

ОСОБЛИВОСТІ ЕФЕКТУ ДАЛЕКОДІЇ В КРЕМНІЇ ПРИ ІМПЛАНТАЦІЇ ЯДЕР ВОДНЮ ТА ГЕЛІЮ

А.А. ГРОЗА, П.Г. ЛИТОВЧЕНКО, М.І. СТАРЧИК, В.І. ХІВРИЧ, Г.Г. ШМАТКОУДК 621.315.592
© 2010Інститут ядерних досліджень НАН України
(Просп. Науки, 47, Київ 03680; e-mail: plitov@kinr.kiev.ua)

У монокристалах кремнію при імплантації ядер водню (протонів) з енергією $E = 6,8$ MeV ($\Phi = 1 - 3 \cdot 10^{17}$ см⁻²), $E = 43$ MeV ($\Phi = 1 \cdot 10^{17}$ см⁻²), $E = 50$ MeV ($\Phi = 5 \cdot 10^{16}$ см⁻²) і ядер гелію (альфа-частинок) з енергією $E = 27,2$ MeV, ($\Phi = 1 \cdot 10^{17}$ см⁻²) виявлено радіаційний вплив та поширення періодичної дефектної структури в запробіжну для іонів частину зразків ("ефекти далекодії"), які не передбачені існуючою теорією іонної імплантації. Радіаційний вплив опромінення протонами на прискорене утворення термодфектів у прошарках росту кристалів кремнію в запробіжній частині зразків є більш інтенсивним і спостерігається при температурі відпалювання на 50 °C нижчій, ніж у пробіжній. При опроміненні альфа-частинками виявлено утворення періодичної дефектної структури у вигляді "стінок" дефектів перпендикулярних до напрямку руху іонного пучка, яка спостерігається як до, так і за областю гальмування іонів. Формування періодичної дефектної структури пов'язуємо з процесом самоорганізації радіаційних дефектів, а поширення радіаційного впливу в запробіжну для іонів частину кристала – з можливою реалізацією солітонного механізму.

1. Вступ

Одним із ефектів, що супроводжує процес імплантації важких іонів є поява, в деяких випадках, дефектів у запробіжній для іонів частині кристала. Таку радіаційну дію спостерігали різними експериментальними методами в напівпровідниках та металах на глибинах, які іноді на порядки величини перевищували розрахункові (проекційні) пробіги (R_p) іонів. Це так званий "ефект далекодії" (ЕД) [1, 2]. Стосовно прискорених атомарних частинок він означає можливість поширення створеної ними дефектної структури на аномально далекі відстані. Відносно дії легких іонів (протонів, альфа-частинок), які не використовуються

в технології іонного легування, особливості ЕД вивчено недостатньо. Механізм виникнення ефекту далекодії залишається нез'ясованим до цього часу. Автори роботи [2] проаналізували експериментальні результати і теоретичні моделі ЕД при атермічних зовнішніх впливах. Сукупність експериментальних фактів вказувала на важливу роль дефектної системи вихідних зразків і колективних процесів її зміни при цих впливах. Розглянуто такі теоретичні моделі ЕД: дифузійна, ударна (генерація дефектів під дією пружних хвиль), хвиль перемикавання (перехід опроміненої системи в інший стаціонарний стан), автохвилюва (асимптотичний розв'язок системи нелінійних рівнянь дифузії вакансій та їх комплексів показує, що поширення вакансій відбувається у вигляді автохвилі перекидання). Комбінацією механізмів, описаних в дифузійній і ударній моделях, є механізм перенесення енергії у вигляді потенціальної енергії дефектів.

Принципово новим механізмом моделі розгляду ЕД є колективна, а не парна, взаємодія атомів речовини з енергетичними частинками. В цьому випадку фронт радіаційного пошкодження буде просуватися значно швидше, ніж при дифузійному русі окремих точкових дефектів. В роботі [3] запропоновано аналітичний опис речовини, яку опромінюють, системою рівнянь подібною до рівнянь гідродинаміки, що, ймовірно, допустимо для матеріалу, перенасиченого радіаційними дефектами. На думку авторів [4 – 6], у їхньому випадку для металів, при високому рівні радіаційних пошкоджень в основі ЕД лежать радіаційно-індуковані кооперативні процеси, за яких реалізується гідродинамічний рух вакансійної плазми.

