ФІЗИКА І ХІМІЯ ТВЕРДОГО ТІЛА
Т. 7, № 4 (2006) С. 677-680

PHYSICS AND CHEMISTRY OF SOLID STATE
V. 7, № 4 (2006) P. 677-680

УДК 539.12.043:539.211

ISSN 1729-4428

М.М. Пеліхатий[1], О.М. Гетманець[2], І.І. Залюбовський[1]

Розпилення шаруватих структур і перемішування їхніх компонентів під дією іонізуючого випромінювання

[1]Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна, Харків, 61077, майдан Свободи, 4, E-mail:sun@univer.kharkov.ua
[2]Харківська державна зооветеринарна академія, Харків, 62341, ХДЗВА, E-mail:zoovet@zoovet.kharkov.ua

Досліджено розпилення шаруватих структур типу метал-напівпровідник, метал-діелектрик і перемішування їхніх компонентів у полях інтенсивного іонізуючого випромінювання. Шляхом розрахунку каскаду зіткнень у речовині методом поколінь отримані теоретичні вирази для спектрів і коефіцієнтів розпилення і на їхній основі розраховані профілі розподілу атомів одного шару в іншому.

Ключові слова: атоми віддачі, іонне розпилення, радіаційне перемішування.

Стаття поступила до редакції 15.02.2006; прийнята до друку 21.06.2006

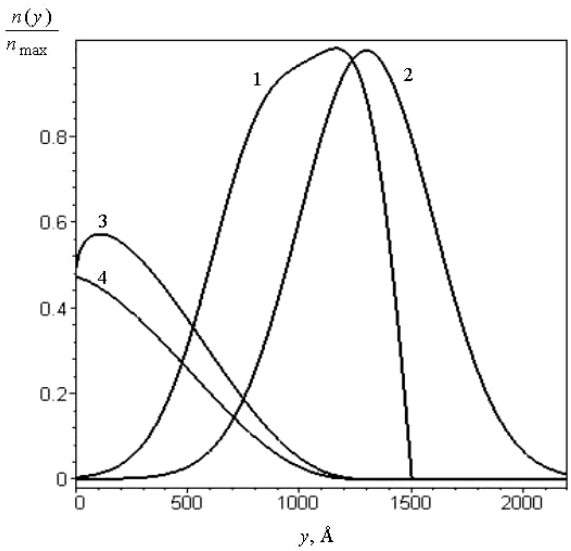
Комплексне вивчення фізико-електричних процесів радіаційного дефектоутворення в шаруватих структурах (зокрема, метал-напівпровідник, метал-діелектрик) відіграє важливу роль як з огляду на технології створення нових напівпровідникових приладів на основі даних гетероструктур, так і з огляду з'ясування поведінки цих структур у полях іонізуючого випромінювання (ІВ). У процесі опромінення матеріалів поряд з утворенням каскадів зіткнень можуть відбуватися реакції, пов'язані зі збудженням атомів (наприклад, електронне збудження) або ядер (наприклад, реакції радіаційного захоплення – (n, γ)-реакції під дією теплових нейтронів) та ін. процеси. При цьому енергія збудження може переходити в кінетичну енергію атомів (ядер) віддачі, що перевищує енергію, достатню для вибивання атома з вузла кристалічної ґратки і для подолання поверхневого бар'єру й вильоту атома віддачі (АВ) з поверхні речовини. Дані процеси можуть також ініціювати утворення каскадів зіткнень і приводити до розпилення матеріалів, а також до проникнення АВ із шару однієї речовини в шар іншої – тобто до радіаційного перемішування.

У даній роботі в рамках кінетичного підходу проводиться загальний теоретичний розгляд процесів емісії АВ з речовини під дією ІВ.

