

УДК 537.534.2:679.826

О ВОЗМОЖНОСТИ КАПЕЛЬНОГО РАСПЫЛЕНИЯ ТЯЖЁЛЫХ МЕТАЛЛОВ ТЯЖЁЛЫМИ ИОНАМИ НИЗКИХ И ПРОМЕЖУТОЧНЫХ ЭНЕРГИЙ

А.И. Калиниченко, С.С. Перепелкин, В.Е. Стрельницкий

Национальный Научный Центр «Харьковский физико-технический институт»

61108, Академическая, 1, г. Харьков, Украина

E-mail: aikalinichenko@kipt.kharkov.ua, aikalinichenko@mail.ru

Received May 20, 2013

Теоретически исследуется капельное распыление тяжелых металлов тяжелыми ионами в области энергий, в которой доминируют упругие потери. Показано, что капельное распыление возможно при энергиях иона E как ниже, так и выше предельно допустимой энергии E_{NTP} образования нелокального термоупругого пика (НТП_<) - односвязной области перегрева, аппроксимируемой сферическим сегментом. При $E < E_{NTP}$ выброс расплава из приповерхностного НТП_< возможен в интервале энергий иона $E_1 < E < E_2$, причем величины E_1 и E_2 зависят от сорта бомбардирующих ионов и структуры материала мишени. При $E > E_{NTP}$ капельное распыление обеспечивает нелокальный термоупругий пик (НТП_>), образующийся на субкаскаде и/или на пересечении нескольких субкаскадов. Локализация, размер и энергосодержание НТП_>, являющиеся случайными величинами, определялись путем моделирования с помощью программного пакета SRIM2008. Определены параметры и вероятность возникновения НТП_>, обеспечивающих капельное распыление и кратерообразование при энергиях ионов $E = 200$ кэВ в случаях комбинаций «ион Au⁺ в Au» и «ион U⁺ в U». Получены оценки коэффициентов распыления в рассмотренных случаях.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: тяжелые металлы, ионная бомбардировка, атомный каскад, термоупругий пик, капельное распыление, кратерообразование

ПРО МОЖЛИВІСТЬ КРАПЛИННОГО РОЗПИЛЕННЯ ВАЖКИХ МЕТАЛІВ ВАЖКИМИ ІОНАМИ НИЗЬКИХ І ПРОМІЖНИХ ЕНЕРГІЙ

О.І. Калініченко, С.С. Перепелкін, В.Є. Стрельницький

Національний Науковий Центр „Харківський фізико-технічний інститут”

61108, Академічна, 1, м. Харків, Україна

Теоретично досліджується краплинне розпилення важких металів важкими іонами в області енергій, у якій домінують пружні втрати. Показано, що краплинне розпилення можливе при енергіях іона E як нижче, так і вище гранично припустимої енергії E_{NTP} утворення нелокального термопружного піка (НТП_<) - односвязної області перегріву, що апроксимується сферичним сегментом. При $E < E_{NTP}$ викид розтопу із приповерхнього НТП_< можливий в інтервалі енергій іона $E_1 < E < E_2$, причому величини E_1 й E_2 залежать від сорту іонів, що бомбардують, і структури матеріалу мішені. При $E > E_{NTP}$ краплинне розпилення забезпечує нелокальний термопружний пік (НТП_>), що утворюється на субкаскаді й/або на перетині декількох субкаскадів. Локалізація, розмір і енерговміст НТП_>, що є випадковими величинами, визначалися шляхом моделювання за допомогою програмного пакета SRIM2008. Визначено параметри й імовірність виникнення приповерхніх НТП_>, що забезпечують краплинне розпилення й кратероутворення при енергіях іонів $E = 200$ кэВ у випадках комбінацій «ион Au⁺ в Au» та «ион U⁺ в U». Отримано оцінки коефіцієнтів розпилення в розглянутих випадках.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: важкі метали, іонне бомбардування, атомний каскад, термопружний пік, краплинне розпилення, кратероутворення.

ON OPPORTUNITY OF DROPLET SPUTTERING OF HEAVY METALS BY HEAVY IONS OF LOW AND INTERMEDIATE ENERGIES

A.I. Kalinichenko, S.S. Perepelkin, V.E. Strel'nitskij

National Science Centre "Kharkov Institute of Physics and Technology"

61108, Akademicheskaya, 1, Kharkov, Ukraine

A droplet sputtering of heavy metals by heavy ions in energy range of elastic loss domination is theoretically investigated. It is shown that the droplet sputtering is possible at ion energies E both below and above the maximum permissible energy E_{NTP} of nonlocal thermoelastic peak (NTP_<) formation - a singly connected overheated region approximated by spherical segment. At $E < E_{NTP}$ melt emission from subsurface NTP_< is possible in the range of ion energies $E_1 < E < E_2$, and quantity E_1 and E_2 depend on sort of bombarding ions and structure of target material. At $E > E_{NTP}$ the droplet sputtering provides nonlocal thermoelastic peak (NTP_>), forming from subsurface subcascade and/or on cross of several subsurface subcascades. Localization, size and energy content NTP_>, being random quantities, were determined by modeling with program package SRIM2008. Parameters and probability of NTP_> forming, providing the droplet sputtering and cratering are determined at ion energies $E = 200$ keV in cases of combinations «ion Au⁺ in Au» and «ion U⁺ in U». Estimates of sputtering yields of droplet sputtering are determined in the viewed cases.

