

# Кинетика точечных дефектов и процессы аморфизации в тонких пленках при облучении

© И.А. Овидько, А.Б. Рейзис

Институт проблем машиноведения Российской академии наук,  
199178 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: ovidko@def.ipme.ru

(Поступила в Редакцию 11 февраля 2003 г.)

Предложена теоретическая модель для описания эволюции ансамбля точечных дефектов (вакансий и межузельных атомов) и ее влияния на процессы твердофазной аморфизации в облучаемых кристаллических тонких пленках. Предлагаются уравнения кинетики точечных дефектов в облучаемых тонких пленках в случае отсутствия ионной имплантации. С помощью численного решения данного кинетического уравнения проведен расчет температурной зависимости „дозы начала аморфизации“, которая сравнивается с соответствующими экспериментальными данными.

Настоящая работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 01-02-16853) и программы „Интеграция“ (грант Б0026).

Структурные и фазовые трансформации в твердых телах при облучении являются предметом интенсивных исследований. Особый интерес представляет эффект индуцируемой облучением аморфизации (фазового перехода „кристалл–стекло“) в первоначально кристаллических твердых телах [1–11], который имеет высокую технологическую значимость. Индуцируемая облучением аморфизация является многофакторным процессом, который, в частности, зависит от радиационной дозы, природы и энергии падающих частиц, микроструктуры и химического состава облучаемых твердых тел. В связи с этим анализ поведения точечных дефектов, которые обычно определяют образцом влияют на индуцированную облучением аморфизацию, заслуживает особого внимания для выявления основных закономерностей такой аморфизации.

Основная цель настоящей работы — построение теоретической модели, описывающей кинетику ансамбля точечных дефектов (вакансий и межузельных атомов (МУА)), и ее влияния на процессы твердофазной аморфизации в облучаемых тонких пленках. В рамках предлагаемой модели проводится расчет температурной зависимости „дозы начала аморфизации“ (радиационной дозы, необходимой для начала процессов твердофазной аморфизации) в облучаемых пленках. Результаты модели сравниваются с данными эксперимента [1] по облучению монокристаллической пленки  $Al_2O_3$  ионами Kr и Xe.

## 1. Кинетика ансамбля вакансий и межузельных атомов в облучаемых кристаллических пленках

Рассмотрим тонкую пленку, облучаемую высокоэнергетическими ионами. Такие ионы в своем большинстве „пробивают насквозь“ тонкие пленки, что обуславливает отсутствие заметного числа имплантированных (при

облучении) ионов [1]. Как следствие, в рассматриваемой ситуации на процессы аморфизации в облучаемых тонких пленках значимое влияние оказывает эволюция только таких точечных дефектов как вакансии и МУА, которые интенсивно образуются под воздействием облучения. С учетом этого в настоящей работе в первом приближении ограничимся рассмотрением эволюции скалярных плотностей  $\phi$  вакансий и  $\psi$  МУА в облучаемых тонких кристаллических пленках.

Исследуем поведение точечных дефектов в облучаемых пленках с помощью методов физической теории кинетики дефектов (например, [12,13]). В рамках предлагаемой модели кинетика ансамбля точечных дефектов описывается следующими уравнениями:

$$d\phi/dt = A - B\phi - C\phi\psi, \quad (1)$$

$$d\psi/dt = F - G\psi - C\phi\psi, \quad (2)$$

где  $t$  — время облучения,  $A, B, C, F$  и  $G$  — положительные параметры, не зависящие от времени. Первое слагаемое в правой части кинетического уравнения (1) характеризует генерацию точечных дефектов под действием облучения. При этом параметр  $A$  определяется как скорость (или интенсивность) генерирования точечных дефектов и измеряется в единицах  $dra/s$  („неупругие смещения на атом в секунду“).  $F = \alpha A$ , где коэффициент  $\alpha = 0.7$  учитывает уменьшение плотности только что выбитых МУА за счет распыления (выбивания за пределы пленки).

