

Неупругие потери энергии при однократных и двукратных соударениях ионов Ar^+ keV энергии с мишениями из Be, C, Al, Si, Ge и In

© П.Ю. Бабенко, А.П. Шергин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: babenko@npd.ioffe.ru

(Поступило в Редакцию 10 июля 2008 г. В окончательной редакции 1 декабря 2008 г.)

Методом спектроскопии медленных рассеянных ионов определены значения неупругих потерь энергии Q при рассеянии ионов Ar^+ с первоначальной энергией $E_0 = 5 \text{ keV}$ на мишениях из Be, C, Al, Si, Ge и In. Несмотря на то что подавляющее большинство прикладных исследований по анализу элементного состава и структуры материалов для современной электроники выполнено с использованием пучков ионов Ar^+ , данных по неупругим потерям для этих бомбардирующих частиц крайне мало.

Показано, что знание величины Q позволяет правильно интерпретировать энергетические спектры частиц, эмитированных при ионном облучении поверхности.

PACS: 34.50.Dy

Введение

Как показали первые экспериментальные работы по изучению рассеяния при ионной бомбардировке, в энергетических спектрах рассеянных ионов присутствует пик, энергия которого близка к энергии налетающего иона, испытавшего близкое к упругому рассеяние на свободном атоме мишени [1]. Хотя налетающий ион, сталкиваясь с поверхностью, взаимодействует не с одним атомом мишени, а с цепочкой атомов, основное отклонение происходит при соударении с одним из них. По этой причине пик в спектре, отвечающий этому процессу, принято называть пиком квазиоднократного рассеяния или просто пиком однократного рассеяния. По аналогии с термином однократно рассеянный ион используется термин „двукратно рассеянный ион“. В последнем случае отклонение иона определяется столкновениями с двумя атомами мишени.

Энергия пика однократного рассеяния E_1 в случае упругого столкновения выражается формулой [1]

$$\frac{E_1}{E_0} = \left[\frac{M_1}{M_1 + M_2} \right]^2 \left(\cos \vartheta \pm \left\{ \left(\frac{M_2}{M_1} \right)^2 - \sin^2 \vartheta \right\}^{1/2} \right)^2, \quad (1)$$

где E_0 — энергия налетающего иона, M_1 и M_2 — масса налетающего иона и атома поверхности, соответственно, ϑ — угол рассеяния (по отношению к направлению первичного пучка). В случае $1 > M_2/M_1 > \sin \vartheta$ возможны оба знака, при $M_2/M_1 > 1$ берется знак плюс.

Энергия частиц отдачи E_2 без учета неупругих потерь энергии выражается формулой [1]

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} \cos^2 \varphi, \quad (2)$$

где φ — угол вылета частицы отдачи (по отношению к направлению первичного пучка).

Неупругие потери энергии Q возникают в результате взаимодействия атомов, движущихся в твердом теле, с атомами и электронами мишени. Если потери энергии происходят при взаимодействии электронных оболочек атомов, их называют локальными. Существует другая возможность — так называемые непрерывные (или нелокальные) потери энергии при взаимодействии с электронным газом твердого тела, когда энергия рассеивается непрерывно вдоль траектории атома в твердом теле. Как правило, неупругие потери энергии составляют лишь несколько процентов от суммарных потерь. Основные потери энергии налетающей частицы связаны с упругим взаимодействием ядер сталкивающихся частиц.

Анализ величин неупругих потерь в столкновениях ионов килоэлектрон-вольтных значений энергии с поверхностью твердого тела, выяснение механизмов возникновения неупругих потерь интересны как с фундаментальной, так и прикладной точек зрения. Эти сведения важны при изучении взаимодействия плазмы с поверхностью твердого тела, при модификации материалов под действием ионного облучения, а также для правильной интерпретации экспериментальных данных, полученных при анализе поверхности различными методами.

Несмотря на то что изучению неупругих потерь в килоэлектрон-вольтном диапазоне энергии посвящено достаточно большое число экспериментальных работ [2–8], данных для налетающего иона Ar^+ очень мало, а для малых углов рассеяния ϑ — практически нет. В то же время подавляющее большинство прикладных исследований выполнено с использованием пучков именно ионов аргона. Отметим, что для всех представленных в работах [2–8] комбинаций бомбардирующий ион–мишень значения неупругих потерь энергии лежат в диапазоне $Q/E_0 = 0.01–0.05$.