KEYWORDS: heavy metals, ion bombardment, atomic cascade, thermoelastic peak, droplet sputtering, cratering

Вот уже более полувека макроскопические процессы, происходящие при взаимодействии тяжёлого иона с поверхностью твёрдого тела вызывают неослабевающий интерес исследователей. Поначалу столь повышенное

внимание было связано с разработкой, внедрением и эксплуатацией ядернотехнических энергетических установок. В последние годы этот интерес только усилился в связи с глобальным развитием нанотехнологий, требующих для своей реализации инструментов, позволяющих осуществлять локальные воздействия на объекты нанометровых размеров. Именно таким инструментом является тяжелый ион, реализующий при своем взаимодействии с твердым телом области поперечником в считанные нанометры и с плотностью энергии, эквивалентной перегреву более 10^4 К. Среди рассматриваемых явлений важное место отводится процессам распыления материалов при ионной бомбардировке [1].

Распыление, обусловленное бинарными атомными столкновениями на стадии возникновения и развития атомных каскадов, характеризуются выбросом отдельных атомов мишени и низким коэффициентом распыления $S \leq 10$ [2]. Длительность этой стадии приближенно определяется временем торможения первичного иона и лежит в пределах $\sim (1 - 5)10^{-14}$ с. В случае бомбардировки легкими ионами, создающими «рыхлые» каскады с малой плотностью возбужденных атомов, процесс распыления на этом завершается. Однако при достаточно высоких плотностях энергии в каскадах, образуемых тяжелыми ионами или кластерами, процесс распыления может возобновиться по прошествии времени термализации упругих потерь $\tau \sim 10^{-13}$ с. При этом распыление приобретает качественно иной характер, подчиняющийся закономерностям термодинамики и механики сплошных сред. Возникающие в приповерхностных нанометровых областях температура и давление могут приводить к плавлению, испарению и последующему выбросу содержащегося в них вещества в виде пара, многоатомных кластеров или капель, обеспечивая гигантские коэффициенты распыления $S \gg 10$ [3]. Поверхность подвергается усиленной эрозии с образованием кратеров нанометровых размеров. [4, 5].

Для описания нелинейных процессов ионного распыления предлагались: испарительная модель [6,7], модель ударной волны [8,9], модель хрупкого разрушения [10,11]. Кроме аналитических методов исследования, в последние годы широкое распространение получили методы молекулярной динамики, позволяющие проследить пространственно-временное развитие ансамбля атомов вблизи траектории иона на стадии перехода от неравновесного состояния к состоянию, подчиняющемуся законам термодинамики. Каждый из указанных подходов, не обладая универсальностью, внес вклад в понимание нелинейных процессов ионного распыления.

В работах [12, 13] была предложена модель капельного распыления, основанная на концепции нелокального термоупругого пика (НТП) иона и оперирующая относительно небольшими перегревами вблизи траектории иона. Пределы применимости модели ограничены диапазоном энергии ионов $E_{\min} < E \leq E_{\text{НТП}}$, где минимальная энергия $E_{\min} \sim 10$ эВ определяется возможностью термодинамического описания физических процессов в НТП, а максимальная допустимая энергия $E_{\text{НТП}}$ определяется качественным изменением структуры каскада, приводящим к образованию нескольких слабо связанных перегретых областей, параметры которых определяются параметрами образующих их субкаскадов. Величина $E_{\text{НТП}}$ зависит от сорта иона и материала мишени, и для ее определения требуется детальный статистический анализ параметров образующихся областей термализации фононных потерь иона с оценкой вероятности благоприятных конфигураций в широком диапазоне энергий [14]. Для легких ионов (C^+ , B^+ , Al^+ , Ti^+ и др.), бомбардирующих мишень из легких материалов (C, BN, Al, Ti), $E_{\text{НТП}}$ находится в пределах $(1 \div 2)$ кэВ. При переходе к более тяжелым ионам (Fe^+ , Xe^+ , Au^+ , U^+ и др.) и материалам мишени (Fe, Au, U и др.) энергетический диапазон применения модели НТП расширяется в десятки раз.

Теоретические исследования процесса бомбардировки тяжелых металлов ионами низких энергий ($E \leq E_{\text{НТП}}$), проведенные в модели НТП, позволили определить необходимые условия, при выполнении которых становится возможным капельное распыление и образование поверхностных кратеров для металлов тяжелее железа [12,13]. В то же время представляет интерес рассмотреть эффект капельного распыления тяжелых металлов ионами с энергиями $E > E_{\text{НТП}}$, для которых выброс наночастиц и образование кратеров наблюдались экспериментально [4,5]. Исследования процессов капельного распыления и кратерообразования в этой области энергий требуют рассмотрения всего многообразия образующихся каскадов и отбор возникающих приповерхностных НТП (ПНТП), которые удовлетворяют критерию возникновения капельного распыления. Кроме того, в указанных выше работах [12,13] не обсуждалось влияние шероховатости поверхности, а также затраты части энергии упругонапряженного состояния на акустическую волну, уходящую из ПНТП вглубь материала. Даже приближенный учет этих двух факторов делает очевидным вероятностный характер процесса капельного распыления во всем диапазоне допустимых энергий иона.

Целью настоящей работы является определение возможности капельного распыления тяжелых металлов при бомбардировке тяжелыми ионами низких ($E_{\min} < E \leq E_{\text{НТП}}$) и промежуточных ($E > E_{\text{НТП}}$) энергий в модели ПНТП. На основе компьютерного моделирования каскадов исследуется возможность капельного распыления для комбинаций « Au^+ - Au», « U^+ - U».

