

02

## Об универсальной зависимости образования $L$ -вакансий при столкновениях ионов с поверхностью

© П.Ю. Бабенко, А.Н. Зиновьев, А.П. Шергин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург  
E-mail: babenko@npd.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 25 апреля 2013 г.

Предложен метод нахождения вероятности образования вакансий из зависимости сечения эмиссии оже-электронов или характеристического излучения от энергии соударения. На основе обобщения имеющихся экспериментальных данных о соударениях атомных частиц в газовой и твердой фазах впервые установлен универсальный характер зависимости вероятности образования вакансий от достигнутого расстояния наибольшего сближения. Предложен скейлинг, позволяющий рассчитать сечение образования  $L$ -вакансий из полученной универсальной зависимости.

При бомбардировке ионами keV-энергий газовых мишеней или поверхности твердого тела наблюдается эмиссия оже-электронов и характеристического излучения, связанная с заполнением  $L$ -вакансий, образующихся в атомах при их соударении. Анализ спектров электронов и излучения используется для определения элементного состава мишени и его модификации (имплантация, травление) при ионном облучении. Для количественного анализа важно знать величины сечений образования вакансий.

Как известно [1], образование  $L_{2,3}$ -вакансий при сравнительно медленных соударениях связано с выдвиганием  $4f\sigma$ -орбитали, формирующейся при сближении частиц из  $L_{2,3}$ -оболочки партнера столкновения с меньшим атомным номером  $Z$ . Высокая вероятность образования вакансий была объяснена в рамках модели пересекающихся полос термов [2].

Распад  $L_{2,3}$ -вакансий, происходящий после разлета частиц, приводит к появлению оже-электронов и характеристического излучения [3,4]. Поскольку выход флуоресценции, как правило, не превышает для

обсуждаемых случаев нескольких процентов, сечение образования вакансий  $\sigma$  примерно равно сечению эмиссии оже-электронов. Эмиссия оже-электронов при столкновениях ионов с поверхностью изучалась в работе [5]. Измерялись энергетические спектры оже-электронов, образующиеся при облучении мишеней из Na, Mg, Al, Si, P и Cl ионами  $\text{Ar}^+$  с энергиями в диапазоне  $E_0 = 2-17 \text{ keV}$ . Из спектров получены зависимости выхода оже-электронов от энергии первичных частиц.

При исследовании спектров неупругих потерь энергии при атомных столкновениях было показано [6,7], что вероятности образования одной  $W_1(r_0)$  и двух  $W_2(r_0)$  вакансий зависят в основном от достигнутого расстояния наибольшего сближения частиц  $r_0$ , и слабо зависят от скорости соударения. Введем вспомогательную функцию  $\alpha(r_0) = W_2(r_0) + 0.5W_1(r_0)$ . В приближении независимости вероятности образования вакансий от скорости сечение эмиссии оже-электронов для начальной энергии  $E_0$  может быть описано формулой

$$\sigma(E_0) = 2\pi N \int_0^{\infty} \alpha[r_0(b)] b db, \quad (1)$$

где  $b$  — параметр удара,  $N$  — число вакансий, образующихся при малых  $r_0$ . Связь параметра удара  $b$  и расстояния наибольшего сближения  $r_0$  может быть рассчитана из уравнения

$$b = r_0(1 - U(r_0)/E_{cm})^{1/2},$$

где энергия соударения в системе центра масс  $E_{cm} = M_2/(M_1 + M_2)E_0$ ,  $M_1$  и  $M_2$  — массы сталкивающихся частиц. В качестве потенциала взаимодействия  $U(r)$  мы использовали потенциал [8], наилучшим образом описывающий экспериментальные данные о рассеянии частиц, а именно:

$$U = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \exp \left\{ \frac{-x}{c_1 + c_2 x^{1/2} + c_3 x} \right\},$$

где  $Z_1, Z_2$  — заряды ядер,  $e$  — заряд электрона,  $r$  — межъядерное расстояние,  $x = r_0/a_f$ ,  $a_f = 0.8853(Z_1^{0.5} + Z_2^{0.5})^{-2/3}$  — длина экранирования, предложенная Фирсовым,  $c_1 = 0.582$ ,  $c_2 = 0.654$ ,  $c_3 = -0.03$ .

