

05

© 1991 г.

## ЭФФЕКТ СТОХАСТИЗАЦИИ ДВИЖЕНИЯ РЕЛЯТИВИСТСКИХ ЭЛЕКТРОНОВ ВДОЛЬ ОСИ МОНОКРИСТАЛЛА

*Б. Р. Мещеров, В. И. Туманов*

Описана методика, позволяющая изучать изменение выхода ядерной реакции в зависимости от глубины проникновения релятивистских электронов в монокристалл кремния вдоль одного из главных направлений вплоть до толщин  $\sim 2$  мкм. Разработанный метод исследования основан на последовательном применении процедуры, заключающейся в формировании на поверхности облученной мишени тонкой и однородной окисной пленки фиксированной толщины и последующем ее растворении, сопровождающемся измерением активности стравленных слоев. Приводятся результаты применения указанной методики к случаю аксиального каналирования электронов с энергией  $\sim 50$  МэВ. Значительное отличие измеренной величины от вычисленной с помощью метода, основанного на предположении о хорошо определенных состояниях, позволяет сделать утверждение о сильной стохастизации поперечного движения заряженных частиц.

Обычно при прохождении релятивистских электронов через кристалл вблизи одного из главных направлений они разделяются на две фракции [1, 2]. Часть частиц, получивших меньшую «поперечную» энергию, совершает финитное движение внутри потенциальной ямы, образуемой атомной цепочкой либо плоскостью, т. е. оказывается подбарьерной. Остальные электроны, с «поперечной» энергией большей глубины потенциальной ямы, совершают хаотическое инфинитное движение и образуют надбарьерную фракцию.

Для электронов низких энергий «поперечная» дебройлевская длина волны велика по сравнению с амплитудой колебаний атомов, что приводит к подавлению рассеяния на отдельном атоме [3, 4] и образованию хорошо определенных квантовых состояний. Эти состояния надежно рассчитываются теоретически и уверенно наблюдаются экспериментально [5]. При высоких энергиях движение частиц становится классическим и появляется другая причина устойчивости [6], связанная с уменьшением отношения угла многократного рассеяния на периоде колебаний к углу Линдхарда. Однако в соответствии с результатами работы [6] между этими двумя областями энергий существует интервал, где устойчивость движения полностью нарушается, поскольку на длине, соответствующей среднему времени перемещения в пределах потенциальной ямы, происходит интенсивное перемешивание подбарьерной и надбарьерной фракций. Этот диапазон энергий при прохождении электронов вдоль оси монокристалла соответствует нескольким десяткам МэВ [6].

Чтобы изучить указанный эффект, мы провели измерения выхода процесса с близкими соударениями<sup>1</sup> (ядерной реакции) для ориентированной кристаллографической осью вдоль пучка электронов и разориентированной кристаллической мишеней на характерных толщинах, на которых подбарьерные частицы успевают в среднем переместиться от одной точки поворота до другой. Поскольку этот масштаб длины невелик (около 0.4 мкм при энергии  $\sim 50$  МэВ)

<sup>1</sup> Как известно (см., например, [1]), выход процессов с близкими соударениями для подбарьерной и надбарьерной фракций различен.

(см. ниже), то была выбрана методика, основанная на анодном окислении вещества, из которого состоят образцы [7-9], и позволяющая разбить их на достаточно тонкие слои.

Для облучения кристалла электронами в ориентированном положении использовалась установка, состоящая из гониометра с двумя угловыми степенями свободы, детектирующей и регистрирующей аппаратуры. Расположение оборудования показано на рис. 1. Электронный пучок сильного точного импульсного линейного ускорителя «Факел» (ИАЭ им. И. В. Курчатова), пройдя через прямой электропровод длиной  $\sim 50$  м с выключенной магнитной оптикой, входной коллиматор 1 и монокристалл-мишень 2, установленную на гониометре, отворачивается магнитом 3 в могильник 4, а рожденные в мишени  $\gamma$ -кванты, коллимированные отверстием 5 в защитной стенке 6, попадают на детектор 7. Детектор представляет собой тонкий кристалл сцинтиллятора CsJ(Tl), обеспечивающий полное поглощение фотонов с энергией до 100 кэВ, который конструктивно объединен с ФЭУ. Входной коллиматор и могильник электронов являются

