电子阻止对砷化镓碰撞级联分子动力学模拟的影响

Johannes L. Teunissen,[1,2] Thomas Jarrin,[3] Nicolas Richard,[3,4] Natalia E. Koval,[5] Daniel Mu˜noz Santiburcio,[5,6] Jorge Kohanoff,[6,7] Emilio Artacho,[5,8,9,10] Fabrizio Cleri,[1] 和 Fabiana Da Pieve[2], *[1] *Univ. Lille, CNRS UMR 8520 - IEMN - Institute of Electronics,Microelectronics and Nanotechnology, F-59000 Lille, France*[2] *Royal Belgian Institute for Space Aeronomy, Av Circulaire 3, 1180 Brussels, Belgium*[†3] *CEA, DAM, DIF, F-91297, Arpajon, France*[4] *Université Paris-Saclay, CEA, Laboratoire Matière en Conditions Extrêmes, F-91680 Bruyères-le-Châtel, France*[5] *CIC Nanogune BRTA, 20018 Donostia-San Sebastián, Spain*[6] *Instituto de Fusión Nuclear "Guillermo Velarde",Universidad Politécnica de Madrid, c/José Gutierrez Abascal 2, 28006 Madrid, Spain*[7] *Atomistic Simulation Centre, Queen's University Belfast, Belfast BT71NN, Northern Ireland, United Kingdom*[8] *Donostia International Physics Center DIPC, 20018 Donostia-San Sebastián, Spain*[9] *Theory of Condensed Matter, Cavendish Laboratory, University of Cambridge, Cambridge CB3 0HE, United Kingdom*[10] *Ikerbasque, Basque Foundation for Science, 48011 Bilbao, Spain*（日期：2023年3月3日）

arXiv:2303.00754v1 [physics.comp-ph] 1 Mar 2023

了解离子辐照在物质中诱发的缺陷的产生与演化，对于评估材料功能性质的退化至关重要。从空间辐射效应到核能实验，不同领域采用的计算方法都建立在若干近似之上，其中包括传统上在描述位移时忽略电子和离子自由度之间的耦合。本研究利用近期提出的电子-声子模型和此前开发的双温模型，在碰撞级联的分子动力学模拟中，借助含时密度泛函理论实时计算不同方向上自入射粒子的电子阻止本领，以研究砷化镓中的碰撞级联。我们表明，前一种模型可有效用于描述多元素半导体中碰撞级联分子动力学模拟里的电子阻止效应，且缺陷数量会显著受到电子阻止效应的影响。我们还结合常用的非电离能量损失模型，对这些结果进行了更广泛的讨论；该模型用于根据累积位移评估材料退化。

I. 引言

描述材料中的辐射诱发效应，是一个在时间和长度尺度上都具有挑战性的多尺度问题。在极短的时间尺度（∼100 阿秒）下，粒子穿过材料时会将能量传递给靶的电子自由度，从而损失能量（电子阻止）。

在较长的时间尺度上，尤其是粒子被靶中的电子减速后，入射粒子会发生核弹性碰撞，从而使靶中的原子移位。这些最先被移位的原子称为初级反冲原子（PKA）。这些初级反冲原子会充当额外的自离子，与其他原子碰撞并形成碰撞级联 [1]（处于皮秒时间尺度）。由此产生不同类型的缺陷，例如空位和间隙原子（弗伦克尔对），以及缺陷团簇；随后，这些缺陷会在更长的时间尺度内（直至数纳秒及更久）缓慢地部分复合。

目前已有多种符合物理实际的辐射损伤量化指标 [2–4]。在高能粒子物理和空间辐射效应领域，通常使用非电离能量损失（NIEL）这一概念来描述累积原子位移造成的损伤。NIEL 表示入射粒子能量中用于靶内非电离现象的部分，即造成位移损伤效应的能量。除高能范围外，在该范围内，非电离现象由非弹性核散射引起；而在中低能范围内，核阻止所致的原子位移是 NIEL 的主要贡献，未直接导致位移的声子最终也可能有所贡献。基于大量实验观测，人们通常认为，半导体器件在离子辐照下输出参数的退化与 NIEL 呈线性相关 [5–9]。根据常用的 Norgett-Robinson-Torrens模型（NRT）[10]，该模型基于二体碰撞近似（BCA），NIEL 与位移数量之间存在线性关系，而位移数量又是初级碰撞原子（PKA）能量的线性函数。NRT 模型已应用于广泛使用的 SRIM/TRIM [11] 软件 [12]，以及用途更广的蒙特卡罗（MC）粒子输运代码（低能范围内）

* 目前任职于欧洲研究理事会执行局（ERCEA）

† jlteunissen@gmail.com

中 [13, 14]。

NIEL 的线性关系意味着，只有缺陷数量应当能够衡量损伤程度，而与缺陷的性质无关，例如缺陷是聚集在小区域内（如中子诱发损伤），还是均匀分散在相对较大的体积中（如低能质子或 γ 射线诱发的损伤） [15]。这种独立性使得能够通过 NIEL 标度 [5–7, 9, 16, 17]，获得不同粒子及不同能量所产生的损伤。通过针对低能初级反冲原子的分子动力学模拟，在硅中发现了缺陷数量对初级反冲原子能量的线性依赖偏差 [18–21]。这些研究 [18–21]还指出，即使能量低于通常采用的位移阈能，也会发生原子位移，这意味着低于该能量时，并非所有能量转移都用于激发声子，集体运动同样能够产生一定程度的损伤 [22]。在实验 [7]和蒙特卡罗模拟 [23]中也观察到了 NIEL 的非线性。对于不同能量范围，还发现退化参数与 NIEL 的线性关系存在偏差[24, 25]。人们已开展相关工作 [22, 26–30], ，提出有效或经过调整的 NIEL 模型，以修正其偏离线性关系的现象，方法包括分子动力学研究[22, 31–33] 和实验研究 [17, 34]。

沿入射离子轨迹确定初级反冲原子的能量耗散方式，并将其划分为电子能量损失和原子运动，这对于缺陷的计数及其后续演化至关重要。SRIM和用途更广泛的蒙特卡罗代码在进行非电离能量损失计算时，不考虑离子和电子自由度之间的任何耦合，采用非晶靶材，并为每种元素采用固定的阈值位移能，该能量与元素所在的材料无关。对于核阻止，SRIM使用通用屏蔽势（Ziegler-Biersack-Littmark，ZBL）；而在Geant 4 [13] 等用途更广泛的蒙特卡罗代码中，则使用ZBL [35] 或基于Thomas-Fermi模型的Moliere近似所给出的修正屏蔽函数。

重离子的电子阻止通过对质子阻止进行电荷标度来计算。后者在SRIM中通过拟合（并外推）实验数据 [12, 36] ，采用（线性响应）Lindhard-Sharff模型计算。在Geant4中，该模型仅用于低能质子（低于 ∼10千电子伏特/amu）；对于更高能量，则采用基于ICRU表的参数化方法，随后使用Bethe-Bloch公式[37]。然而，所有这些方法都沿用了上述主要近似。

鉴于现有实验数据十分匮乏，此类阻止本领数值的准确性，尤其是在低能条件下对自辐照单元素和多元素系统而言，目前尚不清楚，仍需进行大量验证。近期的多项研究凸显了 SRIM 在预测电子阻止本领和核阻止本领方面的局限性 [12, 36, 38, 39]。

实时含时密度泛函理论（RT-TDDFT）代表了一种很有前景的无参数方法，可在 SRIM 的假设不再适用的能量范围内，针对任意靶和任意入射粒子获得电子阻止。近期针对单元素系统的研究 [40–45] 表明，在分子动力学级联模拟中纳入通过 RT-TDDFT 获得的电子效应，会同时影响缺陷数量和级联形貌。

在此背景下，近期提出的非绝热动力学电子-声子（EPH）模型 [40–42, 46–49] 改进了此前开发的双温模型（TTM）（由 Duffy等人 [50]提出）。EPH 模型将电子-声子耦合和电子阻止视为同一物理过程的两种表现形式。与 TTM 不同，摩擦项如今取决于局部结构环境，因此与第一性原理电子阻止数据更加吻合。近期对硅中级联模拟的研究表明，EPH 模型能够正确再现依赖于密度的电子阻止功（ESP），且最终辐射损伤与 TTM 的预测有显著差异 [45]。

本研究以砷化镓这一典型材料为例，对由 100 电子伏特、1 千电子伏特和 10 千电子伏特自反冲原子引发的碰撞级联进行第一性原理研究，并分别采用 EPH 模型和 TTM。砷化镓的损伤常受到航天工程领域关注，因为它是太空任务所用先进太阳能电池中最活跃的有源层。我们设计了一种更稳健的流程，按照 Caro等人 [41] 提出的方法，将 EPH 模型拟合到通过实时含时密度泛函理论（RT-TDDFT）确定的电子阻止数据。我们采用了不同的双层方法，该方法可立即避免阻止功无界增长，并依靠两个全局优化步骤来减少局部最优问题。我们首次证明，EPH 模型能够良好描述半导体材料砷化镓中的电子阻止。此外，我们还证明，可以对多元素材料拟合 EPH 模型。我们还表明，电子阻止和电子-声子耦合的描述会影响缺陷数量，因此对于正确模拟辐射损伤至关重要。我们对砷化镓中具有不同能量的初级碰撞原子（PKA）开展了分子动力学（MD）碰撞级联模拟，并从缺陷数量和团簇化角度进行分析。我们还讨论了缺陷数量对计数标准的依赖性。最后，我们将缺陷数量与 NRT 模型及砷化镓相关的既有研究进行比较，并讨论缺陷数量与初级反冲原子能量之间可能偏离线性关系的情况。

本研究是 M. Raine 等人[51]构想的一项更大计划的一部分，该计划旨在跨越多个时间和长度尺度对辐射影响进行建模。在这一计划中，首先通过高能蒙特卡罗模拟评估初级反冲原子的分布，从而得到不同物种的初级反冲原子能量分布。本研究评估了单个镓和砷初级反冲原子的影响，得出了碰撞级联发生后仅几皮秒时的损伤构型