1. Розглянемо процес опромінення мішені із плоскопаралельними границями моноенергетичним потоком ІВ постійної інтенсивності. Позначимо через $j(x,E,\eta)$ потік АВ, що утворилися під дією опромінення в шарі речовини мішені з товщиною x, що мають енергію E і що рухаються під кутом θ до передньої поверхні (при цьому $\eta = \cos\theta$). Будемо вважати, що речовина мішені є ізотропною, умови опромінення стаціонарними, довжина вільного пробігу ІВ багато більше довжини вільного пробігу АВ. При цьому для опису потоку АВ скористаємося лінеаризованим рівнянням Больцмана (див., наприклад, [1]):

$$\eta\frac{\partial j(x,E,\eta)}{\partial x} = N\left\{\int_E^{E_m} dE'\frac{d\sigma(E',E)}{dE}j(x,E',\eta) - \right.$$
$$-\int_0^E dE'\frac{d\sigma(E,E')}{dE'}j(x,E,\eta) + \qquad (1)$$
$$\left. +\sigma_t\eta\Phi(E)\theta\left(E-\frac{U_0}{\eta^2}\right)\theta(\eta)\right\},$$

де $\frac{d\sigma(E',E)}{dE}$ – диференційний переріз розсіяння АВ з початковою енергією E' та кінцевою E на атомі мішені, E_m – максимальна енергія АВ, N – щільність атомів мішені. Перший член інтеграла зіткнень у вираженні (1) описує процеси зіткнень, у яких АВ попадають в енергетичний інтервал $(E, E+dE)$, другий – процеси, у яких АВ вибувають із цього інтервалу, третій – джерело АВ. Тут σ_t – повний переріз процесу утворення АВ, Φ(E) – енергетичний спектр АВ у цьому процесі. Тета-функції $\theta\left(E-\frac{U_0}{\eta^2}\right)$ и $\theta(\eta)$ визначають кінематичні умови вильоту АВ з поверхні речовини, U_0 – енергія поверхневого зв'язку атомів мішені, прийнята звичайно рівною енергії сублімації. Джерело нормоване на одну падаючу частинку



Мал. 1. Профілі концентрації атомів золота в кремнії: 1 – атоми 198Au; 2 – іони 197Au+ з енергією 410 кеВ; 3 – атоми віддачі 197Au усіх поколінь; 4 – атоми віддачі 197Au 1-го покоління.

випромінювання.

Вихід АО N(x) із мішені, що має товщину x наступним чином виражається через потік $j(x,E,\eta)$:

$$N(x) = \int\limits_{\left(\frac{U_0}{E_m}\right)^{\frac{1}{2}}}^{1} d\eta \int\limits_{\frac{U_0}{\eta^2}}^{E_m} dE j(x,E,\eta) = \\ = \int\limits_{U_0}^{E_m} dE \int\limits_{\left(\frac{U_0}{E}\right)^{\frac{1}{2}}}^{1} d\eta j(x,E,\eta) \quad . \qquad (2)$$

Цей вихід з розрахунку на одну падаючу частинку ІВ є коефіцієнт розпилення.

Відзначимо, що у випадку відсутності зіткнень (у границі нескінченно малої товщини мішені x) потік АВ дорівнює:

$$j_{б.з.} = N\sigma_t x\Phi(E)\theta\left(E - \frac{U_0}{\eta^2}\right)\theta(\eta). \qquad (3)$$

Із рівняння (1) можна отримати наступний вираз для потоку АВ:

$$j(x,E,\eta) = \frac{\sigma_t\Phi(E)\eta}{\sigma(E)}\left[1 - e^{-\frac{N\sigma(E)x}{\eta}}\right]\theta\left(E - \frac{U_0}{\eta^2}\right)\theta(\eta), \qquad (4)$$

де $\sigma(E)$ – повний переріз розсіяння АВ з енергією E на атомі мішені

Із цієї формули видно, що потік АВ визначається відношенням перерізів процесів утворення АВ σ_t та їхнього розсіювання $\sigma(E)$, а також спектром АВ $\Phi(E)$. Потік має кутову асиметрію $\eta = \cos\theta$ й зростає зі збільшенням товщини мішені x. Отже отримана формула повністю переходить у вираз (3) при $x \to 0$.