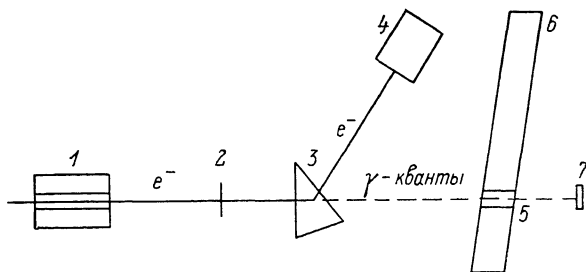


Рис. 1. Схема расположения экспериментального оборудования.

1 — входной коллиматор, 2 — мишень, 3 — поворотный магнит, 4 — могильник электронов, 5 — коллиматор  $\gamma$ -квантов, 6 — защитная стенка, 7 — детектор.

одновременно цилиндрами Фарадея. Система регистрации [10] позволяет вычитать фон, нормировать полезный сигнал на ток и строить ориентационную кривую — зависимость интенсивности излучения от угла разориентации между кристаллографической осью образца и направлением пучка.

Параметры электронного пучка были следующие: энергия  $\sim 47$  МэВ, длительность импульса 5 мкс, средний ток через мишень (2—120 мкА) менялся частотой посылки. Наличие большой пролетной базы и измерительной аппаратуры, позволяющей определить долю пучка, диафрагмируемую выходным отверстием ускорителя и входным коллиматором, дает возможность в приближении аксиальной симметрии оценить эмитанс, который оказался  $\sim 4 \cdot 10^{-4}$  см. В конкретной геометрии, используемой в эксперименте, расходимость электронного пучка была  $\sim 4 \cdot 10^{-4}$ .

Мишень представляет собой совершенный монокристалл (кривая качания приведена на рис. 2) диаметром 64 мм, центральная часть которого диаметром 56 мм, заведомо большим размера отверстия входного коллиматора (20 мм), равномерно протравлена до толщины  $\sim 50$  мкм. Веществом мишени является кремний с небольшой добавкой бора (примесь замещения), которая необходима для процесса анодного окисления. Концентрация примесных атомов  $\sim 2 \times 10^{16}$  см $^{-3}$ , т. е. достаточно мала для того, чтобы практически не влиять на динамику прохождения электронов. Кристалл вырезан так, что его поверхность перпендикулярна оси  $\langle 100 \rangle$  с точностью до  $0.5^\circ$ . Угол коллимации жесткого излучения, возникающего в мишени, составляет  $\sim \gamma^{-1}$ , где  $\gamma$  — лоренц-фактор.

Ориентирование кристалла проводилось как обычным способом (см., например, [11]), так и с помощью лишь небольшой подстройки вблизи максимума интенсивности, соответствующего совпадению направления пучка с осью  $\langle 100 \rangle$ , поскольку благодаря качественному изготовлению монокристаллов и хорошей предварительной юстировке кристаллодержателя большего, как правило, не требовалось. Ориентационная кривая вблизи осевого максимума (рис. 3), т. е. изменение интенсивности при разориентации мишени по одной из угловых координат, имеет характерный масштаб  $\sim 2\theta_L$ , где  $\theta_L$  — угол Линдхарда,

который для оси  $\langle 100 \rangle$  и энергии  $\sim 47$  МэВ составляет  $\sim 2 \cdot 10^{-3}$ . Следовательно, в регистрируемом диапазоне основную часть составляет излучение от надбарьерных частиц; контрастность пика  $\sim 2$ . Максимальная погрешность установки кристалла по ориентационной кривой не превышает  $0.2 \theta_L$ . Поскольку расходимость пучка  $\sim 0.2 \theta_L$  (см. выше), то отклонение электронов от выбранного направления составляет не более  $0.3 \theta_L$ .

