

Применение метода обратного рассеяния протонов для анализа радиационных дефектов в ионных кристаллах

МАМАЕВ Л. К., ПОПОВ В. С., ШИПАТОВ Э. Т.

Ядерно-физические методы, основанные на использовании эффекта каналирования заряженных частиц, применяются для изучения местоположения атомов примеси и радиационных дефектов в решетке полупроводников, легированных методом ионной бомбардировки [1]. В работах [2—7] по методике обратного рассеяния и каналирования изучались радиационные дефекты в ионных кристаллах. Нарушения структуры кристалла при его облучении можно определить сравнением выходов обратного рассеяния частиц анализирующего пучка, направленного вдоль кристаллографических осей, для необлученного и облученного кристаллов.

В настоящей работе исследуются параметры процесса радиационного разрушения кристаллов NaCl протонами с энергией 1,2 МэВ, направленными под различными углами относительно кристаллографических осей $\langle 100 \rangle$ кристалла. Для анализа дефектов используется методика обратного рассеяния и каналирования протонов.

Исследования проводились на пучке протонов электростатического генератора ЭГ-2,5 Института физики Ростовского государственного университета. Энергия анализирующего пучка равнялась 1,2 МэВ, угловая расходимость $0,03^\circ$, диаметр 1 мм, плотность тока $0,015$ мкА/см². Плотность тока пучка протонов при облучении кристалла составляла $0,3$ мкА/см², диаметр пучка 3 мм, угловая расходимость $0,1^\circ$. Образцы NaCl размером $6 \times 12 \times 2$ мм сначала ориентировались по световому лучу так, чтобы нормаль к плоскости (100) совпадала с направлением падающего пучка; затем с использованием методики обратного рассеяния и каналирования ось $\langle 100 \rangle$ выставлялась по направлению пучка протонов с точностью не хуже $0,03^\circ$. Кристалл поворачивался с помощью гониометрического устройства с точностью $0,01^\circ$. Измерения выполнялись при температуре кристалла $T = 300$ К. Доза облучения определялась с точностью не хуже $\pm 5\%$ по показаниям мониторингового счетчика и интегратора тока, соединенного с кристаллом. Рассеянные на угол $\theta = 135^\circ$ протоны анализирующего пучка регистрировались поверхностно-барьерными кремниевыми счетчиками с энергетическим разрешением 10 кэВ

(для протонов $E = 500$ кэВ). Для записи энергетических спектров использовались многоканальные амплитудные анализаторы импульсов АИ-256-1 и АИ-128-2. За время измерения одного спектра доза облучения составила $8,3 \cdot 10^{13}$ протон/см² и учитывалась с поправочным коэффициентом 0,3 при подсчете общей дозы облучения кристалла. Мощность дозы облучения в течение эксперимента поддерживалась постоянной и равнялась $1,8 \cdot 10^{13}$ протон/(см²·с).

На рис. 1, а, б показаны энергетические спектры протонов, рассеянных от кристаллов NaCl, не подвергнутых (4) и подвергнутых (2 и 3) облучению. Кривая 1 представляет спектр неориентированного кристалла. Со стороны высоких энергий на спектре 1, а видны ступеньки, соответствующие рассеянию частиц на поверхностных атомах Na и Cl. На дифференциальных спектрах 1, б ступенькам соответствуют глубокие минимумы. Ширина максимумов на половине их высоты определяется энергетическим разрешением спектрометрического тракта. Метод дифференциальной спектроскопии удобен для изучения процесса расканалирования и элементного анализа толстых многокомпонентных кристаллов.

