

质子在硅中能量损失的体密度效应的研究

马忠权

(中国科学院新疆物理研究所 乌鲁木齐 830011)

摘要 用能损的二分量理论详细讨论了快速荷电粒子(H^+)在同素异形态Si薄膜中的能量沉积过程。在Bethe-Bloch公式中引入了一个能损修正因子 $\eta(E, \rho) < 1$ 。由入射粒子在固体中产生传导电子的集体激发(等离子体)和附有修正因子 $\eta(E, \rho)$ 的内壳层电子单体电离-激发之和解释能损的同素异形态效应的实验结果, 通过对实验数据的拟合, 求得 $\eta(E, \rho)$ 。

关键词 快离子束, 体密度效应, 二分量理论

当一束具有一定能量 $E_0(\text{keV} < E_0 < \text{MeV/u})$ 的荷电粒子穿过投影射程为 ds 的固体时, 离子与固体中原子发生非弹性碰撞, 使固体原子激发、电离、位移而损失其能量。沉积在固体 ds 上的能量为 $(ds/\cos \theta) \cdot (dE/dx)$, 此值除了与穿过的长度 ds 、入射方向与样品表面法向的夹角 θ 有关外, 还与入射离子能量 E_0 、有效电荷、靶元素成分、原子结构、电子密度及其平均电离能等有关^[1-3]。本文主要依据前期的实验结果^[4], 讨论质子束经过三种原子排列的Si薄膜时, 单位长度(以质量密度表示)上能量沉积的物理根源。

1 理论方法

硅材料是典型的共价固体, 按照电子分布的轨道理论, 处在最低能态上的Si原子中的电子组态为 $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^2$, 原子实(满内壳层)外4个价电子同周围其它Si原子的价电子形成共价键结构, 当每个原子的共价键饱和并且原子间成正四面体结构时就成为晶体, 否则为其它结构(典型的是无定形)。当快速轻离子穿过这种Si介质时, 在库仑力作用下, 激发或电离靶原子中不同能态上的电子, 产生非弹性碰撞。通过动量与能量交换, 入射离子将部分能量传输给靶电子, 这些电子以不同的方式产生集体激发($h\nu_p$)或单体电离(E_i)与各壳层电子获得能量的几率和大小有关。根据原子中核心电子、价电子结合能、电离能与固体原子排列无关, 而电离一个价电子(或电子气)与原子排列有关, 入射离子能量损失也与固体原子排列有关^[4-7], 通常将固体电子对离子能损的贡献分为两部分^[8-9]: 一部分为价电子的贡献; 另一部分为内壳层电子的贡献。

1.1 荷电粒子在无定形固体中的能损

具有极限高速(Bethe-Bloch能区)的荷电粒子在无序介质中运动时, 由于同电子作用而损失的能量为电子阻止本领, 其值为

$$-(dE/dx)_{\text{random}} = [4\pi Z_1^2 e^4 / (m_e V^2)] \cdot N Z_2 \sum_n f_n \cdot \ln(m_e V^2 / E_n) \quad (1)$$

式中, Z_1 、 Z_2 分别是入射粒子电荷数和靶原子序数; N 是靶原子密度; e 为电子电荷; m_e 为电

子静质量; f_n 为谐振子强度(取自Bloch方程); E_n 是电子电离能; V 为入射粒子速率。若将原子中价电子和内壳层电子的贡献分开, 则公式(1)变为

$$-(dE/dx)_{\text{random}} = -(dE/dx)_{\text{val}} + [4\pi Z_1^2 e^4 / (m_e V^2)] \cdot N \sum_i Z_i f_i \cdot \ln(m_e V^2 / E_i) \quad (2)$$

式中, 第一项为价电子的贡献; 第二项为对各内壳层电子的贡献求和; Z_i 为相应于能级 E_i 和谐振子强度 f_i 的电子数。

对于在无定形Si中运动的1.0MeV左右的 H^+ 粒子, 单位长度上由Si原子各内壳层电子产生的能损值估算如下: K 壳层上, $Z_K=2$, $E_K=1845\text{eV}$, 单位长度上能损约为1.43eV/nm; L 壳层上, $Z_L=8$, 8个 L 电子中有2个 S 电子(量子数 $l=0$)和6个 P 电子(量子数 $l=1$), 平均离化能 $E_L=115.7\text{eV}$ (其中 $E_{l_1}=148.7\text{eV}$, $E_{l_2,l_3}=99.2\text{eV}$), 单位长度上能损约为12.6eV/nm。对于1.0MeV的 H^+ , 理论和实验确定它在Si中的随机电子阻止本领为42eV/nm^[10]。因此, 根据上面Si原子内壳层电子阻止本领的估算值可得到, Si原子的 K 层电子能损约占总能损的3.4%; L 层电子能损约占总能损的30%; 4个价电子的能损约占总能损的66%。按照这个推算, H^+ 在无定形Si中运动时, 有2/3的能损来自于价电子的作用。