При бомбардировке кремниевой мишени электронами образуются лишь два относительно долгоживущих  $\beta$ -активных изотопа:  $\text{Na}^{24}$  и  $\text{Mg}^{28}$ , хотя и их периоды полураспада невелики: соответственно  $\sim 15$  и  $\sim 21.2$  ч  $\text{Na}^{24}$  получается из реакции  $\text{Si}^{28}(e, 3pne')\text{Na}^{24}$  с наиболее распространенным стабильным изотопом  $\text{Si}^{28}$ , а  $\text{Mg}^{28}$  образуется в реакции  $\text{Si}^{30}(e, 2pe')\text{Mg}^{28}$  из стабильного изотопа  $\text{Si}^{30}$ , которого в естественной смеси примерно в 30 раз меньше, чем  $\text{Si}^{28}$ . Были измерены сечения образования  $\text{Na}^{24}$  и  $\text{Mg}^{28}$  при энергии электронов  $\sim 47$  МэВ, которые оказались  $\sim 1 \cdot 10^{-31}$  см<sup>2</sup> и  $\sim 8 \cdot 10^{-31}$  см<sup>2</sup> соответственно.

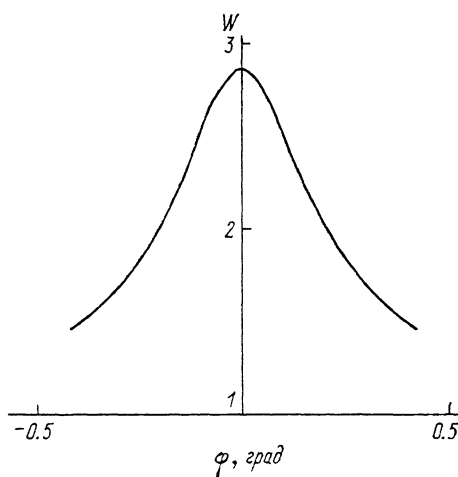
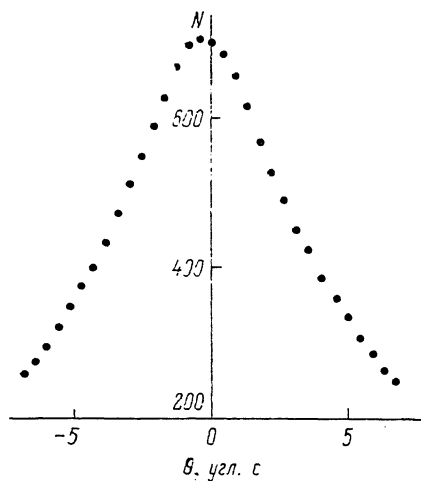


Рис. 2. Зависимость интенсивности  $N$  отраженного рентгеновского излучения от угла отклонения  $\theta$  от брэгговского направления (кривая качания).

$N$  — в отсчетах,  $\theta$  — в угол. с, линия  $K_{\alpha}$  кобальта.

Рис. 3. Интенсивность  $\gamma$ -излучения  $W$  в зависимости от угла разориентации  $\varphi$  между осью кристалла и направлением пучка электронов.