Выражение для сечения эмиссии оже-электронов можно переписать в виде

$$\begin{aligned}\sigma(E_0) &= \pi N \int_{r_k}^{\infty} \alpha(r_0) d \left\{ r_0^2 \left( 1 - \frac{U(r_0)}{E_{cm}} \right) \right\} \\ &= \pi N \int_{r_k}^{\infty} \alpha(r_0) \left[ 2r_0 \left( 1 - \frac{U(r_0)}{E_{cm}} \right) - \frac{dU(r_0)}{dr_0} \frac{r_0^2}{E_{cm}} \right] dr_0, \quad (2)\end{aligned}$$

здесь величина  $r_k$  — расстояние наибольшего сближения частиц при лобовом столкновении ( $b = 0$ ), при этом  $U(r_k) = E_{cm}$ .

Если продифференцировать обе части уравнения (2) по  $r_k$ , получаем

$$\frac{d\sigma}{dr_k} = \frac{d\sigma(E_0)}{dE_0} \frac{dE_0}{dr_k} = \pi N \alpha(r_k) r_k^2 \frac{dU(r_k)}{dr_k} \frac{1}{E_{cm}} + I_2, \quad (3)$$

где

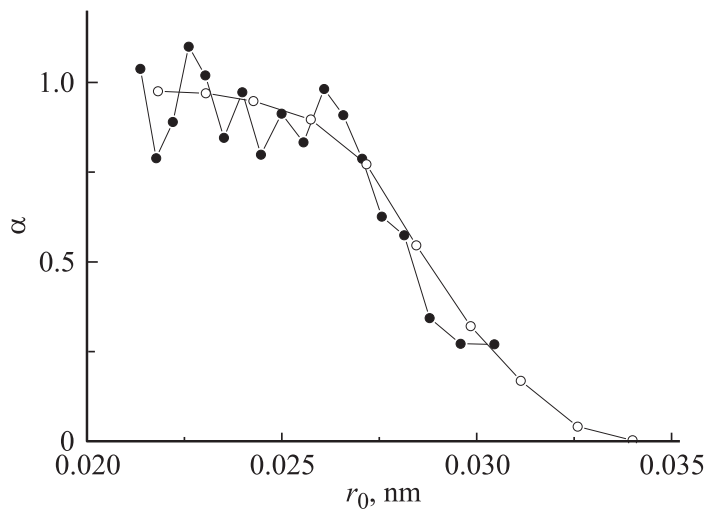
$$I_2 = \pi N \int_{r_k}^{\infty} \alpha(r_0) d \left\{ r_0^2 \left( -\frac{U(r_0)}{E_{cm}^2} \right) \right\}. \quad (4)$$

Для оценки вклада  $I_2$  можно заменить функцию  $\alpha(r_0)$  ступенчатой функцией, приняв значение  $\alpha = \alpha_{\max}$  — максимальному значению функции  $\alpha(r_0)$  на участке  $[r_k, r_c]$ . При этом точка  $r_0 = r_c$  выбрана из условия  $\alpha(r_c) = 0.5$ . Тогда

$$I_2 \approx \pi N \alpha_{\max} \frac{r_k^2 U(r_k) - r_c^2 U(r_c)}{E_{cm}^2}. \quad (5)$$

Проведенная нами численная оценка величины  $I_2$  показала, что для потенциала  $U(r_0) = \text{const}/r_0^2$  поправка  $I_2$  равна нулю, а для используемого нами потенциала не превышает нескольких процентов от величины первого члена при  $r_k < r_c/2$ . При этом поправка от второго члена может быть учтена путем последовательных итераций. Пренебрегая членом  $I_2$  и учитывая, что  $dE_{cm}/dr_k = dU(r_k)/dr_k$ , получаем

$$\alpha(r_k) = \frac{E_0}{\pi N r_k^2} \frac{d\sigma(E_0)}{dE_0}. \quad (6)$$



**Рис. 1.** Зависимость  $\alpha$  от  $r_0$  для системы Cl–Ag. Пустые символы — данные измерений неупругих потерь энергии при соударениях с газовой мишенью [8], закрашенные символы — из измерений эмиссии оже-электронов при столкновениях с поверхностью [5].