Результати моделювання методом молекулярної динаміки показали [7] можливість генерації соліто-

ноподібних імпульсів за високоенергетичного впливу на групу і на окремий атом вільної поверхні. Енергія, яка закачується в приповерхневі шари матеріалу солітоноподібними імпульсами, буде трансформуватись в енергію дефектної системи кристала, включаючи дислокаційну структуру.

В роботі [8] розглянуто модель виникнення в конденсованому середовищі нанорозмірних областей вибухового енерговиділення з випромінюванням ударних хвиль. Виникнення таких областей (“термічних піків”), які є результатом розвитку піків зміщень атомів, є загальним явищем для різних видів корпускулярного опромінення (для частинок з масою, більшою за масу нуклона). Для аналітичного опису ударно-хвильових процесів, генерованих опроміненням, автор застосував рівняння гідродинаміки. Чисельний розв’язок цих рівнянь підтвердив модель поширення солітонової хвилі жорсткого профілю в метастабільному середовищі.

Таким чином, ефект далекодії є одним із кардинальних питань радіаційного пошкодження матеріалів. З одного боку, розподіл радіаційних дефектів і імплантованих іонів за глибиною проникнення становить першорядний технічний інтерес, оскільки в багатьох випадках ці відомості важливі для радіаційної модифікації матеріалів. З другого боку, дослідження даного ефекту має важливе фундаментальне значення для розуміння природи взаємодії опромінення з речовиною, яка в наявних моделях описується спрощено. Існуючі теорії, в основу яких покладено уявлення про парну взаємодію швидких частинок з атомами речовини, передбачають подібні профілі розподілу радіаційних дефектів і імплантованих атомів [9], обидва профілі мають гаусову форму, причому максимум розподілу для дефектів розташований трохи ближче до поверхні мішені (програми TRIM). Орієнтаційні ефекти можуть приводити до більш глибокого проникнення іонів у мішень вздовж певних кристалографічних напрямків [10], проте доля таких іонів в загальному розподілі відносно невелика. Єдиної теорії ЕД не існує до цього часу. Під час побудови такої теорії можуть прислужитися наші експериментальні дані про особливості радіаційної дії високоенергетичних легких іонів у монокристалах кремнію.

2. Експеримент

Опромінення монокристалів кремнію протонами з енергією $E = 6,8$ MeV ($\Phi = 1 - 3 \cdot 10^{17}$ см⁻²), $E = 43$ MeV ($\Phi = 1 \cdot 10^{17}$ см⁻²), $E = 50$ MeV ($\Phi = 5 \cdot 10^{16}$ см⁻²) та альфа-частинками з енергією $E = 27,2$ MeV

($\Phi = 1 \cdot 10^{17}$ см⁻²) проводилось на прискорювачах У-120 і У-240 Інституту ядерних досліджень НАН України. Інтенсивність потоку частинок підтримувалась в межах 10^{12} см⁻²·сек⁻¹. Зразки під час опромінення охолоджували парами рідкого азоту або проточною водою. Температура зразків при цьому не перевищувала 100 °С.

Для дослідження топографічного зображення дефектної структури кремнію зразок розрізали впродовж напрямку опромінення на пластинки, які після механічної та хімічної обробки поверхні досліджували на мікроскопі МІМ-8 та в растровому електронному мікроскопі (JSEM – 90). Поперечні перерізи опромінених зразків досліджували також методом рентгенівської топографії за Лангом на просвіті.

3. Результати експерименту та їх аналіз

При опроміненні кремнію високоенергетичними зарядженими частинками в ньому створюються три дефектні області, які розрізняються за типом і характером дефектоутворення: область пробігу, область гальмування (страглінг), область після гальмування.