在初级反冲原子引发碰撞级联之后。完成本研究后，将通过另一种蒙特卡罗模拟（k-ART） [52]，使所得损伤构型演化至秒级时间尺度。

II. 方法

本文分为三个部分。A 节讨论如何通过实时含时密度泛函理论计算确定电子阻止本领。B 节利用得到的电子阻止本领结果训练电子-声子模型。我们采用迭代流程优化电子-声子模型中的耗散函数，使其尽可能准确地再现从头算 电子阻止本领。最后一节使用电子-声子模型和双温模型开展碰撞级联的分子动力学模拟。

A. 电子阻止本领的计算

对于高速入射粒子，动能损失的主要机制是电子系统的非绝热激发。通常用电子阻止本领来量化这种能量损失， S_e 其定义如下：

$$S_e(E) = -\frac{dE_e(x)}{dx} \tag{1}$$

其中， dE_e 是电子系统的能量损失， dx是入射粒子行进的距离，即穿透深度。我们通过模拟一个离子以恒定速度穿过靶材，同时将其余原子固定，来计算电子阻止本领；这样便可直接将系统总能量的变化作为 dE_e （因此忽略核阻止分量）。对于本研究考察的入射粒子速度，这一近似完全成立[53–55], ，而且在采用实时含时密度泛函理论方法确定电子阻止本领的多数计算研究中都广泛使用 [41, 44, 56]。

RT-TDDFT 计算采用平面波 Qb@ll 代码 [57, 58] ，使用 PBE 泛函 [59]。此前使用 LDA 和 GGA（PBE）泛函计算电子阻止本领的经验表明，计算结果与实验符合得相当准确[44, 47, 56, 60]。由于初级反冲原子速度较高，会引发较深能级的电子激发，因此镓和砷化物分别采用含 13 个和 15 个价电子的赝势。对于高能入射粒子，芯电子尤为重要 [55]。我们的 RT-TDDFT 计算旨在为初级碰撞原子能量远低于 100 千电子伏的碰撞级联参数化 EPH 模型。

采用了量子模拟赝势库提供的 Hamann 型守恒范数赝势[61] [62, 63]。镓和砷的赝势截断半径分别为 0.6 ˚A 和 0.56 ˚A。波函数基组截断能设为 100 Rydberg，并且使用 4 个空态在 1000 K 下进行展宽。所有计算均采用含有 96 个原子的 GaAs 2x2x3 超胞，其布里渊区仅在 Γ 点取样。

在我们的模拟中，波函数采用强制时间反演对称性传播子进行传播。除非另有说明，本文中的入射粒子始终为中性，即以未电离状态开始，因为我们假设初级碰撞原子在其轨迹起点处的电子环境与基态中性原子的电子环境相同。有关高度电离砷初级反冲原子的电子阻止功评估，请参阅补充材料**S1** [64]。低于 1000 千电子伏时，我们采用 0.4 阿秒的时间步长。在更高能量下，时间步长的选取使入射粒子在每个模拟步中移动 0.005 ˚A。

入射粒子电荷稳定之前会经历一个初始瞬态阶段。因此，只有瞬态阶段之后的结果才用于求取平均ESP。每当入射粒子经过某个原子附近时，其势能都会出现一个峰值。详细了解平均ESP的求取方法，请参阅补充材料 **S2** [64] 。

B. 在分子动力学中加入电子阻止

在分子动力学模拟中，核阻止的计算相对直接，因为它对应于入射粒子因所有原子间碰撞而损失的能量。然而，尤其是在入射粒子能量较高时（$E > 100$ 千电子伏特），最重要的能量损失机制是电子阻止。人们提出了几种方法，在不显式考虑电子的情况下，将电子阻止纳入分子动力学模拟 [50, 65]。早期的一种模型仅对原子施加额外的摩擦力，但入射粒子损失的能量会从系统中移除，而不会通过电子-声子耦合以热能的形式返回系统。

双温模型既允许纳入电子阻止，也允许将电子系统吸收的能量返还给核系统 [50, 66]。双温模型为经典原子分子动力学系统添加了一个具有自身温度的有效电子系统。通常的分子动力学运动方程被朗之万型方程取代，其中加入了一个摩擦项和一个随机力项。摩擦项与原子速度呈线性关系（符合林德哈德理论 [67]），并通过一个与电子阻止相关的 γ_s 参数进行缩放。 γ_s 的值通常由 SRIM 得出。电子系统中的能量输运由电子热方程描述，该方程使用电子比热和电子热导率。

双温模型的优点在于，它能够将电子阻止和电子-声子相互作用纳入分子动力学模拟中；然而，它也存在一些缺点。首先，它施加的电子阻止是按照弹丸在均匀电子气体中所经历的情况来处理的，因此

沟道效应等影响未被考虑在内 [68]。其次，模型中包含许多参数，而相关实验数据很少，因此难以获得可靠的结果和实现可预测性 [69]。

TTM 的应用证明，在碰撞级联中纳入电子温度会延长热尖峰的持续时间，从而实现更多的热退火并减少缺陷数量。此外，TTM 还可用于研究电子-声子耦合较强的抗辐射材料 [66]。LAMMPS 中实现的 TTM [70] 仅允许指定一个 γ_s 参数，因此对于砷化镓，镓和砷入射粒子的摩擦项将相同。

最近开发的电子-声子模型 [40, 41, 48] 通过将电子系统建模为置于每个原子上的球形电子密度，改进了 TTM，因此电子阻止功可取决于入射粒子所经历的局部电子密度。电子-声子耦合在低能量（毫电子伏特尺度）下被视为电子阻止过程。第三，研究已证明，含时密度泛函理论能够为电子阻止功和电子-声子耦合 [46, 55]提供准确结果，从而可以利用含时密度泛函理论结果对电子-声子模型进行参数化。在[41], 中，研究表明，经过良好拟合的电子-声子模型得到的电子阻止功曲线与实时含时密度泛函理论结果高度吻合。

在 EPH 模型中，摩擦力和随机力由多体张量描述，这与它们为标量的 TTM 不同 [40]:

$$m_I \frac{\partial \mathbf{v}_I}{\partial t} = \mathbf{F}_I - \sum_J B_{IJ}\mathbf{v}_J + \sum_J W_{IJ}\boldsymbol{\xi}_J \qquad (2)$$

右侧的第二项和第三项分别对应作用于 I^{th} 原子的摩擦力和随机力。作用于 I^{th} 原子的力现在取决于所有其他原子 J的速度，因此所有力都彼此关联。 $\boldsymbol{\xi}_J$ 是一组白噪声、相互不相关的高斯随机变量，其归一化值为 $2k_BT_e$ [41]。 B_{IJ} 和 W_{IJ} 是描述空间关联的两个张量，它们通过涨落-耗散定理相关联，即:

$$B_{IJ} = \sum_K W_{IK}W_{JK}^{\mathrm{T}} \qquad (3)$$

ESP 和电子-声子耦合均由 W 矩阵中的各项决定。

W 中的各项经过构造，使随机力不会产生任何局部净平动动量或转动动量。这一条件旨在保持正确的声子寿命和极化。 W 随后定义为:

$$W_{IJ} = \begin{cases} -\alpha_J(\bar{\rho_J})\dfrac{\rho_I(r_{IJ})}{\bar{\rho_J}}\vec{e}_{IJ} \times \vec{e}_{IJ} & (I \neq J) \\ \alpha_I(\bar{\rho_I})\displaystyle\sum_{K\neq I}\dfrac{\rho_K(r_{IK})}{\bar{\rho_I}}\vec{e}_{IK} \times \vec{e}_{IK} & (I = J) \end{cases} \qquad (4)$$

其中， $\rho_I(r)$ 是球形密度 ρ （以原子 I为中心）在距离 r处的值。 $\bar{\rho_I} = \sum_{J\neq I}\rho_J(r_{IJ})$ 是原子 I感受到的电子密度，等于其所有邻近原子的贡献之和。 $\alpha_I(\bar{\rho_I})$ 是定义电子与离子 [42]之间耦合的函数。

该 α 函数的形式不受限制，取决于原子种类。因此，每种元素都使用不同的 α函数。 α 函数必须覆盖整个相关范围，从晶体空位和宽沟道方向中心处出现的低密度，到近距离碰撞时遇到的高密度。该函数利用实时含时密度泛函理论数据进行优化。为使 α 函数在整个密度范围内都准确，必须在宽广的电子密度范围内定义电子阻止功。

电子热方程与双温模型非常相似，且使用相同的 C_e 和 κ_e 值 [42]。EPH 模型可作为外部插件用于 LAMMPS。

C. 碰撞级联分子动力学模拟

按照 Gao等人 [32], 提出的方法，我们采用 Albe等人为砷化镓开发的键级势[71] ，并在短距离处结合 ZBL 泛函 [72] ，以描述强烈碰撞冲击过程中出现的短程排斥相互作用。（势函数可视化见补充材料**S3** [64] 。）

所有分子动力学模拟均采用周期性边界条件。整个模拟盒是一个大型立方超胞。模拟超胞的所有外围单元构成恒温器，通过 Nosé-Hoover 恒温器 [73], 将原子温度维持在 300 K，从而吸收热波。EPH 或双温模型方程仅适用于内部区域。

对于每种模拟类型，首先将系统初始化至 300 K，并充分平衡 100 皮秒。随后，以平衡后的系统作为一组碰撞级联的初始状态。级联开始时，时间步长设为 0.001 fs。之后更新时间步长，使每个时间步内原子的移动距离不超过 0.05 $^{\circ}$A。所有模拟均运行数皮秒，直到温度回落至 301 K，以确保热尖峰充分消散。这样便可比较采用不同模拟类型所产生的直接影响；但若要进行实验比较，则需要采用更长时间尺度的方法，以纳入更长时间尺度的效应。