Для оценки количества радиационных дефектов используется нормализованный выход рассеянных протонов анализирующего пучка $\chi_{\text{мин}}$. На рис. 2 приведена зависимость нормализованного выхода рассеянных протонов с энергией

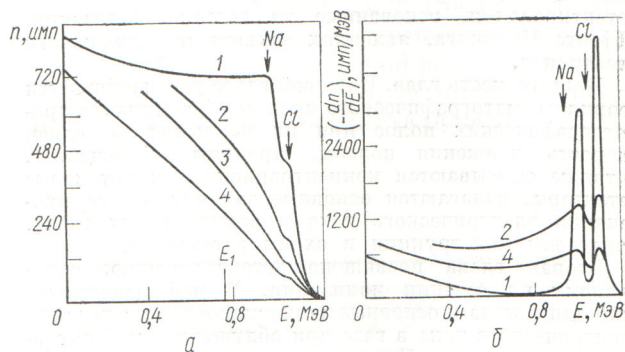


Рис. 1. Энергетические (а) и дифференциальные (б) спектры протонов, рассеянных от кристалла NaCl при различных дозах облучения

после вылета из кристалла $E > E_1 = 780$ кэВ (инергия E_1 показана на рис. 1, а и соответствует толщине рассеивающего слоя приблизительно 3,5 мкм) от угла между направлением анализирующего пучка и осями $\langle 100 \rangle$. Кривые 1 и 2 — результаты измерений для необлученного и облученного дозой $7,7 \cdot 10^{14}$ протон/см² кристаллов; они характеризуются минимальным выходом $\chi_{\min}$, измеряемым при $\psi = 0^\circ$, и полушириной минимума $\psi_{0,5}$. Облучение заметно не изменяет значение $\psi_{0,5}$, но существенно увеличивает $\chi_{\min}$.

На рис. 3 показана зависимость нормализованного минимального выхода от глубины кристалла, измеренная для необлученного (1) и облученного (2, 3) кристаллов. Облучение проводилось вдоль осей $\langle 100 \rangle$ [$D_p = 1,66 \cdot 10^{14}$ протон/см² (2)] и под углом 3° к осям $\langle 100 \rangle$ [$D_p = 2,45 \cdot 10^{14}$ протон/см² (3)]. Для перехода от шкалы энергий к шкале глубин предполагалось, что тормозная способность кристалла для каналированных частиц составляет 0,7 от тормозной способности для неканалированных частиц. Величина $\chi_{\min}$ зависит от глубины проникновения частиц в кристалл, температуры кристалла и дозы облучения. При облучении увеличиваются значения $\chi_{\min}$ для всех глубин кристалла, включая поверхность, и скорости расканалирования $d\chi/dl$.

Для кристаллографических осей минимальный выход рассеяния с поверхности совершенного кристалла определяется формулой Баррета [8]:

$$\chi_{\min}(0) = (3 \pm 0,2) Nd \langle u_{\perp}^2 \rangle \times \left[1 + \left(\frac{0,64 \psi_{0,5} d}{\langle u_{\perp} \rangle} \right)^2 \right]^{1/2}, \quad (1)$$

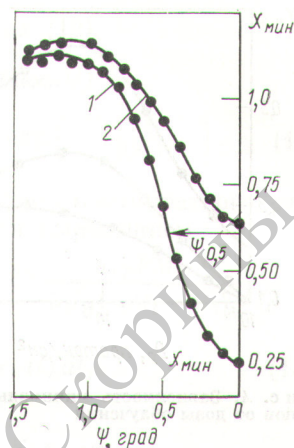
где N — объемная плотность атомов кристалла; d — межатомное расстояние в цепочке; $\langle u_{\perp}^2 \rangle = \frac{2}{3} \langle u^2 \rangle$ — среднеквадратическая амплитуда тепловых колебаний атомов цепочки в плоскости, нормальной к цепочке. Для наших экспериментальных условий с хорошим приближением можно принять

$$\chi_{\min}(0) = 3Nd \langle u_{\perp}^2 \rangle. \quad (2)$$

Величина $\chi_{\min}(0)$ для рядов $\langle 100 \rangle$ кристалла NaCl, составленных из чередующихся атомов Na и Cl, определяется большими амплитудами тепловых колебаний натрия в узлах решетки. При $T = 300$ К $\chi_{\min}(0)_{\text{теор}} = 0,033$, а $\chi_{\min}(0)_{\text{экс}} = 0,10$.