Результати досліджень показали, що одразу після опромінення на рентгенівських топограмах кремнію, опроміненого протонами з енергією 6,8 та 43 MeV (див. рис. 1, а), чітко виявляється область страглінга (чорно-білий контраст, характерний для напружень в кристалічній ґратці, які виникають в області гальмування протонів на глибині R_p від опроміненої поверхні, що дорівнює 360 мкм та 9,4 мм відповідно). В області гальмування протонів з енергією 43 MeV в кремнії при 800 °С, за ізохронного відпалювання ($T = 300 - 1000$ °С) попередньо опромінених зразків, спостерігається утворення дислокацій та їх скупчень. При підвищенні температури відпалу до $\sim 900 - 1000$ °С в прошарках росту кристалів кремнію відбувається утворення частинок нової фази і дефектів, що їх супроводжують (рис. 1, б, в). Цей ефект почав спостерігатися при температурі на 50 °С нижчій в запробіжній для протонів частині кристала, ніж у пробіжній (рис. 1, б). Таким чином, радіаційний вплив на структурні характеристики кристала в областях пробігу та за областю гальмування протонів проявлявся в прискореному утворенні термодфектів в прошарках росту кремнію, яке в запробіжній частині зразка було більш інтенсивним і спостерігалось при нижчій температурі відпалу.

В кремнії, опроміненому протонами з енергією 6,8 MeV, на растрових електронних мікрофотографіях зразка, що вирізаний вздовж напрямку опромінення,

виявлялась тільки одна світла лінія на глибині $\sim R_p$ (рис. 2). Проте металографічні спостереження виявили на цьому ж зразку дві „стінки“ дефектів на відстанях 358 і 645 мкм від поверхні з боку опромінення.

Опромінення кремнію альфа-частинками з енергією $E = 27,2$ МеВ флюенсом $\Phi = 10^{17}$ см $^{-2}$ при тій же проєкційній глибині проникнення, як і для 6,8 МеВ протонів ($R_p = 360$ мкм), при металографічному дослідженні опромінених зразків виявлено утворення восьми періодично розташованих „стінок“ дефектів (див. перші два стовпці в таблиці).

На растрових електронних мікрофотографіях зразків, опромінених альфа-частинками, виявлено лінії (див., наприклад, рис. 3 і останні три стовпці в таблиці), які за їх відстанню від поверхні зразків можна віднести до відповідних візуально спостережуваних стінок дефектів, позначених в першому стовпці таблиці римськими цифрами.

На рис. 3,а, б наведено мікрофотографії поверхні поперечного перерізу для зразка № 3, на яких ці лінії видно найбільш чітко. Похибка у визначенні відстані ліній від поверхні зразка з боку опромінення може сягати до 20 мкм.

На рис. 4 наведено комп'ютерну фотометрію растрової електронної мікрофотографії рисунка 3,б поверхні поперечного перерізу зразка № 3, яка наочно ілюструє розташування „стінок“ дефектів по відношенню до поверхні зразка та інтенсивність відповідних їм ліній. Інтенсивність ліній (в процентах) порівняно з фоном (**I**) відкладена по осі ординат, по осі абсцис – відстань (в мікронах) від поверхні зразка з боку опромінення. Позитивні значення **I** відповід-

Відстань „стінок“ дефектів (в мікронах) від поверхні зразка кремнію з боку опромінення альфа-частинками при металмікроскопічному спостереженні і на растрових електронних мікрофотографіях поверхні поперечного перерізу зразків

№ стінки	Відстань „стінок“ дефектів і ліній від поверхні зразка, мкм			
	Метал-мікроскопія	Растрова електронна мікроскопія		
		Зразок №1	Зразок №2	Зразок №3
I	132	150	145	140
II	242	282		
III	341	362	337	327
IV	380	385	380	352
V	423			441
VI	627	636	666	637
VII	720	674		
VIII	764			
		855	839	