1.2 荷电粒子在晶体中的能损

同理, 当快速荷电粒子在长程有序的晶体中运动时, 晶体原子中的电子对进入轴沟道或面沟道的粒子所产生的阻滞作用也可以用原子的价电子和内壳层电子的激发、电离来表示^[11-12]

$$-(dE/dx)_{\text{ch.}} = [4\pi Z_1^2 e^4 / (m_e V^2)] \cdot N \{ [Z_{\text{val.}} \ln(V/V_f) + Z_{\text{loc.}} \ln[2m_e V V_f / (\hbar \omega_p)] \} + [2Z_1^2 e^4 / (m_e V^2)] \cdot (\bar{n} f / b^2 d) \quad (3)$$

式中, 第一项是价电子的集体激发和局域分布电子单体激发之和, $NZ_{\text{val.}}$ 与 $NZ_{\text{loc.}}$ 分别为产生等离子体与单体激发的有效电子密度; 第二项为内壳层电子作用项; 参数 $Z_{\text{val.}}$ 与 $Z_{\text{loc.}}$ 分别为对沟道中粒子产生作用的原子的价电子数和局域电子数; $V_f = (\hbar/m_e)(3\pi^2 n_e)^{1/3}$ 是费米速率; $\omega_p = 2\pi \nu_p = 2\pi(4\pi n_e e^2 / m_e)^{1/2}$ 为等离子体频率, n_e 是靶电子密度; $\hbar$ 是普朗克常数; $\bar{n}$ 为构成沟道最近的晶轴数; f 为对能损有贡献的内壳电子数; b 是沟道半径; d 为该沟道方向上的原子间距。简单地取Si(110)方向, $b=0.145\text{nm}$, 对于0.5—1.0MeV的 H^+ , Si原子中所有内壳层电子产生的能损约为1—0.5eV/nm。但是, 实验和理论^[13-14]按照均分定则已经证明, 进入Si晶体沟道中粒子的能损近似为无定形Si中能损的一半, 为32—21eV/nm。所以, Si原子内壳层电子对(110)沟道方向产生能损仅占总能损的3.0%以下, 且主要来自于 L 壳层中的电子。如果忽略Si原子 K 和 L 壳层电子对Bethe-Bloch能区 H^+ 粒子能损的贡献, (3)式中价电子气的费米速率 $V_f = (\hbar/m_e)(3\pi^2 NZ_{\text{val.}})^{1/3} \approx 3.6(NZ_{\text{val.}})^{1/3} \times 10^8 \text{cm/s}$, 等离子体能量 $\hbar \nu_p \approx 37(NZ_{\text{val.}})^{1/2} \text{eV}$ 。取IPM (Independent-Particle-Model) 势下的离子-原子体系的有效电子密度平均值^[15], 则 $NZ_{\text{val.}} \equiv \bar{n}_e(r=a_0, a_0 \text{ 是 Bohr 半径})$, 并且 $Z_{\text{val.}}=4$, 可以求得 $Z_{\text{loc.}}=4.0$, 即Si原子中4个价电子均匀地分布在沟道截面, 形成等离子体激发和库仑单体散射, 入射粒子的绝大部分能量沉积是由于这些传导电子的作用。

根据以上理论分析, 在单一元素不同原子排列的固体(非晶和单晶)中, 原子的不同能态上电子对离子产生的能损已有了比较完整的理论和大量的实验数据。即便是多元素化合物及处于不同物理相的物质, 借助Bragg公式线性迭加也能给出较为满意的能损值^[2]。可是, 对于单一元素原子致密堆积形成体密度不同的固体, 它们产生的能量沉积目前尚无定量的数据, 实验测量工作甚少。我们结合已有的实验结果重点讨论这一问题。