Методика эксперимента

В настоящей работе измерялись энергетические распределения заряженных частиц, возникающих при ионной бомбардировке поверхности. Измерения проводились на высоковакуумной установке, описанной в [8].

В эксперименте поток ионов, эмитированных в результате ионной бомбардировки мишени, выделялся коллиматором с угловым разрешением $20'$, который может вращаться в горизонтальной плоскости в диапазоне углов $0\text{--}30^\circ$. Поток ионов, выделенных коллиматором, состоит из рассеянных ионов первичного пучка и ионов отдачи, вылетевших из мишени. Угловое положение коллиматора задает угол наблюдения θ , который для рассеянных частиц равен ϑ , а для частиц отдачи — φ . Исследовался случай зеркального рассеяния, когда угол падения ионов на мишень α равен половине угла наблюдения $\alpha = \theta/2$. Ионы, прошедшие коллиматор, анализировались по энергии электростатическим анализатором Юза–Рожанского (Hughes–Rojansky) с разрешением $9 \cdot 10^{-3}$.

Электроны, образующиеся при взаимодействии налетающих ионов с мишенью, анализировались по энергии в цилиндрическом анализаторе с разрешением $4 \cdot 10^{-2}$. Угол регистрации электронов по отношению к направлению первичного пучка составлял 129° . Остаточное давление в аналитической камере составляло 10^{-9} Торр. Для очистки поверхности мишени перед измерениями подвергались травлению первичным пучком ионов Ar^+ при плотности тока на образец $\sim 10 \mu\text{A}/\text{cm}^2$. При вышеуказанном давлении в камере и плотности тока первичных ионов на мишень число частиц, распыляемых с поверхности, на 2–3 порядка больше, чем число молекул остаточного газа, падающих на поверхность за то же время, т. е. поверхность мишени „динамически“ чистая.

Результаты и обсуждение

В настоящей работе измерялись спектры частиц, эмитированных под углом $5\text{--}30^\circ$ к направлению пучка бомбардирующих ионов Ar^+ с энергией $E_0 = 5 \text{ keV}$ из мишеней Be, C, Al, Si, Ge и In. Энергия $E_0 = 5 \text{ keV}$ наиболее часто используется при диагностике поверхности.

На рис. 1 приведен пример энергетического спектра рассеянных ионов Ar^+ и ионов отдачи Al^+ при бомбардировке мишени из Al для угла наблюдения $\theta = 14^\circ$. На рисунке пик однократно рассеянных ионов Ar^+ обозначен — SS (single scattering), пик двукратно рассеянных — DS (double scattering) и пик, отвечающий частицам отдачи — RS (recoil scattering). Вертикальными линиями обозначены значения энергии соответствующих пиков, рассчитанные для случая упругого рассеяния по формулам (1) и (2). Видно, что экспериментальные значения энергии рассеянных частиц заметно меньше рассчитанных из-за неупругих потерь энергии.

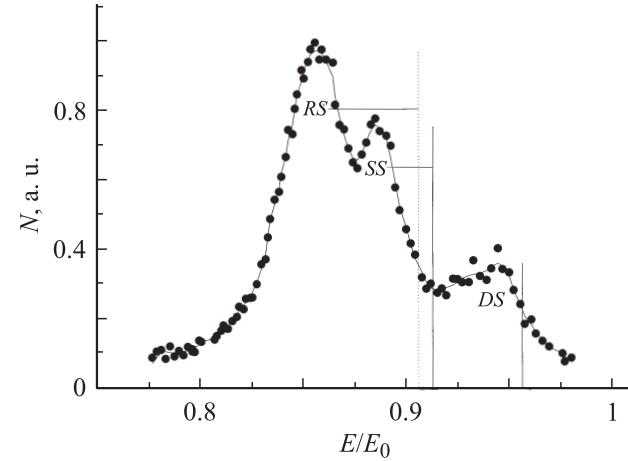


Рис. 1. Спектр ионов, эмитированных при бомбардировке мишени из Al ионами Ar^+ с энергией 5 keV для угла наблюдения $\theta = 14^\circ$. Энергии, рассчитанные для случая упругого рассеяния, показаны вертикальными линиями.