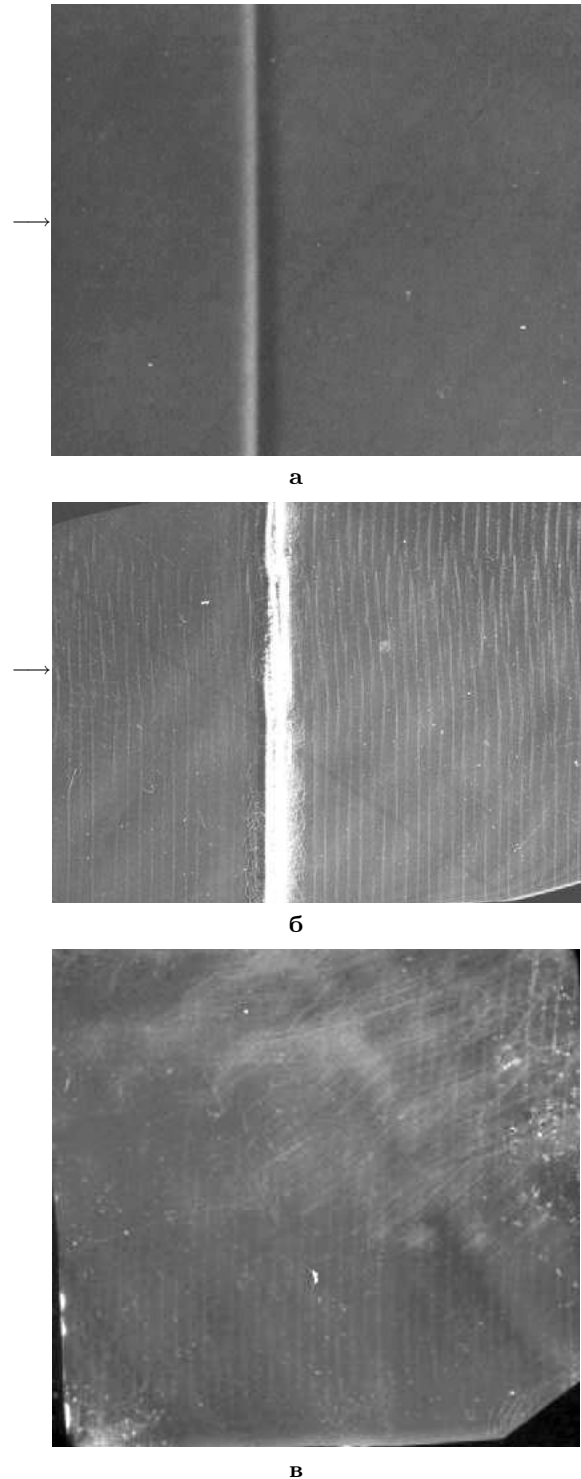
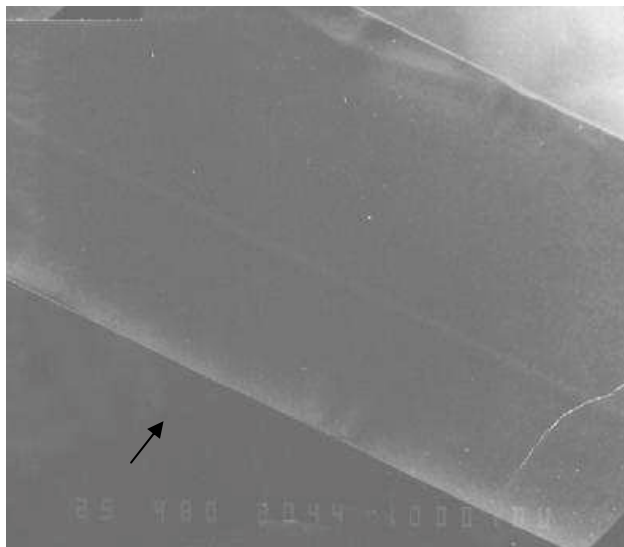


Рис. 1. Рентгенівські топографи кремнію, опроміненого протонами з $E_{p+} = 43$ МеВ, $\Phi_{p+} = 10^{17}$ см $^{-2}$: а – до відпау; б – віддаленого при 1000 °С 0,5 год; в – неопроміненого, відпаленого при 1000 °С 0,5 год ($\times 9$)