МОДЕЛИРОВАНИЕ КАПЕЛЬНОГО РАСПЫЛЕНИЯ В ПРИПОВЕРХНОСТНЫХ КАСКАДАХ

Результаты моделирования с помощью программного пакета SRIM2008 [15] показали, что при $E \leq E_{\text{НТП}}$

образующийся НТП_< тяжёлого иона, нормально падающего на плоскую поверхность мишени, представляет компактную односвязную область и может аппроксимироваться сферическим сегментом, примыкающим к поверхности мишени и содержащим энергию фононных потерь $E_{ph}^<(E) = \eta(E)E$. Центр сегмента расположен в середине среднего экстраполированного пробега $L(E)$, а его радиус задается выражением

$$R_<(E, d) = L(E) / 2 + R_T(d). \quad (1)$$

Здесь $\eta(E)$ - относительная доля фононных потерь иона, $R_T(d)$ - радиус теплового расплывания, определяемый диффузией тепловых фононов за время ион-ионной релаксации, d - эффективный размер кристаллита. Случаю аморфного материала соответствует предел $R_T(d)$ при $d \rightarrow 2a$, где a - среднее межатомное расстояние. Для поликристаллических материалов с $d \gg 2a$ радиус R_T ограничивается конечностью скорости распространения тепла, не превышающей продольной скорости звука [14].

При $E > E_{NTP}$, согласно результатам моделирования с помощью программного пакета SRIM2008 [15], происходит изменение структуры ансамбля возбужденных атомов. Формирующийся каскад порождает или односвязную область термализации с различными продольным и поперечным размерами, или несколько слабосвязанных областей. Эффективные продольный l_l и поперечный l_t размеры каждой из областей определяются суперпозицией области локализации порождающего (суб)каскада с размерами l_l' и l_t' и областей тепловой релаксации радиусом $R_T(d)$ вокруг каждого возбужденного атома. Каждый образующийся тепловой пик может аппроксимироваться эллипсоидом вращения (вокруг продольной оси, задаваемой вектором начальной скорости иона) с размерами осей $l_l = l_l' + 2R_T(d)$ и $l_t = l_t' + 2R_T(d)$, если пик целиком лежит внутри мишени, либо сегментом такого эллипсоида, если пик образуется на приповерхностном (суб)каскаде.

Моделирование с помощью SRIM 2008 показало, что в некоторых случаях возможно образование ПНТП, размеры которого удовлетворяют неравенству $\xi^{-1} \leq l_l/l_t \leq \xi$, где $\xi = 1,5$ - параметр формы (суб)каскада. В этом случае можно говорить о возникновении НТП_>, аппроксимируемого сферическим сегментом с радиусом

$$R_>(E, d) = l_l / 2 + R_T(d), \quad (2)$$

с центром, находящимся на расстоянии $l_l/2$ от поверхности мишени. Образующийся НТП_> содержит тепловую энергию $E_{ph}^>(E)$, равную энергии фононных потерь в приповерхностном (суб)каскаде, тогда как ионизационные потери не вносят существенного вклада в формирование теплового поля ПНТП при энергии ионов $E \leq 1$ МэВ. Величина $E_{ph}^>(E)$ определяется продольным распределением фононных потерь dE_{ph}/dy , вычисляемым с помощью программы SRIM2008:

$$E_{ph}^>(E) = \int_0^{l_l} (dE_{ph}/dy) dy. \quad (3)$$

(Ось y направлена по нормали к поверхности мишени).

Температура и фазовое состояние материала в ПНТП определяются средней плотностью тепловой энергии

$$\varepsilon(E, d) = \frac{E_T(E)}{V(E, d)}, \quad (4)$$

где $E_T(E)$ - тепловая энергия в ПНТП, равная $E_{ph}^<(E)$ при $E \leq E_{NTP}$ и $E_{ph}^>(E)$ при $E > E_{NTP}$. Объем сферического ПНТП $V(E, d)$, зависящий от энергии иона и эффективного размера кристаллита мишени d , равен [14]:

$$V(E, d) = \frac{4\pi}{3} \left[R(E, d)^3 - \frac{3}{8} R_T(d)^2 l - \frac{R_T(d)^3}{2} \right], \quad (5)$$

где $R(E, d) = R_<(E, d)$, $l = L(E)$ при $E \leq E_{NTP}$ и $R(E, d) = R_>(E, d)$, $l = l_l$ при $E > E_{NTP}$.

Напряжение в ПНТП, в основном, определяется суммой термоупругого напряжения σ_T , обусловленного тепловым расширением материала мишени в пике, и внутреннего напряжения σ_i , имеющего какую-либо иную природу. Создаваемые напряжения могут вызвать выброс расплавленной массы из объёма ПНТП и образование кратера на поверхности мишени.

При наличии фазового перехода термоупругое напряжение σ_T , возникающее в ПНТП, можно записать в виде:

$$\sigma_T(E, d) = \int_0^{\varepsilon(E, d)} \Gamma(\varepsilon) d\varepsilon, \quad (6)$$

где $\Gamma(E)$ - обобщённый параметр Грюнайзена, связывающий плотность тепловой энергии $\varepsilon(E, d)$ и $\sigma_T(E, d)$. Параметр Грюнайзена материала мишени испытывает существенные изменения с увеличением плотности тепловой энергии в ПНТП. При определении термоупругого давления в пике σ_T учитывалось изменение объема материала за счет: 1) нагрева до точки плавления; 2) плавления; 3) нагрева расплава до температуры, соответствующей плотности выделившейся энергии в НТП.