为获得良好的统计平均值，对于每种分子动力学设置，均运行 78 次不同的级联，并按照参考文献 [69] 中概述的流程选择不同的初始初级碰撞原子方向。选择初级碰撞原子时，使其初始速度矢量尽可能指向内部区域的中心，从而将碰撞损伤限制在模拟盒内，并防止级联过程中原子离开内部区域。团簇化分析采用 Louvain算法进行社群检测[74]。

III. 结果与讨论

A. 电子阻止本领的计算

1. *Choosing the PKA directions*

为初级碰撞原子的轨迹选择了不同的晶体方向，以探测多种晶体环境和电子密度，从而为后续准确拟合电子-声子模型提供依据。我们纳入了三个完整的沟道方向，入射粒子沿沟道中间运动，因此沿着穿过晶体的最低密度路径前进：⟨001⟩、⟨011⟩ 和 ⟨111⟩。

在⟨001⟩ 沟道中加入了偏心沟道方向，即平行于沟道但更靠近原子的方向。我们采用以下命名规则：$\langle 001\rangle_X^N$ 表示轨迹从 ⟨001⟩ 中心向原子类型为 X的原子偏移，偏移距离为原子中心间距的$\frac{1}{N}$。纳入的偏心方向见图1。

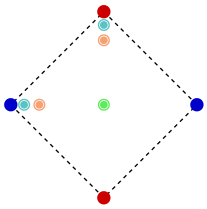

图 1. ⟨001⟩ 沟道的示意图。蓝点表示砷原子，红点表示镓原子。绿点表示中心沟道方向 ⟨001⟩。青绿色点表示 $\langle 001\rangle_{Ga}^{7}$ 和 $\langle 001\rangle_{As}^{7}$ 偏心沟道方向的位置，距原子中心距离的七分之一。橙色点表示 $\langle 001\rangle_{Ga}^{4}$ 和 $\langle 001\rangle_{As}^{4}$ 偏心沟道方向的位置，距原子中心距离的四分之一。

还包括与任何晶体对称矢量都不相容的随机轨迹。由于这些方向不具有周期性，因此选择它们来探测晶体中每种可能的密度环境。这些所谓的非沟道方向需满足若干条件：

- 初级碰撞原子的起始位置不能离另一个原子太近，以获得良好的初始波函数。
- 由于选择了一个 $2\times2\times3$ 超胞，初级碰撞原子的方向必须在 z 方向上具有最大的速度分量。
- 由于对非沟道方向进行采样，以获得轨迹越长，入射粒子就越需要尽可能从此前经过的位置以外重新进入晶胞。
- 轨迹不应与另一个原子发生过近的接近（正面碰撞）。
- 轨迹应尽可能不与某一晶体学方向相容。为检验这一点，我们使用自相关函数来检测信号中是否存在周期性。我们记录沿第一个 60 °A 的轨迹变化时与另一个原子之间的最近距离。如果自相关函数中没有较大的峰值（自相关峰除外），则所选方向与任何低指数晶体学方向都足够不相容。

在 EPH 模型中，电子-声子相互作用被视为发生在原子参考位置附近的电子阻止过程。通过引入一条穿过空位的非公度初级碰撞原子轨迹，对这些（原子密度较低的）参考位置处的电子阻止进行采样。

2. *Electronic stopping power calculations*

针对一系列不同能量，评估了多条轨迹的电子阻止功。由于镓初级碰撞原子和砷初级碰撞原子的结果在定性上相似，为简便起见，图2仅展示砷初级碰撞原子的电子阻止功。此外，还列出了 SRIM 得出的阻止本领。

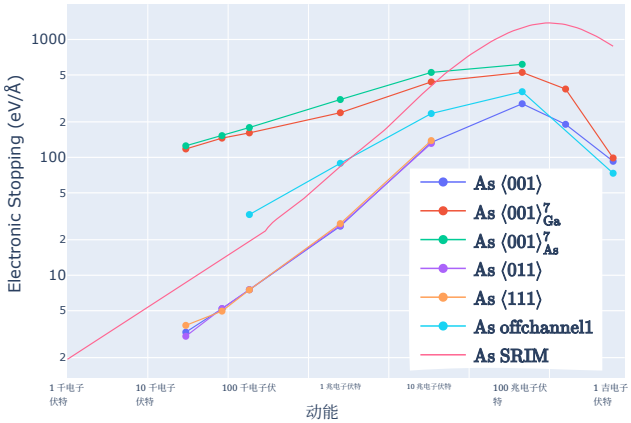

图2. 砷初级碰撞原子在砷化镓中的电子阻止。（为降低计算成本，省略了部分数据点。）

所有沟道方向的电子阻止功值均小于 SRIM 的结果，这一点在许多其他材料中也有所观察到 [55, 56, 75, 76]。我们观察到，沿三个沟道中心的电子阻止功非常

相似。例如，对于 1 兆电子伏特的砷初级反冲原子，电子阻止功值分别为 26.0、26.5 和 27.4 电子伏特/ ˚A，对应于 ⟨001⟩、⟨011⟩和 ⟨111⟩ 沟道。该结果与其他具有类似类金刚石结构的材料的研究[75, 76] 有所不同，在那些研究中，较宽的 ⟨011⟩ 沟道所得的电子阻止功值略低于 ⟨001⟩ 和 ⟨111⟩ 的结果。

靠近原子的偏心沟道效应下，ESP 结果非常高，这是因为入射粒子沿轨迹运动时遇到了很高的电子密度。$\langle 001\rangle^{7}_{\mathrm{As}}$ 的 ESP 略高于 $\langle 001\rangle^{7}_{\mathrm{Ga}}$，因此，入射粒子经过一个砷原子时受到的阻止更强，这与其较高的电子密度相符。

非沟道效应的结果介于通道效应和偏心沟道效应的结果之间。这是意料之中的，因为非沟道轨迹对电子密度的探测最为均匀（按时间平均），而通道效应和偏心沟道效应主要探测的则分别是低电子密度或高电子密度区域。

由于 SRIM 未考虑通道效应，即它只将过程视为一系列二体碰撞，因此非沟道效应的结果应与 SRIM 的结果最为吻合。我们在较低能量（≤ 10兆电子伏特）下证实了这一假设。在较高的入射粒子能量下，结果与 SRIM 的偏差更大。其他多项研究中也观察到了这一现象 [44, 55]，这可归因于在较高弹丸速度下芯电子的重要性日益增加。我们的计算仅显式处理 Ga 和 As 的 31/33 个电子中的 13/15 个价电子，因此未计入芯电子的影响。

为了拟合 EPH 模型，我们重点关注初级反冲原子能量为 100 千电子伏时的结果，因为此时精度与计算时间之间的平衡最佳；降低能量（例如降至 20 千电子伏及以下）会大幅增加计算成本，而在能量高得多时，ESP 与 PKA 速度之间的线性关系会失效 [50]。

图 3 展示了镓和砷初级反冲原子在多条轨迹上的 ESP 值，其动能均为 100 千电子伏。还考察了其他一些轨迹，例如 $\langle 001\rangle^{4}_{Ga}$ 和 $\langle 001\rangle^{4}_{As}$。此外，还纳入了另一条非沟道效应轨迹，该轨迹不像非通道*1* 方向那样在 38 ˚A 附近发生近距离碰撞（见补充材料 **S2** [64]）。最后，还纳入了一条穿过空位的非沟道效应轨迹（*vacancy1*）。

沿偏心沟道方向$\langle 001\rangle^{4}_{X}$ 的电子阻止功低于沿 $\langle 001\rangle^{7}_{X}$ 轨迹的电子阻止功（其中X 为镓或砷）。在没有近距离碰撞的情况下，沿第二个非沟道方向的电子阻止功明显低于沿第一个非沟道方向的电子阻止功，并且与 SRIM 的结果非常接近。穿过空位的轨迹所对应的电子阻止功低于沿其他非沟道方向的电子阻止功。

总体而言，镓与砷之间的电子阻止功差异较小，在通道方向上最为显著。砷的电子阻止功通常高于镓。靠近砷原子的偏心沟道效应轨迹，其电子阻止功也高于靠近镓原子的轨迹，

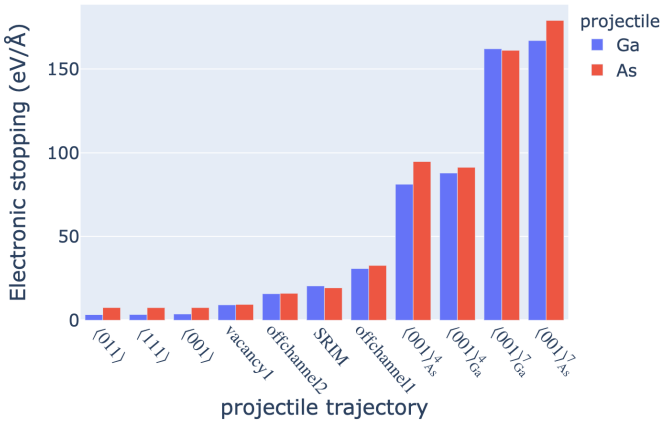

图 3. 初级反冲原子能量为 100 千电子伏时，镓和砷初级反冲原子在砷化镓中沿不同轨迹运动时的电子阻止值。

这与砷周围较高的电子密度一致。

B. 将电子-声子模型拟合到电子阻止功结果

利用沿不同轨迹得到的一组电子阻止功结果，我们对电子-声子模型进行拟合，以便在分子动力学模拟中纳入电子阻止功。由于在每个分子动力学步骤中进行自洽量子力学计算的成本过高，在电子-声子模型中，电子密度近似为以各原子为中心的球对称密度之和。因此，需要提供镓和砷的球对称密度。使用 OPIUM 程序计算孤立原子，得到这些类原子密度 [77]（原子密度可视化图见补充材料**S4** [64]）。

1. *Optimizing the β function*

方程 2 中的 B 矩阵表示摩擦系数，且是 W（方程 3）的厄米平方。因此，摩擦与 α^2 成比例。在下一节中，我们将按照参考文献 [41] 中的相同符号约定，对这个 α^2 函数进行优化，并将其称为 β。

