

低エネルギー原子衝突における電子的阻止能のZ依存性

中川 幸子・竹内 智子・大石 勝己

岡山理科大学理学部応用物理学科

(1992年9月30日 受理)

1. はじめに

固体中への低エネルギー重イオン注入においては、イオンは主として結晶原子の原子核との弾性衝突によってそのエネルギーを失う。しかしそれだけでは説明不十分な例として、シリコンへのイオン (Z_1) の注入深さ R_p (射影飛程) に見られる振動的な Z_1 依存性 (Z_1 -range-oscillation) がある^(1,2)。その振動的Z依存性は周期率表に見られる個々のイオンの外殻電子構造の周期性と相関が高く、 R_p の実験値はイオンの種類によってはその期待値から最大±20%もずれている。仮に固体中での弾性衝突を良く記述する一般的な原子間ポテンシャルを用い得たとしても、計算値と実験値のずれは入射イオンのエネルギーが低いほど顕著であることが確認され、これは各イオンの外殻電子構造に密接に関係していると解釈されている⁽³⁾。ここでいう低エネルギーとは LSS 簡約単位系⁽⁴⁾での $0.01 < \epsilon < 0.1$ で、 $Z_1 \rightarrow \text{Si}$ 系について言えば、そのエネルギー下限は、670eV (Ar) ~ 19keV (U)、上限は6.7 keV (Ar) ~ 190keV (U) に相当する。以下入射イオンを単にイオン、固体中の標的原子を単に原子と略して呼ぶこととする。

我々は既に精度の高い原子間ポテンシャルを導き、それを元に弾性衝突におけるイオンの原子的特性を考慮した。しかし核的阻止断面積 S_n に含まれるZ依存性を差し引いても、残る約±10%の Z_1 振動分を説明できるには至っていない⁽⁵⁾。このような低エネルギーで起こり得る、しかもエネルギーが低いほどその強度を増すようなイオンと原子の相互作用としては、可能な過程としてイオンと原子間の電子遷移(電荷移行)^(6,7)がある。Rapp⁽⁷⁾によって、等核原子間の共鳴的電荷移行 (Resonance) においては電子的阻止断面積 S_e が速度に反比例し、異核衝突においても電荷移行の起こる2軌道間のエネルギー差が余り大きくない限り、限定されたエネルギーの範囲では、 S_e に同様の速度依存性があることが明らかにされている。従ってここでは電荷移行モデルに従って、 S_e という量を通してイオンのエネルギー損失過程を調べ、飛程におけるZ依存性を議論することとする。ここで問題のイオン速度はシリコンのフェルミ速度 ($v_F = 0.974v_0$, v_0 : ボーア速度) より約1—2桁小さいので、当該軌道は外殻電子のそれらに限定できると考える。この報告では特に先の報告⁽⁸⁾で無視していた衝突時の準分子状態における分極効果の寄与について議論する。

2. 飛程評価と電子阻止断面積

エネルギー E_0 で固体中に注入されたイオンを考える。入射地点から減速の後、もはや固体中でイオンが近傍の原子の作るポテンシャルバリアーを破って原子変位を起こせなくなった終焉の地点エネルギー E_f に至るまでの、軌跡の全長 R_f は次のように書ける。なお固体シリコンの場合通常 $E_f = 14\text{eV}$ をとる⁽⁹⁾。原子密度 N の固体中で個々の2体衝突での阻止断面積を $S = S_e + S_n$ とすると、軌跡の全長 R_f は

$$R_f = \frac{1}{N} \int_{E_0}^{E_f} (-S)^{-1} dE. \quad (1)$$

イオンが原子に対して十分重ければ、それだけイオンの軌道の横方向のバラ付きが小さく直進性が良いので、実測の対象となる R_p は R_f から近似的に算定できる⁽⁴⁾。即ち原子間ポテンシャルが核間距離の $(-s)$ 巾乗に比例するような場合については (現実には $1/6 < s \ll 1$)、イオンに対する原子の質量比 μ が1より小さいとき