Дальнейшие расчеты проводились в предположении постоянства параметра Грюнайзена в пределах одного агрегатного состояния вещества, что является допустимым приближением для исследованных материалов. В этом случае общее выражение (6) преобразуется к виду:

$$\begin{aligned} \sigma_T(E, d) = & \Gamma_s \varepsilon \Pi(\varepsilon; 0, \varepsilon_{m1}) + [\Gamma_s \varepsilon_{m1} + \Gamma_m (\varepsilon - \varepsilon_{m1})] \Pi(\varepsilon; \varepsilon_{m1}, \varepsilon_{m2}) + \\ & + [\Gamma_s \varepsilon_{m1} + \Gamma_m (\varepsilon_{m2} - \varepsilon_{m1}) + \Gamma_l (\varepsilon - \varepsilon_{m2})] \Pi(\varepsilon; \varepsilon_{m2}, \varepsilon_{b1}) + \\ & + [\Gamma_s \varepsilon_{m1} + \Gamma_m (\varepsilon_{m2} - \varepsilon_{m1}) + \Gamma_l (\varepsilon_{b1} - \varepsilon_{m2})] \Pi(\varepsilon; \varepsilon_{b1}, \infty), \end{aligned} \quad (7)$$

где используется П-образная функция

$$\Pi(x; a, b) = \begin{cases} 0, & x \in (-\infty, a) \cup [b, \infty); \\ 1, & x \in [a, b), \quad (b > a), \end{cases}$$

Γ_s , Γ_l и Γ_m - значения (эффективного) параметра Грюнайзена материала мишени в твёрдом и жидком состояниях, а также при его плавлении, соответственно. Здесь $\Gamma_m = \zeta K / (q_m \rho)$, где ζ - удельное изменение объема вещества при плавлении, q_m - удельная теплота плавления, K и ρ - эффективные модуль всестороннего сжатия и плотность материала мишени, соответственно. Значения плотности энергии ε_{m1} , ε_{m2} и ε_{b1} соответствуют началу плавления, концу плавления, и началу кипения, соответственно.

Выражение (7) получено в предположении, что плотность тепловой энергии меньше пороговой плотности энергии кипения ε_{b1} или незначительно превосходит ее. В этом случае можно пренебречь вкладом давления паров в энергию упругонапряженного состояния по сравнению с вкладом давления, возникающего за счет интегрального теплового расширения твердой и жидкой фаз, а также за счет плавления.

Отрыв и выброс расплавленного материала возможен, если энергия упругонапряженного состояния расплава W_{el} , идущая на отрыв капли, превосходит энергию W_s , необходимую для формирования поверхности капли и кратера [13]. Уравнение

$$W_{el} = W_s \quad (8)$$

определяет критические параметры НТП – объем пика V_c и число частиц в пике $Y_c = V_c \rho / M$, соответствующие возникновению капельного распыления. Здесь M – масса атома материала мишени.

Часть энергии упругонапряженного состояния в ПНТП, идущая на отрыв капли, оценивалась по формуле

$$W_{el}(E, d) = \lambda \frac{[\sigma_T(E, d) + \sigma_i]^2}{2K} V(E, d). \quad (9)$$

Параметр λ определяет долю энергии упругонапряженного состояния, идущую на образование капли и отрыв ее от поверхности. Соответственно, долю энергии упругой волны, распространяющейся вглубь мишени и не участвующей в каплеобразовании, определяет величина $(1 - \lambda)$. Установление точного значения λ , возможно лишь путем решения системы уравнений механики сплошной среды, не входит в задачу настоящей работы. Оставляя λ свободным параметром модели, приведем некоторые соображения, касающиеся величины λ в зависимости от геометрии поверхности и расположения пика относительно нее.

Пик иона порождает расходящуюся сферическую волну, причем только часть волнового фронта, налетающего на плоскую поверхность, участвует в отрыве капли. В одномерном приближении в образовании и отрыве капли участвует только полуволна, идущая к поверхности и несущая половину всей энергии упругонапряженного состояния. Поэтому величину $\lambda = 0,5$ следует принять за верхний предел относительной доли энергии упругонапряженного состояния, идущей на образование капли в случае плоской поверхности мишени. Однако оценка λ должна измениться в случае падения иона на неплоскую поверхность, радиус кривизны которой сравним с радиусом ПНТП. Так, в случае падения иона на выпуклую поверхность доля энергии в волне, выходящей на поверхность, увеличивается, а при падении на вогнутую поверхность - уменьшается. Из сказанного следует, что в случае шероховатой поверхности, бомбардируемой ионами, процесс капельного распыления становится, вообще говоря, вероятностным, поскольку величина энергии, идущая на каплеобразование, варьирует случайным образом в зависимости от геометрии поверхности вблизи точки попадания иона.

Анализ показал, что наименее энергозатратным является выброс расплавленного материала в виде одной сферической капли. Это позволяет оценить минимальную энергию, необходимую для образования поверхности

капли и кратера, с помощью формулы

$$W_s(E, d) = \sqrt[3]{36\pi} \beta \delta (V(E, d))^{2/3}, \quad (10)$$

где δ - коэффициент поверхностного натяжения жидкого материала мишени, β - показатель роста свободной поверхности кратера, равный отношению площади дополнительно образуемой поверхности к площади поверхности сферической капли объемом $V(E, d)$. В случае плоской поверхности значение β лежит в интервале от 1 (вылет капли из жидкого либо пластичного ($\mu \ll K$) материала без образования кратера, где μ - средний модуль сдвига материала мишени) до ~ 2 (вылет капли с образованием на месте вылетевшего вещества каверны, повторяющей форму ПНТП). В случае шероховатой поверхности величина β может изменяться в зависимости от кривизны поверхности в точке падения иона. Дальнейшие оценки проведены для случая плоской поверхности и нормального падения иона. Подробности определения значения β приведены в [16].