原则上，β 不仅取决于局域密度，还取决于运动粒子的运动方向。尤其是在较高密度下，可以观察到（见图 4 中间图的峰值处），在近距离碰撞开始时，即两个原子彼此靠近时，ESP 较高；而在随后粒子彼此远离时，ESP 则较低。然而，时不变密度分布是对称的。这意味着，ESP 无法精确表示为仅取决于时间无关密度 [41] 的函数。因此，在 EPH 模型中，将 β 设为仅取决于

时间无关密度的近似值，该密度由每个原子的球对称密度之和近似得到，称为 ρ_0。

在接下来的章节中，我们尝试寻找一个 β（ρ_0）函数。我们将最佳的 β 函数定义为：对于相同的轨迹，分别采用 EPH-MD 和实时含时密度泛函理论进行模拟时，由 ESP 导致的能量耗散差异最小的函数。

通过 EPH-MD 模拟，我们可以直接获得系统沿轨迹各点因 ESP 而耗散的能量。要获得瞬时耗散，或瞬时 ESP，我们必须从实时含时密度泛函理论的能量曲线中扣除晶体结构的影响。通过计算每种原子构型对应的基态（BOA）能量，再从实时含时密度泛函理论模拟在相同构型下得到的能量中减去该值，即可消除结构的影响。这样，便可得到仅由非绝热效应导致的能量增加 E_{elec}（r），它等于电子阻止所耗散的能量：

$$E_{elec}(r) = E_{RT-TDDFT}(r) - E_{BOA}(r) \tag{5}$$

在图 4 中，我们展示了三条轨迹，说明如何消除结构的影响以得到 E_{elec}。对于⟨001⟩， E_{elec} 曲线非常平滑，因此 ESP 沿沟道变化非常稳定。从另外两条轨迹可以看出，大部分能量是在近距离碰撞过程中耗散的。

我们将给定 β 函数的误差定义为 EPH-MD 与 RT-TDDFT 耗散量之差。对于单条轨迹，平均绝对误差定义如下：

$$MAE = \frac{1}{r_{12}} \int_{r_1}^{r_2} |E_{MD}(r) - E_{elec}(r)|\, dr \tag{6}$$

待最小化的总误差，是最小化过程中纳入考虑的所有轨迹对应的全部MAE之和。

解决如何找到一个使总 MAE最小化的 β 函数这一难题，有多种策略。一般而言，我们假设没有电子时就没有电子阻止，因此该函数必须经过原点。我们还预期 ESP 会随密度增加而增大，但只会持续到某一密度；超过该密度后，ESP 要么趋于饱和，要么减小。可以采用不同的策略。Caro 等人 [41] 使用含 6 个节点的三次样条构造了一个 β 函数，随后加入指数衰减项，以避免在高电子密度下阻止作用无界增大。Jarrin 等人 [45] 使用了如下形式的函数：$\beta(\rho) = c_1\rho \cdot e^{c_2(\rho - c_3)}$ 其中 c 是优化参数。

这两种方法都有各自的缺点。使用样条函数时，优化空间是非线性的，因此优化问题容易陷入局部最优解；而函数形式的限制又过于严格。我们决定将两种方法结合起来。首先，优化一个简单的函数形式，以获得 β 函数的大致形状。随后，进行第二次优化，在先前的函数上添加一个三次样条函数。第二次优化实质上是通过对函数进行小幅调整来微调第一次优化得到的函数，同时保留其整体形状。两阶段优化流程的优势在于降低了问题的维度。在两个优化步骤中，均使用非线性优化软件 NLOPT [79]中实现的 DIRECT全局无导数优化算法 [78] 。在优化过程中，每次迭代时，NLOPT都会提出一个试验 β 函数。接着，使用该试验 β 函数，通过 LAMMPS 对所有相关轨迹进行短时计算。随后，评估总误差。

需要注意的是，对于砷化镓，我们有两种元素，因此会同时优化两个 β 函数。正如我们所指出的，在高密度下，ESP较小但不会降至零，因此我们没有采用指数衰减，而是决定在较高密度下使函数饱和为常数 β 函数。β 常数函数也用于[45] 和 [40]。（轨迹 $\langle 001 \rangle^7_{\mathrm{Ga}}$ 和 $\langle 001 \rangle^7_{\mathrm{As}}$ 未用于电子-声子模型训练，因为沿这些轨迹采样到的高密度区域在碰撞级联过程中很少出现，而耗散函数在这些密度下将为常数。在第一个优化步骤中，我们采用简单的函数形式：

$$\beta(\rho) = \begin{cases} c_1 \cdot \rho & (\rho < c_2) \\ c_1 \cdot c_2 & (\rho > c_2) \end{cases} \tag{7}$$

在第二个优化步骤中，在范围 $[0,\, c_2]$ 内加入一个四点三次样条，该样条在范围的两端都必须为零。图5展示了优化后的 β 函数。

图6展示了 Ga（上）和 As（下）初级反冲原子的 4 条轨迹中，EPH-MD 和 TTM 分子动力学运行结果与从头算结果的对比。由于 TTM 未考虑任何局部晶体信息，其结果在大多数轨迹上都存在显著误差。EPH 模型显然与 RT-TDDFT 数据更加吻合，不过通过采用更先进的拟合方法，匹配程度肯定还能进一步提高。

我们决定使用与 EPH 模型相同的误差度量，通过 NLOPT 优化 TTM 的 γ_s 参数，以便与 EPH 模型进行公平比较。优化后的 γ_s 参数对于 Ga 和 As 分别为 45.82 和 43.34 g/mol/ps。SRIM 得到的 γ_s 数值对于 Ga 和 As 分别为 54.54 和 51.51 g/mol/ps。这些数值显然高于基于 RT-TDDFT 得出的数值，因此会导致 ESP 过高。

EPH 的总平均绝对误差为 1421 电子伏特，而 TTM 的为 4680 电子伏特。因此，采用此处拟合的 EPH，相较于 TTM，耗散误差降低了 70%。

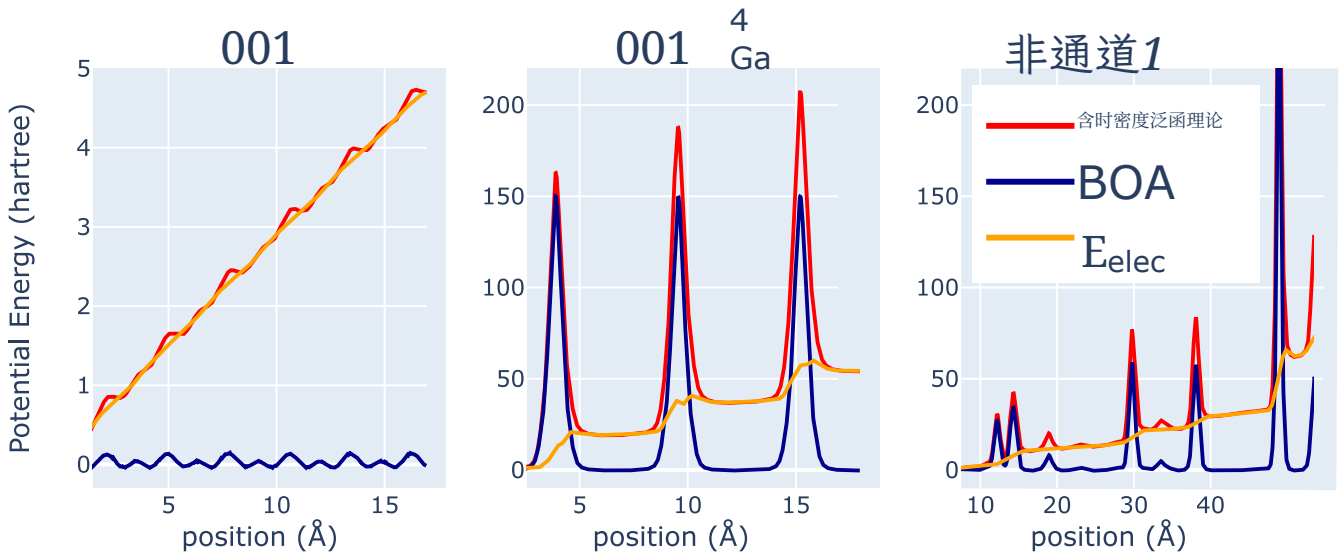

图 4. 通过从实时含时密度泛函理论（红色）中减去 BOA 能量（黑色），获得由电子阻止导致的瞬时耗散能（橙色）的三个示例。这里展示了 100 千电子伏砷初级碰撞原子沿 $\langle 001\rangle$、$\langle 001\rangle^4_{Ga}$ 和 *offchannel1* 轨迹运动时的情况。

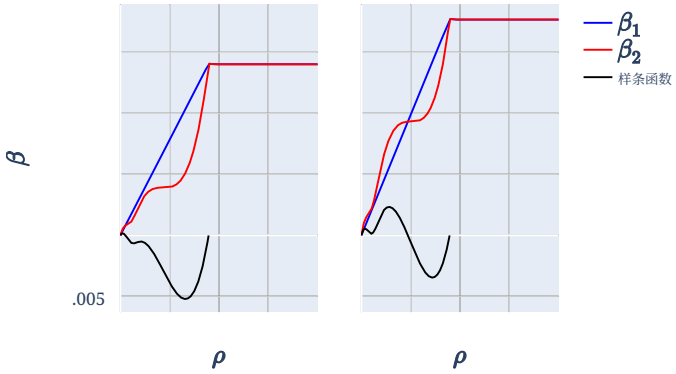

图 5. 密度为 $e^-/\,^{\circ}\mathrm{A}^3$ 时，镓和砷的优化 $\beta(\rho)$ 函数。β_1 曲线是根据公式 7 进行第一次优化步骤的结果。β_2 曲线是 β_1 与样条修正曲线之和的结果。β 值的单位为电子伏特·皮秒/ $^{\circ}\mathrm{A}^2$。