Таким чином, знаючи відповідні перетини й спектри, з формули (4) можна розрахувати потік АВ. У випадку мішені нескінченної товщини ($x \to \infty$), що відповідає $x >> \frac{\eta}{N\sigma(E)}$, вираз (4) набуває вигляду:

$$j(\infty,E,\eta) = \frac{\sigma_t\Phi(E)\eta}{\sigma(E)}\theta\left(E - \frac{U_0}{\eta^2}\right)\theta(\eta). \qquad (5)$$

В цьому випадку потік не залежить від щільності мішені N. Формулу (5) можна використовувати практично для будь-яких реальних товщин мішені, як правило, суттєво більших довжини вільного пробігу АВ.

2. Перейдемо тепер до розгляду каскадів зіткнень, ініційованих АВ у мішені. При цьому будемо використовувати метод поколінь. Нульовим поколінням є АВ. Перше покоління - це вторинні атоми мішені, що були вибиті АВ. Функція джерела для першого покоління на один атом речовини мішені визначається через потік АВ в такий спосіб:

$$S_1(\infty,E_1,\eta_1) = \frac{1}{2}\int\limits_{E_1}^{E_m} dE \frac{d\sigma(E,E_1)}{dE_1}\int\limits_{\eta_-(\eta_1)}^{\eta_+(\eta_1)} d\eta j(\infty,E,\eta), \qquad (6)$$

де E_1 – енергія атома 1-го покоління, $\eta_1 = \cos\theta_1$, θ_1 – кут вильоту атома 1-го покоління, $\eta_\pm(\eta_1) = \eta_1\sqrt{\frac{E_1}{E}} \pm \left(1-\eta_1^2\right)\sqrt{1-\frac{E_1}{E}}$ – кінематичні границі кутового конуса батьківських АВ. Кінетичне рівняння для потоку 1-го покоління має наступний вигляд:

$$\eta\frac{\partial j_1(x,E_1,\eta_1)}{\partial x} = \\ = N\left\{\int\limits_{E_1}^{E_m} dE_1' \frac{d\sigma(E_1',E_1)}{dE_1} j_1(x,E_1',\eta) - \right. \\ - \int\limits_0^{E_1} dE_1' \frac{d\sigma(E_1,E_1')}{dE_1'} j_1(x,E_1,\eta_1) + \\ \left. + S_1(x,E_1,\eta_1)\theta\left(E_1 - \frac{U_0}{\eta_1^2}\right)\theta(\eta_1)\right\}. \qquad (7)$$

Рішення для потоку 1-го покоління еквівалентне виразу (5) із заміною спектра АВ, помноженого на переріз їхнього утворення, на функцію джерела:

$$j_1(\infty,E_1,\eta_1) = \frac{S_1(\infty,E_1,\eta_1)\eta_1}{\sigma(E)}\theta\left(E_1 - \frac{U_0}{\eta_1^2}\right)\theta(\eta_1). \qquad (8)$$

Атоми 1-го покоління вибивають атоми 2-го покоління і т.д. – утворюється каскад зіткнень. Для потоку n-го покоління рішення має вигляд:

$$j_n(\infty,E_n,\eta_n) = \frac{S_n(\infty,E_n,\eta_n)\eta_n}{\sigma(E)}\theta\left(E_n - \frac{U_0}{\eta_n^2}\right)\theta(\eta_n), \qquad (9)$$

де

$$S_n(\infty,E_n,\eta_n) = \frac{1}{2}\int\limits_{E_n}^{E_m} dE_{n-1} \frac{d\sigma(E_{n-1},E_n)}{dE_n} \times \\ \times \int\limits_{\eta_-(\eta_{n-1})}^{\eta_+(\eta_{n-1})} d\eta_{n-1} j_{n-1}(\infty,E_{n-1},\eta_{n-1}) -$$

– джерело n-го покоління, що визначається через потік атомів n-1-го покоління.