Процедура разбиения облученного образца на слои состоит в многократном повторении двухстадийного процесса, заключающегося в выращивании на поверхности мишени тонкого и однородного слоя окисла известной толщины и последующем стравливании его небольшим количеством плавиковой кислоты. Устройство, использовавшееся для окисления образцов, представлено на рис. 4. В стакан 5 заливается  $\sim 1$  л стандартного водного электролита (800 мл  $\text{H}_2\text{O} + 200$  мл глицерина + 5 г борной кислоты + 12 г щавелевой кислоты) с добавлением 0.5 г  $\text{NH}_4\text{F}$ , увеличивающим эффективность тока [12, 13] и соответственно уменьшающим время окисления примерно в 12 раз; это немаловажно в силу малости периода полураспада образовавшихся при бомбардировке кремния электронами радиоактивных ядер. Подвижная штанга 9 позволяет погружать в электролит закрепленный на ней с помощью цанги съемный блок, нижней частью которого является окисляемый кристалл 13, покрытый с обратной стороны (для выравнивания потенциала) сплавом  $\text{In}-\text{Ga}-\text{Sn}$ . Наклон плиты 1 ( $\sim 20^\circ$ ) и лопатки 15 служит для уменьшения времени пребывания на поверхности кремниевой пластины пузырьков газа, образующихся в результате электрохимического процесса и влияющих на рост окисла [7]. При проведении анодного окисления электролит интенсивно перемешивается за счет вращения стакана с частотой  $\sim 75$  об/мин, а на штангу 9 (и, таким образом, на кремниевую пластину) (рис. 4) от источника питания Б5-50, стабилизирующего ток в диа-

пазоне 1—299 мА, через контакты реле времени подается положительный потенциал. Плотность тока в процессе анодирования составляет  $\sim 10$  мА/см<sup>2</sup>.

При неоднократном формировании слоя анодного окисла на одной и той же поверхности возникает проблема, связанная с его воспроизводимостью по толщине от одного анодирования к другому. Этот вопрос исследовался в работах [8, 13], где было обнаружено возникновение обратимого пробоя при 90—100 В «чистого» (за вычетом разности потенциалов на электролите) напряжения, который обусловлен включением в окисную пленку в процессе ее роста атомов фтора. Так как пробой окисла приводит к заметному ухудшению воспроизводимости, то в [8, 13] было предложено либо добавлять в электролит  $Al(NO_3)_3$ , который связывает фтор, либо ограничиться по толщине и выращивать пленки при напряжениях, не превышающих 90—100 В. Поскольку в раствор необходимо добавлять  $NH_4F$  и при этом вносить даже дополнительные (сверх естественного уровня загрязнения) ионы фтора, то был выбран второй способ, т. е. режим анодирования был таким, что в конце процесса разность потенциалов на слое окисла составляла  $\sim 80$  В.

Окисление проводилось по времени и занимало  $\sim 1$  мин. Кроме того, контролировалось напряжение, приложенное к окисной пленке; разброс его значе-

ний в конце процесса не превышал 2 %. С помощью стандартной эллипсометрической методики (см., например, [7]) были определены толщина окисла, его воспроизводимость и однородность. Толщина пленки оказалась  $\sim 470$  Å, воспроизводимость и однородность не хуже  $\pm 3$  %. Было измерено также отношение  $Si/SiO_2 \approx 0.37$ . Таким образом, в каждом цикле снимается примерно 170 Å кремния.

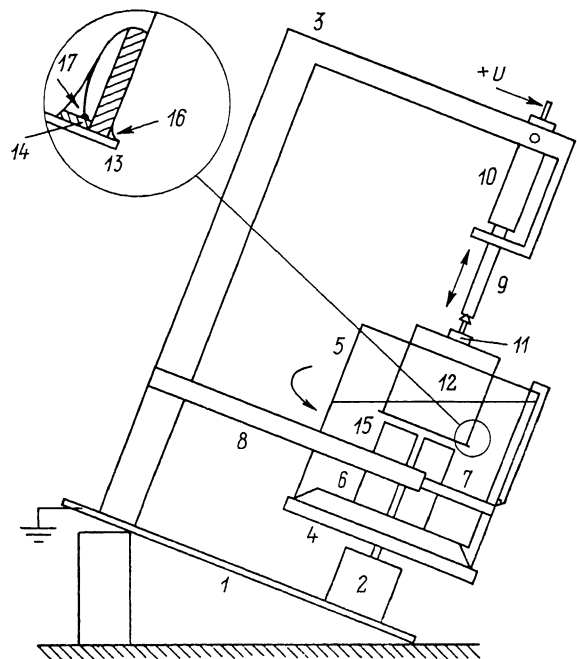


Рис. 4. Устройство для анодного окисления.

