

电子束对ZnO和TiO<sub>2</sub>辐照损伤的模拟计算

高旭东 杨得草 魏雯静 李公平

Simulation study of electron beam irradiation damage to ZnO and TiO<sub>2</sub>

Gao Xu-Dong Yang De-Cao Wei Wen-Jing Li Gong-Ping

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 234101 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20211223

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211223>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

# 电子束对 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 辐照损伤的模拟计算\*

高旭东 杨得草 魏雯静 李公平†

(兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000)

(2021 年 6 月 30 日收到; 2021 年 8 月 2 日收到修改稿)

电子辐照在材料中产生的缺陷主要是相互独立的空位-间隙原子对, 由于不同靶原子的离位阈能不同, 通过改变电子束的能量可以调控在材料中产生的缺陷类型, 同时, 电子的注量又可以决定电子辐照产生的缺陷的浓度. ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 的磁光电特性受 Zn 空位、Ti 空位、O 空位、Zn 间隙原子、Ti 间隙原子等缺陷的影响, 因此可以通过电子辐照的方法在 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 中产生不同浓度的各类缺陷进而研究缺陷对材料磁光电特性的影响. 本文利用 MCNP5 程序结合蒙特卡罗辅助经典 (MCCM) 算法模拟计算了不同能量的点源电子束及面源电子束在纤锌矿 ZnO 和金红石 TiO<sub>2</sub> 中产生的辐照损伤 (dpa) 的大小及分布. 计算结果表明, 点源电子束在样品内部产生的 dpa 随着入射深度的增加先增大后减小, 而在横向方向很快衰减; 面源电子束产生的辐照损伤在样品内部随着入射深度的增加同样呈现先增加后减小的趋势, 同时 dpa 的最大值与电子束能量呈二次函数的关系; 电子束能量沉积的计算结果表明, 能量沉积区域的大小与电子束能量密切相关, 同时随着电子束能量的增加, 能量沉积最大值出现的位置逐渐向样品内部移动, 整个能量沉积区域具有前倾的趋势.

**关键词:** 电子辐照, 蒙特卡罗辅助经典算法, ZnO, TiO<sub>2</sub>**PACS:** 41.75.Fr, 71.20.Nr, 25.30.Bf, 61.72.-y**DOI:** 10.7498/aps.70.20211223

## 1 引言

以半导体材料为基础的集成电路是现代工业、信息等产业的基石, 但随着摩尔定律驱动的硅材料的技术路径快速接近物理极限, 半导体产业亟需转变发展方向. 新兴的半导体自旋电子学<sup>[1]</sup>为当前半导体材料提供了新的发展方向, 而以 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 等为代表的新型第三代半导体由于在缺陷状态或特定元素掺杂的状态具有室温铁磁性<sup>[2-4]</sup>, 备受研究者青睐, 成为近年来研究的热点. 大量的实验研究及理论计算表明, 晶格中的本征缺陷<sup>[4-6]</sup> (如 O 空位、Zn 空位、Ti 空位、Ti 间隙原子、Zn 间隙原子等) 会引起晶胞自旋极化, 使体系具有磁性; 此外 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 材料具有优异的光电特性<sup>[7-10]</sup>,

在太阳能电池、光电化学、自洁涂料等领域有重要的应用价值, 并且材料的光电特性受空位、间隙原子等缺陷的影响. 为探究本征缺陷对纤锌矿 ZnO 和金红石 TiO<sub>2</sub> 的磁光电等特性的影响, 本课题组<sup>[11-19]</sup>前期对两种单晶分别进行了  $\gamma$  射线辐照、D-D 中子辐照的实验研究及理论计算研究. 研究表明, Zn 空位、O 空位分别是纤锌矿 ZnO 和金红石 TiO<sub>2</sub> 的室温铁磁性的主要来源, 并且样品的饱和磁化强度和 Zn 空位、O 空位缺陷的浓度相关.

能量为数 MeV 的电子束在辐照过程中不会在材料中引入新的掺杂元素, 这是因为电子与物质相互作用的过程中一方面通过电离激发损失能量, 另一方面通过使靶原子离位损失能量, 特别是能量为数 MeV 的电子与靶原子相互作用过程中产生的光子不足以引起光核反应, 因而电子辐照是一种相对

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11975006, 11575074) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [ligp@lzu.edu.cn](mailto:ligp@lzu.edu.cn)

“纯净”的粒子辐照方法. 电子辐照产生的缺陷基本都是独立的空位-间隙原子对, 而且电子束能量连续可调, 因此电子辐照具有其他粒子辐照所不可比拟的优点<sup>[20–22]</sup>. 纤锌矿 ZnO 和金红石 TiO<sub>2</sub> 中的 Zn, Ti 和 O 原子的离位阈能不同, 即电子使各类原子发生离位所需要的最小能量不同, 利用这一特点, 一方面可以通过调节电子束的能量控制在材料中产生的缺陷的类型, 另一方面可以通过改变电子的注量调控在材料中产生的缺陷的浓度<sup>[23]</sup>.

因此利用电子辐照的方法可以综合分析纤锌矿 ZnO 和金红石 TiO<sub>2</sub> 中缺陷的类型及浓度对样品磁光电特性的影响, 而目前关于电子辐照损伤的模拟计算较为匮乏, 所以开展电子束对纤锌矿 ZnO 和金红石 TiO<sub>2</sub> 辐照损伤的模拟计算研究尤为重要. 本文首先利用 MCNP5 程序对电子在 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 材料中的输运过程进行模拟, 再结合 MCCM 算法计算不同能量的电子在辐照过程中在样品内部产生的辐照损伤的大小及分布, 最后计算了电子在 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 材料中的能量沉积, 为实验工作的开展提供理论参考.

## 2 计算模型及方法

首先利用 MCNP5 软件分别对点源电子束及面源电子束在纤锌矿 ZnO 和金红石 TiO<sub>2</sub> 中的输运过程进行模拟. 模拟的几何结构示意图如图 1 所示.

在计算辐照损伤时, 点源电子束入射的样品尺寸为 3.6 mm×3.6 mm×1.0 mm, 划分为 9×9×10 共 810 个体元, 而面源电子束入射的样品尺寸为 4.0 mm×4.0 mm×1.0 mm, 划分为 10×10×10 共 1000 个体元, 利用 \*F4 卡记录每个体元内电子的

能量通量谱; 在计算能量沉积的过程中, 采用 \*F8 卡记录电子在每个体元内沉积的能量. 放射源设定为理想的点源和理想的面源, 面源的束斑大小与样品 *xy* 平面切面一致, 理想的点源为电子从 *O* 点发射, 沿 *z* 轴垂直入射. 入射电子数设定为  $1.0 \times 10^7$  个, 计算结果均以入射粒子数为准进行了归一化处理, MCNP5 程序模拟所得结果相对误差均小于 5.0%, 满足统计性要求.