2 能损的同素异形态效应

实验中所用的样品是经过不同工艺,在不同物理、化学条件下制备的,可以产生化学元素配比、原子密度和几何厚度已知的靶。当我们最近重新考虑前期用共振核反应 $^{27}\text{Al}(\text{p}, \gamma)^{28}\text{Si}$ 方法测量 H^+ 在Si膜中能损的实验结果时^[4],发现以前用三种CVD(化学气相沉积)方法制备的SOS(Silicon on Sapphire)样品不能严格地区分为单晶、多晶和非晶材料;尽管当时用X射线衍射技术在扫描角 69.2° 处发现了一个新的衍射峰。最近用 2.0MeV He^+ 对其中 1050°C 时APCVD(常压化学气相沉积)方法制备的Si薄膜进行沟道实验分析时,发现在各个入射角方向并未找到轴沟道或面沟道,而同时对CZ法产生的单晶Si片的沟道分析却是非常灵敏的。如果(p, γ)实验所用样品SOS中有一种是晶体Si膜,那么在经历大约40个月室温保存后仍将保持其晶体性不变。但是, X射线分析又确实表明三种条件下外延Si薄膜具有不同的原子衍射结构峰。而且精确地测定出它们每单位质量面密度相差大于20%,又在 $4.2\text{MeV } ^7\text{Li}^{2+}$ 的RBS分析中,显示样品均有很好的Si/ Al_2O_3 界面。所以,我们可以肯定地认为在不同的物理和化学条件下分别用APCVD、LPCVD(低压化学气相沉积)和PECVD(等离子增强化学气相沉积)外延生长的300—500nm Si薄膜具有不同的原子致密度和原子配位结构。以下为了方便计算,分别记为样品 S_1 、 S_2 和 S_3 。另外,在Softky^[5]、Ziegler^[6]和Matteson^[7]等用C或Si元素制备的不同原子致密度的靶中, H或He离子的能损也发现了类似的效应。由此看来,不能简单地用纯粹的沟道或随机粒子碰撞理论来解释前述 H^+ 在三种Si膜中能损的结构效应,而应把它们看作质量体密度有差别的同素异形态固体。

仍然把固体原子中电子对入射离子的阻滞作用划分为“内壳层电子”和“价电子”(或传导电子)的贡献。这样,合并公式(2)和(3),并引入一个与固体原子密度有关的能损修正因子 $\eta(E, \rho)$,该因子直接反映内壳层电子阻止分量,而与价电子无关。这样,轻离子在同素异形态固体中,单位路径上沉积的能量可以表示为

$$\begin{aligned} -(\text{d}E/\text{d}x)_{\text{All}} = & -(\text{d}E/\text{d}x)_{\text{val}} - \eta(E, \rho) \cdot (\text{d}E/\text{d}x)_{\text{core}} \\ = & [4\pi Z_1^2 e^4 / (m_e V^2)] \cdot (NZ_{\text{val}}) \cdot \ln[2m_e V^2 / (\hbar \omega_p)] \\ & + \eta(E, \rho) \cdot [4\pi Z_1^2 e^4 / (m_e V^2)] \cdot N \sum_i Z_i f_i \cdot \ln(m_e V^2 / E_i) \end{aligned} \quad (4)$$

单位质量面密度上能量沉积为

$$\begin{aligned} -(1/\rho)(\text{d}E/\text{d}x)_{\text{All}} = & [4\pi Z_1^2 e^4 / (m_e V^2)] \cdot (N_0/A) \\ & \cdot \{ Z_{\text{val}} \ln[2m_e V^2 / (\hbar \omega_p)] + \eta(E, \rho) \cdot \sum_i Z_i f_i \cdot \ln(m_e V^2 / E_i) \} \end{aligned} \quad (5)$$

式中, ρ 为质量体密度(g/cm^3); A 为原子量; N_0 为阿伏伽德罗常数; Z_{val} 是和等离子体相关的价电子数; $\eta(E, \rho)$ 是与入射粒子能量 E 及靶质量体密度 ρ 相关的无量纲能损内壳层电子修正因子; Bloch方程中内壳层电子的谐振子强度 f_i 取为 $\sim n_i/Z_i$, n_i 是壳层上相应于第 i 个 f_i 的电子数; 固体Si中价电子视为自由电子气, 等离子体的集体激发平均能量 $(\hbar \omega_p) = 31.05\text{eV}$ (25°C), 其它参数与(2)、(3)式中相同。