Второе слагаемое в правой части (1) описывает уменьшение плотности  $\phi$  мигрирующих вакансий за счет их ухода на свободную поверхность пленки. При этом модельный параметр  $B \approx 1/\tau_v^*$ , где  $\tau_v^*$  представляет собой среднее время жизни вакансии в модельной ситуации, когда мигрирующие вакансии уничтожаются исключительно вследствие их ухода на свободную поверхность. Аналогичным образом в уравнении (2) слагаемое  $-G\psi$  описывает уменьшение плотности  $\psi$  мигрирующих

МУА. Здесь модельный параметр  $G \approx 1/\tau_i^*$ , где  $\tau_i^*$  — среднее время жизни МУА. В общем случае  $\tau_v^* \approx l^*/\langle V_v \rangle$  и  $\tau_i^* \approx l^*/\langle V_i \rangle$ , где  $l^*$  — средняя длина свободного пробега точечного дефекта,  $\langle V_v \rangle$  и  $\langle V_i \rangle$  — средняя скорость соответственно вакансий и МУА в рассматриваемой модельной ситуации. Согласно [14], средние скорости точечных дефектов зависят от температуры  $T$  следующим образом:

$$V_v = \tilde{V} \exp(-\varepsilon_{mv}/kT) \quad (3)$$

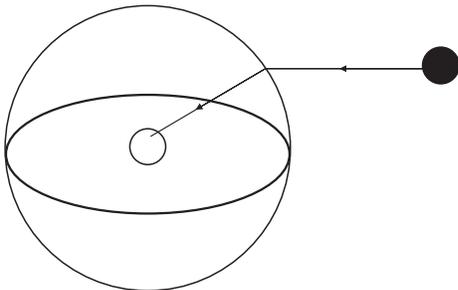
и

$$V_i = \tilde{V} \exp(-\varepsilon_{mi}/kT). \quad (4)$$

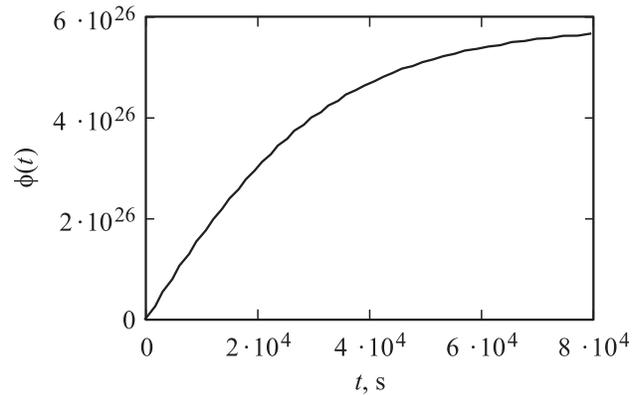
Здесь  $\tilde{V}$  — скорость миграции точечных дефектов при  $T = 0^\circ \text{K}$ ,  $\varepsilon_{mv}$  и  $\varepsilon_{mi}$  — энергия активации миграции вакансий и МУА соответственно,  $k$  — постоянная Больцмана. Средняя длина свободного пробега  $l^*$  считается одинаковой для вакансий и МУА и в случае монокристаллической пленки приближенно равна  $3/2h$ , где  $h$  — толщина пленки.

Третье слагаемое в правых частях уравнений (1) и (2) описывает аннигиляцию вакансий и МУА. Для выявления зависимости параметра  $C$  от структурных характеристик облучаемой тонкой пленки рассмотрим модельную ситуацию, в которой точечные дефекты уничтожаются исключительно вследствие их аннигиляции. При этом, поскольку средняя скорость  $V_v$  миграции вакансий существенно меньше средней скорости  $V_i$  миграции МУА (например, [14]), будем полагать МУА мобильными точечными дефектами, которые: перемещаясь по кристаллу, „сталкиваются“ с неподвижными вакансиями. Каждое такое „столкновение“ приводит к аннигиляции вакансий и МУА. В рамках данных представлений каждая вакансия характеризуется так называемой областью захвата — сферической областью (с центром в месте расположения вакансии и радиусом  $r$ ), при попадании внутрь которой движущийся МУА притягивается к вакансии вследствие упругого взаимодействия (рис. 1), что сопровождается их аннигиляцией.

Поскольку в рассматриваемой модельной ситуации каждый акт аннигиляции приводит к уничтожению одной вакансии и одного МУА, слагаемое, описывающее в каждом из кинетических уравнений (1) и (2) убыль



**Рис. 1.** Мигрирующий межузельный атом (темный кружок) и вакансия (светлый кружок) с ее областью захвата (сфера радиуса  $r$ ).