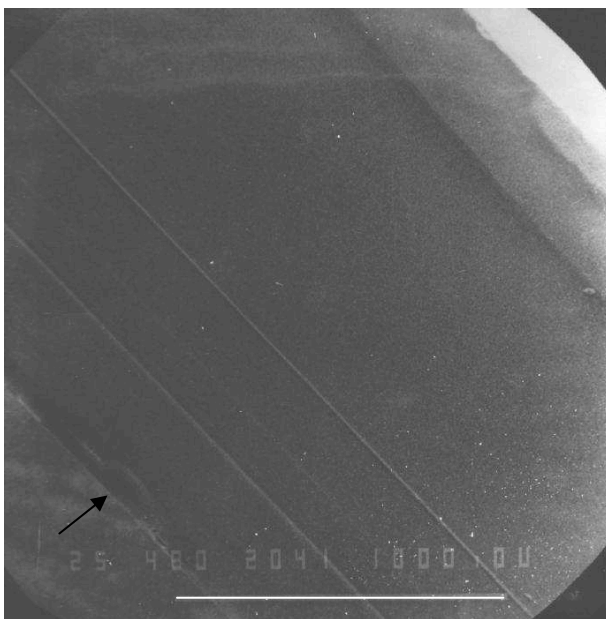


а

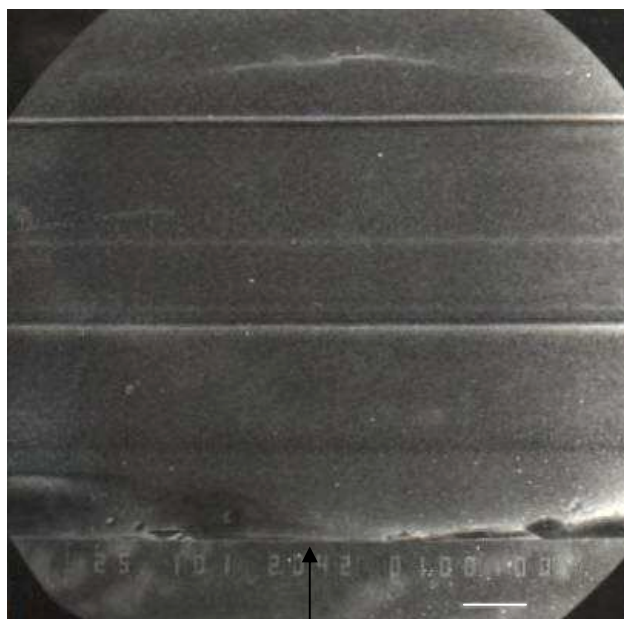


б

Рис. 2. Растрові електронні мікрофотографії поверхні кремнію, опроміненого протонами ($E = 6,8$ МеВ, $\Phi = 10^{17}$ см $^{-2}$, напрямом опромінення [110] – паралельний даній площині)



а



б

Рис. 3. Растрові електронні мікрофотографії поверхні поперечного перерізу зразка кремнію № 3, опроміненого альфа-частинками ($E = 27,2$ МеВ, $\Phi = 10^{17}$ см $^{-2}$, напрямом опромінення [111] – паралельно даній площині)

ають світлим лініям на рис. 3,б, негативні – темним. Привертає увагу той факт, що інтенсивність відповідних ліній практично однакова у всіх трьох дефектних областях кристала. При з'ясуванні природи дефектів в "стінках" ми поки що можемо спиратися лише на

наявні непрямі дані роботи [11]. У цій роботі отримані експериментальні результати та проведені розрахунки профілів розподілу радіаційних дефектів і імплантованих атомів з використанням програми TRIM для кремнію, опроміненого іонами Si $^{+}$, показали, що

в області до $\sim (1/2)R_p$ переважає утворення точкових дефектів вакансійного типу, а трохи ближче до R_p – великих вакансійних кластерів, а дефектів міжвузловинного типу в районі $\sim (1/2)R_p$ і $\sim R_p$.