我们开展了初级碰撞原子能量为 100 电子伏特、1 千电子伏特和 10 千电子伏特的碰撞级联分子动力学模拟。分子动力学系统为 $N*N*N$ 超胞，其中 N 分别为 20、30 或 50 个常规砷化镓晶胞。当能量超过 10 千电子伏特时，由于子级联形成，级联结构变得自相似 [80]。

在图7中，我们展示了碰撞级联过程中能量随时间的变化。所有曲线都先因入射粒子直接传递动能而出现动能峰值，随后出现势能峰值，即所谓的热尖峰。与 EPH-MD 相比，TTM-MD 中热量消散得快得多。在 EPH-MD 分子动力学模拟中，观察到动能在约 2-3 皮秒时略有第二次上升，这是由电子-声子耦合引起的：热电子将热量传递给离子，从而使系统的动能再次增加。由于我们持续运行级联模拟，直到热尖峰过后温度恢复至 301 开尔文，因此 EPH-MD 的运行时间显著长于 TTM-MD。初级碰撞原子能量为 10 千电子伏特时，TTM-MD 的分子动力学计算平均运行时间为 4 皮秒相比于EPH-MD 的 51 皮秒。

C. 碰撞级联分子动力学模拟

本节展示使用 TTM 和电子-声子模型得到的碰撞级联，以及未考虑电子阻止时的级联。在两个模型中，我们采用的比热 C_e 和热导率 κ_e 分别为 $6.45\cdot 10^{-6}$ 电子伏特/K 和 $1.0\cdot 10^{-9}$ 电子伏特/K/ $^{\circ}$A/皮秒。正如 Jarrin 等人 [45], 所示，EPH-MD 的结果并不显著依赖这些电子参数；而对于 TTM-MD 的结果，只有改变C_e 才会产生显著影响。在 TTM 模型中，临界速度设为 96.28 $^{\circ}$A/皮秒

评估缺陷数量主要有两种方法。

- Wigner-Seitz方法 [81]：级联在完美晶格上启动。级联结束后，将每个原子分配到距离其最近的参考晶体位置。对于每个有两个或更多原子将其视为最近位置的参考位置，将其计为一个间隙原子。对于没有任何原子将其视为最近晶格位置的参考位置，将其计为一个空位。反位缺陷被定义为仅有一个从属原子、但该原子的类型与该参考位置原有类型不同的参考位置

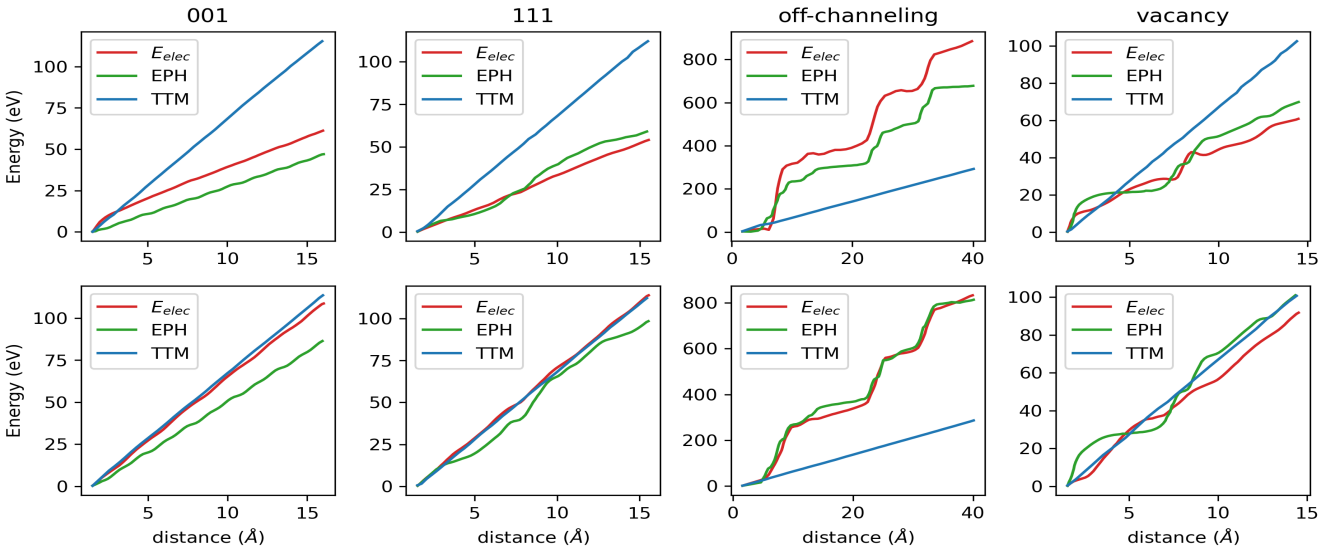

图 6. 通过实时含时密度泛函理论（E_{elec}）、EPH-MD 和 TTM-MD *vs* 评估的电子阻止所致耗散能的比较。沿轨迹的距离。上排为镓初级碰撞原子，下排为砷初级碰撞原子，均沿图示轨迹。

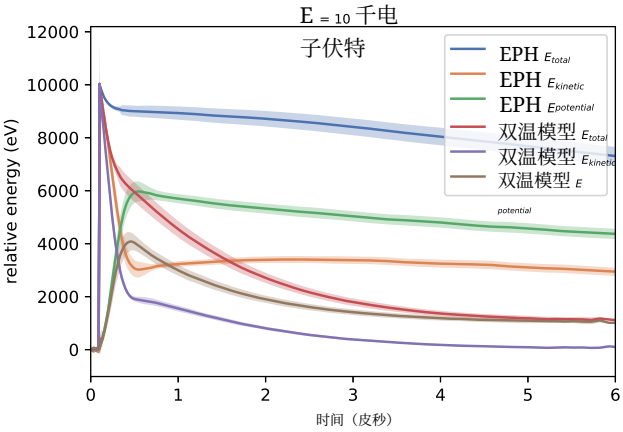

图 7. 分子动力学模拟过程中图中所示各能量的平均演变。每条曲线是 78 次分子动力学运行的平均值，阴影区域表示标准差。

的参考位置。

- 截断方法 [82]：以每个原始晶体位置为中心构建一个球体。级联结束后，若某个球体为空，则将其标记为空位；位于所有球体之外的原子则为间隙原子。若以截断半径为半径、以原始晶体原子为中心的球体内含有一个与原始元素不同的元素的原子，则将其定义为反位缺陷。

这里，我们选择使用第二种方法，并采用 1.0 ˚A 的截断值。该值位于稳定区间内，在此区间中，缺陷数量相对于截断半径最为稳定。关于缺陷数量如何随缺陷定义和截断值变化，请参见补充材料 **S5** [64]。通过截断法确定的缺陷和反位缺陷数量，以及团簇尺寸和初级碰撞原子穿透深度，均列于表 I。图 8 展示了使用 EPH- 分子动力学模拟镓初级碰撞原子得到的三种典型最终损伤构型。正如预期，初级碰撞原子能量越高，缺陷数量、反位缺陷团簇数量和初级碰撞原子深度也越高。

表 I 展示了通过截断法确定的缺陷和反位缺陷数量，以及团簇尺寸和初级碰撞原子穿透深度。砷和镓初级碰撞原子的 EPH-MD 模拟结果相似。镓初级碰撞原子的平均穿透深度和形成的团簇数量仅略高于砷初级碰撞原子，且始终处于彼此相应的误差范围内。在不考虑电子阻止的 EPH-MD 运行中，缺陷数量约高出 10%（见表 I），因此电子阻止有效地从原子核中移除能量，从而降低最终的辐射损伤。

与双温模型相比，采用 EPH 模型进行分子动力学模拟得到的缺陷、反位缺陷和团簇数量更多。这表明，采用双温模型时，由于电子阻止功，更多能量得以耗散并转化为热；而采用 EPH 模型时，由于存在电子阻止功较低的区域（类沟道条件），更多能量用于核阻止，从而产生更多缺陷。TTM-MD 情况下，更多能量通过电子阻止耗散，这与 SRIM 的结果趋势一致；SRIM 也会高估电子阻止功 [38, 83]。SRIM 得到的γ_s 值更高。如果我们仅使用一条随机非沟道轨迹来优化 γ_s γ_s，所得值也会更高。采用更高的 γ_s 值运行 TTM-MD 会增强电子阻止功，使缺陷数量进一步减少。此外，我们的 C_e 和 κ_e 值相对较低，但使用更高的值可能会使缺陷数量进一步减少，这与文献

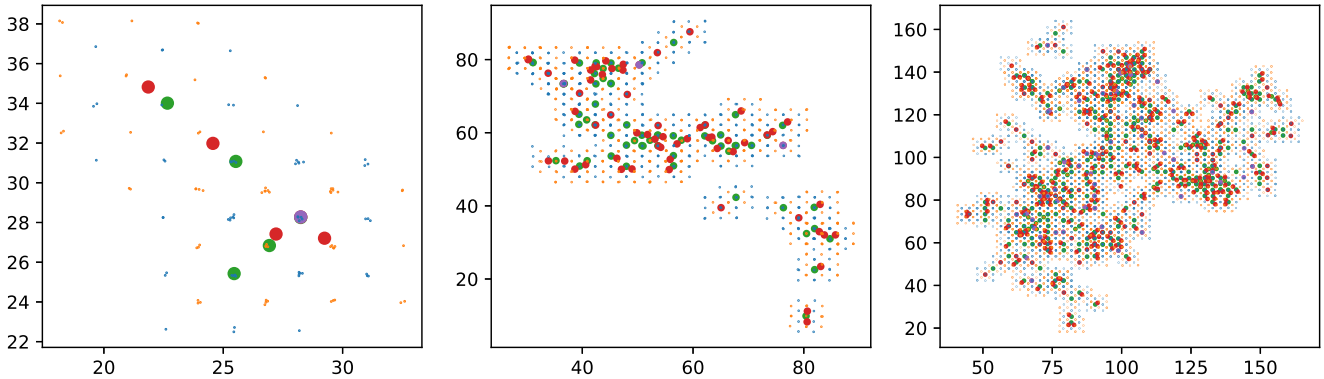

图 8. 使用不同 Ga PKA 能量（分别为 100 eV、1 keV 和 10 keV），通过 EPH-MD 在 xy 平面中得到的三个最终损伤构型示例。间隙原子以红色表示，空位以绿色表示，反位缺陷以紫色表示。坐标轴尺寸单位为 ˚A。原始的无缺陷晶体原子仅显示在缺陷附近，并以小点表示：镓（蓝色）和砷（橙色）。