Для совершенного кристалла функция расканалирования $\chi(l)$ зависит от глубины проникновения l и температуры кристалла. Соглас-

Рис. 2. Зависимость выхода рассеянных протонов с $E \geq 780$ кэВ от угла между направлением падающего пучка и осями $\langle 100 \rangle$ кристалла NaCl



но [9], скорость расканалирования определяется выражением

$$\left(\frac{\partial \chi}{\partial l} \right)_{\text{тепл}} = \frac{\langle u_{\perp}^2 \rangle \pi^2 Z_1 \bar{Z}_2 e^2 d^2 N^2}{E}. \quad (3)$$

Для осей $\langle 100 \rangle$ кристалла NaCl (эффективный атомный номер $\bar{Z}_2 = 14$), $E = 1,2$ МэВ, $T = 300$ К вблизи передней поверхности кристалла

$$\left(\frac{\partial \chi}{\partial l} \right)_{\text{тепл}} = 0,016 \text{ мкм}^{-1}.$$

Экспериментальное значение скорости расканалирования для поверхностного слоя $(d\chi/dl)_{\text{экс}} = 0,04 \text{ мкм}^{-1}$.

Различие экспериментальных значений $\chi_{\min}(0)$ и $d\chi/dl$ для необлученного кристалла и вычисленных значений $\chi_{\min}(0)$ и $(d\chi/dl)_{\text{тепл}}$ определяется повреждением поверхностного слоя кристалла при его ориентировании (см. рис. 2, кривая 1) и измерении энергетического спектра для осей $\langle 100 \rangle$ (см. рис. 1, а,

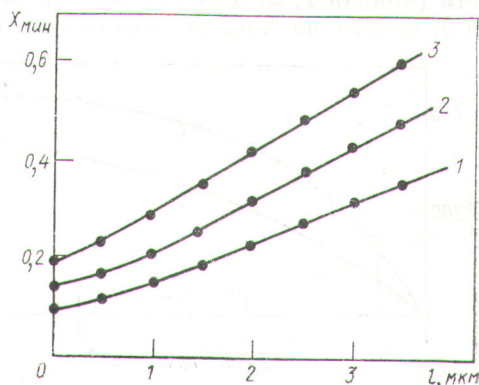
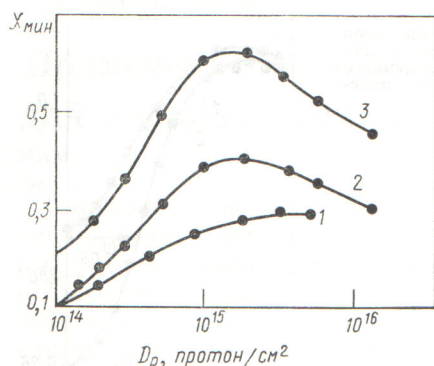


Рис. 3. Зависимость минимального выхода рассеянных протонов от глубины кристалла NaCl

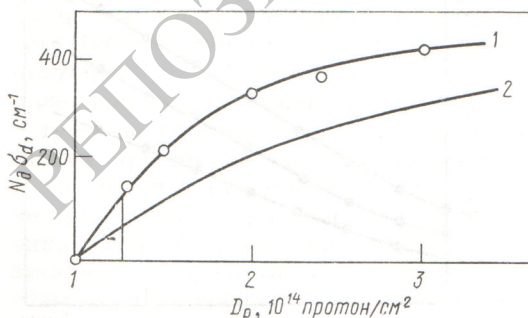


Р и с. 4. Зависимость минимального выхода рассеянных протонов от дозы облучения

кривая 4). Доза облучения, исправленная с учетом меньшей разрушающей способности канализованного пучка, составляет 10^{14} протон/см². При таком значении D_p возрастание $\chi_{\min}$ (0) и $d\chi/dl$ уже заметно.