Наші дослідження [12, 13] виявили утворення скупчень дефектів (областей розупорядкування) дивакансійного типу та точкових вакансійно-домішкових дефектів в пробіжній для протонів частині кристала. Ефективність введення останніх при протонному опроміненні на два-три порядки вища, ніж для нейтронного. Дослідження ГЧ-спектрів поглинання кремнію, опроміненого протонами з енергією 6,8 MeV, в області їх гальмування виявили утворення ряду центрів, до складу яких входить водень, локалізований на розірваних зв'язках атомів кремнію. Повний відпал водневмісних центрів відбувається за температури 600 °C і супроводжується розриванням Si–H зв'язків. За відпалу понад 600 °C відбувалося відшарування опроміненої ($\Phi \geq 10^{17}$ см⁻²) частини кристала товщиною, що відповідає глибині пробігу 6,8 MeV протонів у Si (~ 360 мкм). Побічним ефектом цих досліджень було виявлення дефектів структури в запробіжній частині кристала на глибині до 720 мкм, густина яких ($\sim 10^2$ см⁻²) в 5–8 разів більша за густину дефектів в області пробігу протонів.

За даними роботи [14], утворення радіаційних дефектів вакансійного типу відбувається не тільки в області пробігу альфа-частинок, але й за областю їх гальмування

Результати досліджень, наведені в даній роботі, показують, що дія опромінення легкими іонами поширюється на всю запробіжну для іонів частину кристала (див. рис. 1,б), тобто спостерігається явний ефект далекодії. Температура відпалювання 1000 °C в нашому випадку, внаслідок прискореного утворення термодфектів в шарах росту опроміненого кристала, слугувала індикатором виявлення ефекту. Періодичну дефектну систему з періодом меншим R_p ми спостерігали тільки в зразках, опромінених альфа-частинками. Отже, її формування, скоріш за все, чутливе до густини енерговиділення. Природа та структура дефектів у “стінках” потребує подальшого дослідження, однак зіставляючи їх положення з даними роботи [11] можна припустити, що світлим лініям на рис. 3, 4 відповідають скупчення дефектів вакансійного типу, темним – міжвузловинного. Відповідна структура поширюється і в запробіжну для іонів частину кристала.

Періодичність дефектної системи, наявність дрібномасштабної структури (наприклад, в області $\sim R_p$) свідчать про хвильовий механізм її утворення.

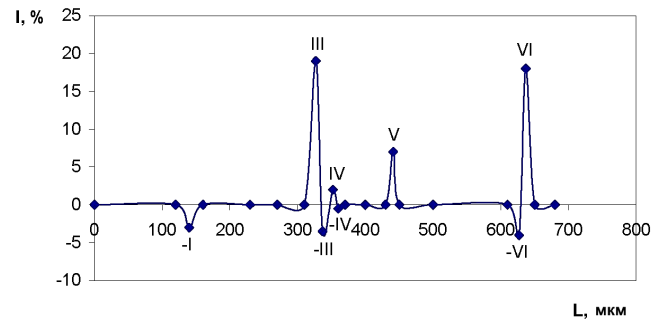


Рис. 4. Фотометрія растрової електронної мікрофотографії (рис. 3,б) поверхні поперечного перерізу зразка кремнію № 3, опроміненого альфа-частинками, напрямком опромінення по осі абсцис

Проте відомий автохвильовий механізм [2] не може пояснити далекого та наддалекого проникнення дії опромінення в запробіжну для іонів частину кристала, бо він передбачає підтримання амплітуди поширення концентраційного фронту радіаційних дефектів за рахунок пластичної деформації. За нашими даними [12] пластична деформація в зразках, опромінених протонами, відбувається за вищої температури (розриванням Si–H зв'язків при ~ 600 °C), ніж температура зразків під час опромінення. Разом з тим, в роботі [7] розглядається інший механізм поширення радіаційного впливу, а саме – солітоноподібними імпульсами. У випадку великих флюенсів опромінення і високих енергій іонів, використаних в нашій роботі, при зіткненні з поверхнею може генеруватися величезне число солітоноподібних імпульсів. Ймовірно, в області гальмування іонів буде теж генеруватися нова потужна хвиля імпульсів [8]. Завдяки високій швидкості поширення імпульсів в кристалі, перенесення енергії та її перерозподіл в об'ємі кристала можуть реалізуватися достатньо швидко і зумовлювати ефект далекодії.