**Рис. 2.** Зависимость  $\phi(t)$ .

плотности точечных дефектов за счет аннигиляции, может быть записано как  $-(\psi/\tau)$ , где  $\psi$  — плотность МУА, а  $\tau$  — среднее время жизни МУА.  $\tau \approx l/V_i$ , где  $l$  есть соответствующая средняя длина свободного пробега МУА, а  $V_i$  — соответствующая средняя скорость МУА. В контексте представлений об областях захвата вблизи вакансий (рис. 1) средняя длина свободного пробега мигрирующего МУА приближенно есть  $l \approx 1/\pi r^2 \phi$ , где  $\pi r^2$  — площадь сечения области захвата, связанной с одной вакансией, а  $\phi$  — плотность ансамбля вакансий (и, следовательно, областей захвата). С учетом этого модельный параметр  $C$  задается следующим выражением:

$$C \approx \tilde{V} \pi r^2 \exp(-\varepsilon_{mi}/kT). \quad (5)$$

Вернемся к анализу кинетических уравнений (1) и (2). Их решение может быть найдено только в численном виде. При этом используются следующие начальные условия [15].

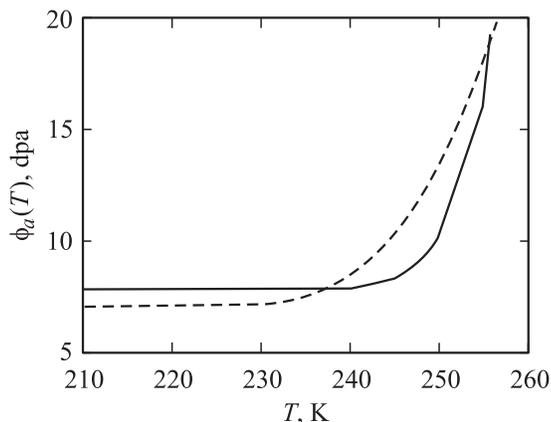
$$\phi_0 \approx \rho \cdot \exp(-27T_m/T), \quad (6)$$

$$\psi_0 \approx \rho \cdot \exp(-9T_m/T), \quad (7)$$

где  $\rho$  — плотность атомов в кристалле,  $T_m$  — температура плавления. На рис. 2 приведена типичная кривая  $\phi(t)$ , задаваемая формулами (1)–(7) для следующих значений величин:  $\varepsilon_{mi} \approx 4kT_m$ ,  $\varepsilon_{mv} \approx 8kT_m$ ,  $r \approx 3a$  ( $a = 3 \cdot 10^{-10} \text{m}$ ),  $\tilde{V} \approx n_k \omega_0 a \approx 3 \cdot 10^3$  ( $n_k = 10$ ,  $\omega_0 = 10^{12} \text{c}^{-1}$ ) [14],  $\rho = 1.17 \cdot 10^{29}$ ,  $T \approx 0.2T_m$ ,  $A = 0.0017 \text{dpa/s}$  [1] и толщины пленки (соответствующей эксперименту [1])  $h \approx 100 \text{nm}$ .

## 2. Температурная зависимость дозы начала аморфизации

Обсудим роль точечных дефектов в процессах аморфизации, индуцированной облучением. Накопление точечных дефектов в облучаемом кристалле сопровождается увеличением плотности свободной энергии (или другого соответствующего термодинами-



**Рис. 3.** Теоретическая (сплошная кривая) и экспериментальная (штриховая кривая) зависимость дозы начала аморфизации от температуры:  $\phi_a(T)$ .

ческого потенциала) кристаллической фазы. Согласно [9,16–19], зарождение аморфной фазы (фазовый переход „кристалл–стекло“) при облучении и других воздействиях происходит, когда плотность свободной энергии кристаллической фазы с дефектами сравнивается с разностью  $\varepsilon_{a-c}$  между плотностями энергии аморфной и бездефектной кристаллических фаз. В нашем случае условие начала аморфизации в облучаемой пленке с точечными дефектами задается формулой

$$\phi \cdot \varepsilon_v + \psi \cdot \varepsilon_i = \varepsilon_{a-c}. \quad (8)$$

Согласно [20],  $\varepsilon_v = Ga^3/2$  и  $\varepsilon_i = 3Ga^3$ , где  $G$  — модуль сдвига. В случае когда исходная плотность точечных дефектов невысока,  $\varepsilon_{a-c} \approx G/83 - G/63$  [21].

Проведем в рамках предлагаемой модели расчет температурной зависимости дозы начала аморфизации — величины, которая часто измеряется в экспериментах по наблюдению индуцированной облучением аморфизации (например, [1]). В нашей трактовке доза начала аморфизации определяется как плотность  $\phi_a = At_a$  вакансий, зародившихся в кристаллической пленке под действием облучения за период облучения  $[0, t_a]$ , где  $t_a$  — момент времени начала процесса аморфизации. При этом  $t_a$  приближенно находится из условия (8) при  $t = t_a$ .