$$R_p = R_f \left[1 + \frac{\mu s^2}{4s(2s-1)} \right]^{-1}. \quad (2)$$

従って R_p の Z 依存性は式(1)により S のそれから演繹できるものとして、ここでは S の内、評価を持つ S_e の Z 依存性を調べる。なお速度 v 、衝突係数 b の2体衝突系において、原子と衝突するイオンに対する S_e の定義は次のとおりである。

$$S_e = 2\pi \int_0^{b_{\max}} P(b, v, R) \delta E(R) b db. \quad (3)$$

ここでは R はイオンと原子の衝突時における核間距離、 $\delta E(R)$ はイオンの遷移エネルギー、 $P(b, v, R)$ はその際電子が一方から他方に移る遷移確率を表す。 b_{\max} は原子密度 N の固体中の1原子平均占有体積に等しい体積を持つ Atomic-Wigner-Seitz 球の半径であり、 $N = (4\pi b_{\max}^3/3)^{-1}$ 、シリコンでは $b_{\max} = 1.69\text{\AA}$ である。

今衝突によって電子が原子BからイオンAに移行する capture process を考える。逆にAからBへの場合は loss-process の名前と呼ばれるが、2体衝突近似に基づく表式はAとBについて対称であるので重複を避け、また最初に述べた理由で電荷移行は二つの最外殻電子軌道間のみ起こるとして、以下2準位モデル^(7,10)を用いてイオンAの capture-process についての表式を示すこととする。

AとBの当該軌道の原子波動関数をそれぞれ χ_A と χ_B 、また当該の軌道のエネルギー固有値を $-\epsilon_A = \hbar\omega_A$ 、 $-\epsilon_B = \hbar\omega_B$ とすると、衝突時の準分子波動関数 Ψ は

$$\Psi = C_A(t) X_A(r_A) \exp(-i\omega_A t) + C_B(t) X_B(r_B) \exp(-i\omega_B t). \quad (4)$$

これの従う時間依存の Schrodinger 方程式から、 $C_A(t)$ 、 $C_B(t)$ についての Coupled equation を得る^(7,8)。即ち $\omega = \omega_A - \omega_B$ として

$$\begin{aligned} i\dot{C}_A(t) &= \eta_2(t)C_A(t) + \kappa_2(t)\exp(-i\omega t)C_B(t), \\ i\dot{C}_B(t) &= \kappa_1(t)\exp(i\omega t)C_B(t) + \eta_1(t)C_B(t). \end{aligned} \quad (5)$$

ここで κ_1 , κ_2 , η_1 , η_2 は時間に依存した電子相関項である^(7,8)。 $C_A(0) = 0$, $C_B(0) = 1$ を初期条件として、この時間依存方程式を解くことにより得る $t = \infty$ での解 $|C_A(\infty)|^2$ が、式(3)の求める遷移確率 P であり、同式から S_e が得られる。

更にここでは前の報告⁽⁸⁾で無視していた分極効果、即ち互いに他の原子核の持つクローン場の影響による摂動を、衝突時における準分子状態の軌道エネルギー間のエネルギー差 $\delta E(R) = \hbar(\omega_+ - \omega_-)$ として評価した。 $\delta E(R)$ は衝突の際の時々刻々の核間距離 R の関数であって、

$$\begin{aligned} \delta E(R) = \hbar(\omega_+ - \omega_-) &= \frac{1}{1-F^2} \sqrt{[\hbar(\omega_A - \omega_B)(1-F^2) + U_{ABA} - U_{BAB} + F(U_{ABA} - U_{BBA})]^2} \\ &\quad + \sqrt{4(FU_{ABA} - U_{BBA})(FU_{BAB} - U_{AAB})} \end{aligned} \quad (6)$$

