

Возбуждение автоионизационных состояний и электронные тормозные способности при столкновениях медленных ионов с твердым телом

А. Н. Зиновьев¹⁾, П. Ю. Бабенко, Д. С. Мелузова, А. П. Шергин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе, 194021 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 20 июля 2018 г.

После переработки 24 сентября 2018 г.

Показано, что возбуждение автоионизационных состояний при соударениях ионов кэВ-энергий с твердым телом играет определяющую роль в формировании неупругих потерь энергии и, соответственно, электронных тормозных способностей dE/dx . Предложено оценивать величины dE/dx , используя связь сечений возбуждения автоионизационных состояний с сечениями ионизации. Для случаев, когда сечения ионизации неизвестны, используется скейлинг для расчета сечений ионизации при возбуждении L- и M-оболочек. Предсказано пороговое поведение dE/dx от энергии бомбардирующих ионов.

DOI: 10.1134/S0370274X18210129

1. Введение. Ионные пучки широко применяются для создания новых материалов путем ионной имплантации и ионного перемешивания. Распределение частиц по глубине зависит как от потерь энергии при столкновениях с ядрами атомов решетки, так и от потерь энергии при взаимодействии с электронной подсистемой. Как правило, для оценки электронных тормозных способностей применяются эмпирические скейлинги [1–3]. Предложенная Фирсовым теоретическая модель [4] дает значения в несколько раз меньшие, чем наблюдаемые на эксперименте [5]. На наш взгляд, отсутствие надежной теоретической модели связано с учетом вклада в неупругие потери энергии возбуждения автоионизационных состояний. Целью настоящей работы было установить вклад автоионизационных процессов в электронные тормозные способности и предложить способ его оценки.

2. Формирование автоионизационных состояний при атомных столкновениях. Общеизвестной моделью неупругого взаимодействия двух атомов при медленных атомных столкновениях является модель выдвигания молекулярных орбиталей (МО) [6].

При достижении межъядерных расстояний R_c , сравнимых с размерами L-оболочек, молекулярная орбиталь $4f\sigma$ образуется из $2p$ -уровней партнеров соударения и при межъядерном расстоянии R_c резко выдвигается вверх, где пересекает несколько верхних вакантных уровней. За счет электронных переходов с этой орбитали на вакантные уровни, орбиталь при

разлете частиц может оказаться вакантной, и образуется автоионизационное состояние. В случае столкновения двух легких атомов (например, Ne) энергия образования автоионизационного состояния составляет 20–40 эВ, для более тяжелых атомов образуются внутренние вакансии в $L_{2,3}$ -оболочке в партнере с меньшим атомным номером и неупругие потери энергии достигают несколько сот эВ. Во всех случаях автоионизационное состояние распадается путем Оже-перехода, поэтому образование автоионизационного состояния и последующая ионизация взаимосвязаны.

Неупругие потери, обусловленные возбуждением M-оболочек, исследовались в [7]. Было обнаружено, что в спектрах потерь энергии появляются дискретные линии с разными порогами возбуждения. В случае возбуждения M-оболочки имеет место выдвигание нескольких орбиталей ($5f\sigma$, $5g\sigma$, $6h\sigma$ и т.д.), что также приводит к образованию автоионизационных состояний.

Таким образом, можно констатировать, что основным механизмом формирования неупругих потерь при парных столкновениях частиц кэВ-энергий является образование и Оже-распад автоионизационных состояний, что приводит к ионизации партнеров соударения.

3. Вклад возбуждения автоионизационных состояний в электронную тормозную способность. Электронная тормозная способность и неупругие потери энергии при столкновении связаны выражением:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{2\pi}{V_0} \int [Q_0 + Q_1] b db. \quad (1)$$

¹⁾e-mail: zinoviev@inprof.ioffe.ru

V_0 – объем одного атома в твердой мишени. Член Q_0 связан с возбуждением плазмонов и других возбуждений при прохождении частицы через вещество, а член Q_1 отражает вклад ионизации частиц. Далее мы будем рассматривать только вклад процесса ионизации, т.е. член Q_1 .