Данное уравнение позволяет из экспериментальной зависимости выхода оже-электронов от  $E_0$  получить функцию  $\alpha(r_k)$ . В случае абсолютных измерений  $\alpha(r_k)$  получается в абсолютных величинах. Для столкновений ионов с поверхностью, как правило, выход оже-электронов измеряется в относительных единицах, и возможна нормировка значений  $\alpha(r_k)$  по выходу на насыщение при малых  $r_k$ . Пример сопоставления результатов определения зависимости  $\alpha(r_k)$  из измерений выхода оже-электронов при столкновениях  $\text{Ag}^+$ –Cl в твердой фазе по формуле (6) и из спектров неупругих потерь энергии при соударениях в газовой фазе для системы Cl<sup>+</sup>–Ag приведен на рис. 1. Разброс значений  $\alpha(r_k)$  в случае столкновения ионов с поверхностью связан с ошибками измерений выхода оже-электронов в зависимости от  $E_0$ . Наблюдается неплохое согласие данных для поверхности и газовой мишени. Согласие имеет место также для взаимодействия ионов  $\text{Ag}^+$  с мишенями из P, S, Ag.

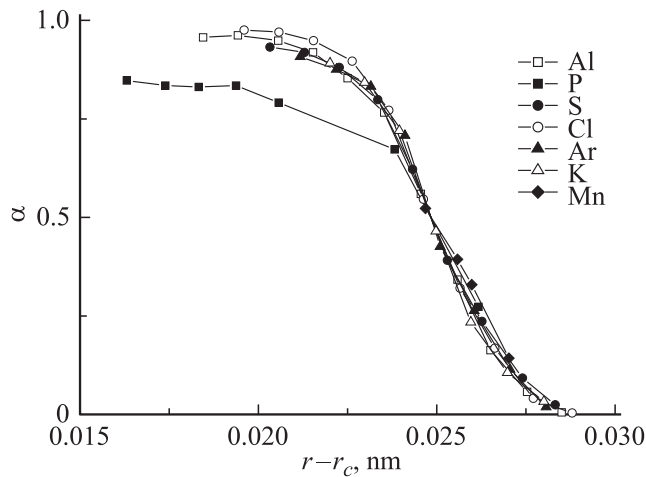


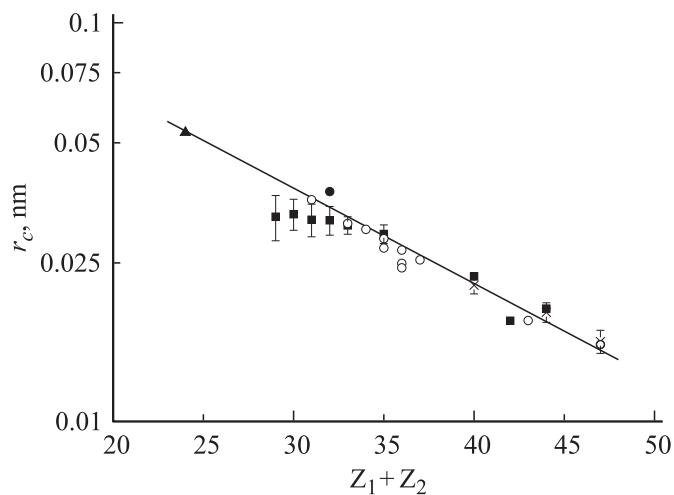
Рис. 2. Зависимости  $\alpha$  от  $r_0 - r_c$  для столкновений разных ионов с Ag [7].