ここに

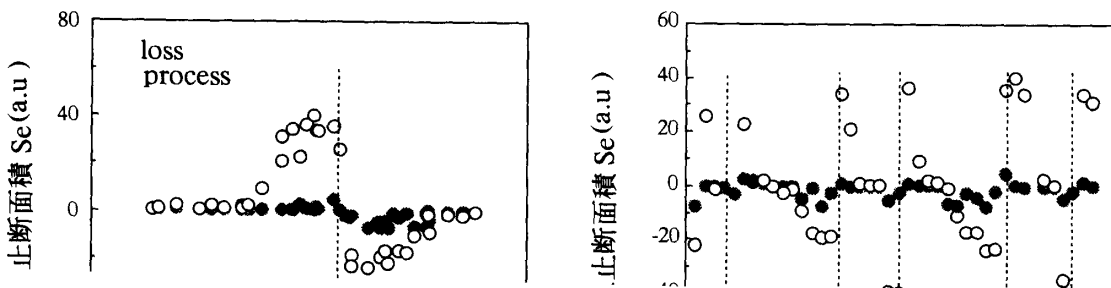
$$\begin{aligned} U_{jkm} &= \int X_k U(r_j) X_m d\tau, \\ F &= \int X_A X_B d\tau \end{aligned} \quad (7)$$

すなわち、分極効果を含めるときは $\delta E(R) = \hbar(\omega_+ - \omega_-)$ 、含めないときは $\delta E(R) \equiv \delta E_0 = \hbar(\omega_A - \omega_B) = \text{constant}$ である。

なお当該の最外殻軌道の波動関数としては、 $X(r; n, l, m) = Cr^{n-1} e^{-\nu r} Y_{lm}$ の STO 型波動関数⁽¹¹⁾を用いる。 C は規格化定数である。その理由は、一連の ν と原子番号 Z と軌道のエネルギー固有値 ϵ の $\sqrt{\epsilon}$ の間には、各量子数 (n, l) のグループ毎に良い線形性が有るため、個々の原子の特性 (Z 依存性) が単一のパラメータ ν の依存性として議論できることにある⁽⁸⁾。

3. 結 果

ここで行なった数値計算は、イオンと原子の衝突において S_e と S_n が分離できるとした前提に立って、速度一定のイオンが直線軌道 (rectilinear trajectory) をとるとする。さらに、 Z 依存性を調べる適宜な速度としては、まず $v = 10^7 \text{ cm sec}^{-1}$ を選ぶ。その理由は最初に述



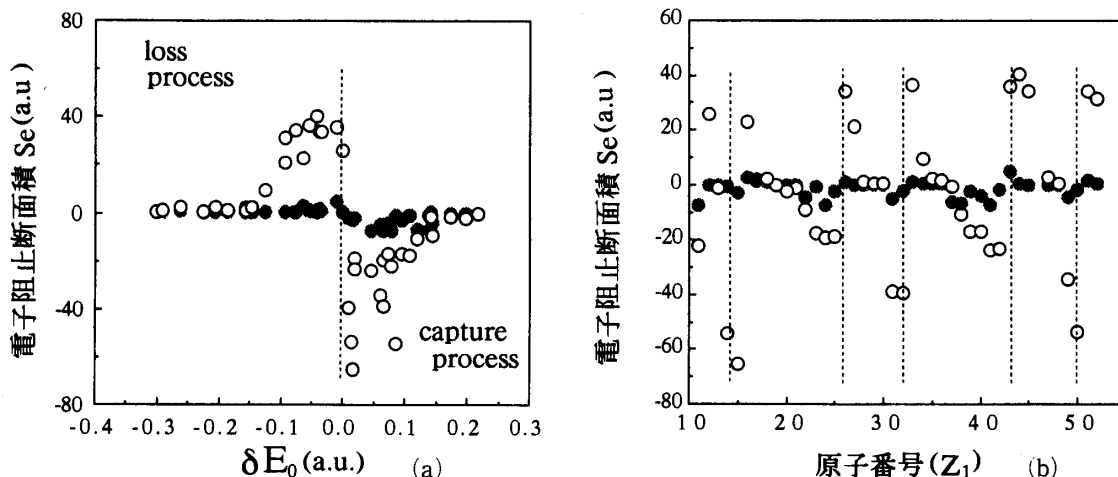


図3 Z-Si に於ける S_e の δE_0 依存性 (a), および Z_1 依存性 (b)。破線は $\delta E_0 = 0$ を示す。
●は分極を無視した結果, ○は分極を考慮した結果。