Таким чином, метод поколінь дозволяє

послідовно розрахувати каскад зіткнень АВ в мішені. Сумарний потік АВ від n поколінь є:

$$J(\infty,E,\eta)=j(\infty,E,\eta)+j_1(\infty,E,\eta)+ +j_2(\infty,E,\eta)+...+j_n(\infty,E,\eta). \quad (10)$$

3. Якщо потік АВ, що вийшов, попадає в інший шар гетероструктури, то він утворює у ньому профіль концентрації, обумовлений наступним виразом:

$$n(y)=\frac{D}{\sqrt{2\pi}}\int_{U_0}^{E_m}\frac{dE}{\Delta R_p(E)}\int_{\frac{y}{R_p(E)}}^{1}d\eta J(\infty,E,\eta)e^{-\frac{\left[R_p(E)-\frac{y}{\eta}\right]^2}{2\Delta R_p^2(E)}}, \quad (11)$$

де y – глибина шару, яка відраховується від границі розподілу шарів, D – доза ІВ, $R_p(E)$ – середній проекційний пробіг АВ з енергією E у цьому шарі, $\Delta R_p(E)$ – середнє квадратичне відхилення проекційного пробігу (або страгглінг).

4. Як приклад, розглянемо опромінення системи Au-Si тепловими нейтронами. Теплові нейтрони не можуть викликати каскад зіткнень у шарі золота й подальшу імплантацію золота в кремній. З іншого боку, переріз реакції радіаційного захоплення $^{197}Au(n,\gamma)^{198}Au$ досить великий й становить величину $\sigma_t=0,96\cdot10^{-22}\,см^2$ [2]. Спектр ядер віддачі ^{198}Au моноенергетичний і характеризується енергією $E^*=410$ кеВ [2]. Його можна представити у вигляді:

$$\Phi(E)=\frac{\Gamma}{2\pi\left[\left(E-E^*\right)^2+\frac{\Gamma^2}{4}\right]}, \quad (12)$$

де Γ – ширина спектральної лінії. Підставивши вираз (12) в формули (5) та (11), отримаємо з урахуванням $\Gamma<<E^*$ наступний вираз для профілю концентрації атомів ^{198}Au в Si:

$$n(y)=\frac{D\sigma_t}{\sqrt{2\pi}\sigma_0}\int_{\frac{y}{R_p(E^*)}}^{1}d\eta\frac{\eta}{\Delta R_p(E^*)}e^{-\frac{\left[R_p(E^*)-\frac{y}{\eta}\right]^2}{2\Delta R_p^2(E^*)}}. \quad (13)$$

Для атомів золота з енергією $E^*=410$ кеВ значення середнього проекційного пробігу та страгглінг в кремнії становлять відповідно: $R_p(E^*)\approx$ ≈ 1300 Å, $\Delta R_p(E^*)\approx 300$ Å [3], а повний переріз розсіювання атомів золота на золоті приблизно становить: $\sigma_0\approx10^{-15}\,см^2$ [4]. Енергія поверхового зв'язку золота дорівнює $U_0=3,82$ еВ [5], тому $\frac{U_0}{E^*}\approx0$. На малюнку 1 наведено профіль концентрації атомів ^{198}Au в Si на один падаючий тепловий нейтрон, який було розраховано на основі формули (13) з обліком приведених вище значень параметрів (крива 1). Тут же для порівняння наведено профіль концентрації іонів золота з енергією $E^*=410$ кеВ, що були безпосередньо імплантовані у кремній (крива 2).