Хорошим критерием правильной идентификации пиков в энергетических спектрах рассеянных ионов является изменение положения пиков E/E_0 в зависимости от угла наблюдения.

На рис. 2 точками представлены экспериментальные значения энергии E/E_0 для ионов Ar^+ и ионов отдачи Al^+ . Видно, что с изменением угла энергии пиков существенно изменяются вплоть до того, что пики, отвечающие рассеянным ионам и ионам отдачи меняются местами, и для их правильной идентификации необходимо знать величину неупругих потерь энергии Q .

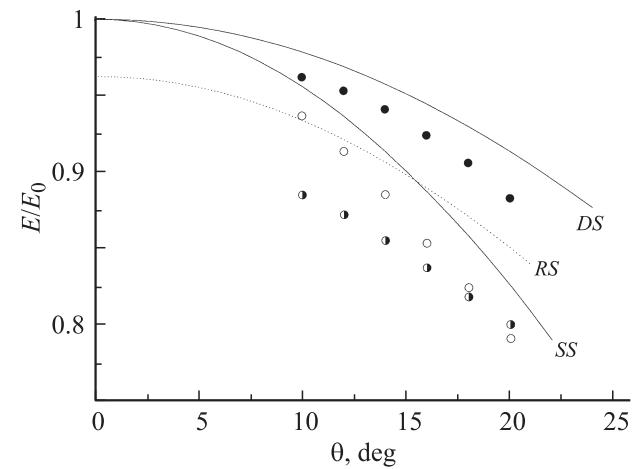


Рис. 2. Экспериментальные и расчетные положения пиков энергетического спектра в зависимости от угла наблюдения θ для мишени из Al. Точки — экспериментальные значения энергии для однократно (SS) и двукратно (DS) рассеянных ионов Ar^+ (светлые и темные кружки соответственно) и для ионов отдачи (RS) (наполовину закрашенные кружки). Кривые — энергия рассеянных частиц и частиц отдачи, рассчитанная в приближении парных столкновений для упругого случая.

Линиями показаны значения энергий для рассеянных частиц и частиц отдачи, рассчитанные в приближении парных взаимодействий для случая упругого рассеяния по формулам (1) и (2). Энергия частиц, испытавших двукратное рассеяние, рассчитывалась в предположении, что углы рассеяния в первом (θ_1) и втором (θ_2) столкновении одинаковы и равны половине угла наблюдения $\theta_1 = \theta_2 = \theta/2$. Отметим, что при таком соотношении углов рассеянная частица имеет максимальную энергию. Из рисунка видно, что положения экспериментальных пиков *SS*, *DS* и *RS* в зависимости от угла наблюдения находятся в хорошем согласии с расчетными зависимостями. Расхождение экспериментальных и расчетных значений E/E_0 обусловлено неупругими потерями энергии Q .

Зависимости определенных из экспериментальных спектров величин неупругой потери энергии для мишени из Al от угла наблюдения θ приведены на рис. 3. Значения неупругой потери энергии Q для рассеянных частиц и частиц отдачи вычислялись по формулам (3) и (4) соответственно [1]

$$Q = E_0 \left\{ \frac{2M_1}{M_2} \sqrt{\frac{E_1}{E_0}} \cos \theta - \frac{(M_1 + M_2)}{M_2} \frac{E_1}{E_0} + \frac{(M_2 - M_1)}{M_2} \right\}, \quad (3)$$

$$Q = E_0 \left\{ 2 \sqrt{\frac{M_2}{M_1}} \sqrt{\frac{E_2}{E_0}} \cos \varphi - \frac{(M_1 + M_2)}{M_1} \frac{E_2}{E_0} \right\}. \quad (4)$$

Величина неупругих потерь энергии для двукратных столкновений рассчитывалась в предположении, что налетающая частица отклоняется в первом и втором столкновении на одинаковый угол, равный половине угла наблюдения ($\theta_1 = \theta_2 = \theta/2$). Предположив, что неупругие потери одинаковы при соударении с первым и вторым атомами ($Q_1 = Q_2 = Q/2$), можно „расширить“ диапазон углов рассеяния в сторону меньших углов, построив на графике „половинные“ неупругие потери $Q/2$ для „половинных“ углов $\theta/2$. Отметим, что это приближение справедливо лишь при малых углах наблюдения. Из рис. 3 следует, что при увеличении угла рассеяния неупругие потери энергии возрастают от 40 до 170 eV.