Вклад в электронную тормозную способность dE/dx формирования автоионизационных состояний может быть описан как:

$$\begin{aligned} \frac{dE}{dx} &= \frac{2\pi}{V_0} \int Q_1[R_0(b)]b db \approx \\ &\approx \frac{2\pi}{V_0} \sum_{nlj} Q_{1nlj} \int W_{nlj}(R_0)b db. \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь суммирование производится по всем выдвигающимся МО с квантовыми числами n, l, j . Значения Q_{1nlj} – энергии автоионизационных состояний, W_{nlj} – вероятность образования автоионизационного состояния при достижении межъядерного расстояния R_0 , b – параметр удара. Связь между параметром удара b и расстоянием наибольшего сближения R_0 задается уравнением $b = R_0 \times [1 - U(R_0)/E_{cm}]^{1/2}$, где $U(R)$ – потенциал взаимодействия, E_{cm} – энергия соударения в системе центра масс. Мы использовали потенциал взаимодействия, предложенный в [8], как наилучшим образом описывающий эксперименты по рассеянию атомов.

Парциальные сечения ионизации σ_{nlj} рассчитывались по формуле:

$$\sigma_{nlj} = 2\pi N \int W_{nlj}(R_0)b db, \quad (3)$$

где N – число электронов, покидающих атом при распаде вакансий. Обычно $N = 1-1.4$, согласно измерениям [9]. Дополнительное (к одному Оже-электрону) количество электронов возникает из-за эффекта встряски при Оже-распаде вакансии. Если используется сечение образования L-вакансий, полученное путем измерения спектра характеристических Оже-электронов, $N = 1$. Наконец, уравнение (2) можно переписать следующим образом:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{2\pi}{V_0} \sum_{nlj} Q_{1nlj} \sigma_{nlj}. \quad (4)$$

Поэтому для оценки вклада автоионизационных процессов в dE/dx нам нужно знать значения Q_{1nlj} и парциальные сечения ионизации σ_{nlj} .

4. Сравнение тормозных способностей, полученных в рамках автоионизационной модели, с базой данных SRIM. Сравнение величин

dE/dx , взятых из базы данных SRIM [3] и полученных из нашей оценки, согласно формуле (4), представлено на рис. 1, 2. Как уже упоминалось, данные этой базы являются эмпирическим скейлингом имеющихся экспериментальных данных, которых при энергии соударения менее 100 кэВ крайне мало.

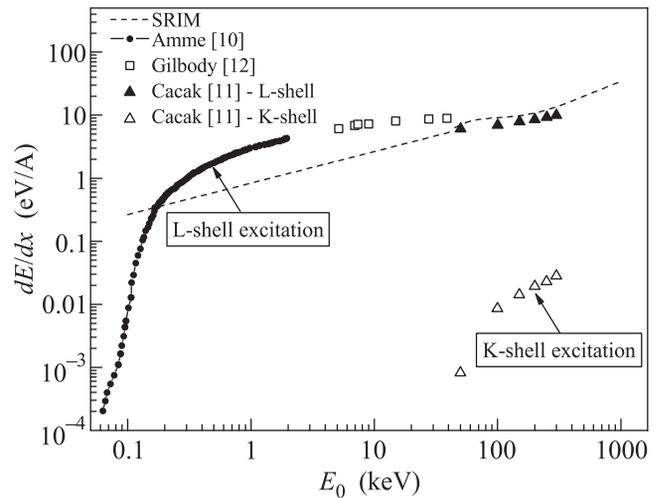


Рис. 1. Сравнение электронной тормозной способности для системы Ne^+-Ne (твердое тело), полученной нами (точки), с базой данных SRIM [3] (штриховая линия). Использованы сечения ионизации из работ: заполненные кружки – работа [10], открытые квадраты – [11], сплошные треугольники – данные работы [11] для L-оболочки. Показана также наша оценка вклада ионизации K-оболочки (открытые треугольники – данные работы [11])