1 — плита, 2 — электродвигатель, 3 — металлический кронштейн, 4 — подставка, 5 — полистироловый стакан, 6 — противоэлектрод из нержавеющей стали, 7 — медная шина, 8 — пружинный контакт, 9 — подвижная металлическая штанга, 10 — диэлектрическая втулка, 11 — металлическая планка, 12 — полистироловое кольцо, 13 — кремниевая пластина, 14 — металлический диск, 15 — фторопластовые лопатки, 16 — ось пополам с кашифолью, 17 — гибкий проводник, соединяющий диск 14 и планку 11.

По окончании процесса анодного окисления съемный блок отсоединяется от штанги (рис. 4). Анодированная поверхность промывается дистиллированной водой и высушивается. После этого окисная пленка стравливается каплей плавиковой кислоты, которая затем впитывается в полоску фильтровальной бумаги площадью  $\sim 5$  см<sup>2</sup>; кристалл вновь готов к окислению.

Для измерения активности стравленных слоев использовалась установка УМФ-м (подробное описание см. в [14]), которая состоит из проточного пропорционального  $\beta$ -счетчика, окруженного защитой. При этом имеется как пассивная защита (около 5 см свинца), так и активная, которая набрана из отпаянных пропорциональных счетчиков, включенных в схему антисовпадений вместе с измерительным детектором; число фоновых отсчетов составляет 150—160 в час. Сложенная в несколько раз полоска фильтровальной бумаги, которая содержит радиоактивные атомы (см. выше), помещается в кассету с боковыми стенками из тонкой полиэтиленовой пленки, вставляющуюся внутрь  $\beta$ -счетчика, т. е. геометрическая эффективность установки близка к единице. Эффективность регистрации составляет по  $Na^{24} \sim 0.8$ , а по  $Mg^{28} \sim 0.5$ .

В процессе отработки отдельных элементов методики мы обнаружили несколько эффектов, которые повлияли на условия проведения эксперимента. Первый из них заключался в том, что из-за неоднородного теплового расширения, обусловленного нагревом электронным пучком, и соответственно из-за возникновения радиальных усилий при некотором значении тока нарушается устойчивость плоской формы мишени (более подробно эти результаты будут представлены в отдельной публикации). Чтобы избежать этого, во-первых, для увеличения теплоотвода обратная (по пучку) сторона кристалла покрывалась сажей и, во-вторых, облучение мишеней проводилось при среднем токе в 13 мкА, меньшем критического значения ( $\sim 16$  мкА), при котором происходит выгибание пластины толщиной  $\sim 50$  мкм.

Второй эффект состоит в миграции ионов натрия и магния (в процессе анодирования) из оксида в электролит. Данный факт обусловлен высокой

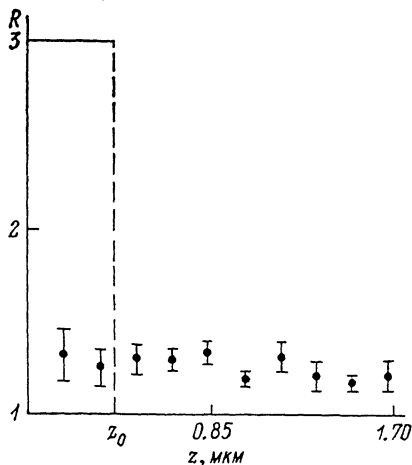
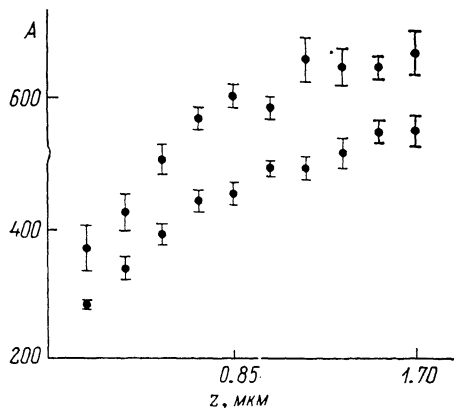


Рис. 5. Зависимость активности  $A$  от толщины  $Z$  для ориентированной (верхние точки) и разориентированной мишеней.