其次利用 MCCM 算法<sup>[20,24,25]</sup> 计算了电子束在 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 中产生的辐照损伤的大小及分布. MCCM 方法是 Piñera 等在 Oen 和 Holmes<sup>[26]</sup> 以及 Cahn<sup>[27]</sup> 的工作基础上提出的一种用于计算  $\gamma$  射线及电子束在材料中产生的辐照损伤的算法. 计算过程如下:

$$N_{\text{dpa}} = \sum_k \left( n_k \int_0^{E_{\text{in}}} N_{\text{dpa},k}^e(E) \varphi(E, r) dE \right), \quad (1)$$

式中  $N_{\text{dpa}}$  为电子束在样品中产生的总的离位原子数,  $n_k$  为第  $k$  类原子在晶格中所占的比例分数,  $\varphi(E, z)$  为 MCNP5 程序中计算得到的特定位置  $r$  的体元内的能量通量分布谱,  $N_{\text{dpa},k}^e$  为单个电子与第  $k$  类原子作用时产生的离位原子数, 由 Oen-Holmes 公式计算所得:

$$N_{\text{dpa}}^e(E) = \int_{E_c}^E N_V \sigma_{\text{dpa}}(E') / (-dE'/dx) dE', \quad (2)$$

$$\Delta E = \frac{[(E+m_0c^2)\sin^2\theta + Mc^2(1-\cos\theta)] E (E+2m_0c^2)}{(E+Mc^2)^2 - E(E+2m_0c^2)\cos^2\theta}, \quad (3)$$

其中,  $N_V$  为体元内的第  $k$  类原子的数目,  $E_c$  是电子使靶原子从晶格中发生离位所需的最小能量, 即截断能. 相对论性电子和静止原子之间的能量传递公式如 (4) 式, 令 (4) 式中  $\Delta E = T_d$ , 对应的电子

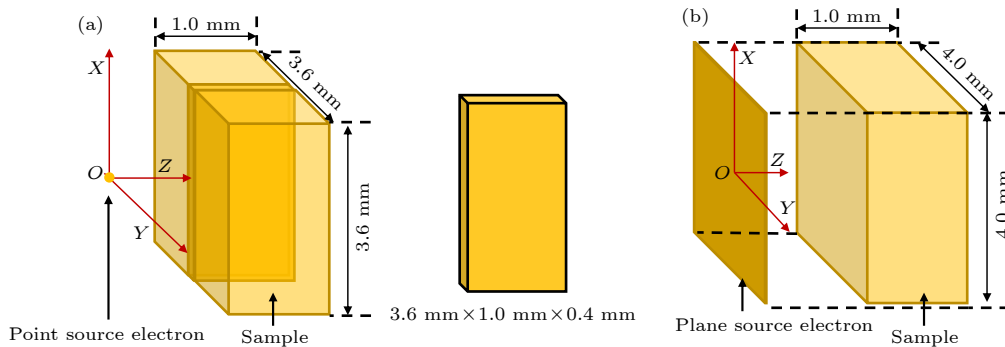


图 1 MCNP5 采用程序模拟几何结构图 (a) 点源电子束; (b) 面源电子束

Fig. 1. Schematic diagram of the geometry structure used by MCNP5 program: (a) Point source electron; (b) plane source electron.

能量  $E$  即为截断能, 其中  $T_d$  为靶原子的离位阈能,  $M$  和  $m_0$  分别为靶原子和电子的静止质量,  $\theta$  为散射角.  $-dE/dx$  是相对论性电子在材料中的电离能损, 本文采用 Bethe-Ashkin<sup>[28]</sup> 给出的形式:

$$-\frac{dE}{dx} = 2\pi N_A r_0^2 m_0 c^2 \frac{Z_m}{\beta^2} \left\{ \ln \left( \frac{m_0 c^2 \beta^2 \gamma^2 E}{2I^2} \right) - \frac{1}{\gamma^2} \left[ 1 + (2\gamma - 1) \ln 2 + \frac{1}{8} (\gamma + 1)^2 \right] \right\}, \quad (4)$$

其中  $Z_m$  为均方平均原子数,  $N_A$  为阿伏伽德罗常数,  $I$  为样品材料原子的平均激发势, 计算过程中所采用的 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 平均激发势为 MCNP5 程序中给出的计算值, 列于表 1,  $r_0$  为电子经典半径,  $\beta = v/c$ ,  $\gamma = 1/\sqrt{1 - \beta^2}$ ,  $\sigma_{\text{dpa}}(E)$  为原子位移损伤截面:

$$\sigma_{\text{dpa}}(E) = \int_0^{T_m} \nu(T) \frac{d\sigma}{dT}(E, T) dT. \quad (5)$$

本文计算辐照损伤的过程中位移损伤函数  $\nu(T)$  采用基于 NRT 模型<sup>[29,30]</sup> 的形式, 在计算离位损伤截面的过程中也计算了基于 K-P 模型<sup>[31]</sup> 的相关结果, 以作对比分析, 其中基于 NRT 模型的  $\nu(T)$  的表达式为

$$\nu(T) = \begin{cases} 0, & T < T_d, \\ 1, & T_d < T < 2T_d/0.8, \\ 0.8T/T_d, & 2T_d/0.8 < T, \end{cases} \quad (6)$$

其中  $T_m$  为相对论性电子与靶原子碰撞过程中传递的能量最大值,  $\frac{d\sigma}{dT}(E, T)$  是电子和靶原子之间的能量传递微分截面, 本文采用 McKinley 和 Feshbash 推导得到的形式<sup>[32]</sup>:

$$\frac{d\sigma}{dT}(E, T) = \pi Z^2 r_0^2 \frac{1 - \beta^2}{\beta^4} \frac{T_m}{T^2} \left[ 1 - \frac{T\beta^2}{T_m} \pm \frac{\pi\beta Z}{137} \left( \sqrt{\frac{T}{T_m}} - \frac{T}{T_m} \right) \right], \quad (7)$$

其中  $Z$  为靶原子的原子序数. 通常也根据  $\frac{d\sigma}{dT}(E, T)$  计算初级离位原子的形成截面, 其形式为

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{PKA}}(E) &= \int_{T_d}^{T_m} \frac{d\sigma}{dT}(E, T) dT \\ &= \pi Z^2 r_0^2 \frac{1 - \beta^2}{\beta^4} \left( \left( \frac{T_m}{T_d} - 1 \right) - \beta^2 \ln \left( \frac{T_m}{T_d} \right) \right) \\ &\quad \pm \frac{\pi\beta Z}{137} \left\{ 2 \left[ \left( \frac{T_m}{T_d} \right)^{\frac{1}{2}} - 1 \right] - \ln \left( \frac{T_m}{T_d} \right) \right\}. \end{aligned} \quad (8)$$

(7) 式和 (8) 式中系数  $\frac{\pi\beta Z}{137}$  在计算电子时为“+”, 在计算正电子时为“-”.

表 1 纤锌矿 ZnO 及金红石 TiO<sub>2</sub> 材料的平均激发势和离位阈能

Table 1. Average excitation potential and threshold energy of wurtzite ZnO and rutile TiO<sub>2</sub>.