Сечение ионизации для случая Ne^+-Ne было получено с использованием данных [10–13]. Величина $Q = 45$ эВ взята из работы [14]. Как видно из рис. 1, существует удовлетворительное согласие со значениями, полученными из базы данных SRIM. Автоионизационная модель дает значения, превышающие данные SRIM, и что принципиально надо отметить, предсказывает пороговый характер зависимости dE/dx , поскольку неупругие потери энергии возрастают скачкообразно при достижении межъядерных расстояний, необходимых для образования автоионизационных состояний. На рисунке 1 показан также вклад ионизации K-оболочки.

В качестве другого примера мы выбрали столкновение ионов аргона с твердым аргоном (рис. 2). Для случая Ar^+-Ar полные сечения ионизации были взяты из [11–13, 15]. В случае M-оболочки энергии образования автоионизационного состояния для столкновений Ar^+-Ar были измерены в [7]. Наблюдались состояния с энергиями 14, 28 и 50 эВ. Также был учтен

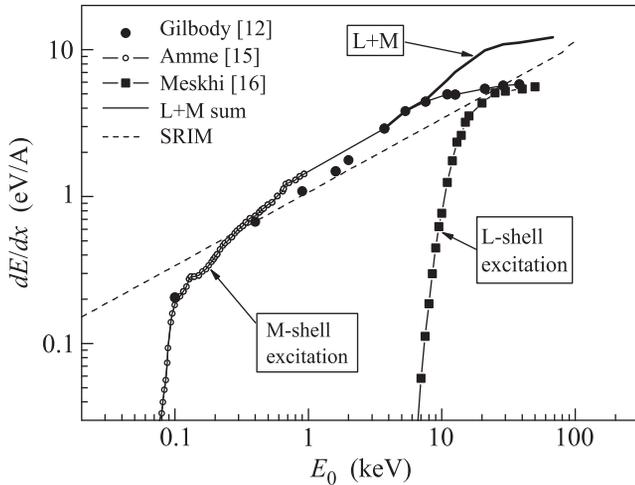


Рис. 2. Сравнение электронной тормозной способности для системы $\text{Ag}^+ - \text{Ag}$ (твердое тело), полученной нами (сплошная линия), с базой данных SRIM [3] (штриховая линия). Используются сечения ионизации из работ: заполненные кружки – работа [12], открытые кружки – [15], сплошные квадраты – данные работы [16] для L-оболочки. Показан также вклад образования вакансий в $L_{2,3}$ -оболочке. Сплошной жирной линией показана сумма вкладов возбуждения L- и M-оболочек

вклад образования вакансий в $L_{2,3}$ -оболочке. Сечение образования $L_{2,3}$ -вакансий было получено из эксперимента по эмиссии электронов при Оже-распаде $L_{2,3}$ -вакансии [16]. Энергия образования L-вакансии принималась равной 340 эВ [17]. Сплошной линией на рис. 2 показана сумма вклада в dE/dx возбуждения L- и M-оболочек. Как видно, возбуждение L-оболочки увеличивает значение dE/dx . Рисунок также демонстрирует пороговое поведение dE/dx .

В обоих изученных случаях (рис. 1, 2) наш подход предсказывает доминирующий вклад процессов ионизации в величину dE/dx .

5. Использование скейлинга для оценки сечений ионизации. Важным следствием продемонстрированной выше применимости автоионизационной модели является возможность ее использования для расчета тормозных способностей для разных не исследованных ранее экспериментально комбинаций “бомбардирующий ион – твердое тело”.