$A$  — в отсчетах (т. е. содержит эффективность регистрации),  $Z$  — в мкм.

Рис. 6. Отношение удельных активностей  $R$  в зависимости от толщины  $Z$ .

Отрезок прямой — расчет.

подвижностью (указание про натрий есть, например, в  $^{15}$ ) этих слабо связанных ионов в стекле, каковым по существу является материал окисной пленки. При этом  $\text{Na}^{24}$  остается не более 1 %, а  $\text{Mg}^{28}$  — 40–70 %; т. е. измерения активности, таким образом, с необходимостью проводились по изотопу магния. В результате с учетом периода полураспада  $\text{Mg}^{28}$  (21,2 ч) и ограничения на ток пучка ( $\sim 13$  мкА) для получения достаточной статистической обеспеченности по числу отсчетов были выбраны следующие параметры экспериментальной процедуры: время облучения мишени  $\sim 7$  ч, толщина слоя кремния<sup>2</sup> в каждом измерении активности  $\sim 0,17$  мкм и время измерения 3000 с. Это означает, что в одну полоску фильтровальной бумаги, являвшуюся объектом измерений (см. выше), впитывалось десять капель плавиковой кислоты, каждая из которых содержала в себе стравленный слой образца толщиной  $\sim 170$  Å.

Третий эффект был обусловлен радиационным повреждением кристалла при столь большой ( $\sim 10^{18}$  см<sup>-2</sup>) дозе облучения. Толщина формируемой окисной пленки в том месте, которое подверглось бомбардировке электронами, оказалась вдвое меньше, чем на остальной части мишени (подробнее эти результаты будут опубликованы в журнале «Известия АН СССР. Неорганические материалы»). Однако отжиг в течение  $\sim 20$  мин при температуре  $\sim 600$  °С, при которой отсутствует сколько-нибудь заметная диффузия, полностью устраняет это нежелательное явление, заодно удаляя сажу.

<sup>2</sup> Пробег ионов  $\text{Mg}^{28}$  за счет отдачи меньше выбранной толщины слоя и не влияет на результаты измерений.

Результаты послойного измерения активности ориентированной осью  $\langle 100 \rangle$  вдоль пучка электронов и разориентированной примерно на  $1.5^\circ$  мишеней приведены на рис. 5. Видно, что величина удельной активности в разориентированной мишени (нижние точки) не является постоянной, а увеличивается от слоя к слою. Это, видимо, связано с накоплением внутри окисла при увеличении количества выращенных пленок либо микродефектов (например, путем «размножения» через подложку), либо атомов фтора (скажем, за счет постепенного увеличения концентрации первоначально адсорбированного на поверхности кремниевой пластины фтора), которое приводит к связыванию все большего количества ионов магния.