Использование шкалы расстояний наибольшего сближения между сталкивающимися частицами вместо шкалы углов наблюдения удобно для сведения всех имеющихся данных по неупругим потерям для *SS*, *DS* и *RS* столкновений и сравнения экспериментальных данных и результатов расчета по имеющимся теоретическим моделям. При пересчете углов в расстояния наибольшего сближения r_0 в качестве потенциала межатомного взаимодействия использовался потенциал Циглера–Бирсака–Литтмарка, ЦБЛ (Ziegler–Biersack–Littmark) [9].

На рис. 4 приведены зависимости величины неупругой потери энергии для мишени из Al от расстояния

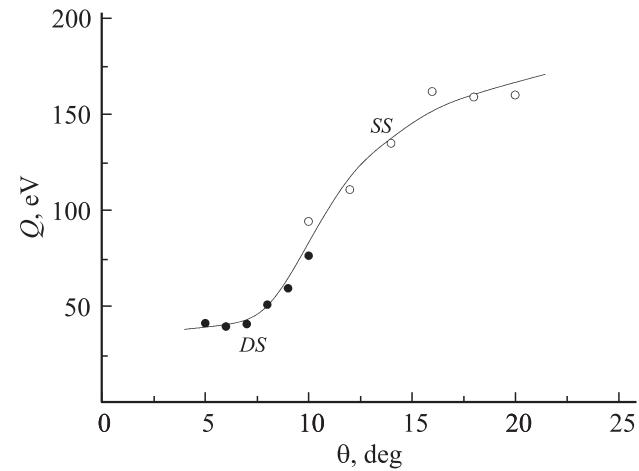


Рис. 3. Экспериментальные значения неупругих потерь энергии для мишени из Al в зависимости от угла наблюдения θ : для однократно и двукратно рассеянных ионов Ar^+ (светлые и темные кружки соответственно).

наибольшего сближения. Экспериментальные данные, полученные из положения пиков рассеянных частиц, лежат в диапазоне $r_0 = 0.8–1$ а.у., а полученные из положения пика для частиц отдачи — при заметно меньших значениях r_0 , — в диапазоне $r_0 = 0.6–0.7$ а.у. Это связано с тем, что в исследованном нами диапазоне углов наблюдения частицы отдачи возникают при более глубоких соударениях (столкновения, сопровождающиеся рассеянием частиц отдачи на углы $\varphi = 10–20^\circ$, приближаются к почти лобовому столкновению).

Таким образом, измерение спектров частиц отдачи позволяет определить значения неупругих потерь энергии для расстояний сближения r_0 , меньших в сравнении с расстояниями, полученными для спектров первичных рассеянных ионов.

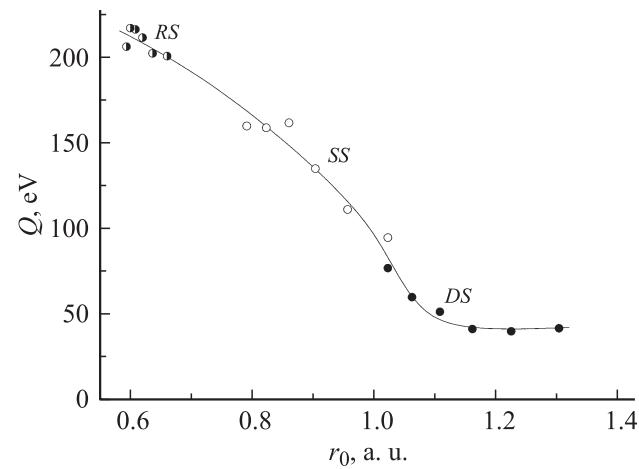


Рис. 4. Неупругие потери энергии в зависимости от расстояния наибольшего сближения r_0 для однократно и двукратно рассеянных ионов Ar^+ (светлые и темные кружки соответственно), для частиц отдачи Al^+ (наполовину закрашенные кружки). Мишень — Al.