В случаях, когда сечение ионизации L-оболочки неизвестно, его можно оценить с использованием скейлинга (масштабирования), предложенного в нашей работе [18]. Вероятность образования L-вакансии при достижении межъядерного расстояния R_0 может быть описана выражением:

$$W(R_0) = \frac{1}{\beta + \exp\left[\gamma \cdot \left(\frac{R_0}{R_c} - 1\right)\right]}, \quad (5)$$

где $\beta = 1.02$ и $\gamma = 22.8$. Параметр R_c определяется из условия $W(R_c) = 0.5$ и соответствует межъядерному расстоянию, при котором $4f\sigma$ -орбиталь пересекается с незаполненными верхними уровнями. На рисунке 3 представлена зависимость параметра R_c от суммы зарядов ядер сталкивающихся частиц. Данная зависимость была получена в [18] на основе обработки имеющихся экспериментальных данных о порогах возбуждения $L_{2,3}$ оболочке при столкновениях атомных частиц, как в газовой, так и в твердой фазе. Полученная зависимость хорошо согласуется с результатами расчетов поведения МО [19–21] в зависимости от межъядерного расстояния.

Таким образом, сечение ионизации, связанное с возбуждением $L_{2,3}$ -оболочки, может быть получено следующим образом: вначале определяется значение R_c из данных на рис. 3, затем сечение ионизации рас-

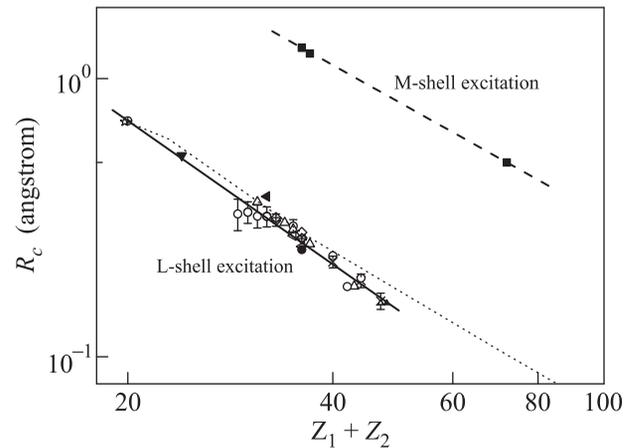


Рис. 3. Зависимость параметра R_c от суммы зарядов ядер $Z_1 + Z_2$ партнеров столкновения. Сплошная линия – универсальная зависимость для L-вакансий, предложенная в работе [18]. Используются данные экспериментов в газовой фазе (открытые точки) и при столкновениях с твердым телом (закрашенные точки). Детальное описание использованных данных дано в работе [18]. Полученная универсальная зависимость для L-вакансий хорошо согласуется с результатами расчетов молекулярных орбиталей [19–21] (пунктирная линия). Штриховой линией приведена аналогичная зависимость для возбуждения M-оболочек, полученная в данной работе

считывается с использованием формул (3), (5). Величины энергии образования $L_{2,3}$ -вакансии могут быть получены из измерений [17, 22]. В случае асимметричных пар следует учитывать, что L-вакансии об-

разуются в партнере с меньшим Z . Как показано в [18], данный подход позволяет описать как сечение ионизации для столкновений Ne-Ne, так и сечения образования $L_{2,3}$ -вакансий в случае Ar-Ar. При этом сечение ионизации описывается универсальной кривой при нормировке сечений на фактор NR_c^2 , а шкала энергий нормируется на фактор $U(R_c)/E_{cm}$.

Аналогичный подход может быть использован для оценки сечения ионизации в случае возбуждения M-оболочки. Сечения ионизации в данном случае известны только для столкновений Ar^+-Ar и Kr^+-Kr . Для столкновений Ar^+-Ar наблюдались автоионизационные состояния с энергиями 14, 28 и 50 эВ [7]. В случае K^+-Ar соответствующие энергии состояний составляют 26, 28.5 и 30.5 эВ [23]. Энергия состояния в случае возбуждения $3d$ -оболочки при столкновениях Kr^+-Kr составляет 130 эВ [9]. Известны также пороги возбуждения M-оболочки для указанных случаев, они приведены на рис. 3 пунктирной линией. Поскольку характер зависимости $W(R_0)$ в случае образования $3d$ -вакансий аналогичен рассмотренному выше случаю образования $L_{2,3}$ -вакансий, формулы (3), (5) могут быть использованы для оценки сечения ионизации в случае возбуждения M-оболочки.