为了估算质量体密度能损因子 $\eta(E, \rho)$ 值和它随能量、质量体密度的变化,首先在表1中列出文献[4]的实验值,入射粒子(H^+)在Si膜中间能量点783keV和1001keV的Bethe-Bloch和ZBL^[10]计算值。表1中两个能量点上B-B计算值和ZBL半经验值均比样品 S_3 的实验值小,而比样品 S_1 与 S_2 的实验值大。分别以 S_3 实验值、B-B和ZBL计算值作为基准

值，表2给出所有样品的电子阻止本领关于这些参考量的归一化 $\eta(E, \rho)$ 值。

表1 质子在不同质量面密度硅薄膜中的实验电子阻止本领和无定形硅中的ZBL、B-B计算值
Table 1 The experimental data of electron stopping power for proton in silicon films with different area-mass densities and the calculations of ZBL and B-B in amorphous silicon

样品 Sample	质量面密度 Area-mass density $/\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$	电子阻止本领	
		Electron stopping power/ $\text{keV}\cdot\mu\text{g}^{-1}\cdot\text{cm}^{-2}$	
		783keV	1001keV
S ₁	99.8	0.176	0.166
S ₂	72.6	0.191	0.174
S ₃	56.6	0.211	0.188
ZBL	-	0.207	0.179
B-B	-	0.204	0.176

表2 ZBL及B-B计算值和实验电子阻止本领关于 $(S_3)_{\text{exp}}$ 的归一化因子 $\eta(E, \rho)$
Table 2 The normalized factor $\eta(E, \rho)$ of ZBL and B-B calculation and experimental electron stopping power relative to $(S_3)_{\text{exp}}$.

样品 Sample	质量面密度 Area-mass density $/\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$	$\eta(E, \rho)$					
		783keV			1001keV		
		$(S_3)_{\text{exp}}$	ZBL	B-B	$(S_3)_{\text{exp}}$	ZBL	B-B
S ₁	99.8	0.51	0.56	0.60	0.66	0.79	0.83
S ₂	72.6	0.72	0.77	0.81	0.78	0.92	0.97
S ₃	56.6	1.0	1.06	1.10	1.0	1.15	1.20

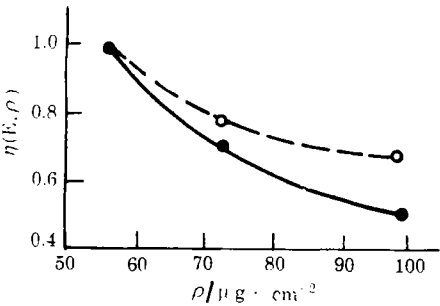


图1 $\eta(E, \rho)$ 随硅薄膜质量体密度和 H^+ 能量的变化
● 783keV, ○ 1001keV
Fig.1 The dependence of $\eta(E, \rho)$ on the area-mass density of silicon films and proton energy

图1为典型的实验归一 $\eta(E, \rho)$ 值^[4]随Si膜质量体密度和入射粒子能量的变化曲线，且 $\eta(E, \rho) \propto E^\alpha \rho^\beta (\alpha > 1, \beta < 0)$ 。从表2和图1可见：(1)当取质量体密度最小的无定形材料中内壳层电子阻止本领修正因子 $\eta = 1$ 时，其它同素材料的 $\eta < 1$ ；(2)固体中修正因子 $\eta(E, \rho)$ 随质量体密度增大而减小，随入射粒子能量增大而增加。

3 讨论和总结

根据能损的二分量理论，在公式(2)和(3)的基础上，我们讨论了 H^+ 在无定形和晶体Si中随机粒子与沟道粒子的电子阻止本领

的两部分贡献。显然，不论何种原子排列的同素固体材料，价电子对粒子能损都起主要作用，至少占2/3。而且，随原子排列向长程有序度增加时，内壳层电子作用几率愈来愈小，导致能损值变小，这种趋势和文献[5]用C元素作靶的同素异形态实验结果相一致。由于固体价电子在粒子能损中起着非常重要的作用，当原子配位结构发生变化时，形成价电子新的共价态或悬挂键态，会影响入射粒子电荷屏蔽与内壳层电子的极化和电离，使单体非弹性库仑