[45]的情况类似。TTM-MD 得到的团簇数量明显更少，即使考虑到其缺陷总数较少这一点也是如此；这表明 TTM-MD 会产生更大的缺陷团簇。硅中也观察到了这一现象 [45]。

我们还对 0.5、2、5 和 20 keV 的初级反冲原子进行了额外的 EPH-MD 计算。缺陷数量的变化如图 9 所示。间隙原子和反位缺陷的数量呈现出明显的线性关系。我们还纳入了根据 NRT 公式预计的缺陷数量：$N_{\text{defects}} = \frac{0.8E_{PKA}}{2*E_d}$其中，$E_d$ 为阈值位移能。E_d 取 13 eV，即文献报道的镓和砷的数值的平均值 [84]。可以看出，通过截断方法得到的缺陷数量远高于 NRT 模型的预测值，但二者具有相同的线性趋势。

1 千电子伏特和 10 千电子伏特下的缺陷数量约增加 9–10 倍，这与 Gao 等人 [32] 和 Nordlund 等人 [80] 在分子动力学模拟中观察到的结果一致。然而，与我们的研究不同，Gao 等人 [32]，的研究中缺陷数量远高于 NRT 模型的预测值，如图 9 所示。作者认为，这一结果与砷化镓中发生的直接撞击非晶化有关；这种现象会阻止弛豫阶段中间隙原子与空位快速湮灭。缺陷产生效率定义为 N_F 与N_{NRT}的比值，其范围为 3.0 至 5.0，并且随初级反冲原子能量增加而升高；这与碳化硅和金属中初级反冲原子能量越高、缺陷产生效率越低的情况相反。这表明，砷化镓中的缺陷产生效率高于金属或合金中的缺陷产生效率，原因是砷化镓中不存在热尖峰。通过 Wigner-Seitz 定义确定时，我们得到的缺陷数量略低于 NRT 模型的预测值。在这两种情况下，缺陷数量与初级碰撞原子能量之间都呈高度线性关系。Nordlund 等人 [80]报告的砷化镓缺陷数量高于我们的结果，但比 Gao 报告的数值更接近我们的结果

等人 [32]。与他们的情况一样，反位缺陷的数量比标准缺陷（空位和间隙原子）的数量低一个数量级。我们注意到，在比较缺陷绝对数量时应格外谨慎，因为其中仍存在很大的不确定性，Nordlund 等。 [80] 也指出了这一点；这不仅是由于采用了不同的电子阻止模型，还由于使用了不同的力场势和缺陷检测算法。

从图 9 所示对较低能量缺陷数量进行线性拟合可以看出，在较高能量下，与线性NRT模型的吻合程度在一定程度上有所下降。这可能是由于电子阻止损失的能量更多，也可能是因为重叠缺陷级联开始形成而产生了非线性效应。

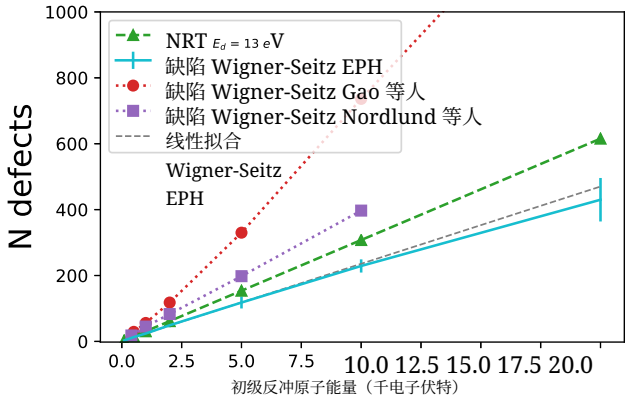

图 9. 不同初级碰撞原子能量下的缺陷数量。通过 Wigner-Seitz (WS) 方法确定的弗伦克尔对缺陷数量，与 Gao *et al.* [32] 和 Nordlund *et al.* [80]报告的数量进行了比较。采用 $E_d = 13$ 电子伏特评估 NRT 模型 ($N_{\text{defects}} = \frac{0.8E_{PKA}}{2E_d}$) 预测的缺陷数量。图中以灰色显示了对能量不超过 5 千电子伏特时 EPH-MD缺陷数量的拟合，其有效 E_d 为 17.1 电子伏特。

表 I. 通过截断法确定的缺陷数和反位缺陷数（1 ˚A），以及团簇尺寸和分子动力学计算中的初级碰撞原子深度，所用初级碰撞原子能量和初级碰撞原子初始能量如表所示。所有数值均为 78 次分子动力学模拟的平均值。括号内的数值为均值标准误（SEM）。

		EPH-MD		NVE	TTM-MD
	E_0^{PKA}	As	Ga	Ga	Ga
氮缺陷	100 电子伏特	6 (2)	7（2）	-	6（2）
	1 千电子伏特	59（11）	54（8）	61（8）	52 (8)
	10 千电子伏特	542 (86)	542 (93)	592 (111)	464 (52)
氮反位缺陷	100 电子伏特	0 (0.5)	0 (0.5)	-	0 (0.4)
	1 千电子伏特	5 (2)	5 (2)	5 (2)	2 (2)
	10 千电子伏特	64 (15)	64 (13)	-	26 (6)
N簇	100 电子伏特	2.9 (0.7)	3.6 (1.0)	-	3.4 (0.8)
	1 千电子伏特	14.8 (3.0)	16.3 (2.8)	16.7 (3.1)	13.0 (2.6)
	10 千电子伏特	96.3 (13.0)	100.1 (13.3)	106.3 (14.3)	67.3 (9.2)
初级碰撞原子深度 (Å)	100 电子伏特	4 (3)	8 (4)	-	7 (3)
	1 千电子伏特	21 (12)	29 (16)	31 (17)	24 (12)
	10 千电子伏特	81 (59)	89 (55)	112 (69)	98 (64)

IV. 结论

在本研究中，我们通过 RT-TDDFT 计算表明，可以获得 GaAs 中初级反冲原子符合实际的 从头算 电子阻止行为。需要注意的是，尽管 RT-TDDFT 模拟正得到越来越广泛的应用，但重离子模拟绝非例行工作。我们设计了一种更稳健的程序，按照 Caro 等 [41] 提出的方法，将 EPH 模型拟合到通过 RT-TDDFT 确定的电子阻止功。我们采用了另一种双层方法，该方法能够立即防止阻止功无界增长，并依靠两个全局优化步骤来减少局部最优问题。尽管 EPH 模型的理论基础源自金属体系，我们已证明它能够很好地描述半导体材料 GaAs 中的电子阻止。此外，我们还展示了 EPH 模型在多元素材料中的应用。

我们得出结论，纳入电子阻止和电子-声子耦合会影响缺陷数量，因此对于正确模拟辐射损伤至关重要。事实证明，TTM-MD 中的温度耗散快得多，而 EPH 模型中的热尖峰耗散则慢得多。

与常用的 NRT 模型相比，截断法得到的缺陷数量更多，而 Wigner-Seitz 方法得到的数量则更少。我们的研究表明，采用 EPH 模型得到的缺陷数量与其他模型的结果不同；按照 Wigner-Seitz 缺陷定义，这一数量会被“衰减”。尽管我们的研究表明，真实的非绝热级联不会显著影响 $N_{non-adiab}$ 与E_{PKA} 的线性关系，但当初级碰撞原子能量超过 10 千电子伏特时，偏离线性的程度开始增大。这种非线性效应可能是由于电子阻止造成的能量损失更多，也可能是由重叠缺陷级联开始产生所引发的非线性效应。非线性效应

实验中观察到的现象也可能由靶中的本征缺陷引起，这一点值得进一步研究。需要强调的是，在纳米尺度上高估缺陷数量，可能会影响对材料所承担功能的寿命估算。

V. 致谢

本研究获得了欧盟地平线2020研究与创新计划 ESC2RAD（拨款编号 776410）下研究执行机构的资助。我们感谢 PRACE 授予我们使用法国 GENCI@CEA 的 Joliot-Curie 计算资源的机会（PRACE 项目：2019215186）。作者谨此感谢 MareNostrum 提供的计算资源，以及巴塞罗那超级计算中心提供的技术支持（RES-FI-2020-1-0012、RES-FI-2020-2-0021、RES-FI-2020-3-0014、RES-FI-2021-1-0035）。

Jorge Kohanoff 获得了西班牙教育与职业培训部通过 Beatriz Galindo计划（BEAGAL18/00130）提供的资助，也获得了马德里自治区通过与马德里理工大学签订的多年期协议提供的资助。该资助属于“支持 Beatriz Galindo 研究人员开展研发项目”行动，纳入第五期区域科学研究与技术创新计划（V PRICIT）的框架。

我们感谢劳伦斯利弗莫尔国家实验室的 Alfredo Correa 提供了富有成效的讨论。我们也感谢西班牙科学与创新部通过 PID2019-107338RB-C61/AEI/DOI:10.13039/501100011033 项目提供的资助，以及授予 Nanogune 的 María de Maeztu 奖项（项目编号 CEX2020-001038-M，由科学与创新部/AEI/10.13039/501100011033 资助）。