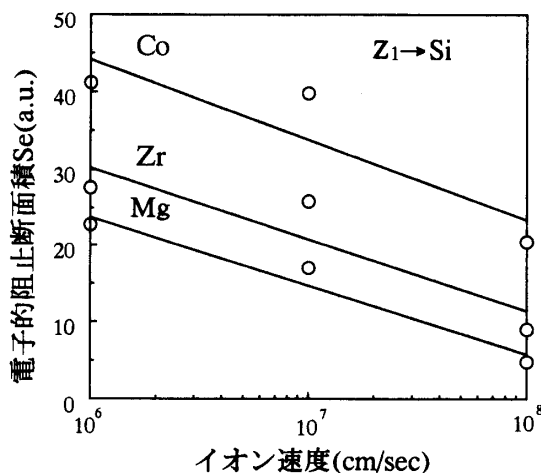


図4 異核衝突における S_e の速度依存性。

resonance (b) ($\omega_A \sim \omega_B$), loss (c) ($\omega_A > \omega_B$) の各プロセスの例として図1にプロットしたのは、衝突係数 b の関数としての $\delta E(R)$ の最大値の絶対値 $\delta E(b)$ である。near-resonance の場合、 $\delta E(b)$ の値は小さいものの、かなり大きい衝突係数においても最大値に近い $\delta E(b)$ を示すのがその特徴である。更に各衝突系 $Z_1 \rightarrow Si$ について、分極を考慮した場合のそれら $\delta E(b)$ のうちの最大値 (○) を、それを無視した場合の値 (●) との比較によって示しているのが図2である。その効果は顕著である。なお点線はターゲットのシリコン原子の軌道エネルギー、 $-0.24 \text{ hartree}^{(12)}$ 、に一致する共鳴条件を示している。この図から分極効果を入れることにより、その遷移エネルギーの差が増幅される様子が明らかになった。

3-2. 電子的阻止断面積 S_e 。

図3 (a) は、イオン速度 $v = 10^7 \text{ cm sec}^{-1}$ における S_e を、衝突原子間の外殻軌道の $R = \infty$ におけるエネルギー差 $\delta E_0 = \epsilon_A - \epsilon_B$ の関数としてプロットしたものであり、図2と同様に○が分極効果を入れた場合、●が分極を入れない結果⁽⁸⁾である。更に図3 (b) は図3 (a) の S_e をイオンの原子番号 Z_1 によって整理したものである。このことから分極効果を入れること

によって S_e が著しくシフトすること、また顕著な Z 依存性のあることが知られた。一方、当初の目的であった飛程の評価に関係した S_e の絶対値についてみると図3に示した Z の範囲で、この速度で得た S_n の値の範囲はTRIM⁽⁹⁾で近似的に見積った S_n に対して約10%弱の大きさとなり、 Z_1 振動への S_e の寄与としては、ほぼ満足できる値である。

更に速度依存性を調べたのが図4である。Rapp⁽⁷⁾によっても指摘されているように、ここで扱ったような異核衝突においても電荷移行の起こる2軌道間のエネルギー差が余り大きくない限り (near resonance), S_e が速度に反比例する関係が確認できた。

4. 結 論

$Z_1 \rightarrow \text{Si}$ の異核原子衝突において観測される、低エネルギーになるほど増大する阻止断面積を説明するために、入射イオンと標的シリコン原子との間の最外殻軌道間の電荷移行過程におけるそれらを算定した。ここでは特に以前の報告において無視した準分子状態における分極効果に注目した。得られた阻止断面積は分極効果の寄与により顕著な Z_1 依存性と、更に低エネルギーでそれが一層顕著になるエネルギー依存性を示しており、実験結果の飛程の中に電荷移行過程の寄与があることを明らかにできた。