	$I$ / eV	atoms	$T_d$ / eV
ZnO	286.1	Zn	50 <sup>[33]</sup>
		O	55 <sup>[33]</sup>
TiO <sub>2</sub>	179.5	Ti	69 <sup>[36]</sup>
		O	19 <sup>[36]</sup>

### 3 计算结果与分析

#### 3.1 电子透射率模拟

图 2 中绘制了能量为 1.0 MeV 的电子束在 ZnO 及 TiO<sub>2</sub> 样品中的吸收曲线的计算结果. 可以看出, ZnO 对电子束的吸收强于 TiO<sub>2</sub>. 同时计算结果还表明, 同种材料中, 不同能量的电子束的吸收曲线具有相同的变化趋势 (图中未绘制), 即电子的透射率随着入射深度的增加基本以线性关系降低, 直到大部分电子被吸收. 吸收曲线模拟结果的变化趋势与理论上单能电子的吸收曲线一致.

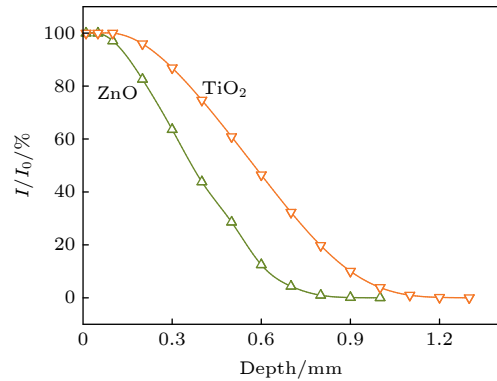


图 2 1.0 MeV 的电子束在纤锌矿 ZnO 及金红石 TiO<sub>2</sub> 样品中的吸收曲线

Fig. 2. Absorption curve of 1.0 MeV electron beam in wurtzite ZnO and rutile TiO<sub>2</sub> sample.

#### 3.2 离位损伤截面计算

相对论性电子与静止原子之间的能量传递关系如 (3) 式所示, 为明确散射角  $\theta$  及入射电子的能量  $E$  对传递的能量  $\Delta E$  的影响, 图 3(a) 和图 3(b) 分别给出了  $\Delta E$  与  $\theta$  和  $E$  的函数曲线图. 可以看出, 在质心系内,  $\theta = 180^\circ$ , 即在实验室系内发生正碰时传递的能量最大.

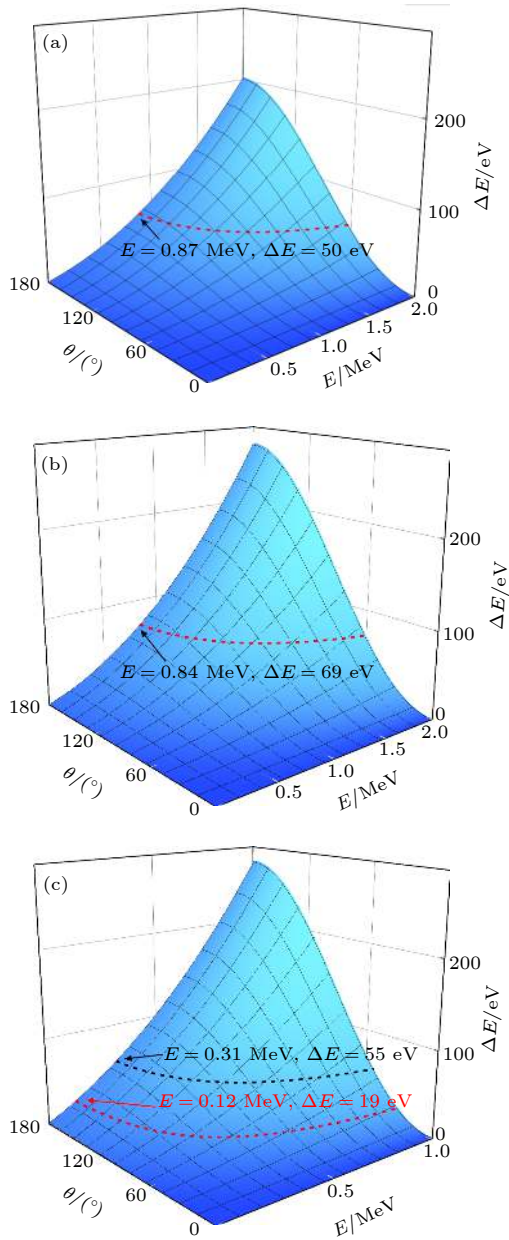


图 3 相对论性电子与静止原子的能量传递 (a)  $^{64}\text{Zn}$ ; (b)  $^{48}\text{Ti}$ ; (c)  $^{16}\text{O}$

Fig. 3. Energy transfer between relativistic electron and stationary atom: (a)  $^{64}\text{Zn}$ ; (b)  $^{48}\text{Ti}$ ; (c)  $^{16}\text{O}$ .

离位阈能是表征材料抗辐照性能的一个基本物理量, 相关的理论计算及实验测量都表明, 晶体中离位阈能不仅与晶格原子的种类相关, 也与晶格原子的出射方向相关, 即是各向异性的 [30]. 1972 年, Meese 等 [33] 利用电子束辐照的方法探究了 ZnO 样品中的离位阈能, 实验结果表明, 随着电子束能量逐渐增大, 在 0.31 和 0.90 MeV 时样品的载流子浓度发生明显变化, 作者认为 0.31 MeV 时的变化是由于 O 原子离位造成的, 而 0.90 MeV 时载流子浓度的变化是由 Zn 原子离位导致的, 据此

初步估算了 ZnO 晶体中平均离位阈能; Zinkel 和 Kinoshita [34] 基于 Meese 等工作给出了 ZnO 等材料离位阈能的建议值; 对于金红石  $\text{TiO}_2$ , Katherine 等 [35] 于 2003 年通过时间分辨荧光光谱法测得 O 原子的离位阈能为  $(39 \pm 4)$  eV; Robinson 等 [36] 利用分子动力学的方法系统研究了金红石  $\text{TiO}_2$  的离位阈能, 估算了 O 原子及 Ti 原子的离位阈能值. 本文计算过程中采用的离位阈能的数值列于表 1, 根据各原子的离位阈能计算的截断能也已在图 3 中标出.