На нашу думку, солітоноподібний механізм поширення радіаційного впливу є найбільш ймовірним за наших умов опромінення і не є суперечливим щодо інших відомих хвильових механізмів, оскільки солітони це “частинкоподібні” нелінійні хвилі. В роботі [15] в межах моделей процесів самоорганізації зроблено спроби сформулювати загальні умови виникнення періодичних когерентних процесів у системах різної природи. Можливо, в наших умовах реалізується солітонний механізм виникнення періодичних процесів. Отже, формування періодичної дефектної структури може знайти пояснення в межах синергетичного під-

ходу, як результат процесу самоорганізації дефектів в опромінену кристалі [16, 17].

4. Висновки

При опроміненні монокристалічного кремнію високоенергетичними протонами і альфа-частинками виявлено радіаційний вплив та поширення періодичної дефектної структури в запробіжну для іонів частину зразків (“ефекти далекодії”), що не передбачено існуючою теорією іонної імплантації.

Радіаційний вплив при протонному опроміненні проявлявся в прискореному утворенні термодефектів у прошарках росту кремнію, яке в запробіжній частині зразка було більш інтенсивним і спостерігалось при температурі відпалювання на 50 °С нижчій, ніж в пробіжній.

При опроміненні альфа-частинками виявлено утворення періодичної дефектної структури у вигляді стінок дефектів перпендикулярних до напрямку руху іонного пучка, яка поширюється як до, так і за область гальмування іонів.

Формування періодичної дефектної структури може бути результатом процесу самоорганізації дефектів в опромінену кристалі, а поширення радіаційного впливу на запробіжну для іонів частину кристала – реалізацією солітонного механізму.

Автори вдячні кандидату фіз.-мат. наук Л.Г. Ніколаєвій за ідею проведення даних досліджень, В.І. Варніній за допомогу в проведенні експерименту, член-кореспонденту НАН України В.Й. Сугакову, доктору фіз.-мат. наук В.І. Сороці і кандидату фіз.-мат. наук І.Ю. Голінею за участь в обговоренні результатів, плідну дискусію та слухні зауваження.

1. Д.И. Тетельбаум, В.Я. Баянкин, Природа № 4, 9 (2005).
2. А.С. Алалыкин, П.Н. Крылов, М.В. Шашкевич, Вестник Удмурдского Университета № 4, 141 (2005).
3. А.В. Федоров, Е.В. Васильева, Б.Г. Владимирова, М.И. Гусева и др., Поверхность № 8, 123 (1983).
4. В.С. Хмелевская, В.Г. Малынкин, Материаловедение 2, 25 (1998).
5. В.С. Хмелевская, В.Г. Малынкин, М.Ю. Канунников, Поверхность № 7, 66 (2003).
6. В.С. Хмелевская, И.А. Антошина, М.Н. Кордо, Физика металлов и металловедение 103, 652 (2007).
7. С.Г. Псахье, К.П. Зольников, Р.И. Кадыров, Г.Е. Руденский, Ю.П. Шаркеев, В.М. Кузнецов, Письма в ЖТФ 25, 7 (1999).