Неупругие потери энергии

Мишень	θ, deg	$r_0(\text{SS}), \text{a.u.}$	$Q(\text{SS}), \text{eV}$	$r_0(\text{RS}), \text{a.u.}$	$Q(\text{RS}), \text{eV}$
${}^9\text{Be}_4$	4	0.99	85	—	—
	6	0.84	100	—	—
	8	0.75	110	—	—
	10	0.67	110	—	—
	12	0.61	75	—	—
${}^{12}\text{C}_6$	6	0.97	110	—	—
	10	0.79	130	0.86	60
	12	0.73	110	0.80	140
${}^{27}\text{Al}_{13}$	10	1.02	95	0.66	200
	12	0.96	110	0.64	200
	14	0.90	135	0.62	210
	16	0.86	160	0.61	220
	18	0.82	160	0.60	220
	20	0.79	160	0.59	210
${}^{28}\text{Si}_{14}$	12	0.98	65	0.637	190
	—	—	—	0.617	185
	—	—	—	0.605	180
	—	—	—	0.598	195
	24	0.76	135	0.597	210
	—	—	—	0.602	200
${}^{73}\text{Ge}_{32}$	12	1.23	40	—	—
	15	1.14	50	—	—
	18	1.07	60	—	—
	21	1.02	80	—	—
	24	0.97	100	0.66	230
	27	0.93	95	—	—
${}^{115}\text{In}_{49}$	15	1.26	40	—	—
	18	1.19	60	—	—
	21	1.13	65	0.697	130
	24	1.09	90	0.703	150
	27	1.05	110	0.709	190

Измеренные в настоящей работе значения неупругих потерь энергии для мишеней из Be, C, Al, Si, Ge и In приведены в таблице, из которой следует, что величины потерь лежат в диапазоне $Q/E_0 = 0.01–0.05$.

На рис. 5 показаны те же экспериментальные данные и результаты расчета по модели Фирсова [10], модифицированной модели Фирсова [11,12] и модели Оена–Робинсона (Oen–Robinson) [9].

В основе модели Фирсова лежит предположение о торможении сталкивающихся частиц в результате электронного обмена, сопровождающегося переносом импульса от одного атома к другому. Величина неупругих потерь энергии в элементарном акте столкновения, согласно модели [10], определяется формулой

$$Q[\text{eV}] = \frac{(Z_1 + Z_2)^{5/3} \cdot 4.3 \cdot 10^{-8}}{\left[1 + 3.1 \cdot 10^7 (Z_1 + Z_2)^{1/3} r_0 [\text{cm}]\right]^5} u [\text{cm/s}], \quad (5)$$

где u — скорость налетающей частицы. При выводе формулы предполагалось, что рассеяние происходит на малые углы и заряды ядер взаимодействующих частиц различаются не более чем в четыре раза.

Модель Фирсова была разработана для многоэлектронных атомов. Для легких атомов с небольшим числом электронов Оен и Робинсон [9] вывели следующую формулу для неупругих потерь:

$$Q[\text{eV}] = \frac{d_1^2}{2} \frac{K \sqrt{E[\text{eV}]}}{\pi a^2} \exp \left[-d_1 \frac{r_0 [\text{\AA}]}{a [\text{\AA}]} \right], \quad (6)$$

$$K \sqrt{E} = 1.21 \frac{Z_1^{7/6} Z_2}{(Z_1^{2/2} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \sqrt{\frac{E[\text{eV}]}{M_1[u]}}$$

где d_1 — параметр, который зависит от потенциала взаимодействия (так, для ЦБЛ-потенциала $d_1 = 0.20162$), a — длина экранирования, K — параметр.

В качестве примера на рис. 5 приведены результаты сопоставления экспериментальных данных и расчета по существующим в настоящее время моделям [9–12] для мишеней из германия, масса атомов которого лежит в середине исследованного в настоящей работе диапазона масс. Из рисунка следует, что расчет по всем моделям дает заниженные значения неупругой потери энергии. В то же время модифицированная модель Фирсова дает величины, наиболее близкие к экспериментальным. Такая же картина наблюдается и для всех остальных исследованных в работе случаев. Все модели правильно отражают тенденцию роста неупругих потерь с уменьшением расстояния наибольшего сближения r_0 .