ZnO 及  $\text{TiO}_2$  的离位损伤截面如图 4 所示, 可以看出, 对于 ZnO, 电子束的能量大于 0.31 及 0.87 MeV, 才能分别使得 O 原子和 Zn 原子离位, 并且由于 Zn 原子的离位阈能小于 O 原子的, 当能量较大时, Zn 原子的离位损伤截面大于 O 原子的; 而对于  $\text{TiO}_2$ , 电子束能量大于 0.12 及 0.84 MeV 时会分别使 O 原子和 Ti 原子离位. 同时, 不论是  $\sigma_{\text{PKA}}$  还是  $\sigma_{\text{dpa}}$  的增长速率均随着电子束能量的增加而迅速减小, 特别是  $\sigma_{\text{dpa}}$  逐渐趋向于一个平稳值. 这与 Piñera 等 [24,37] 计算的  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (YBCO) 材料中的各类原子的离位损伤截面的变化趋势

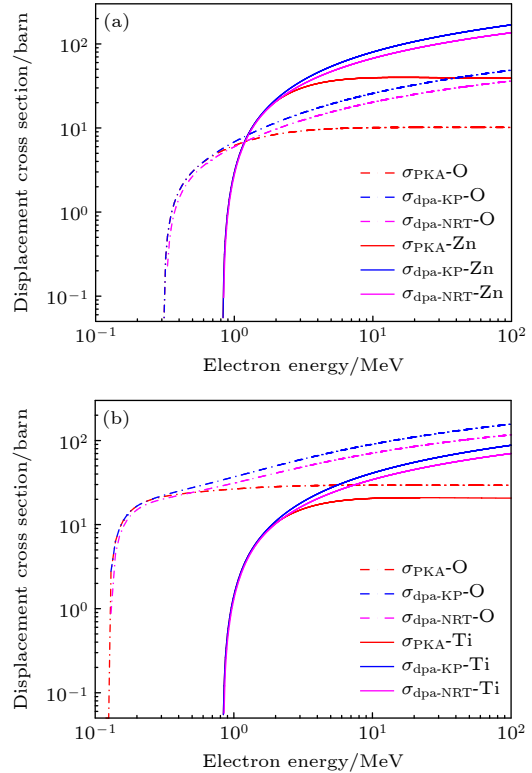


图 4 离位损伤截面 (a) wurtzite ZnO; (b) rutile  $\text{TiO}_2$

Fig. 4. Displacement cross section: (a) wurtzite ZnO; (b) rutile  $\text{TiO}_2$ .

一致. 同时我们也计算了基于 K-P 模型的损伤函数的初级离位损伤截面以做对比, 可以看出基于 K-P 模型的相关结果大于基于 NRT 模型的结果, 这是由于 NRT 模型更多地考虑了空位缺陷在产生后会被其他间隙原子占据.

### 3.3 电子束辐照损伤的大小及分布

由于 1.5 MeV 及以下的电子在样品中产生的次级光子产生的正电子数量很少, 即正电子造成的离位原子数基本可以忽略, 因此, 本文在计算辐照损伤的过程中不考虑次级正电子的影响. 利用 (1) 式 MCCM 算法计算得到的是各个体元内的离位原子数, 即弗伦克尔缺陷对的数目. 在辐照损伤研究中, 通常用离位原子数除以总的原子数表征辐照损伤程度, 即 displacement per atom (dpa), 平均来讲 dpa 代表晶格中每个点阵原子离位的次数, 其计算形式为

$$\text{dpa} = \frac{N_{\text{dpa}}}{N}, \quad (9)$$

式中  $N$  为各个体元内总的原子数.

鉴于离位阈能的选取及离位损伤截面的计算结果, 为更有利于探究缺陷类型及缺陷浓度的影

响, 本文在计算 dpa 及能量沉积的过程中, 电子束的能量选定为 0.5, 0.8, 1.0 和 1.5 MeV, 这是由于电子束能量为 0.5 及 0.8 MeV 时, 两种样品中只产生 O 空位, 而电子束能量在 1.0 和 1.5 MeV 时不仅可以使 O 原子发生离位, 也会使得 Zn 原子和 Ti 原子离位.

点源电子束产生的 dpa 在  $X$  和  $Y$  方向是对称分布的, 因此本文只给出了入射能量分别为 0.5, 0.8, 1.0 和 1.5 MeV 的点源电子在 ZnO 中产生的 dpa 的分布, 以图 1(a) 中  $Y = 0$  的位置的体元为例, dpa 分布如图 5 所示. 可以看出, 点源电子束在 ZnO 内部造成的辐照损伤主要沿着纵向分布, 而在横向方向则会很快衰减, 随着电子束能量的增加, 分布区域有前倾的趋势. 点源电子束在 TiO<sub>2</sub> 中产生的 dpa 和在 ZnO 中产生的 dpa 具有类似的分布.

图 6 给出了 1.0 MeV 的电子辐照金红石 TiO<sub>2</sub> 时在不同深度处产生的 dpa 的分布, level 1—level 4 分别代表样品中 0—0.1 mm, 0.1—0.2 mm, 0.2—0.3 mm, 0.3—0.4 mm 深度的分层, 从图 6 可以看到, dpa 在样品内部分布较为均匀, 边缘部分逐渐降低, 这是因为在边缘部分一些电子及次级光子会

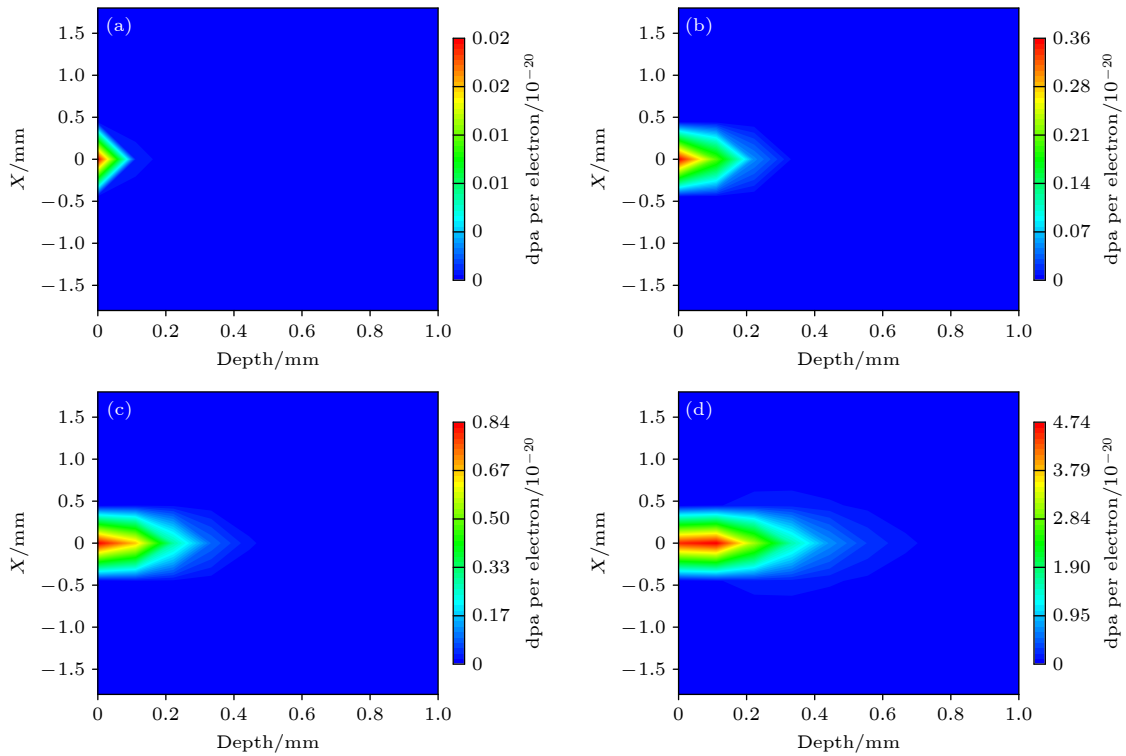


图 5 点源电子束在纤锌矿 ZnO 中产生的 dpa 的分布 (a) 0.5 MeV; (b) 0.8 MeV; (c) 1.0 MeV; (d) 1.5 MeV

Fig. 5. Distribution of dpa produced by Point Source Electron in wurtzite ZnO: (a) 0.5 MeV; (b) 0.8 MeV; (c) 1.0 MeV; (d) 1.5 MeV.