Концентрацию дефектов, образованных протонами при облучении кристаллов, можно определить, измерив разницу значений $\chi(l)$ и $d\chi/dl$ для определенной глубины до и после облучения. Наличие дефектов в кристалле приводит к возрастанию доли расканализованных частиц, которые затем рассеиваются на большой угол, и к прямому обратному рассеянию частиц на смещенных в междоузлия атомах. В зависимости от вида и энергии анализирующих частиц и объемной плотности дефектов относительный вклад этих двух процессов изменяется. В наших опытах интенсивность потока рассеянных частиц в зависимости от увеличения энергии изменяется монотонно, следовательно, вклад прямого обратного рассеяния мал.

На рис. 4 приведена зависимость минимального выхода рассеянных протонов на поверхности (кривая 1, 2) и на глубине 1,5 мкм (кривая 3) кристалла NaCl от дозы облучения. Кри-



Р и с. 5. Зависимость $N_d \sigma_d$ от дозы облучения для поверхности кристалла NaCl

вые 2 и 3 получены для неориентированного облучения, кривая 1 — для облучения вдоль осей $\langle 100 \rangle$ кристалла. Важная особенность приведенных кривых — уменьшение значений $\chi_{\min}$ для всех глубин кристалла, начиная с доз облучения, превышающих $2 \cdot 10^{15}$ протон/см². Такой ход кривых накопления дефектов нельзя объяснить отжигом образовавшихся дефектов. Можно предположить, что в данном случае либо происходит «залечивание» поврежденной структуры кристалла под облучением, либо простейшие первичные дефекты (типа френкелевских пар) группируются в более сложные образования, расканализующая способность которых ниже суммарной для разрозненных дефектов, объединяющихся в группу. Для выяснения закономерностей обнаруженного явления необходимы дальнейшие исследования.

При вычислении концентрации смещенных атомов можно пользоваться различными методиками. Согласно [10], функцию расканализования можно записать в виде

$$\chi(l, \langle u^2 \rangle, N_d) = 1 - [1 - \chi_{\min}(0)] \exp - [N_d \sigma_d + (\partial \chi / \partial l)_{\text{необл}}]. \quad (4)$$

Здесь N_d — объемная плотность дефектов; σ_d — поперечное сечение расканализования частиц на дефектах. Скорость расканализования определяется выражением

$$(\partial \chi / \partial l)_{\text{обл}} = [N_d \sigma_d + (\partial \chi / \partial l)_{\text{необл}}] (1 - \chi_{\min}). \quad (5)$$

Для поверхностного слоя принимаем, что

$$(\partial \chi / \partial l)_{\text{необл}} = \text{const}; \quad (\partial \chi / \partial l)_{\text{обл}} = \text{const}.$$

Тогда

$$N_d = \frac{1}{\sigma_d} \frac{(\partial \chi / \partial l)_{\text{обл}} - (\partial \chi / \partial l)_{\text{необл}}}{1 - \chi_{\min}}. \quad (6)$$

Будем считать, что частицы покидают каналы при рассеянии на угол, больший критического угла канализования, и $\sigma_d = \frac{\pi \rho_{\text{кр}}^2}{2}$, где $\rho_{\text{кр}} = 0,1 \text{ \AA}$ — минимальное расстояние сближения канализованной частицы с атомом. Для кривых 2 и 3 рис. 3 объемная плотность смещенных атомов равна соответственно $1,2 \cdot 10^{20}$ и $2,8 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$.

В начале процесса разрушения кристаллов концентрация смещенных атомов приблизительно пропорциональна дозе облучения:

$$N_d = \sigma_d N D_p, \quad (7)$$

где σ_d — поперечное сечение образования радиационных дефектов. На рис. 5 показана зависимость $N_d \sigma_d$ от дозы облучения для поверхностного слоя кристалла, когда облучение проводится под углом 3° к осям $\langle 100 \rangle$ (1) и вдоль

осей $\langle 100 \rangle$ (2) кристалла NaCl. По наклону линейных участков кривых определяем скорости образования дефектов

$$v_d = \frac{\Delta(N_d \sigma_d)}{\Delta D_p}$$

и находим их отношение для ориентированного и неориентированного облучений:

$$v_d \langle 100 \rangle = 103 \cdot 10^{14} \text{ см} \cdot \text{протон};$$

$$v_d(\text{неор}) = 163 \cdot 10^{14} \text{ см} \cdot \text{протон};$$

$$\frac{v_d \langle 100 \rangle}{v_d(\text{неор})} = 0,63.$$

Находим сечения образования дефектов

$$\sigma_d = \frac{1}{N \sigma_d} v_d. \quad (8)$$

Для кривых 1 и 2 рис. 5 получаем соответственно $\sigma_d = 12 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$ и $\sigma_d = 7,6 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$.