Расхождение между расчетом по вышеназванным моделям и экспериментом становится еще заметнее при сближении сталкивающихся частиц до малых межъядер-

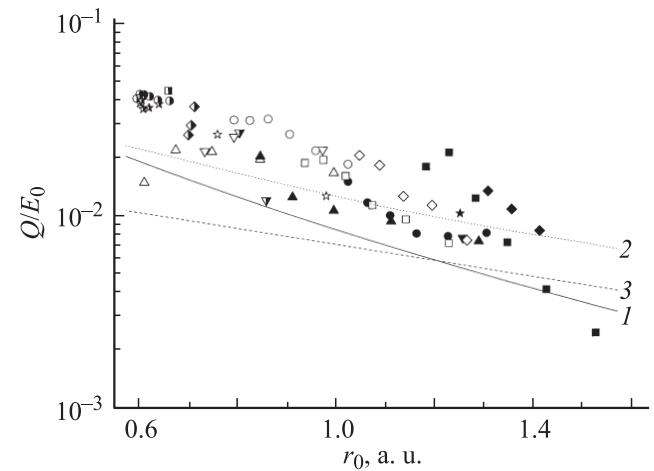


Рис. 5. Относительные неупругие потери энергии в столкновениях ионов Ar^+ с мишенями из Be, C, Al, Si, Ge и In в зависимости от расстояния наибольшего сближения r_0 . Мишени: Be — треугольники вверх, C — треугольники вниз, Al — кружки, Si — звездочки, Ge — квадратики, In — ромбы. Данные для однократно и двукратно рассеянных ионов Ar^+ — светлые и темные значки соответственно, и данные для частиц отдачи — наполовину закрашенные значки. Кривые — расчет для пары $\text{Ar}^+–\text{Ge}$ и $E_0 = 5 \text{ keV}$: 1 — по модели Фирсова, 2 — по модифицированной модели Фирсова, и 3 — по модели Оена–Робинсона.

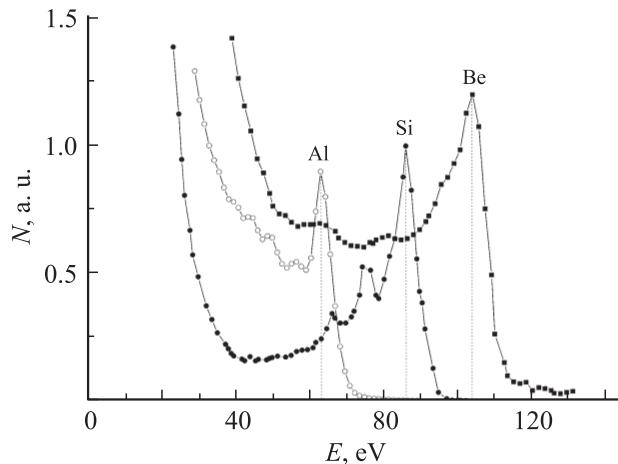


Рис. 6. Спектры электронов, эмитированных при облучении Be, Al и Si ионами Ar^+ с энергией $E_0 = 5 \text{ keV}$ для Be и $E_0 = 4 \text{ keV}$ для Al и Si.

ных расстояний из-за подключения другого (отличного от предложенного Фирсовым) механизма формирования неупругих потерь. Согласно известной модели Фано–Лихтена (Fano–Lichten) [13], при достижении малых межъдерных расстояний происходит образование вакансий во внутренних электронных оболочках взаимодействующих атомов и их последующий распад путем оже-перехода. Вылетевшие оже-электроны уносят энергию, что приводит к росту неупругих потерь энергии.

Возможность измерения спектров рассеянных ионов и освобождаемых электронов в настоящем эксперименте позволяет получить взаимополняющую информацию о неупругом взаимодействии иона с поверхностью твердого тела. Измеренные в работе спектры электронов однозначно указывают на эмиссию оже-электронов при энергии бомбардирующих ионов $E_0 \approx 5 \text{ keV}$.

На рис. 6 приведены спектры электронов, образовавшихся при облучении Be, Al и Si ионами Ar^+ . В измеренных спектрах наблюдаются характерные пики, отвечающие оже-электронам. Положения пиков хорошо согласуются с имеющимися экспериментальными данными других авторов [14,15].