Коэффициент капельного распыления S оценивается как среднее число атомов в пике, умноженное на вероятность w иону образовать НТП, удовлетворяющий условию (8): $S(E, d) = w\rho V(E, d)/M$. В области энергий ионов $E < E_{NTP}$ эффект капельного распыления носит пороговый характер. Коэффициент капельного распыления мишени S отличается от нуля в интервале энергий $E_1 \leq E \leq E_2$, причем в этом интервале вероятность w зависит от шероховатости поверхности и приближается к единице в случае плоской поверхности. Здесь E_1 и $E_2 \leq E_{NTP}$ - пороговые значения энергии капельного распыления, определяемые из уравнения $Y_c(E) = Y(E)$. При $E < E_1$, $E > E_2$ условие (8) не выполняется, эффект капельного распыления отсутствует и $S(E, d) = 0$. При $E > E_{NTP}$ эффект капельного распыления приобретает случайный характер и зависит от вероятности образования НТП с параметрами, удовлетворяющими условию капельного распыления.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Моделирование, выполненное с помощью программного пакета SRIM2008, позволило определить форму, геометрические параметры тепловых пиков, образующихся в мишенях из тяжелого металла (Au, U) при нормальном падении тяжелого иона (Au^+ , U^+) на поверхность мишени, а также фоновые потери E_{ph} в мишени для энергий ионов как ниже, так и выше энергии E_{NTP} [14]. Значения E_{NTP} вычислялись методом экспертной оценки образующихся каскадов в диапазоне энергий от 5 кэВ до 100 кэВ при $0,75 < l_1/l_t < 1,5$ [14]. Значения E_{NTP} растут с увеличением размера кристаллита d . Для комбинаций “U⁺ - U” и “Au⁺ - Au” максимальная допустимая энергия принимает следующие значения: для поликристаллических мишеней $E_{NTP} = 60$ кэВ и 45 кэВ, для нанокристаллических мишеней при $d = 2$ нм $E_{NTP} = 50$ кэВ и 35 кэВ, для аморфных мишеней $E_{NTP} = 40$ кэВ и 30 кэВ. Полученные значения параметров НТП_< [14] позволили оценить плотность тепловой энергии в образующемся пике, выполнение энергетического критерия капельного распыления (8), пороговые значения энергии распыления E_1 , E_2 , коэффициент капельного распыления S при $E \leq E_{NTP}$.

На рис.1 приведены зависимости плотности энергии $\varepsilon(E)$ в приповерхностном пике от энергии иона $Au^+(U^+)$ для аморфных (кривая 1), нанокристаллических (кривая 2, $d = 2$ нм) и поликристаллических (кривая 3, $d > 6,2(4,2)$ нм) мишеней из золота (урана) при $E \leq E_{NTP}$. Как видно из рис.1, плотность тепловой энергии в НТП_< $\varepsilon(E)$ уменьшается с ростом d , максимум функции $\varepsilon(E)$ смещается в область более высоких энергий. Но даже для поликристаллических мишеней существует диапазон энергий ионов, в котором $\varepsilon(E)$ превышает величину, необходимую для полного расплавления материала в НТП_< (см. рис.1).

На рис. 2 приведены зависимости числа атомов в НТП_> $Y(E, d)$ и критического числа атомов $Y_c(E, d)$, удовлетворяющего условию отрыва капли, от энергии иона $Au^+(U^+)$ для мишени из кристаллического золота (рис. 2а) и для мишени из аморфного урана (рис.2б).

Из рис. 2а видно, что для массивной золотой мишени ($\beta = 1,022$) распыление в виде отдельной капли возможно лишь на самой границе области применимости модели НТП, то есть, при энергиях ионов, близких к $E_{NTP} \approx 45$ кэВ. В то же время, выброс части материала пика в газообразной форме возможен и при более низкой энергии иона, поскольку плотность энергии в пике иона может превышать плотность энергии, необходимую для начала испарения (см. рис.1а). Для аморфных мишеней из урана ($\beta = 1,2$) предлагаемая модель предсказывает возможность распыления при энергиях иона $E_1 < E < E_2$, причем коэффициент распыления растет с увеличением энергии иона (см. рис. 2б).

Моделирование, выполненное с помощью SRIM2008 при $E = 200$ кэВ $> E_{NTP}$, позволило выделить случаи

с благоприятной конфигурацией каскадов, имеющих приповерхностный субкаскад, определить форму и размеры субкаскада и фоновые потери E_{ph} в нем, проанализировать возможность образования сферических НТП_с в приповерхностном субкаскаде, оценить фазовое состояние в образующемся пике.

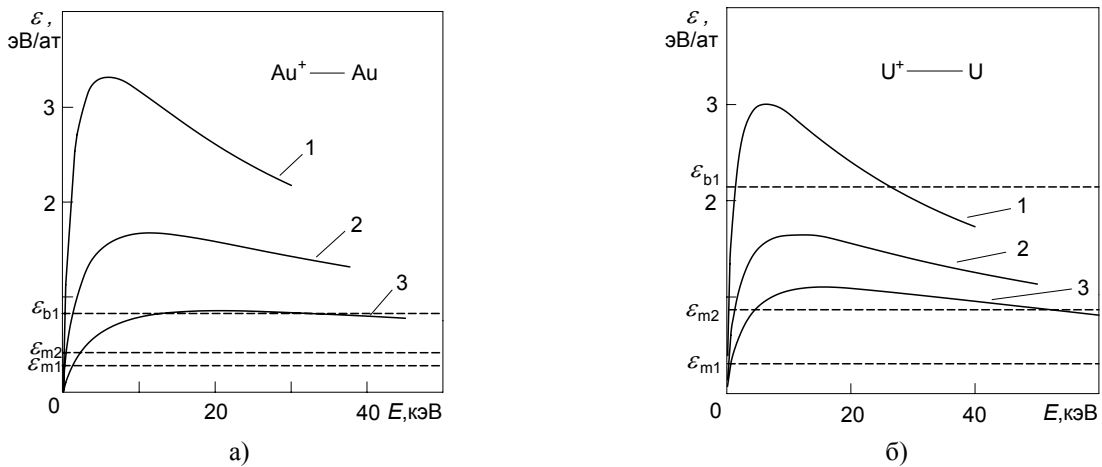


Рис. 1. Плотность тепловой энергии ε в НТП_с тяжёлых ионов в аморфной (кривая 1), нанокристаллической, $d = 2$ нм (кривая 2), поликристаллической (кривая 3) мишени: а) Au^+ в золоте; б) U^+ в уране при $E \leq E_{NTP}$. Пунктирные линии соответствуют плотности энергии начала (ε_{m1}) и конца (ε_{m2}) плавления и начала кипения (ε_{b1}).