8. В.В. Овчинников, УФН 178, 991 (2008).
9. J. Lindhard, V. Scharff, and H.E. Shiot, Mat. Fis. Medd. 33, 1 (1963).
10. М. Томпсон, УФН № 99, В. 2, 297 (1969).
11. R. Kögler, A. Peeva, P. Werner, W. Skorupa, and U. Gösele, Nucl. Instrum. Methods B 175–177, 340 (2001).
12. А.А. Гроза, П.Г. Литовченко, М.І. Старчик, *Ефекти радіації в інфрачервоному поглинанні та структурі кремнію* (Наукова думка, Київ, 2006).
13. В.І. Варніна, А.А. Гроза, П.Г. Литовченко, М.Б. Пінковська, Л.А. Полівцев, М.І. Старчик, В.І. Хиврич, Г.Г. Шматко, УФЖ 48, 269 (2003).
14. Л.Ф. Макаренко, Ф.П. Коршунов, С.Б. Ластовский, В.И. Хиврич, *Материалы и структуры современной электроники* (Минск, 2008).
15. О.В. Чалий, В.П. Лукомський, І.С. Ганджа, Я.В. Цехмістер, О.К. Чалий, *Нелінійні процеси в фізиці: коливання, хвилі, самоорганізація* (Четверта хвиля, Київ, 2005).
16. В.Й. Сугаков, *Основи синергетики* (Обереги, Київ, 2001).
17. П.А. Селищев, *Самоорганизация в радиационной физике* (Аспект – Поліграф, Київ, 2004).

Одержано 30.08.09

ОСОБЕННОСТИ ЭФФЕКТА ДАЛЬНОДЕЙСТВИЯ В КРЕМНИИ ПРИ ИМПЛАНТАЦИИ ЯДЕР ВОДОРОДА И ГЕЛИЯ

А.А. Гроза, П.Г. Литовченко, М.И. Старчик, В.И. Хиврич, Г.Г. Шматко

Резюме

В монокристаллах кремния при имплантации ядер водорода с энергией $E = 6,8$ МэВ ($\Phi = 1 - 3 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$), $E = 43$ МэВ ($\Phi = 1 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$), $E = 50$ МэВ ($\Phi = 5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$) и ядер гелия с энергией $E = 27,2$ МэВ ($\Phi = 1 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$) обнаружено радиационное воздействие за областью торможения ионов (“эффекты дальнего действия”), что не объясняется существующей теорией ионной имплантации. Во всей этой области в слоях роста кристалла после термообработки наблюдалось ускоренное образование термодефектов при температуре на 50 °С более низкой, чем в области пробега ядер водорода. При облучении ядрами гелия (альфа-частицами) обнаружено образование периодической дефектной структуры в виде стенок дефектов перпендикулярных направлению движения ионного пучка, которая распространялась вглубь образцов как до, так и за область торможения ионов. Образование периодической дефектной структуры связывается с процессом самоорганизации, а распространение радиационного воздействия – с солитонным механизмом.

LONG-RANGE EFFECTS IN SILICON SINGLE
CRYSTALS IRRADIATED WITH PROTONS
AND ALPHA-PARTICLES

A.A. Groza, P.G. Litovchenko, M.I. Starchik, V.I. Khivrich,
G.G. Shmatko

Institute for Nuclear Research, Nat. Acad. of Sci. of Ukraine
(47, Nauka Ave., Kyiv 03680, Ukraine;
e-mail: plitov@kinr.kiev.ua)

S u m m a r y

Radiation effects in silicon single crystals irradiated with protons of the energies $E = 6.8, 43,$ and 50 MeV at the fluences $\Phi = (1 \div 3) \times 10^{17}, 1 \times 10^{17},$ and 5×10^{16} cm⁻², respectively, and with alpha-particles of the energy $E = 27.2$ MeV at the fluence

$\Phi = 1 \times 10^{17}$ cm⁻² have been studied. The extension of a periodic defect structure into the region located behind the ion stopping range has been revealed ("long-range effects"), which cannot be explained in the framework of the available ion implantation theory. The effect of the proton radiation on an increase of the thermal defect generation in crystal growth layers located in this region is found to be more intensive and to occur at a temperature by 50° lower than that in the proton free-path region. In the case of the irradiation with alpha particles, the formation of a defect structure in the form of defect walls oriented perpendicularly to the ion beam and extending over the ion stopping range and behind it was detected. We associate the formation of a periodic defect structure with the self-organization of radiation-induced defects, and the extension of the radiation effect into the region behind the ion stopping range with a probable implementation of the soliton mechanism of propagation.