6. Выводы.

1. Формирование электронной тормозной способности при столкновениях медленных ионов с твердым телом связано главным образом с возбуждением автоионизационных состояний во взаимодействующих атомах.

2. Предложен алгоритм оценки вклада возбуждения автоионизационных состояний в электронную тормозную способность с использованием величин энергии образования автоионизационного состояния и сечения ионизации. Для случаев, когда сечение ионизации неизвестно, его значение может быть оценено с использованием предложенного нами скейлинга.

3. Рассмотренная нами автоионизационная модель предсказывает пороговый характер зависимости dE/dx , поскольку неупругие потери энергии возрастают скачкообразно при достижении межъядерных расстояний, необходимых для образования автоионизационных состояний.

1. C. C. Montanari and P. Dimitriou, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B **408**, 50 (2017).
2. H. Paul, AIP Conference Proceedings **1525**, 295 (2013).
3. J. F. Ziegler and J. P. Biersack, SRIM – <http://www.srim.org>.
4. O. B. Firsov, Sov. Phys. JETP **36**, 1517 (1959).
5. P. Yu. Babenko and A. P. Shergin, Tech. Phys. **54**, 958 (2009).
6. U. Fano and W. Lichten, Phys. Rev. Lett. **14**, 627 (1965).
7. D. J. Bierman and W. C. Turkenburg, Physica **67**, 533 (1973).
8. A. N. Zinoviev, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B **269**, 829 (2011).
9. V. V. Afrosimov, Yu. S. Gordeev, A. M. Polansky, and A. P. Shergin, Tech. Phys. **41**, 134 (1972).
10. H. C. Hayden and R. C. Amme, Phys. Rev. **141**, 30 (1966).
11. R. K. Cacak and T. Jorgensen, Phys. Rev. A **2**, 1322 (1970).
12. H. B. Gilbody, J. B. Hasted, and D. Phil, Proc. Roy. Soc. A **240**, 382 (1957).
13. H. B. Gilbody, J. B. Hasted, J. V. Ireland, A. R. Lee, E. W. Thomas, and A. S. Whiteman, Proc. Roy. Soc. A **274**, 40 (1963).
14. F. Xu, G. Manico, F. Ascione, A. Bonanno, A. Oliva, and R. A. Baragiola, Phys. Rev. A **57**, 1096 (1998).
15. P. O. Haugsjaa and R. C. Amme, J. of Chem. Phys. **52**, 4874 (1970).
16. G. G. Meschi, *PhD thesis, Features of radiative and Auger decay of inner-shell vacancies formed in atomic collisions*, Ioffe Institute, Leningrad (1983).
17. V. V. Afrosimov, Yu. S. Gordeev, A. M. Polyanskii, and A. P. Shergin, JETP **36**, 418 (1973).
18. P. Yu. Babenko, A. N. Zinoviev, and A. P. Shergin, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **354**, 142 (2015).
19. J. Mace, M. J. Gordon, and K. P. Giapis, Phys. Rev. Lett. **97**, 257603 (2006).
20. D. Schneider, G. Nottle, U. Wille, and N. Stolterfoht, Phys. Rev. A **28**, 161 (1983).
21. J. Eichler, U. Wille, B. Fastrup, and K. Taulbjerg, Phys. Rev. A **14**, 707 (1976).
22. B. Fastrup, G. Hermann, and K. J. Smith, Phys. Rev. A **3**, 1591 (1971).
23. V. V. Afrosimov, Yu. S. Gordeev, and V. M. Lavrov, JETP **41**, 860 (1975).