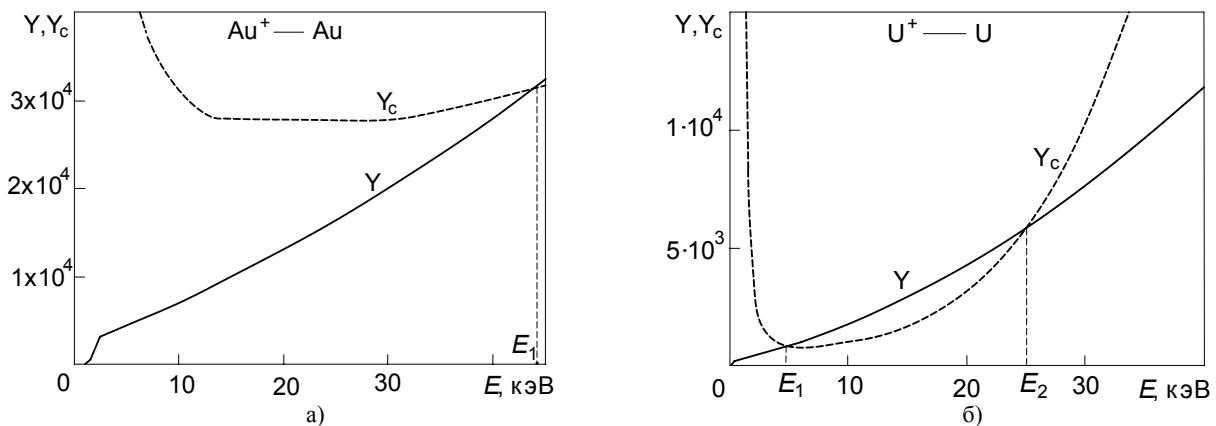


Рис. 2. Число атомов Y в НТП_с ионов Au^+ и U^+ и критическое число атомов Y_c , соответствующее условию капельного распыления, в поликристаллическом ($\beta = 1,022$) Au и аморфном ($\beta = 1,08$) U при $\lambda = 0,5$. Значения пороговых энергий для мишени из золота (урана) равны: $E_1 \approx 44$ (4,5)кэВ, $E_2 \approx 45$ (27,5)кэВ.

Для возникновения капельного распыления необходимо выполнение двух условий: 1) возникновение в приповерхностной области мишени расплавленного состояния и 2) выполнение энергетического критерия капельного распыления (8) в расплавленной области. На рис.3 приведены области (отмечены штриховкой) допустимых значений параметров E_{ph} и l_i приповерхностных субкаскадов, обеспечивающих капельное распыление для комбинации « Au^+ -Au» в случаях пленочной (рис. 3а) и массивной (рис. 3б) золотых мишеней. Кривые 1-4 соответствуют значениям параметров E_{ph} и l_i , при которых в пике начинается плавление (кривая 1), заканчивается плавления (кривая 2), начинается кипение (кривая 3) и заканчивается кипение (кривая 4). Кривая 5 соответствует зависимости $E_{ph} = E_{ph}(l_i)$ для пиков с энергией $E < E_{NTP}$. Символами отмечены параметры приповерхностных субкаскадов, найденных с помощью программы SRIM2008 при произвольном выборе заправки при генерации псевдослучайных чисел: темные кружки соответствуют каскадам, обеспечивающим чисто капельное распыление, черно-белые кружки – каскадам, обеспечивающим капельное распыление с частичным испарением материала пика, крестики – каскадам, обеспечивающим распыление вещества пика без его выброса. Всего было проведено 200 розыгрышей. Пунктирные линии соответствуют значению энергии фоновых потерь и продольной длины приповерхностных субкаскадов, для которых выполняется критерий капельного распыления (8), при $\lambda = 0,5$. Зона капельного распыления (заштрихованная область) слева и снизу ограничена пунктирной кривой, являющейся решением уравнения (8), а справа - кривой 2, соответствующей полному расплавлению материала пика.

Как видно из рис. 3, для мишеней из золота возможно образование НТП_с на основе приповерхностных (суб)каскадов с энергией фоновых потерь, превосходящей энергию, необходимую для плавления материала

мишени. В результате проведенных 200 испытаний было отобрано 12 субкаскадов, порождающих пики с плавлением. Вероятность возникновения НТП_> с расплавленным состоянием составляет ~ 0,06.