对于 Fabiana Da Pieve，本文所述的信息和观点仅代表作者本人，并不一定反映 ERCEA 的官方意见。

[1] G. S. Was, 《辐射材料科学基础：金属与合金》（Springer，纽约，纽约州，2017），第《损伤级联》章，第131–165 页。[2] K. Nordlund、S. J. Zinkle、A. E. Sand、F. Granberg、R. S. Averback、R. E. Stoller、T. Suzudo、L. Malerba、F. Banhart、W. J. Weber、F. Willaime、S. L. Dudarev 和 D. Simeone, 《初级辐射损伤：当前认识与模型综述》，《核材料学杂志》**512**，450（2018）。[3] K. Nordlund、S. J. Zinkle、A. E. Sand、F. Granberg、R. S. Averback、R. Stoller、T. Suzudo、L. Malerba、F. Banhart、W. J. Weber、F. Willaime、S. L. Dudarev 和 D. Sime- one, 《采用物理上真实的损伤模型改进原子位移和替换计算》，《自然·通讯》**9**，1084（2018）。[4] P. J. Griffin, 《用于表征材料位移损伤的指标之间的关系》10.2172/1617630（2014）。[5] M. Moll, 《高能物理硅探测器中的位移损伤》，IEEE《核科学汇刊》**65**，1561（2018）。[6] J. R. Srour, 《硅器件中位移损伤效应综述》，IEEE《核科学汇刊》**50**（2003）。[7] G. P. Summers、E. A. Burke、P. Shapiro、S. R. Messenger 和 R. Walters, 《半导体在伽马射线、电子和质子辐射下的损伤关联》，IEEE《核科学汇刊》**40**，1372（1993）。[8] M. SR、S. GP、B. EA、W. RJ 和 X. MA, 《空间环境中的太阳电池退化建模：NRL位移损伤剂量方法与JPL等效注量方法的比较》，《光伏研究与应用进展》**9**，103（2001）。[9] S. GP、W. RJ、X. MA、B. EA、M. SR、S. P 和 S. RL., 《一种预测太阳电池在不同辐射下损伤的新方法》，载于 IEEE 第 1 届世界光伏能源转换大会论文集，威可洛阿，HI，2068（1994）。[10] M. Norgett、M. Robinson 和 I. Torrens, 《一种计算位移剂量率的方法》，《核工程与设计》**33**，50（1975）。[11] J. F. Ziegler、M. Ziegler 和 J. Biersack, 《SRIM——离子在物质中的阻止与射程》（2010），《物理研究中的核仪器与方法B辑：束流与材料及原子的相互作用》**268**，1818（2010），第 19 届离子束分析国际会议。[12] W.J.Weber 和 Y. Zhang, 《使用离子在物质中的阻止与射程代码预测单原子靶和多元素靶中的损伤产生：挑战与建议》，《固态与材料科学最新观点》**23**，100757（2019）。[13] J. Allison、K. Amako、J. Apostolakis、P. Arce、M. Asai、T. Aso、E. Bagli、A. Bagulya、S. Banerjee、G. Bar-rand、B. Beck、A. Bogdanov、D. Brandt、J. Brown、H. Burkhardt、P. Canal、D. Cano-Ott、S. Chauvie、K. Cho、G. Cirrone、G. Cooperman、M. Cort´és-Giraldo、G. Cosmo、G. Cuttone、G. Depaola、L. Desorgher、X. Dong、A. Dotti、V. Elvira、G. Folger、Z. Fran-cis、A. Galoyan、L. Garnier、M. Gayer、K. Genser、V. Grichine、S. Guatelli、P. Gu`eye、P. Gumplinger、A. Howard、I. Hˇrivn´aˇcov´a、S. Hwang、S. Incerti, A. Ivanchenko, V. Ivanchenko, F. Jones, S. Jun, P. Kaitaniemi, N. Karakatsanis, M. Karamitros, M. Kelsey, A. Kimura, T. Koi, H. Kurashige, A. Lechner, S. Lee, F. Longo, M. Maire, D. Mancusi, A. Mantero, E. Men- doza, B. Morgan, K. Murakami, T. Nikitina, L. Pandola, P. Paprocki, J. Perl, I. Petrovi´c, M. Pia, W. Pokorski, J. Quesada, M. Raine, M. Reis, A. Ribon, A. R. Fira, F. Romano, G. Russo, G. Santin, T. Sasaki, D. Sawkey, J. Shin, I. Strakovsky, A. Taborda, S. Tanaka, B. Tom´e, T. Toshito, H. Tran, P. Truscott, L. Urban, V. Uzhinsky, J. Verbeke, M. Verderi, B. Wendt, H. Wenzel, D. Wright, D. Wright, T. Yamashita, J. Yarba, and H. Yoshida, Geant4近期进展, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Acceler- ators, Spectrometers, Detectors and Associated Equip**835**ment, 186 (2016). [14] A. Fasso, A. Ferrari, G. Smirnov, V. Vlachoudis, and F. Sommerer, Fluka对辐射诱发损伤的逼真建模, 收录于 *Progress in Nuclear Science and Technology; Journal Volume: 2; Conference: SNA+MC 2010: Joint international conference of the 7th supercomputing in nuclear application and the 3rd Monte Carlo Tokyo ,,*( ) pp. – *(Japan) 17-21 Oct 2010* 2011 769 775 .[15] I. Dawson, F. Faccio, M. Moll, and A. Weidberg, *Radiation effects in the LHC experiments: Impact on detector performance and operation* , 技术报告（欧洲核子研究中心，日内瓦，2021）报告 CERN-2021-001。[16] J. Srour and D. Lo, 硅器件中辐射诱发暗电流的通用损伤因子, IEEE《核科学汇刊》**47**, 2451 (2000). [17] S. R. Messenger, G. P. Summers, E. A. Burke, R. J. Walters, and M. A. Xapsos, 空间太阳能电池退化建模：NRL位移损伤剂量与JPL等效注量方法的比较, Progress in Pho- tovoltaics: Research and Applications **9**, 103 (2001), https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/pip.357. [18] K. Nordlund, M. Ghaly, R. S. Averback, M. Caturla, T. Diaz de la Rubia, and J. Tarus, 元素半导体和面心立方金属中碰撞级联的缺陷产生, 《物理评论B辑》**57**, 7556 (1998). [19] G. Hobler and G. Otto, 基于分子动力学模拟的硅非晶口袋模型, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B **206**, 81 (2003). [20] I. Santos, L. A. Marqu´es, and L. Pelaz, 位移阈值以下能量下硅中损伤产生机制的建模, 《物理评论B辑》**74**, 174115 (2006). [21] I. Santos, L. A. Marques, L. Pelaz, and P. Lopez, 低能区硅中损伤产生机制的分子动力学研究, 收录于 *2007 Spanish Conference on Electron Devices* 2007 37 40 ( ) pp. – .

[22] C. Inguimbert, P. Arnolda, T. Nuns, and G. Rolland, 硅中的“有效非电离能量损失”：利用分子动力学模拟结果进行计算, IEEE《核科学汇刊》**57**, 1915 (2010). [23] M. Huhtinen, 硅中非电离能量损失与缺陷形成的模拟 (2002). [24] M. Moll, E. Fretwurst, M. Kuhnke, and G. Lindstroem, 强子辐照后硅探测器特性的微观缺陷与宏观变化之间的关系

