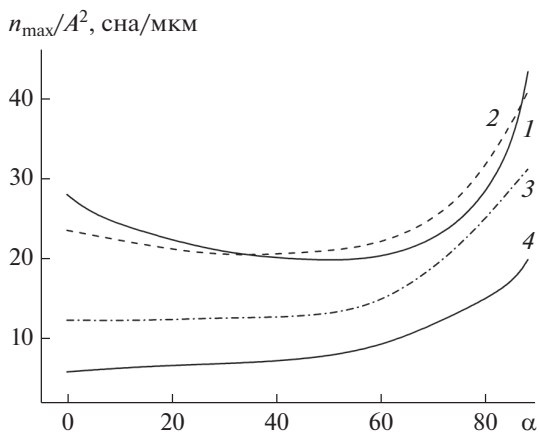


Рис. 4. Зависимость максимальной плотности распределения дефектов от угла падения ионов ^1H (1), ^4He (2), ^{16}O (3), ^{40}Ar (4) с энергией $E_0 = 0.5$ МэВ.

$\Phi_{tr}(x, \alpha)$ в поверхностных слоях мишени, что приводит к возрастанию $n_{max}(E_0, A, \alpha)$.

В случае тяжелых ионов зависимость от угла падения качественно совпадает с результатами для протонов (рис. 4), только расширяется диапазон углов падения, для которых $n_{max}(E_0, A, \alpha) > n_{max}(E_0, A, \alpha = 0^\circ)$, из-за сдвига минимума этого распределения в область малых углов α . Сильная зависимость максимальной плотности точечных дефектов от массы иона A определяется спецификой функции $S_n(E, A)$. Если аппроксимировать эту зависимость степенной функцией $n_{max}(E_0, A, \alpha) \propto A^p$, то параметр p в общем случае зависит от энергии иона. Для ионов с зарядом ядра $Z = 1-18$ в широкой области энергии из результатов на рис. 4 получаем значение $p \approx 1.8 \pm 0.1$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотрен процесс формирования первичных точечных дефектов без учета их диффузии и рекомбинации в облученном материале. В используемой модели считается, что при неупругом рассеянии ион летит от атома мишени при больших прицельных параметрах. Переданная атому мишени энергия ϵ в таком столкновении, как правило, достаточна для создания электронно-дырочных пар, но не дефекта в кристаллической решетке ($\epsilon < \epsilon_d$). Только когда энергия замедляющегося тяжелого иона уменьшается, начинают доминировать упругие столкновения, а переданная атому энергия ϵ превышает порог ($\epsilon > \epsilon_d$), и в облученном материале начинается процесс формирования дефектов. Источниками этих дефектов являются как первичный ион, так и выбитые атомы мишени, упругие столкновения которых с другими атомами при ($\epsilon \gg \epsilon_d$) могут привести к образованию каскада атомных столкновений.

Исследованы закономерности распределения дефектов по глубине слоя облученной быстрым ионами мишени из кремния в зависимости от массы A и энергии E_0 ионов, а также от угла падения α . При увеличении энергии иона возрастают длина его трека и общее количество дефектов в облученном материале. Плотность распределения дефектов при $\alpha = 0^\circ$ имеет максимум на глубине, близкой к пробегу ионов с энергией E_0 . Эта глубина слоя уменьшается с увеличением угла падения из-за многократного рассеяния первичных ионов в поверхностных слоях мишени. Однако с изменением глубины слоя максимальная плотность дефектов слабо зависит от угла падения при $\alpha < 75^\circ$, а ее увеличение при $\alpha > 75^\circ$ объясняется возрастанием коэффициента отражения ионов и потока ионов в поверхностных слоях мишени. Асимметрия максимума в распределении дефектов по глубине связана с увеличением упругих по-

ть энергии при замедлении иона и уменьшении коэффициента прохождения при увеличении толщины слоя. С увеличением массы иона максимальная плотность дефектов увеличивается приблизительно по степенному закону A^p , где $p \approx 1.8$.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации по проекту “Развитие синхротронных и нейтронных исследований и инфраструктуры для материалов энергетики нового поколения и безопасного захоронения радиоактивных отходов” (грант № 075-15-2021-1353).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Zhang Y., Weber W. J. // *Appl. Phys. Rev.* 2020. V. 7. P. 041307. <https://doi.org/10.1063/5.0027462>
2. Lindhard J., Nielsen V., Scharff M. et al. // *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* 1963. V. 33. № 10. P. 1.
3. Лейман К. Взаимодействие излучения с твердым телом и образование элементарных дефектов. М.: Атомиздат, 1979. 295 с.
4. Nordlund K. // *J. Nucl. Mater.* 2019. V. 520. P. 273. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.04.028>
5. Chen E. Y., Deo C., Dingreyille R. // *J. Mater. Res.* 2019. V. 34. P. 2239. <https://doi.org/10.1557/jmr.2019.42>
6. Chen S., Tamagno P., Bernard D. et al. // *Results Phys.* 2020. V. 7. P. 03023. <https://doi.org/10.1016/j.rinp.2020.103023>
7. Novikov N.V., Chechenin N.G., Shirokova A.A. // *Rad. Eff. Defects Solids.* 2021. V. 176. P. 1107. <https://doi.org/10.1080/10420150.2021.2007915>
8. Танеро К.И., Улимов В.Н., Членов А.М. Радиационные эффекты в кремниевых интегральных схемах космического применения. М.: Изд-во БИНОМ Лаборатория знаний, 2014. 302 с.
9. Ziegler J., Biersack J.P. SRIM: the Stopping and Range of Ions in Matter. www.srim.org.
10. Plimpton S. // *J. Comput. Phys.* 1995. V. 117. P. 1.
11. Allison J., Amako K., Apostolakis J. et al. // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.* 2016. V. 835. P. 186. geant4.web.cern.ch.
12. Ziegler J.F., Biersack J.P., Littmark U. *The Stopping and Range of Ions in Matter*, N.Y.: Pergamon, 1985.
13. Kinchin G.H., Pease R.S. // *Rep. Prog. Phys.* 1955. V. 18. P. 1.

Depth Distribution of Radiation Defects under Ion Irradiation of Silicon

N. V. Novikov^{1,*}, N. G. Chechenin¹, A. A. Shirokova¹

¹Moscow State University, Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Moscow, 119991 Russia

*e-mail: nvnovikov65@mail.ru

The defect distribution density reaches its maximum at a depth that depends on the energy and mass of the ion. This depth decreases with increasing angle of incidence due to multiple scattering of primary ions in the surface layers of the target. As the ion mass increases, the maximum defect density increases according to a power law. The asymmetry of the maximum in the depth distribution of defects is associated with an increase in the elastic energy loss during ion stopping and a decrease in the ion transmission coefficient with increasing layer depth.

Keywords: irradiated material, ion-induced defect, displacement per atom, elastic energy loss of ions.