Вихід АВ ^{198}Au з товстої мішені під дією теплових нейтронів (коефіцієнт розпилення) може бути легко розрахований на основі формул (2), (5) і (12):

$$N_0=\frac{\sigma_t}{2\sigma_0}\left(1-\frac{U_0}{E^*}\right)\approx\frac{\sigma_t}{2\sigma_0}. \quad (14)$$

Таким чином, він повністю визначається відношенням перерізів процесів утворення АВ та їхнього розсіювання. Коефіцієнт $1/2$ у цій формулі обумовлений тим, що тільки половина АВ, що утворилися, залишають мішень (рухаються вперед). Формулу (14) можна широко використовувати для оцінки коефіцієнтів радіаційного розпилення матеріалів у полях інтенсивного ІВ.

Розрахуємо тепер каскад зіткнень, який ініційований АВ ^{198}Au у речовині мішені. Розгляд для наочності будемо проводити в моделі твердої серцевини. При цьому диференціальний переріз утворення АВ ^{197}Au є: $\frac{d\sigma(E,E')}{dE'}=\frac{\sigma_0}{E}$. Однак результати відносно легко можуть бути перенесені і для іншої параметризації перерізу.

Функція джерела 1-го покоління АВ ^{197}Au має вигляд:

$$S_1(\infty,E,\eta)=\frac{\sigma_t}{E^*}\eta\sqrt{1-\eta^2}\sqrt{\frac{E}{E^*}}\sqrt{1-\frac{E}{E^*}}, \quad (15)$$

а потік АВ ^{197}Au 1-го покоління відповідно виразу (8) є:

$$j_1(\infty,E,\eta)=\frac{\sigma_t}{\sigma_0E^*}\eta^2\sqrt{1-\eta^2}\sqrt{\frac{E}{E^*}}\times \times\sqrt{1-\frac{E}{E^*}}\theta\left(E-\frac{U_0}{\eta^2}\right)\theta(\eta). \quad (16)$$

Коефіцієнт розпилення для АВ ^{197}Au 1-го покоління з урахуванням $\frac{U_0}{E^*}<<1$ становить:

$$N_1=\frac{\pi^2\sigma_t}{128\sigma_0}\approx0,154\frac{\sigma_t}{2\sigma_0}, \quad (17)$$

тобто приблизно 15% від виходу АВ ^{198}Au.

Починаючи з 2-го покоління, функції джерела стають практично ізотропними по куту θ вильоту АВ. При цьому потік АВ i-го покоління має вигляд:

$$j_i(\infty,E,\eta)=\frac{\sigma_t\eta}{\sigma_0E^*}\left(\frac{\pi}{16}\right)^{i-1}\frac{F^{i-1}(E)}{(i-1)!}\theta\left(E-\frac{U_0}{\eta^2}\right)\theta(\eta), \quad (18)$$

де $F(E)=\frac{\pi}{2}-\arcsin\left(\sqrt{\frac{E}{E^*}}\right)-\sqrt{\frac{E}{E^*}}\sqrt{1-\frac{E}{E^*}}$ – кінематична функція. Ряд для потоків 2-го і наступних поколінь в даному випадку можна просумувати:

$$\sum_{i=2}^{\infty}j_i(\infty,E,\eta)=\frac{\sigma_t\eta}{\sigma_0E^*}\left[e^{\frac{\pi}{16}F(E)}-1\right]\theta\left(E-\frac{U_0}{\eta^2}\right)\theta(\eta). \quad (19)$$

Вихід АВ цих поколінь виявляється рівним:

$$\sum_{i=2}^{\infty}N_i\approx0,067\frac{\sigma_t}{2\sigma_0}, \quad (20)$$

тобто становить близько 7% від коефіцієнта розпилення ^{198}Au.