На рис. 3 приведены температурные зависимости дозы начала аморфизации  $\phi(T)$ , численно рассчитанные с помощью формул (1)–(8) для случая монокристаллической пленки  $Al_2O_3$ , облученной ионами Kг и Хе с энергией 600 и 900 keV, соответственно. Толщина пленки в эксперименте составляла 100 nm, поток ионов  $10^{18} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , температура облучения 90–300 К. Данные зависимости, рассчитанные в рамках теоретической модели, удовлетворительно количественно согласуются с соответствующей зависимостью  $\phi_a(T)$ , полученной в эксперименте [1] с пленками  $Al_2O_3$  под облучением (рис. 3).

Таким образом, в настоящей работе получено теоретическое описание влияния трех основных процессов

(генерирование точечных дефектов под воздействием облучения, аннигиляция точечных дефектов, „уход“ точечных дефектов на свободную поверхность) на эволюцию ансамбля точечных дефектов — вакансий и МУА — и процессы твердофазной аморфизации в облучаемых тонких пленках. Решение кинетических уравнений (1) и (2), которые учитывают указанные процессы, служит эффективной основой для расчета дозы начала аморфизации (измеряемой в экспериментах величины). Температурная зависимость дозы начала аморфизации, рассчитанная в рамках предложенной в настоящей работе модели, удовлетворительно согласуется количественно с экспериментальными данными [1] по измерению соответствующей зависимости в пленках  $Al_2O_3$  под облучением.

## Список литературы

- [1] H. Abe, Sh. Yamamoto, H. Naramoto, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. **B127/128**, 170 (1997).
- [2] В.А. Скуратов, А.Е. Ефимов, Д.Л. Загорский. ФТТ **44**, 1, 165 (2002).
- [3] В.Р. Галахов, Д.А. Зацепин, Л.В. Елохина, Т.А. Бельх, Е.А. Козлов, С.В. Наумов, В.Л. Арбузов, К.В. Шальнов, М. Нойманн. ФТТ **44**, 7, 1318 (2002).
- [4] F. Banhart. ФТТ **44**, 3, 388 (2002).
- [5] D. Pacifici, E.C. Moriera, G. Franzo, V. Martorino, F. Priolo F. Iacona. Phys. Rev. B **65**, 14, 144 109 (2002).
- [6] J. Yamasaki, Seiji Takeda, K. Tsuda. Phys. Rev. B **65**, 11, 115 213 (2002).
- [7] S.X. Wang, L.M. Wang, R.C. Ewing. Phys. Rev. B **63**, 115 213 (2000).
- [8] A. Meldrum, L.A. Boatner, R.C. Ewing. Phys. Rev. Lett. **88**, 2, 025 503 (2002).
- [9] D.F. Pedraza. J. Less-Common Met. **140**, 219 (1988).
- [10] M. Rose, G. Gorzawski, G. Miehe, A.G. Balogh, H. Hahn. Nanostruct. Mater. **6**, 731 (1995).
- [11] M. Rose, A.G. Balogh, H. Hahn. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. **B127/128**, 119 (1997).
- [12] Г.А. Малыгин. УФН **169**, 9, 979 (1999).
- [13] Г.А. Малыгин. ФТТ **44**, 11, 1979 (2002).
- [14] В.И. Владимиров. Физическая теория пластичности и прочности. Ч. II. Точечные дефекты. Упрочнение и возврат. Изд-во ЛПИ, Л. (1975).
- [15] Ю.В. Трушин. Физические основы радиационного материаловедения. Изд-во СПбГТУ, СПб (1998). 81 с.
- [16] И.А. Овидько, А.Б. Рейзис. Неорган. материалы **35**, 6, 766 (1999).
- [17] I.A. Ovid'ko, A.B. Reizis. J. Phys. **D32**, 22, 2833 (1999).
- [18] М.Ю. Гуткин, И.А. Овидько. Дефекты и механизмы пластичности в нанокристаллических и некристаллических материалах. Янус, СПб (2001). 178 с.
- [19] М.Ю. Gutkin, I.A. Ovid'ko. Phys. Rev. B **63**, 6, 064515 (2001).
- [20] Ж. Фридель. Дислокации. Мир, М. (1967). 643 с.
- [21] R.G. Morris. J. Appl. Phys. **50**, 10, 3250 (1979).