На рис. 2 приведены зависимости  $\alpha(r_0 - r_c)$  для различных комбинаций сталкивающихся атомов. Видно, что данная зависимость носит универсальный характер. Значения  $r_c$  приведены на рис. 3.

Таким образом, для любой неизученной системы можно из приведенного на рис. 3 графика определить значение  $r_c$ , затем из данных рис. 2 построить функцию  $\alpha(r_0)$  и по формуле (1) рассчитать искомое сечение эмиссии оже-электронов.

Приведем краткий обзор имеющихся экспериментальных данных, включенных нами в рассмотрение. В работе [6] исследовались спектры неупругих потерь энергии в случае глубоких соударений ионов  $\text{Ag}^+$  и  $\text{Cl}^+$  с атомами Ag. Энергия бомбардирующих ионов  $E_0 = 25$  keV, углы рассеяния ионов  $10-30^\circ$ , расстояния наибольшего сближения  $r_0 = 0.02-0.03$  nm. Авторы работы [7] измеряли значения неупругих потерь энергии в столкновениях ионов  $\text{Al}^+$ ,  $\text{P}^+$ ,  $\text{S}^+$ ,  $\text{Cl}^+$ ,  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{K}^+$  и  $\text{Mn}^+$  с атомом Ag. Энергии  $E_0 = 20-60$  keV, углы рассеяния  $3-17^\circ$ ,  $r_0 = 0.02-0.04$  nm.

Величина  $r_c$  для случая  $\text{Ag}^+ - \text{Cu}$  получена из данных [9] по измерению неупругих потерь энергии  $Q$  в зависимости от угла наблюдения. Исследовалось рассеяние на большие углы ионов  $\text{Ag}^+$  с энергией



**Рис. 3.** Величины  $r_c$  в зависимости от суммарного заряда ядер  $Z_1 + Z_2$ . Пустые символы — данные при соударениях с газовой мишенью, закрашенные символы — при столкновениях с поверхностью. Кружки — данные, полученные из зависимости неупругих потерь энергии от расстояния наибольшего сближения сталкивающихся частиц [6,7,9]. Треугольник — данные для иона  $\text{Ne}^+$ , полученные из измерений неупругих потерь энергии [11]. Квадратики — данные, полученные из зависимости выхода оже-электронов от энергии бомбардирующих частиц [5]. Крестики — данные, полученные из зависимости сечения характеристического излучения от энергии налетающих ионов [3].

$E_0 = 40, 60$  и  $90$  keV. В качестве мишени использовались как свободные атомы меди, так и атомы, находящиеся на поверхности твердого тела. Положение точки  $r_c$  находилось из условия  $Q = Q_{\max} - E_{vac}$ , где  $Q_{\max}$  — максимальная потеря энергии, наблюдаемая в эксперименте,  $E_{vac} = 260$  eV — энергия, затрачиваемая на образование одной вакансии в  $L_{2,3}$ -оболочке Ag.

В работе [10] приведены результаты измерения неупругих потерь энергии при бомбардировке мишеней из Al и Si ионами  $\text{Ar}^+$  с энергией  $E_0 = 5$  keV. Диапазон исследованных расстояний наибольшего сближения  $r_0 = 0.03-0.08$  nm.

Авторы [11] измеряли неупругие потери энергии в столкновениях ионов  $\text{Ne}^+$  с мишенью из Si. Энергии бомбардирующих ионов

$E_0 = 0.5-1.95$  keV, диапазон углов рассеяния  $40-110^\circ$ , расстояний сближения  $r_0 = 0.03-0.07$  nm. Из рис. 3 видно, что значение  $r_c$  для Ne попадает на универсальную зависимость (несмотря на то, что  $Z(\text{Ne}) = 10$  в 1.8 раза меньше, чем  $Z(\text{Ar}) = 18$ ).