Таким чином, сумарний потік АВ ^{197}Au, який

сформувався в результаті каскаду зіткнень, можна представити у вигляді:

$$J(\infty, E, \eta) = \frac{\sigma_t}{\sigma_0 E^*}\left\{\eta^2\sqrt{1-\eta^2}\sqrt{\frac{E}{E^*}}\sqrt{1-\frac{E}{E^*}} + \eta\left[e^{\frac{\pi}{16}F(E)} - 1\right]\right\}\theta\left(E - \frac{U_0}{\eta^2}\right)\theta(\eta). \quad (21)$$

Їхній повний вихід становить менш 22% від коефіцієнта розпилення ^{198}Au.

На підставі формул (11) і (21) можна розрахувати профіль концентрації АВ ^{197}Au всіх поколінь у шарі кремнію. Результати розрахунків представлені на малюнку 1 (крива 3). На цьому ж малюнку також показаний профіль концентрації АВ ^{197}Au 1-го покоління (крива 4). Як видно з малюнка, профіль концентрації атомів ^{198}Au має максимум на глибинах, порівнюваних із середнім проекційним пробігом іонів золота з енергією $E^* = 410$ кеВ у кремнії. Розмиття цього профілю по глибині кремнію пов'язане з неізотропністю потоку атомів ^{198}Au. Атоми ^{197}Au, які утворилися в результаті каскаду зіткнень, мають максимуми концентрації поблизу границі розділу шарів, що обумовлено в основному їхніми енергетичними спектрами.

У результаті проведених у даній роботі досліджень отримані вирази для потоків АВ, що утворилися в результаті різних реакцій у речовині, які відбуваються під дією ІВ. Проведено розгляд каскаду зіткнень й обчислено коефіцієнти розпилення речовини в рамках моделі послідовних поколінь. Показано, що внесок поколінь у коефіцієнт розпилення становить близько 20%. Розраховано профілі концентрації АВ, що утворюються у результаті радіаційного перемішування шарів й описано їхні характерні риси. Результати роботи можуть знайти застосування при вивченні процесів розпилення матеріалів у полях інтенсивного випромінювання, а також при створенні напівпровідникових матеріалів і виробів на їхній основі із заданими властивостями.

Пеліхатий М.М. – кандидат фізико-математичних наук, зав. лаб.;
Гетманець О.М. – кандидат фізико-математичних наук, доцент;
Залюбовський І.І. – доктор фізико-математичних наук, професор, завідувач кафедри.

[1] P. Sigmund. Theory of Sputtering. // *Phys. Rev.*, 184, pp. 383-416, (1969).
[2] О.Ф. Немец, Ю.В. Гофман. *Справочник по ядерной физике*. К., Наукова думка, 415 с., (1975).
[3] Х. Риссел, И. Руге. *Ионная имплантация*. М., Наука, 360 с., (1983).
[4] L.R. Greenwood. Neutron source characterization and radiation damage calculations for material study. // *Journ. of Nucl. Materials*, 108, pp. 21-27, (1982).
[5] Х. Андерсен, Х. Бай. *Измерения коэффициентов распыления. Распыление твердых тел ионной бомбардировкой.* М., Мир, сс. 194-280, (1984).

M.M. Pelikhatiy[1], O.M. Getmanets[2], I.I. Zalubovskiy[1]

Sputtering of Layered Structures and Mixing of Their Components by Ionizing Radiation

[1]The Kharkov national university is the name of A.I. Karazina, Kharkov, 61077, Area of Freedom, 4, E-mail:sun@univer.kharkov.ua
[2]Kharkov state zooveterinarna academy, Kharkov, 62341, KSZVA, E-mail:zoovet@zoovet.kharkov.ua

Sputtering of layered structures of metal-semiconductor, metal-dielectric type and mixing their components in the fields of intensive ionising radiation have been investigated. By calculation of the cascade of the collisions in the substance by the method generation, theoretical expressions for spectra and sputtering coefficients have been obtained and on their basis profiles of the recoil atoms has been calculated.

Key words: recoil atoms, ion sputtering, radiation mixing.