Удобно рассмотреть вклад механизма возбуждения внутренних оболочек в формирование неупругих потерь энергии на примере столкновения ионов Ar^+ с мишенью из Al. Из рис. 4 видно, что в окрестности $r_0 \sim 1 \text{ a.u.}$ неупругая потеря энергии скачкообразно возрастает \sim на 150 eV . Именно при межъдерных расстояниях $r_0 \sim 1 \text{ a.u.}$ происходит заметное перекрытие $L_{2,3}$ -оболочки Al и M -оболочки Ar. Согласно [16], радиусы электронных оболочек равны $r_L(\text{Al}) \approx 0.45$ и $r_M(\text{Ar}) \approx 1.26 \text{ a.u.}$ соответственно. Возрастание неупругой потери энергии на $\sim 150 \text{ eV}$ обусловлено тем, что с вероятностью, близкой к единице, в $L_{2,3}$ -оболочке Al образуются две вакансии, распад которых сопро-

вождается вылетом двух оже-электронов с энергией каждого $\sim 65 \text{ eV}$.

Выводы

В статье приведены результаты измерения неупругих потерь энергии методом спектроскопии медленных рассеянных ионов. Мишени из Be, C, Al, Si, Ge и In бомбардировались ионами Ar^+ с энергией $E_0 = 5 \text{ keV}$. В исследованном диапазоне расстояний наибольшего сближения $r_0 = 0.6\text{--}1.5 \text{ a.u.}$ величины неупругих потерь лежат в интервале $Q/E_0 = 0.01\text{--}0.05$, что согласуется с данными работ [2–8]. Измерение и анализ спектров двукратно рассеянных частиц и частиц отдачи позволили существенно увеличить диапазон расстояний наибольшего сближения, для которых определены неупругие потери энергии.

Список литературы

- [1] Машкова Е.С., Молчанов В.А. Расеяние ионов средних энергий поверхностями твердых тел. М.: Атомиздат, 1980. 256 с.
- [2] Bertrand P., Ghalim M. // Physica Scripta. 1983. Vol. 6. P. 168–172.
- [3] Ascione F., Manico G., Alfano P. et al. // NIM B. 1998. Vol. 135. N 1–4. P. 401–406.
- [4] Xu F., Manico G., Ascione F. et al. // Phys. Rev. A. 1998. Vol. 57. N 2. P. 1096–1107.
- [5] Tolstogouzov A., Daolio S., Pagura C. // Surface Sci. 1999. Vol. 441. N 1. P. 213–222.
- [6] Li T., MacDonald R.G. // Surface Sci. 1996. Vol. 351. N 1–3. P. 319–331.
- [7] Umarov F.F., Narkulov N., Abdulkasymov F.B. // NIM B. 2000. Vol. 164–165. P. 656–661.
- [8] Шергин А.П., Шайкин А.В. // Изв. РАН. Сер. физ. 2002. Т. 66. № 4. С. 467–471.
- [9] Экштайн В. Компьютерное моделирование взаимодействия частиц с поверхностью твердого тела: Пер. с англ. М.: Мир, 1995. 321 с. (Eckstein W. Computer simulation of ion-solid interactions. Berlin: Springer-Verlag, 1991. 296 p.)
- [10] Фирсов О.Б. // ЖЭТФ. 1959. Т. 36. № 5. С. 1517–1523.
- [11] Komarov F.F., Kumakov M.A. // Physica Stat. Sol. B. 1973. Vol. 58. N 1. P. 389–400.
- [12] Winecki S., Stockli M.P., Cocke C.L. // Phys. Rev. A. 1997. Vol. 55. N 6. P. 4310–4317.
- [13] Fano U., Lichten W. // Phys. Rev. Lett. 1965. Vol. 14. N 16. P. 627–629.
- [14] Benazeth N., Agusti J., Benazeth C. et al. // NIM. 1976. Vol. 132. P. 477–482.
- [15] Бараджиола Р.А. Взаимодействие заряженных частиц с твердым телом: Пер. с англ. М.: Высш. шк., 1994. 752 с. (Baragiola R.A. Interaction of charged particles with solids and surfaces. NY: Plenum Press, 1991. 716 p.)
- [16] Landolt H., Bornstein R. Zahlenwerte und Funktionen, 1. Band–Atom–und Molekularphysik, 1. Teil Atome und Ionen. Berlin: Springer-Verlag, 1950. 442. s.