В [3] измерялись сечения характеристического излучения при столкновении ионов  $\text{Ti}^+$ ,  $\text{Fe}^+$ ,  $\text{Cu}^+$  с Ar. Энергии налетающих ионов  $E_0 = 30-85$  keV. В данном случае использовалась следующая процедура определения  $r_c$ . Для пары Ar–Ar значение  $r_c = 0.027$  nm определяем из рис. 3. Используя потенциал [8], вычисляем значение энергии в точке  $r_k = r_c$ ,  $E_0 = 8.2$  keV. Из зависимости сечения характеристического излучения для столкновения Ar–Ar от энергии налетающего иона  $E_0$  определяем отношение сечения в максимуме к сечению в точке  $r_k = r_c$ :  $\sigma_{x \text{ max}}/\sigma(r_c) = 0.05$ . С ростом энергии налетающего иона сечение эмиссии характеристического излучения не выходит на плато в связи с ростом выхода флюоресценции при увеличении степени ионизации партнеров соударения [12]. Полагая, что отношение сечений  $\sigma_{x \text{ max}}/\sigma(r_c)$  одинаково для различных пар сталкивающихся частиц, определяем  $r_c$  для налетающих ионов  $\text{Ti}^+$ ,  $\text{Fe}^+$ ,  $\text{Cu}^+$ . Из рис. 3 видно, что в пределах ошибки определенные таким способом значения  $r_c$  ложатся на универсальную кривую.

Из рис. 3 видно, что значения  $r_c$  плавно меняются в зависимости от суммарного заряда ядер  $Z_1 + Z_2$ . Подтверждается вывод, сделанный в работе [6], что выдвигание  $4f\sigma$  происходит при определенном значении перекрытия взаимодействующих оболочек. Наблюдается хорошее согласие данных, полученных из экспериментов с газовой и твердой мишенями.

Таким образом, в данной работе на основе обобщения большого количества имеющихся экспериментальных данных о спектрах неупругих потерь энергии, энергетических спектрах оже-электронов и квантов сделано следующее:

впервые показан универсальный характер зависимости вероятности образования вакансий от достигнутого расстояния наибольшего сближения частиц при их соударении,

предложен скейлинг, позволяющий рассчитывать сечения образования вакансий из полученной универсальной зависимости для различных комбинаций „бомбардирующий ион–атом мишени“, не проводя дополнительных измерений.

**Список литературы**

- [1] *Fano U., Lichten W.* // Phys. Rev. Lett. 1965. V. 14. N 16. P. 627–629.
- [2] *Афросимов В.В., Гордеев Ю.С., Зиновьев А.Н.* // ЖЭТФ. 1974. Т. 66. № 6. С. 1933–1944.
- [3] *Saris F.W.* // Physica. 1971. V. 52. N 2. P. 290–298.
- [4] *Sacak R.K., Kessel Q.C., Rudd M.E.* // Phys. Rev. A. 1970. V. 2. N 4. P. 1327–1331.
- [5] *Дорожкин А.А., Петров Н.Н.* Ионная оже-спектроскопия. Л.: ЛПИ, 1983. 72 с.
- [6] *Афросимов В.В., Гордеев Ю.С., Полянский А.М., Шергин А.П.* // ЖЭТФ. 1972. Т. 63. № 3. С. 799–812.
- [7] *Fastrup B., Hermann G., Smith K.J.* // Phys. Rev. A. 1971. V. 3. N 5. P. 1591–1606.
- [8] *Zinoviev A.N.* // Nucl. Instr. and Meth. B. 2011. V. 269. N 9. P. 829–833.
- [9] *Snoek C., Van Der Weg W.F., Geballe R., Rol P.K.* // Physica. 1967. V. 35. N 1. P. 1–18.
- [10] *Бабенко П.Ю., Шергин А.П.* // ЖТФ. 2009. Т. 79. В. 7. С. 32–36.
- [11] *Xu F., Manico G., Ascione F., Bonanno A., Oliva A., Baragiola R.A.* // Phys. Rev. A. 1998. V. 57. N 2. P. 1096–1107.
- [12] *Larkins F.P.* // J. Phys. B. 1971. V. 4. N 5. P. L29–L32.