参考文献

- 1) F. Besenbacher, J. Bottiger, T. Lausen, P. Loftager and W. Muller, Nucl. Instr. Meth. 170, 183 (1980).
- 2) D. J. O'connor, B. W. Farmery, D. Chivers, and M. W. Thompson, Nucl. Instr. Meth. 178, 517 (1980).
- 3) P. F. P. Fichtner, M. Behar, C. A. Olivieri, R. P. Livi, J. P. de Souza, F. C. Zawislaki D. Fink and J. P. Biersack, Nucl. Instr. Meth. B15, 58 (1986).
- 4) J. Lindhard, M. Scharff, and H. E. Schiott, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 33, no14 (1963).
- 5) S. T. Nakagawa and Y. Yamamura, Radiation Effects 105, 239 (1988).
- 6) N. F. Mott and N. H. S. W. Massey, The theory of Atomic collisions, 3rd ed. (Oxford Science Publications 1965). chap. 16§3, chap. 21§5.
- 7) D. Rapp and W. E. Francis, J. Chem. Phys. 37, 2631 (1962).
- 8) S. T. Nakagawa, Nucl. Instr. Meth. B59/60, 18 (1991).
- 9) J. F. Ziegler and J. P. Biersack, computation code of "TRIM91" (1991).
- 10) C. Zener, Proc. Roy. Soc. London Ser. A137, 696 (1932).
- 11) E. Clementi and D. L. Raimondi, J. Chem. Phys. 38, 2686 (1963),
E. Clementi and C. Roetti, Atom. Data Nucl. Data Tables. 14, 177 (1974).
- 12) T. A. Carlson, C. C. Lu, T. C. Tucker, C. W. Nestor, Jr., and F. B. Malik, ORNL-4614 UC-34-Physics (1970).