В работах [16, 17] был развит квантово-механический метод расчета, отличающийся полнотой и надежностью воспроизведения экспериментальных данных по всему спектру явлений, связанных с каналированием электронов низких энергий (порядка нескольких МэВ). Используя совокупность получаемых этим методом величин, нетрудно рассчитать характерный масштаб длины и величину эффекта в нашем эксперименте.<sup>3</sup> На рис. 6 отрезком горизонтальной линии показано ожидаемое значение в том случае, если отсутствует миграция частиц между состояниями движения. Точками нанесено отношение удельных активностей ориентированной и разориентированной мишеней в зависимости от глубины проникновения электронов. Видно существенное, почти на порядок, несоответствие между расчетом и результатами измерений. Это, на наш взгляд, подтверждает высказанные в [6] соображения об интенсивном «перемешивании» частиц в пространстве «поперечных» энергий и моментов за счет сильного возмущающего действия колебаний атомных остовов. Из того факта, что измеренная величина очень медленно меняется вплоть до 1.7 мкм, следует, что даже при нулевом угле влета электронов по отношению к кристаллографической оси, они очень быстро (на толщине, не большей, чем 0.2 мкм) рассредоточиваются по всей глубине потенциальной ямы и в надбарьерной области, а затем происходит лишь очень медленное, пропорциональное  $z^{-1}$  ( $z$  — глубина проникновения в кристалл) расплывание пучка, связанное с многократным рассеянием. Можно также отметить, что при проведении расчетов в данной области энергий, по-видимому, не следует пользоваться приближением мгновенного возмущения для определения «начального» распределения электронов по фракциям и внутри них.

Авторы благодарны В. А. Базылеву за постоянный интерес к работе, В. В. Головизнину за полезные обсуждения, С. П. Мирошниковой за консультации по планарному химическому травлению кремния и Д. М. Левину за помощь при проведении эллипсометрических измерений.

#### Список литературы

- [1] Базылев В. А., Жеваго Н. К. Излучение быстрых частиц в веществе и во внешних полях. М.: Наука, 1987. 270 с.
- [2] Ахиезер А. И., Шульга Н. Ф. // УФН. 1982. Т. 137. № 4. С. 561—604.
- [3] Базылев В. А., Головизнин В. В. // ЖЭТФ. 1982. Т. 82. Вып. 4. С. 1204—1220.
- [4] Bazylev V. A., Goloviznin V. V. // Rad. Eff. 1983. Vol. 69. N 3. P. 159—164.
- [5] Andersen J. U., Bonderup E., Laegsgaard E. et al. // Nucl. Instr. and Meth. 1982. Vol. 194. N 2. P. 209—224.
- [6] Базылев В. А., Глебов В. И., Головизнин В. В. // ДАН СССР. 1986. Т. 288. № 1. С. 105—107.
- [7] Manara A., Ostidich A., Pedrolì G. et al. // Thin Solid Films. 1971. Vol. 8. P. 359—375.
- [8] Barber H. D., Lo H. B., Jones J. E. // J. Electrochem. Soc. 1976. Vol. 123. N 9. P. 1404—1409.
- [9] Dearnaley G., Freeman J. H., Ward G. A. et al. // Can. J. Phys. 1968. Vol. 46. P. 587—595.
- [10] Мецеров Б. Р., Тужанов В. И. // ПТЭ. 1987. № 3. С. 56—59.
- [11] Klein R. K., Kephart J. O., Pantell R. H. et al. // Phys. Rev. B. 1985. Vol. 31. N 1. P. 68—92.
- [12] Ефимов Е. А., Ерусалимчик И. Г. Электрохимия германия и кремния. М.: Госхимиздат, 1983. 180 с.

<sup>3</sup> Авторы благодарны С. А. Михееву за любезно предоставленные данные.

- [13] *Crosset M., Dieumegard D.* // J. Electrochem. Soc. 1973. Vol. 120. N 4. P. 526—532.
- [14] *Симоненко Д. Л., Чулкова П. М., Шубко В. М.* и др. Практическое руководство по контролю искусственной радиоактивности в биосфере. М., 1964. 392 с.
- [15] Таблицы физических величин. Справочник / Под ред. И. К. Кикоина. М.: Атомиздат, 1976. 1006 с.
- [16] *Михеев С. А., Тулунов А. В.* // ФТТ. 1985. Т. 27. Вып. 5. С. 1307—1313.
- [17] *Михеев С. А., Тулунов А. В.* // ФТТ. 1986. Т. 28. Вып. 8. С. 2447—2454.

Поступило в Редакцию  
13 февраля 1990 г.  
В окончательной редакции  
27 августа 1990 г.

---