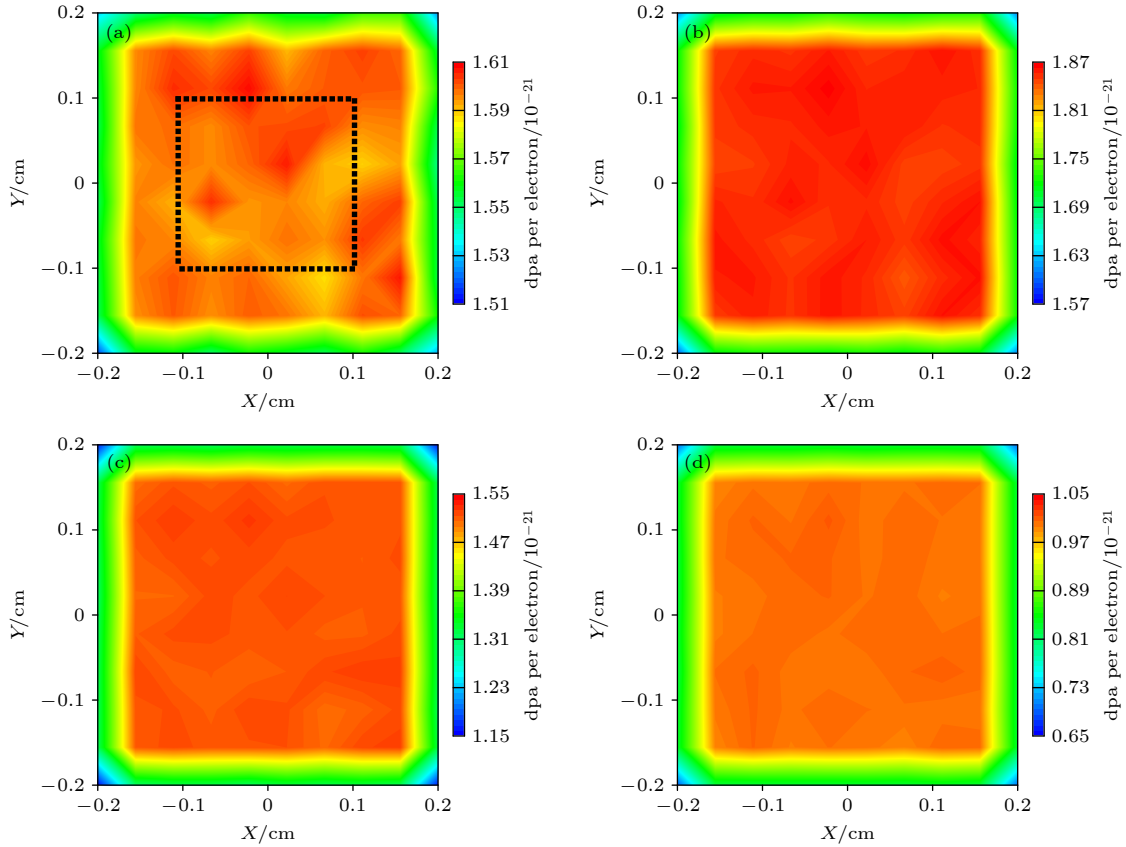


图 6 1.0 MeV 电子辐照金红石  $\text{TiO}_2$  时 dpa 的分布

Fig. 6. Distribution of dpa produced by 1.0 MeV electron in rutile  $\text{TiO}_2$ .

从样品表面逸出, 导致计数减小. 这与  $\gamma$  射线辐照在  $\text{Lu}_{1.8}\text{Y}_{0.2}\text{SiO}_5$  和  $\text{Lu}_{0.7}\text{Y}_{0.3}\text{AlO}_{0.3}$  中产生的 dpa 具有相似的分布 [25]. 同时由于高能电子入射到材料中产生更多的次级光子及次级电子, 会使更多的原子发生离位, 从而使得 dpa 随着深度的增加呈现先增大后减小的趋势.

用样品中每一层中间 dpa 较为均匀部分 (图 6(a) 中黑色虚线范围内) 的 dpa 的平均值作为对应分层的 dpa 值, dpa 与深度的关系如图 7 所示, 可以看出, 不论是 ZnO 还是  $\text{TiO}_2$ , dpa 均在表层 0.2 mm 以内达到最大值, 并且随着入射深度的增加迅速减小; 此外, 电子束能量较低时, dpa 值随着入射深度的增加而单调减小, 并未呈现先增大后减小的趋势, 这是由于在模拟计算过程中, 每一层的厚度设定为 0.1 mm, 低能电子产生的次级粒子大部分在本层内就被吸收, 未进入后面的样品层. 并且随着电子束能量的增加, dpa 沿深度的分布愈加不均匀. 这与利用 MCCM 算法计算得到的  $\gamma$  射线在 YBCO 等材料中产生的 dpa 的分布不同,  $\gamma$  射线辐照产生的 dpa 沿着深度的增加虽同样具有先增加

后减小的趋势, 但随着  $\gamma$  射线能量的增加, 这种变化趋势愈加不明显, dpa 逐渐呈现均匀分布, 这是由于  $\gamma$  射线在材料中的吸收率远小于电子的. 同时, dpa 随入射深度的变化曲线表明, 在电子束辐照实验中, dpa 在相对较薄的样品中分布将会更均匀, 对于 ZnO 和  $\text{TiO}_2$ , 样品厚度在 0.25 mm 左右时 dpa 会有一个较均匀的分布. 此外, 不同能量的电子束产生的 dpa 的  $\text{dpa}_{\text{max}}$  与电子束能量之间的对应关系如图 8 所示,  $\text{dpa}_{\text{max}}$  随着电子束能量近似呈二次函数增加. 对比分析 ZnO 和  $\text{TiO}_2$ , 相同能量的电子束在 ZnO 中产生的 dpa 基本比在  $\text{TiO}_2$  中的小 1 个数量级, 这是由于在 ZnO 中 O 原子的离位阈能远大于  $\text{TiO}_2$  中 O 原子的离位阈能, 而以上两种材料内 O 离位原子数占总离位原子数的大部分.