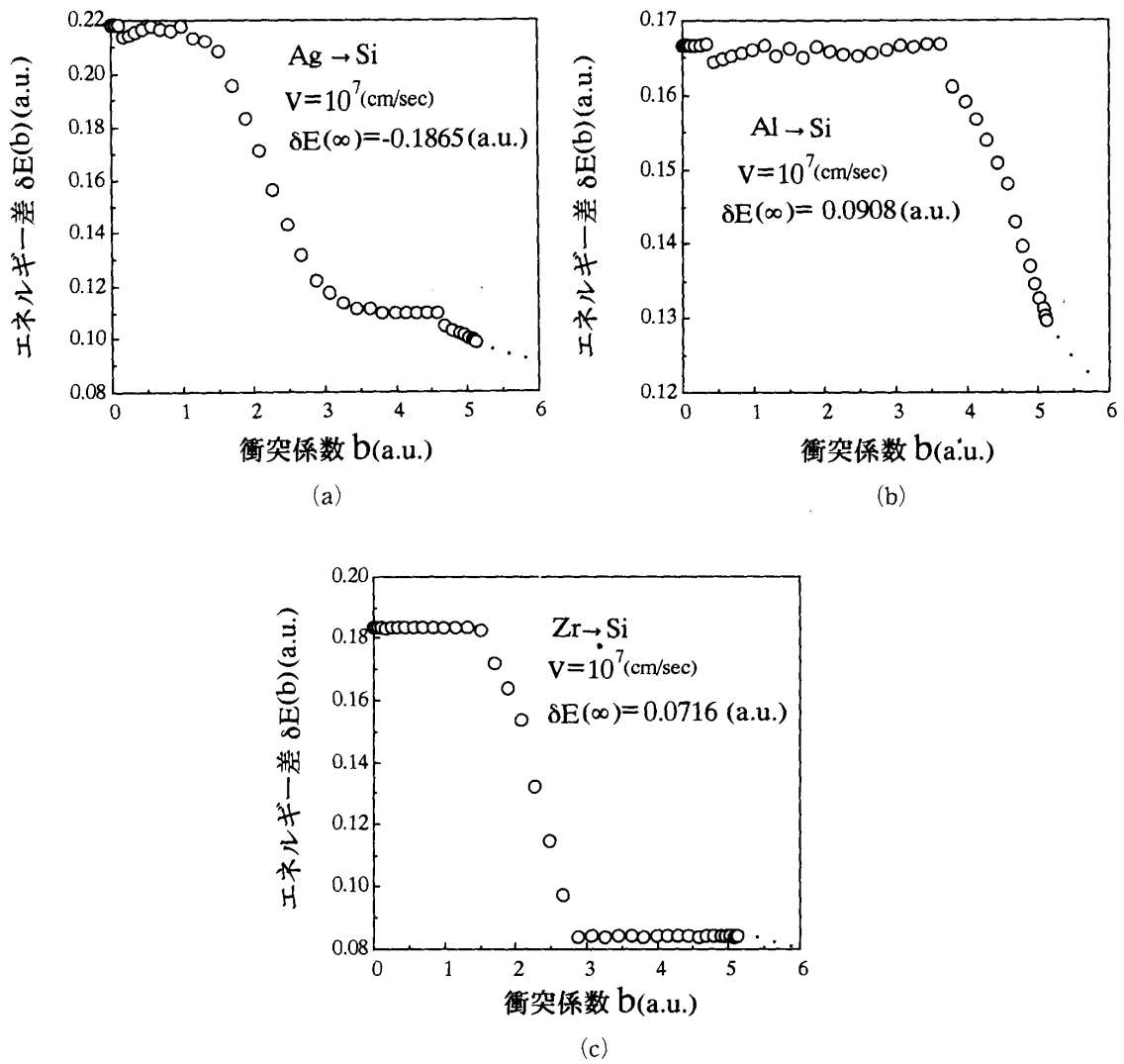


図1 (a) capture, (b) near-resonance, (c) loss-process における分極効果 $|\delta E(b)|$ (式 (6))。 $\delta E(\infty)$ は分極を無視したときのイオンと原子間の外殻軌道間の遷移エネルギー, $\delta E(b)$ は $V = 10^7 \text{cm s}^{-1}$, 衝突係数 b のイオンに対する値。

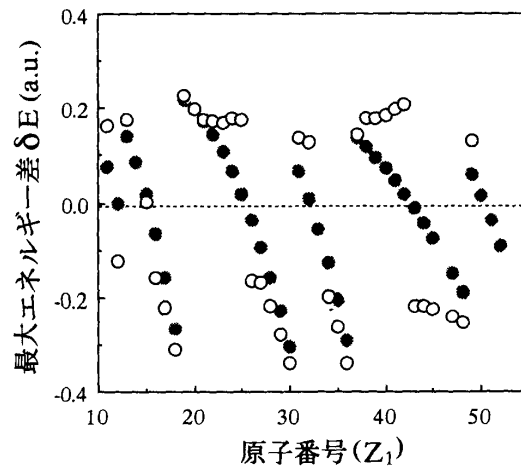


図2 異核衝突での遷移エネルギーにおける分極効果の Z 依存性。●は分極を無視し, ○は分極を考慮したもの。点線はシリコン最外殻軌道 ($3p_z$) の軌道エネルギー (-0.24a. u.)。

The Z-Dependence of the Electronic Stopping Power for Low Energy Atomic Collisions

Sachiko NAKAGAWA, Tomoko TAKEUCHI, and Katsumi OHISCHI

Dep. of Applied Physics

Okayama University of Science

1-1 Ridai-cho, Okayama 700, Japan

(Received September 30, 1992)

We have examined the electron transfer process for low energy ions Z_1 implanted into silicon, with much less velocity than the Fermi velocity. The polarization effect on the outermost orbitals was the main concern. This effect elevated the transfer probability as about 3 times as compared to the case neglecting it. This encourages Z_1 -rang-oscillation observed at $0.01 < \epsilon < 0.1$.