辐照, Nuclear Instruments and Methods in Physics Re- search Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **186**, 100 (2002). [25] T. Sumita, M. Imaizumi, S. Matsuda, T. Ohshima, A. Ohi, and H. Itoh, 多结空间太阳能电池的质子辐射分析, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **206**, 448 (2003), 第13届离子束材料改性国际会议。[26] A. Akkerman, J. Barak, M. Chadwick, J. Levinson, M. Murat, and Y. Lifshitz, 用于估算粒子和 γ射线在硅和砷化镓中诱发损伤的更新版非电离能量损失计算, Radiation Physics and Chemistry **62**, 301 (2001). [27] A. Akkerman and J. Barak, 用于评估低能离子对硅造成损伤的新分配因子计算, IEEE《核科学汇刊》**53**, 3667 (2006). [28] S. Messenger, E. Burke, M. Xapsos, G. Summers, R. Walters, I. Jun, and T. Jordan, 重离子的非电离能量损失：一种分析方法, IEEE《核科学汇刊》**50**, 1919 (2003). [29] R. Weller, M. Mendenhall, and D. Fleetwood, 用于Geant4位移损伤计算的屏蔽库仑散射模块, IEEE《核科学汇刊》**51**, 3669 (2004). [30] C. Inguimbert and R. Gigante, NEMO：用于计算质子、中子、电子和重离子非电离能量损失的代码, IEEE《核科学汇刊》**53**, 1967 (2006). [31] C. Inguimbert and S. Messenger, 在轨空间应用的等效位移损伤剂量, IEEE《核科学汇刊》**59**, 3117 (2012). [32] F. Gao, N. Chen, E. Hernandez-Rivera, D. Huang, and P. D. LeVan, 砷化镓中的位移损伤及预测的非电离能量损失, Journal of Applied Physics **121**, 095104 (2017). [33] M. Salzberger, C. N¨omayr, P. Lugli, S. R. Messenger, and C. G. Zimmermann, 使用可变原子位移阈值能量拟合受辐照太阳能电池的退化, Prog. Photovolt: Res. Appl. (2017). [34] M. X. Lu, R. C. Wang, Y. H. Liu, W. T. Hu, Z. Feng, and Z. Han, 用于估算质子诱发GaInP/GaAs/Ge空间太阳能电池退化的修正非电离能量损失计算, Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-beam Interactions With Materials and Atoms **269**, 1884 (2011). [35] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. Biersack, Rim——离子在物质中的阻止与射程 (2010), Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. B **268**, 1818 (2010). [36] K. Wittmaack, 影响SRIM库中阻止本领表有效性的误解及未来改进建议, Nucl. Instr. and Methods in Phys. Res. B **380**, 57–70 (2016). [37] J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce Dubois, M. Asai, G. Barrand, R. Capra, S. Chau- vie, R. Chytracek, G. A. P. Cirrone, G. Cooperman, G. Cosmo, G. Cuttone, G. G. Daquino, M. Donszel- mann, M. Dressel, G. Folger, F. Foppiano, J. Gen- erowicz, V. Grichine, S. Guatelli, P. Gumplinger, A. Heikkinen, I. Hrivnacova, A. Howard, S. Incerti, V. Ivanchenko, T. Johnson, F. Jones, T. Koi, R. Kok- oulin, M. Kossov, H. Kurashige, V. Lara, S. Larsson, F. Lei, O. Link, F. Longo, M. Maire, A. Mantero, B. Mascialino, I. McLaren, P. Mendez Lorenzo, K. Minamimoto, K. Murakami, P. Nieminen, L. Pandola, S. Par- lati, L. Peralta, J. Perl, A. Pfeiffer, M. G. Pia, A. Ri- bon, P. Rodrigues, G. Russo, S. Sadilov, G. Santin, T. Sasaki, D. Smith, N. Starkov, S. Tanaka, E. Tch- erniaev, B. Tome, A. Trindade, P. Truscott, L. Urban, M. Verderi, A. Walkden, J. P. Wellisch, D. C. Williams, D. Wright, and H. Yoshida, 《Geant4 的发展与应用》, IEEE《核科学汇刊》**53**, 270 2006( ).[38] Crocombette, Jean-Paul and Van Wambeke, Christian, 《离子辐照损伤的快速计算：在 Iradina 中的实现及与 SRIM 的比较》, EPJ Nuclear Sci. Technol. **5**, 7 (2019). [39] R. E. Stoller, 《级联能量和温度在铁中初级缺陷形成中的作用》, 《核材料学杂志》**276**, 22 (2000). [40] A. Tamm, M. Caro, A. Caro, G. Samolyuk, M. Klin- tenberg, and A. A. Correa, 《具有空间关联的朗之万动力学作为电子-声子耦合模型》, 《物理评论快报》**120**, 185501 (2018). [41] M. Caro, A. Tamm, A. A. Correa, and A. Caro, 《电子在固体碰撞级联中的作用。I. 耗散模型》, 《物理评论B辑》**99**, 174301 (2019). [42] A. Tamm, M. Caro, A. Caro, and A. A. Correa, 《电子在固体碰撞级联中的作用。II. 分子动力学》, 《物理评论B辑》**99**, 174302 (2019). [43] A. Sand, R. Ullah, and A. Correa, 《基于第一性原理电子动力学的重离子射程》, npj Comput Mater **5**, 43 2019( ). [44] C.-W. Lee, J. A. Stewart, R. Dingreville, S. M. Foiles, and A. Schleife, 《自辐照硅中电子与离子动力学的多尺度模拟》, 《物理评论B辑》**102**, 024107 2020( ).[45] T. Jarrin, J. Teunissen, F. Da Pieve, A. H´emeryck, and N. Richard, 《将电子效应纳入基于第一性原理计算的硅碰撞级联分子动力学模拟》, 《物理评论B辑》**104**, 195203 2021( ). [46] A. Caro, A. A. Correa, A. Tamm, G. D. Samolyuk, and G. M. Stocks, 《阻尼动力学能否恰当地描述固体中的电子-声子相互作用》, 《物理评论B辑》**92**, 144309 (2015). [47] M. Caro, A. A. Correa, E. Artacho, and A. Caro, 《超越绝热近似的阻止本领》, Scientific Reports **7**, 2618 (2017). [48] M. Caro, A. Tamm, A. Correa, and A. Caro, 《离子在固体中的电子阻止的局域密度依赖性》, 《核材料学杂志》**507**, 258 (2018). [49] A. A. Correa, 《基于第一性原理计算材料中的电子阻止本领》, 《计算材料科学》**150**, 291 (2018). [50] D. M. Duffy and A. M. Rutherford, 《在辐射损伤模拟中纳入电子阻止和电子-离子相互作用的影响》, Journal of Physics: Condensed Matter **19**, 016207 (2006). [51] M. Raine, A. Jay, N. Richard, V. Goiffon, S. Girard, M. Gaillardin, and P. Paillet, 《硅中单粒子位移损伤模拟——第一部分：全局方法与初级相互作用模拟》, IEEE《核科学汇刊》**64**, 133 (2016). [52] L. K. B´eland, P. Brommer, F. El-Mellouhi, J.-F. m. c. Joly, and N. Mousseau, 动力学激活-弛豫技术

，物理评论E**84** ，046704（2011）。

[53] J. M. Pruneda、D. S´anchez-Portal、A. Arnau、J. I. Juar- isti 和 E. Artacho，从第一性原理计算锂中的电子阻止本领，《物理评论快报》99，235501（2007）。[54] M. A. Zeb、J. Kohanoff、D. S´anchez-Portal、A. Arnau、J. I. Juaristi 和 E. Artacho，金中的电子阻止本领： d 电子的作用与 H/He 异常，《物理评论快报》108，225504（2012）。[55] R. Ullah、E. Artacho 和 A. A. Correa，重离子电子阻止中的芯电子，《物理评论快报》121，116401（2018）。[56] A. Schleife、Y. Kanai 和 A. A. Correa，电子阻止的精确原子级第一性原理计算，《物理评论B》91，014306（2015）。[57] F. Gygi，qbox 的架构：一种可扩展的第一性原理分子动力学代码，《IBM研究与开发杂志》52，137（2008）。[58] X. Andrade 和 E. Draeger，Qb@ll，https://github.com/LLNL/qball（2012）。[59] J. P. Perdew、M. Ernzerhof 和 K. Burke，将精确交换与密度泛函近似相结合的依据，《化学物理学杂志》105，9982（1996）。[60] K. G. Reeves、Y. Yao 和 Y. Kanai，从第一性原理研究液态水中质子和 α 粒子的电子阻止本领，《物理评论B》94，041108（2016）。[61] D. R. Hamann、M. Schl¨uter 和 C. Chiang，守恒赝势，《物理评论快报》43，1494（1979）。[62] 赝势库，quantum-simulation.org（2020），访问日期：2020年6月。[63] M. Fuchs 和 M. Scheffler，使用密度泛函理论对多原子系统进行电子结构计算的从头算赝势，《计算物理通讯》119，67（1999）。[64] 参见链接中的补充材料，其中包含高度电离砷初级反冲原子的电子阻止功评估、平均电子阻止功的获取方法、非沟道轨迹中出现的近碰撞峰、力场势可视化、原子密度可视化，以及缺陷数量随缺陷定义和截断值变化的情况。[65] Y. Zhong、K. Nordlund、M. Ghaly 和 R. S. Averback，钨中的缺陷产生：场离子显微术与分子动力学模拟的比较，《物理评论B》58，2361（1998）。[66] A. M. Rutherford 和 D. M. Duffy，电子–离子相互作用对辐射损伤模拟的影响，《物理学杂志：凝聚态》19，496201（2007）。[67] M. S. J. Lindhard、V. Nielsen 和 P. V. Thomsen，支配辐射效应的积分方程，《丹麦皇家科学院数学与物理通讯》33（1963）。[68] S. Lohmann、R. Holeˇn´ak 和 D. Primetzhofer，玻尔速度附近及低于玻尔速度时轻离子和重离子依赖轨迹的电子激发，《物理评论A辑》102，062803（2020）。[69] T. Jarrin、A. Jay、A. H´emeryck 和 N. Richard，Para-

双温模型用于硅和锗碰撞级联分子动力学模拟的参数研究，《核仪器与方法物理研究B辑：束流与材料和原子相互作用》**485**, 1 (2020). [70] S. Plimpton，短程分子动力学的快速并行算法，《计算物理学杂志》**117**, 1 (1995). [71] K. Albe、K. Nordlund、J. Nord 和 A. Kuronen，化合物半导体建模：镓、砷及砷化镓的解析键序势，《物理评论B辑》**66**, 035205 (2002). [72] J. Ziegler、J. Biersack 和 U. Littmark，《离子在固体中的阻止与射程》，第1卷，《离子在物质中的阻止与射程》(1985). [73] W. Shinoda、M. Shiga 和 M. Mikami，恒定应力下通过分子动力学模拟快速估算弹性常数，《物理评论B辑》**69**, 134103 (2004). [74] V. D. Blondel、J.-L. Guillaume、R. Lambiotte 和 E. Lefebvre，大型网络中社群的快速展开，《统计力学杂志：理论与实验》**2008**, P10008 (2008). [75] N. E. Koval、F. Da Pieve 和 E. Artacho，面向空间应用的Ga0.5In0.5P/GaAs/Ge三结太阳能电池中质子的第一性原理电子阻止本领，《皇家学会开放科学》**7**, 200925 (2020). [76] R. Ullah、F. Corsetti、D. S´anchez-Portal 和 E. Artacho，基于第一性原理研究窄带隙半导体中的电子阻止本领，《物理评论B辑》**91**, 125203 (2015). [77] I. Grinberg、N. J. Ramer 和 A. M. Rappe，可移植相对论狄拉克-斯莱特赝势，《物理评论B辑》**62**, 2311 (2000). [78] D. R. Jones、C. D. Perttunen 和 B. E. Stuckman，不使用利普希茨常数的利普希茨优化，《优化理论与应用杂志》**79**, 157 (1993). [79] S. Johnson, NLOPT非线性优化软件包，github.com/stevengj/nlopt。[80] K. Nordlund、J. Peltola、J. Nord、J. Keinonen 和 R. S. Averback，砷化镓离子辐照过程中的缺陷团簇化：分子动力学模拟的见解，《应用物理学杂志》**90**, 1710 (2001). [81] E. Wigner 和 F. Seitz，论金属钠的构成，《物理评论》**43**, 804 (1933). [82] H. Hensel 和 H. M. Urbassek，低能硅自轰击下的注入与损伤，《物理评论B辑》**57**, 4756 1998( ). [83] S. Messenger、R. Walters、E. Burke、G. Summers 和 M. Xapsos，砷化镓器件中高能质子的非电离能量损失及损伤关联，IEEE《核科学汇刊》**48**, 2121 (2001). [84] N. Chen、S. Gray、E. Hernandez-Rivera、D. Huang、P. D. LeVan 和 F. Gao，砷化镓阈值位移能的计算模拟，《材料研究杂志》**32**, 1555–1562 (2017)。