### 3.4 能量沉积

电子束在 ZnO 和  $\text{TiO}_2$  晶体中一方面通过使得靶原子离位产生能量沉积, 另一方面通过电离激发损失能量, 同时也会产生次级光子, 而次级光子

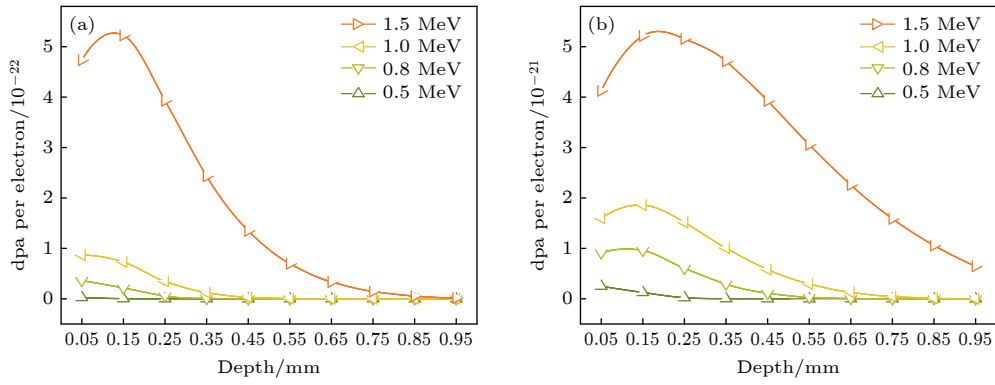


图 7 dpa 随电子入射深度的变化曲线 (a) Wurtzite ZnO; (b) rutile TiO<sub>2</sub>

Fig. 7. The variation curve of dpa with electron incidence depth: (a) Wurtzite ZnO; (b) rutile TiO<sub>2</sub>.

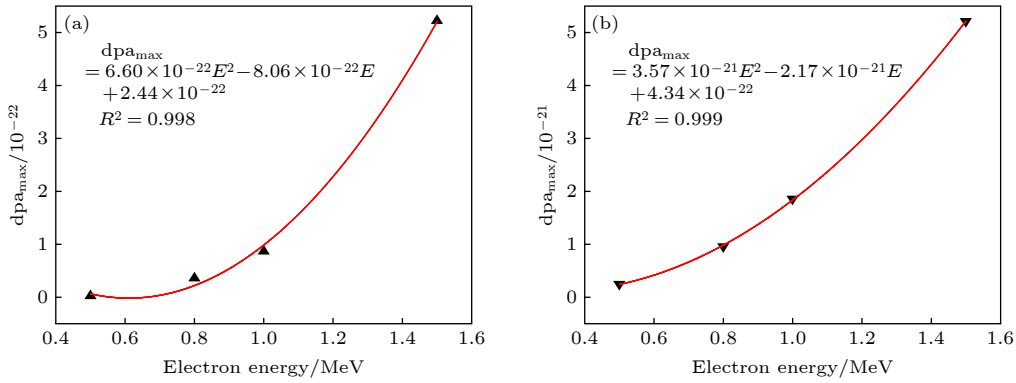


图 8  $\text{dpa}_{\text{max}}$  与电子能量的关系曲线 (a) Wurtzite ZnO; (b) rutile TiO<sub>2</sub>

Fig. 8. Relationship between  $\text{dpa}_{\text{max}}$  and electron energy: (a) Wurtzite ZnO; (b) rutile TiO<sub>2</sub>.

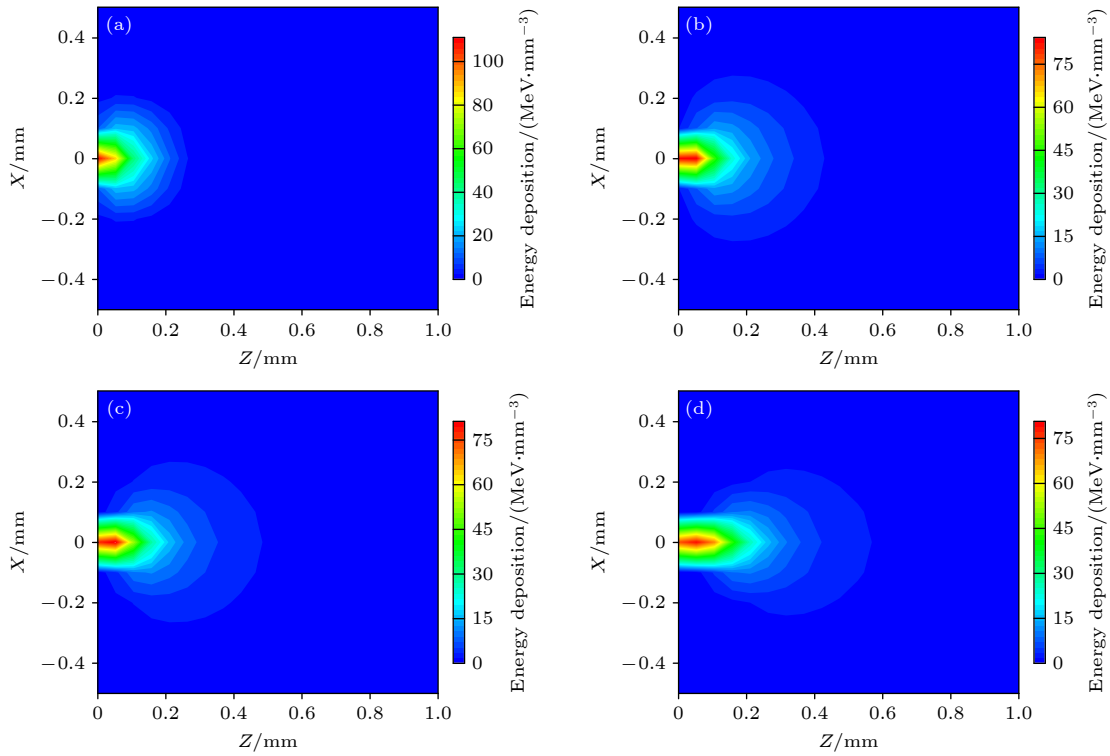


图 9 不同能量的理想点入射电子在纤锌矿 ZnO 中的能量沉积的分布

Fig. 9. Distribution of energy deposition of ideal point source electrons with different energies in wurtzite ZnO.