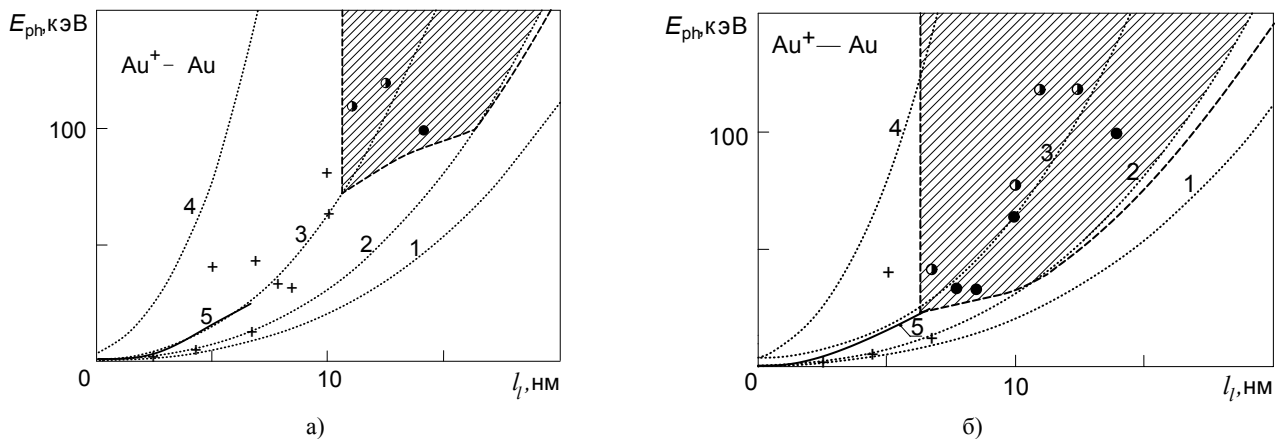


Рис. 3. Параметры приповерхностных субкаскадов с плавлением, образующихся при бомбардировке ионами Au⁺ с энергией $E = 200$ кэВ, в плёночной (рис. 3а) и массивной (рис. 3б) мишени из золота. Зона капельного распыления отмечена штриховкой.

В случае пленочной мишени (рис. 3а), для которой $\beta \approx 1,5$, только три из двенадцати субкаскадов с расплавленным состоянием попадают в зону капельного распыления. Количество атомов, вылетающих из трех благоприятных каскадов, составляет $9,6 \cdot 10^4$, $1,2 \cdot 10^5$, $1,6 \cdot 10^5$, соответственно. Это дает для среднего коэффициента распыления величину $S \approx 1900$, а вероятность выброса капель - $w \sim 0,015$. Диаметры образующихся кратеров изменяются в диапазоне $10 \text{ nm} < D < 15 \text{ nm}$. Полученные оценки удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными [4,5,17].

Кривая 5 целиком лежит вне зоны капельного распыления. Таким образом, низкоэнергетические ионы с энергией $E < E_{NTP} \approx 45$ кэВ не вызывают капельного распыления пленочной мишени.

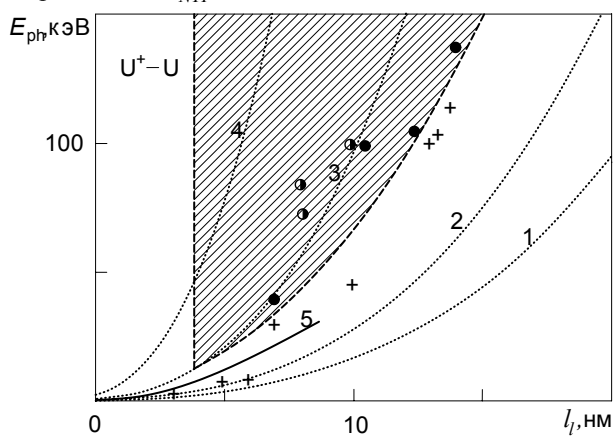


Рис. 4. Параметры приповерхностных субкаскадов с плавлением, образующихся при бомбардировке ионами U⁺ с энергией $E = 200$ кэВ поликристаллической мишени из урана. Зона капельного распыления отмечена штриховкой.

В случае массивной мишени область капельного распыления существенно расширяется, что обусловлено значительно меньшей величиной параметра $\beta \approx 1,022$, чем для пленочной мишени. В область капельного распыления попадает гораздо большее число приповерхностных каскадов (восемь из двенадцати отобранных субкаскадов с плавлением, см. рис. 3б) и, соответственно, возрастает средний коэффициент распыления $S \approx 3300$. Вероятность выброса капель составляет $w \sim 0,04$. Диаметры образующихся кратеров находятся в более широком интервале $6 \text{ nm} < D < 15 \text{ nm}$. Верхний конец кривой (5) соприкасается с областью капельного распыления. Соответствующие энергии ионов близки к $E_{NTP} \approx 45$ кэВ, то есть к пределу применимости модели нелокального термоупругого пика иона, экспертная оценка которого сама по себе довольно неопределенна. Тем не менее, предсказание

возможности капельного распыления ионами с энергией $E \sim 45$ кэВ с экстремально большой величиной коэффициента распыления $S \geq 10^4$, по нашему мнению, заслуживает экспериментальной проверки. В этом случае следует ожидать выброса с малой скоростью крупных одиночных капель, поскольку соответствующие пики на диаграмме фазового состояния мишени лежат вблизи нижней границы зоны капельного распыления, и практически вся энергия упругонапряженного состояния уходит на отделение капли. Напротив, в случае пиков, расположенных выше нижней границы, сообщаемая капле энергия может значительно превышать величину, необходимую для отрыва. В этом случае следует ожидать дробления исходной капли на более мелкие фрагменты.

Аналогично, на рис.4 приведена область допустимых значений параметров E_{ph} и l_p приповерхностных субкаскадов, обеспечивающих капельное распыление массивной кристаллической урановой мишени (отмечена штриховкой), бомбардируемой ионами U⁺ с энергией 200 кэВ. В этом случае в результате 200 испытаний было отобрано 15 субкаскадов, порождающих пики с плавлением, из которых четыре пика обеспечивают капельное распыление (черные кружки) и еще три пика – капельное распыление с частичным испарением (черно-белые

кружки). Кривая 5, соответствующая зависимости $E_{ph} = E_{ph}(l)$ для пиков с энергией $E < E_{NTP} \approx 60$ кэВ, не имеет общих точек с областью капельного распыления (выделена штриховкой), поэтому не следует ожидать капельного распыления кристаллической урановой мишени низкоэнергетическими ионами U^+ . Диаметры образующихся кратеров находятся в интервале $3,5 \text{ нм} \leq D < 15 \text{ нм}$. Среднее значение коэффициента капельного распыления и вероятность выброса капель равны: $S \sim 2000$ и $w \sim 0,035$.