Концентрацию смещенных атомов в поверхностном слое облученного кристалла можно оценить также по разности скоростей расканалирования для облученного и необлученного кристаллов [3]:

$$(\partial \chi / \partial l)_{\text{обл}} - (\partial \chi / \partial l)_{\text{необл}} = C \frac{N_d dZ_1 \bar{Z}_2 e^2}{E}. \quad (9)$$

Здесь C — зависящая от вида дефектов константа, вычисленная в работе [3] для двух случаев: когда расканалирование обуславливается однократными и многократными столкновениями. Для многократного рассеяния

$$C = \pi \ln \left(1,29 \frac{a_{TF} E M_2}{Z_1 \bar{Z}_2 e^2 (M_1 + M_2)} \right) [\ln \chi(l)]^2 \chi(l), \quad (10)$$

где a_{TF} — радиус экранирования атома; M_1 и M_2 — массы налетающей частицы и атома мишени.

В результате вычислений для приповерхностного слоя кристаллов NaCl, когда облучение проводится под углом 3° к осям $\langle 100 \rangle$ и $D_p = 2,54 \cdot 10^{14} \text{ протон/см}^2$, получаем $N_d = 5,4 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$, что достаточно хорошо согласуется с результатами, полученными выше.

Распределение концентрации дефектов по глубине кристалла находим, используя выражение [11]

$$N_d(l) = \frac{\chi_{\text{обл}}(l) - \chi_R(l)}{1 - \chi_R(l)} N. \quad (11)$$

Здесь $\chi_R(l)$ — хаотическая часть пучка на глубине l кристалла. Для случая, когда расканалирование вызывается многократным рассея-

нием частиц на дефектах [12],

$$\chi_R(l) = \chi_{\text{необл}}(l) + [1 - \chi_{\text{необл}}(l)] \exp \left[- \frac{\psi_{0,5}^2}{\langle \theta^2 \rangle (l)} \right]. \quad (12)$$

Среднеквадратический угол многократного рассеяния $\langle \theta^2 \rangle$ определяется выражением

$$\langle \theta^2 \rangle (l) = \frac{\pi}{2} \psi_1^4 d^2 \ln \left(1,29 \frac{a_{TF} E M_2}{Z_1 \bar{Z}_2 e^2 (M_1 + M_2)} \right) \times \int_0^l N_d(l) dl, \quad (13)$$

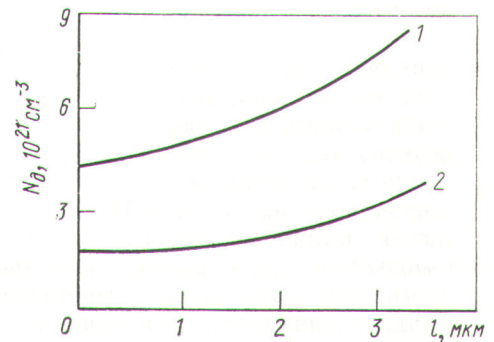
где

$$\psi_1 = \left(\frac{2Z_1 \bar{Z}_2 e^2}{Ed} \right)^{1/2}. \quad (14)$$

Значения $N_d(l)$ определяются методом итераций [12, 13] начиная с поверхности кристалла, где $\langle \theta^2 \rangle = 0$ и

$$N_d(0) = \frac{\chi_{\text{обл}}(0) - \chi_{\text{необл}}(0)}{1 - \chi_{\text{необл}}(0)} N. \quad (15)$$