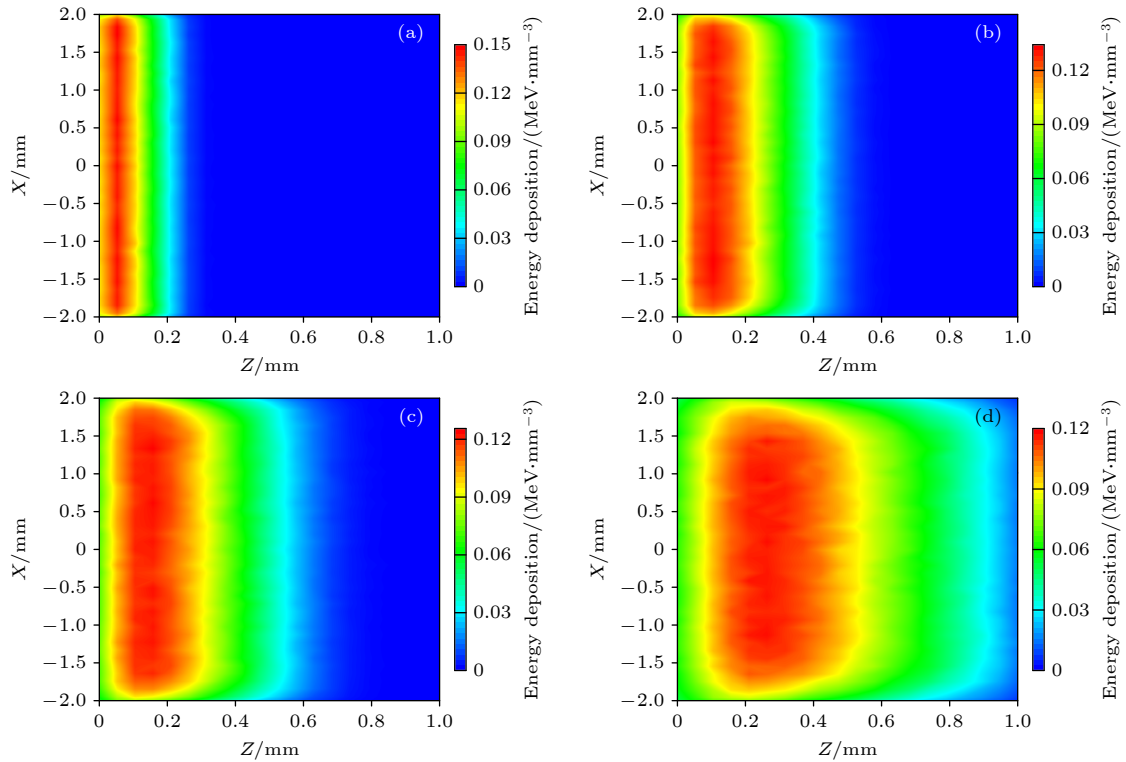


图 10 不同能量的面源电子束在纤锌矿 ZnO 中的能量沉积的分布

Fig. 10. Distribution of energy deposition of plane source electrons with different energies in wurtzite ZnO.

又通过光电效应、康普顿散射和电子对效应等产生次级电子, 次级光子产生的次级电子在晶体中的能量沉积原理和入射电子是一致的, 即通过弹性碰撞或者电离作用能量沉积. 图 8 和图 9 分别给出了不同能量的理想点入射和平行束入射电子在 ZnO 中能量沉积的分布, 在模拟计算理想点源电子的能量沉积过程中, 设定电子从图 1 中的 O 点发射, 沿着 Z 轴垂直入射到样品内部.

电子在 TiO<sub>2</sub> 中的能量沉积分布与在 ZnO 中的相似, 并且由于 ZnO 对电子的吸收比 TiO<sub>2</sub> 强, 所以相同能量的电子在 TiO<sub>2</sub> 中的能量沉积范围比 ZnO 中大. 从能量沉积分布图 (图 10) 可以看到, 不论是理想点源入射还是平行束入射, 能量沉积在 X 和 Y 方向是对称分布的; 能量沉积最大值出现的位置并不是在样品表面, 而是处于距表面一定深度的地方, 并且随着电子入射能量的增加, 这一深度逐渐增加, 在 ZnO 中, 0.5 和 1.5 MeV 的电子能量沉积最大值分别出现在距表面约 0.05 和 0.25 mm 的位置, 而在 TiO<sub>2</sub> 中, 这一位置分别为 0.1 和 0.5 mm. 能量沉积的范围随着入射电子能量的增加逐渐增大, 并且具有前倾的趋势.

## 4 结 论

本文通过 MCNP5 软件结合 MCCM 算法实现了对电子束在 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 材料中辐照损伤的模拟计算. 结果表明, 在 ZnO 中, 引起 O 原子和 Zn 原子离位所需的电子束的最小能量分别为 0.31 和 0.87 MeV, 而在 TiO<sub>2</sub> 中, 要使 O 原子和 Ti 原子离位, 电子所具有的能量最小值分别为 0.12 和 0.84 MeV. 同时 dpa 的分布特征表明, 电子辐照在材料中产生的 dpa 随着入射深度的增加先增加后减小, 峰值出现在样品表层附近, 对于 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 样品厚度在 0.25 mm 左右时 dpa 会有一个相对均匀的分布; 此外电子束在 ZnO 和 TiO<sub>2</sub> 中能量沉积的计算结果表明, 能量沉积的范围随着电子束能量的增加而增加, 同时具有前倾的趋势, 并且同一能量的电子束在 TiO<sub>2</sub> 中的能量沉积区域要比在 ZnO 中的大. 本文的相关计算结果为电子辐照实验工作的实验参数选择提供了理论指导.

感谢兰州大学超算平台及兰州大学特殊功能材料与结构设计教育部重点实验室对本研究工作的支持.