散射随原子结构而异。其统计平均结果,在原子密堆积固体中,近距离碰撞几率减小了。

关于固体中粒子能损的密度效应随能量的变化, Sternheimer等^[16,17]已作了定量的理论计算。他们在入射粒子能量相当高以致可以产生明显的相对论效应的条件下讨论了这一现象,得到了能损的密度效应随粒子能量增加的结果。当然,从研究的能量范围看,我们的结果和 Sternheimer的结果并没有什么必然的联系,但我们和文献[5]中研究的对象为 IVB 族元素固体,是介于 Sternheimer 的绝缘体与导体之间的介质,而且公式(5)中引入密度因子 $\eta(E, \rho)$ 与 Sternheimer^[18] 给出的数值公式 $\delta(x)[x \equiv \log(\beta \gamma), \beta = v/c, \gamma = (1 - \beta^2)^{-1/2}]$ 所表达随能量增加而增加是一致的。因此,半导体中导带电子和价带电子起了两者的作用,既有导体电子特性,又有绝缘体电子特性。

综上所述,快速粒子在同素异形态固体中,每单位面密度物质上损失的能量是通过电离、激发不同能态上的电子,把大部分能量传输给价电子体,只有小部分能量在库仑散射下转移到内壳层电子。原子密度愈小的同素材料内壳层电子平均获得能量愈多,相应的粒子沉积能量越大。

我们依据已存在的实验结果,修正了能损二分量理论中内壳电子贡献项,提出原子密度不同的物质会影响入射粒子能量沉积的理论,解释了能量吸收实验中同素异形态效应现象。对于这种尝试和如何确定 $\eta(E, \rho)$ 的函数形式,还有待进一步研究。

致谢 感谢日本 Y.Kido 教授对本工作的有益讨论。

参 考 文 献

- 1 Thwaites D I. Radia Res, 1985; 95:495
- 2 Thwaites D I. Nucl Instr Meth, 1992; B69:53
- 3 Andersen H H, Ziegler J F. Hydrogen stopping powers and ranges in all elements, New York: Pergamon Press, 1977
- 4 Ma Zhongquan, Liu Jiarui, Zhu Peiran. Chin Phys Lett, 1990; 7:226
- 5 Softky S D. Phys Rev, 1961; 123:1685
- 6 Ziegler J F, Brodsky M H. J Appl Phys, 1973; 44:188
- 7 Matteson S, Chau E K, Powers D. Phys Rev, 1976; A14:169
- 8 Luntz M, Heymsfield G M. Phys Rev, 1972; B6:2530
- 9 Kitagawa M, Ohtsuki Y H. Phys Rev, 1972; B5:3418
- 10 Ziegler J F, Biersack J P, Littmark U. The stopping and range of ions in solids. Vol.1. New York: Pergamon Press, 1985
- 11 Appleton B R, Erginsoy C, Gibson W M. Phys Rev, 1967; 161:330
- 12 Kumakhov M A, Komarov F F. Energy loss and ion ranges in solids, New York: Gordon and Beach, 1981
- 13 Bonderup E, Esbensen H, Andersen J U, et al. Radia Eff, 1972; 12:261
- 14 Lindhard J, Dan Vidensk K, Selsk. Mat-Fys. Medd, 1965; 34:14
- 15 Ma Zhongquan. Chin Phys Lett, 1990; 7(4):184

16 Sternheimer R M, Seltzer S M, Berger M J. Phys Rev, 1982; B26:6067

17 Sternheimer R M, Seltzer S M, Berger M J. Atom Data Nucl Data Tables, 1984; 30:261

18 Sternheimer R M. Phys Rev, 1952; 88:851

A study of mass density effect on specific energy loss for H^+ ions in silicon

Ma Zhongquan

(Xinjiang Institute of Physics, Academia Sinica, Urumqi 830011)

Abstract

The energy deposition process for swift charged particles (H^+) in allotropic silicon film is discussed in detail with the two component assumption of energy loss. An energy-loss correction factor $\eta(E, \rho) < 1$ has been introduced into the Bethe-Bloch formula and by fitting the experimental data and the $\eta(E, \rho)$ value is obtained. As a result, all of the experimental phenomena on the allotropic effect of energy loss can be explained.

Key words Swift proton, Mass density effect, Two component theory