Результаты вычислений для неориентированного (1) и ориентированного (2) облучений приведены на рис. 6 (D_p равно соответственно $2,45 \cdot 10^{14}$ и $1,66 \cdot 10^{16} \text{ протон/см}^2$). Концентрация дефектов повышается с увеличением глубины проникновения частиц в кристаллы. Для поверхности кристалла (см. рис. 4, кривые 1 и 2) объемная плотность дефектов равна $4,0 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$ и $2,5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$ для неориентированного и ориентированного облучений соответственно и для $D_p = 2 \cdot 10^{14} \text{ протон/см}^2$. Максимальные значения плотности дефектов $N_{d, \text{ макс}} = 1,5 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ достигаются при дозах облучения $2 \cdot 10^{15} \text{ протон/см}^2$. Скорость накопления плотности радиационных дефектов при канализовании бомбардирующих частиц в направлении осей $\langle 100 \rangle$



Р и с. 6. Распределение объемной плотности дефектов по глубине кристалла NaCl

кристалла NaCl уменьшается в 1,6 раза по сравнению с неориентированным облучением. Значения N_d , полученные с использованием измеренных величин $\chi_{обл} - \chi_{необл}$ и $(d\chi/dl)_{обл} - (d\chi/dl)_{необл}$, заметно различаются между собой. Результаты оптических измерений концентрации F -центров в кристалле NaCl [14] лучше согласуются с результатами измерений N_d при использовании скорости расканалирования.

Для металлических кристаллов отношение скоростей образования дефектов канализованными и неканализованными частицами близко к значению минимального выхода $\chi_{мин}$, усредненного по толщине облучаемого слоя кристалла [10]. Для ионных кристаллов это отношение заметно превышает $\chi_{мин}$, что является следствием различия механизмов образования радиационных дефектов в кристаллах. Если в металлических кристаллах смещение атомов происходит при упругих соударениях частиц с атомами кристалла, то в ионных кристаллах наряду с механизмом упругих смещений большую роль играют неударные механизмы [15], согласно которым смещенные атомы образуются в процессах ионизации и возбуждения атомов кристалла.

Поступила в Редакцию 6/XI 1974 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Мейер Д., Эрикссон Л., Дэвис Д. Ионное легирование полупроводников. М., «Мир», 1973.
2. Morita K., Tachibana K., Itoh N. «Phys. Lett.», 1970, v. 33A, p. 257.
3. Ozawa K. e.a. «Phys. Stat. Sol.», 1972, v. 9a, p. 323.
4. Куликаускас В. С., Шипатов Э. Т. В сб.: Труды V Всесоюзного совещания по физике взаимодействия заряженных частиц с монокристаллами. М., изд. МГУ, 1974, с. 430.
5. Helborg R., Skog G. «Phys. Scripta», 1974, v. 9, p. 121.
6. Hollis M. «Phys. Rev.», 1973, v. B8, p. 931.
7. Беликов Г. А. и др. Тезисы докладов VI Всесоюзного совещания по физике взаимодействия заряженных частиц с монокристаллами. М., изд. МГУ, 1974, с. 49.
8. Barrett I. «Phys. Rev.», 1971, v. B3, p. 1527.
9. Behrisch R., Scherzer B., Schulze I. «Rad. Eff.», 1973, v. 13, p. 33.
10. Merkle K. e.a. «Phys. Rev.», 1973, v. B8, p. 1002.
11. Bøgh E. «Canad. J. Phys.», 1968, v. 46, p. 653.
12. Feldman L., Rodgers I. «J. Appl. Phys.», 1970, v. 41, p. 3776.
13. Westmoreland I. e.a. «Rad. Eff.», 1970, v. 6, p. 161.
14. Беликов Г. А. и др. Тезисы докладов VI Всесоюзного совещания по физике взаимодействия заряженных частиц с монокристаллами. М., изд. МГУ, 1974, с. 45.
15. Витовский Н. А. В сб.: Радиационная физика кристаллов и $p-n$ -переходов. Минск, «Наука и техника», 1972, с. 141.