## 参考文献

- [1] Wolf S A, Awschalom D D, Buhrman R A, Daughton J M, von Molnár S, Roukes M L, Chtchelkanova A Y, Treger D M 2001 *Science* **294** 1488
- [2] Furdyna J K 1988 *J. Appl. Phys.* **64** R29
- [3] Matsumoto Y, Takahashi R, Murakami M, Koida T, Fan X J, Hasegawa T, Fukumura T, Kawasaki M, Koshihara S Y, Koinuma H 2001 *Jpn. J. Appl. Phys.* **40** L1204
- [4] Xing G Z, Lu Y H, Tian Y F, Yi J B, Lim C C, Li Y F, Li G P, Wang D D, Yao B, Ding J, Feng Y P, Wu T 2011 *AIP Advances* **1** 022152
- [5] Zhou S Q, Čížmár E, Potzger K, Krause M, Talut G, Helm M, Fassbender J, Zvyagin S A, Wosnitza J, Schmidt H 2009 *Phys. Rev. B* **79** 113201
- [6] Duhalde S, Vignolo M F, Golmar F, Chliotte C, Torres C E R, Errico L A, Cabrera A F, Rentería M, Sánchez F H, Weissmann M 2005 *Phys. Rev. B* **72** 161313
- [7] Olayinka A S, Adetunji B I, Idiodi J O A, Aghemelon U 2019 *Int. J. Mod. Phys. B* **33** 1950036
- [8] Kernazhitsky L, Shymanovska V, Gavrilko T, Naumov V, Fedorenko L, Kshnyakin V, Baran J 2014 *J. Lumin.* **146** 199
- [9] Liu B J, Liu K, Zhao J W, Wang W H, Ralchenko V, Geng F J, Yang L, Zhang S, Xue J J, Han J C 2020 *Diamond Relat. Mater.* **109** 108026
- [10] Fujishima A, Zhang X T 2006 *C. R. Chim.* **9** 750
- [11] Lin Q L, Xu N N, Li G P, Qian Z F, Liu H, Wang R H 2021 *J. Mater. Chem. C* **9** 2858
- [12] Liu H, Li G P, E D J, Xu N N, Lin Q L, Gao X D, Lan C, Chen J S, Wang C L, Zhan X W, Zhang K 2020 *RSC Adv.* **10** 18687
- [13] Liu H, Li G P, E D J, Xu N N, Lin Q L, Gao X D, Wang C L 2020 *Opt. Mater.* **101** 109748
- [14] Liu H, Li G P, E D J, Xu N N, Lin Q L, Gao X D, Wang C L 2020 *J. Supercond. Nov. Magn.* **33** 1535
- [15] Zhang M L, Chen Y H, Zhang C R, Li G P 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 087101 (in Chinese) [张梅玲, 陈玉红, 张材荣, 李公平 2019 物理学报 **68** 087101]
- [16] Lin Q L, Li G P, Xu N N, Liu H, Wang C L 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 037101 (in Chinese) [林俏露, 李公平, 许楠楠, 刘欢, 王苍龙 2017 物理学报 **66** 037101]
- [17] Liu H, Li G P, Xu N N, Lin Q L, Yang L, Wang C L 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 206102 (in Chinese) [刘欢, 李公平, 许楠楠, 林俏露, 杨磊, 王苍龙 2016 物理学报 **65** 206102]
- [18] Li T J, Li G P, Ma J P, Gao X X 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 116102 (in Chinese) [李天晶, 李公平, 马公俊平, 高行新 2011 物理学报 **60** 116102]
- [19] Xu N N, Li G P, Pan X D, Wang Y B, Chen J S, Bao L M 2014 *Chin. Phys. B* **23** 106101
- [20] Piñera I, Cruz C M, Van Espen P, Abreu Y, Leyva A 2012 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sec. B* **274** 191
- [21] Cruz C M, Piñera I, Correa C, Abreu Y, Leyva A 2011 *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record Valencia, Spain*, 2011 p4622
- [22] Nordlund K, Zinkle S J, Sand A E, Granberg F, Averback R S, Stoller R, Suzudo T, Malerba L, Banhart F, Weber W J 2018 *Nat. Commun.* **9** 1
- [23] Edmondson P D, Weber W J, Namavar F, Zhang Y W 2012 *J. Nucl. Mater.* **422** 86
- [24] Piñera I, Cruz C M, Abreu Y, Leyva A 2007 *Phys. Status Solidi A* **204** 2279
- [25] Pinera I, Abreu Y, Van Espen P, Díaz A, Leyva A, Cruz C M 2011 *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record Valencia, Spain*, 2011 p1609
- [26] Oen O S, Holmes D K 1959 *J. Appl. Phys.* **30** 1289
- [27] Cahn J H 1959 *J. Appl. Phys.* **30** 1310
- [28] Bethe H A, Ashkin J 1953 *Experimental Nuclear Physics* (Vol. 1) (London: John Wiley & Sons, Inc., New York Champan & Hall, Limited) pp252-256
- [29] Norgett M J, Robinson M T, Torrens I M 1975 *Nucl. Eng. Des.* **33** 50
- [30] Nordlund K, Zinkle S J, Sand A E, Granberg F, Averback R S, Stoller R E, Suzudo T, Malerba L, Banhart F, Weber W J 2018 *J. Nucl. Mater.* **512** 450
- [31] Kinchin G H, Pease R S 1955 *J. Nucl. Energy (1954)* **1** 200
- [32] McKinley W A, Feshbach H 1948 *Phys. Rev.* **74** 1759
- [33] Meese J M, Locker D R 1972 *Solid State Commun.* **11** 1547
- [34] Zinkle S J, Kinoshita C 1997 *J. Nucl. Mater.* **251** 200
- [35] Smith K L, Colella M 2003 *J. Nucl. Mater.* **321** 19
- [36] Robinson M, Marks N A, Whittle K R, Lumpkin G R 2012 *Phys. Rev. B* **85** 104105
- [37] Piñera I, Cruz C M, Leyva A, Abreu Y, Cabal A E, Van Espen P, Van Remortel N 2014 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sec. B* **339** 1

# Simulation study of electron beam irradiation damage to ZnO and TiO<sub>2</sub>\*

Gao Xu-Dong Yang De-Cao Wei Wen-Jing Li Gong-Ping<sup>†</sup>*(School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China)*

( Received 30 June 2021; revised manuscript received 2 August 2021 )

## Abstract

Wurtzite ZnO and rutile TiO<sub>2</sub> have important application value in solar cells, photocatalysts, self-cleaning coatings, etc. In addition, ZnO and TiO<sub>2</sub> are crucial basic materials for the development of semiconductor spintronics devices due to room temperature ferromagnetism in the state of defects or doped specific elements. Many studies indicate that the magnetic, optical, and electrical properties of ZnO and TiO<sub>2</sub> are affected by intrinsic defects (such as vacancies, interstitial atoms, etc.). Electron irradiation has the incomparable advantages over other particle beam irradiation, the defects produced by electron beam irradiation are mainly independent vacancy-interstitial atom pairs (Frenkel pairs), and there are no new doping elements introduced into the material during the irradiation by electron beam with energy of several MeV, that is, electron irradiation is a relatively “pure” particle irradiation method. On the one hand, since the displacement threshold energy values of different atoms are different from each other, the type of defect during electron irradiation can be controlled by the energy of the electron beam. On the other hand, the electron fluence can determine the concentration of defects. Therefore, various defects of different concentrations can be generated by electron irradiation, thereby studying the influences of related defects on the magnetic, optical, and electrical properties of ZnO and TiO<sub>2</sub>. However, simulation calculations related to electron beam irradiation damage are relatively scarce. Therefore, in this work, the electron beam irradiation damage is taken as a research topic and the related theoretical simulation calculations are carried out, which lays a theoretical foundation for subsequent experimental researches. The size and the distribution of radiation damage (dpa) caused by point source electrons and that by plane source electrons with different energy values in ZnO and TiO<sub>2</sub> are simulated and calculated through the MCNP5 program combined with the MCCM algorithm. The calculation results show that O atoms and Zn atoms can be dislocated when the electron energy values are greater than 0.31 MeV and 0.87 MeV in ZnO, respectively; while in TiO<sub>2</sub>, O atoms and Ti atoms can be dislocated when the electron beam energy values are greater than 0.12 MeV and 0.84 MeV, respectively. The dpa caused by point source electrons is mainly distributed in the longitudinal direction, and attenuates quickly in the lateral direction; on the contrary, the dpa caused by plane source electrons first increases and then decreases with the augment of the electron incidence depth, and the unevenness of the dpa distribution becomes more serious with the increase of the electron energy. Therefore, for each of ZnO and TiO<sub>2</sub>, the dpa will be relatively even distribution when the thickness of the sample is about 0.25 mm. Furthermore, the calculation results of the electron energy deposition show that the size of the energy deposition area is closely related to the electron beam energy. At the same time, with the increase of the electron beam energy, the position where the maximum energy deposition appears gradually moves to the inside of the sample, and the entire energy deposition area has a tendency to lean forward.

**Keywords:** electron irradiation, Monte Carlo assisted classical method algorithm, ZnO, TiO<sub>2</sub>**PACS:** 41.75.Fr, 71.20.Nr, 25.30.Bf, 61.72.-y**DOI:** 10.7498/aps.70.20211223

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11975006, 11575074) .

† Corresponding author. E-mail: [ligp@lzu.edu.cn](mailto:ligp@lzu.edu.cn)