ВЫВОДЫ

1. На основании модели приповерхностного нелокального термоупругого пика (ПНТП) и компьютерного моделирования с использованием программного пакета SRIM 2008 разработан метод анализа процесса распыления мишеней при ионной бомбардировке для различных комбинаций “ион – мишень” с помощью диаграммы состояния материала мишени.

2. Моделирование с помощью программного пакета SRIM2008 показало, что при энергии ионов $E = 200$ кэВ для комбинаций “ $Au^+ - Au$ ” и “ $U^+ - U$ ” с поликристаллическими мишенями возможно образование НТП на основе приповерхностных (суб)каскадов с энергией фононных потерь, превосходящей энергию, необходимую для плавления материала мишени. Вероятность образования такого (суб)каскада составляет $\sim 0,06$ для “ $Au^+ - Au$ ” и $\sim 0,075$ для “ $U^+ - U$ ”.

3. Предложен критерий капельного распыления, применение которого к пикам с плавлением показало, что капельное распыление возможно из некоторых пиков с образованием кратера и выброса материала в виде капли. Вероятность такого события для ионов с энергией 200 кэВ составляет: $\sim 0,015$ (случай “ $Au^+ - Au$ ”, бомбардировка пленочного покрытия), $\sim 0,04$ (случай “ $Au^+ - Au$ ”, бомбардировка массивной мишени), $\sim 0,035$ (случай “ $U^+ - U$ ”, бомбардировка массивной мишени). Приведенная вероятность для случая “ $Au^+ - Au$ ”, бомбардировки пленочного покрытия совпадает, по порядку величины, с экспериментально определенной величиной [17]. Учет атомов, выбрасываемых из всех пиков, дает для трех рассмотренных случаев величины коэффициентов распыления 1900, 3300, 2000, соответственно.

4. В случае ионов Au^+ с энергией $E \leq E_{NTP}$ критерию капельного распыления удовлетворяют пики, образованные ионами с энергией $E = 44..45$ кэВ в массивном кристаллическом золоте. Для ионов U^+ возможно распыление аморфного урана ионами с энергией 5 кэВ ...25 кэВ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Raspylenie tverdykh tel ionnoj bombardirovke. Pod redaksiej R. Berish. M.: Mir, 1984. - 336 s.
2. Sigmund P. Theory of sputtering. I. Sputtering yield of amorphous and polycrystalline targets // Phys.Rev. 1969. – Vol.184. – P.383-416.
3. Bouneau S., Brunelle A., Della-Negra S., Depauw J., Jacquet D., Beyec Y.L., Pautrat M., Fallavier M., Poizat J.C., Andersen H. H. Very large gold and silver sputtering yields induced by keV to MeV energy Au_n clusters ($n=1-13$) // Phys. Rev. B 2002. – Vol.65. – P.144106-8.
4. Donnelly S.E., Birtcher R.C. Heavy ion cratering of gold // Phys. Rev. B. – 1997. – Vol. 56, №21. – P. 13599 - 13602.
5. Birtcher R.C., Donnelly S.E., Schlutig S. Nanoparticle ejection from Au induced by single Xe ion impacts //Phys. Rev. Let. – 2000. – Vol.85, №3. - P. 4968 – 4971.
6. Kelly R. Theory of thermal sputtering //Rad. Effects. - 1977. - Vol. 32. - S. 91-100.
7. Johnson R.E., Evatt R. Thermal spikes and sputtering yields // Rad. Effects. – 1980. – Vol. 52.-P.187-190.
8. Vorob`eva I.V., Gegyzin Ja.E., Monastyrenko V.E., Perelygin V.P. Formirovanie poverkhnostnykh trekov tjazhelykh ionov v tverdykh telakh mekhanizmom "udarnoj volny // Fizika tverdogo tela. – 1984. – T.26. – S. 1964-1968.
9. Bitenskij I.S., Parilis E.S. Kaskadno-gidrodinamicheskij mekhanizm obrazovanija klasterov pri raspylenii tverdogo tela. // Poverkhnost'. – 1984. – № 7. – S. 14-21.
10. Davydov A.A., Kalinichenko A.I. Mekhanicheskie efekty vblizi ionnykh trekov i termicheskikh pikov // Voprosy atomnoj nauki i tekhniki. Serija: Fizika radiatsionnyh povrezhdenij i radiatsionnoe materialovedenie (36). - 1985. - №3. - S.27-30.
11. Kalinichenko A.I., Strel`nitskij V.E. Brittle fracture of material surface under low-energy ion bombardment // Nuclear Inst. and Methods in Physics Research. – 2010. - Vol.B268. - Issue 13. - P. 2246-2248.
12. Kalinichenko A.I., Perepelkin S.S., Strel'nitskij V.E. Effect kapel'nogo raspylenija pri obluchenii poverkhnosti metallov ionami nizkikh energij // Vesnik Tambovskogo universiteta. Serija: Estestvennye i tekhnicheskie nauki. – 2010. – T.15, vyp. 3. – S.849– 850.
13. Kalinichenko A.I., Perepelkin S.S., Strel'nitskij V.E. Model' kapel'nogo raspylenija pri bombardirovke tverdogo tela nizkoenergeticheskimi ionami // Izvestija vuzov. «Fizika». - 2011, №1/2. - S. 324-328.
14. Kalinichenko A.I., Perepelkin S.S., Strel'nitskij V.E. Osobennosti formirovanija termouprugikh pikov pri bombardirovke tjazhelykh metallov ionami nizkikh i promezhutchnykh energij // The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”. - 2012- №991– Iss.1(53). - S.29-34.
15. Ziegler J.F., Biersack J.P., Littmark U. The Stopping and Range of Ions in Solids. - New York: Pergamon Press, 1996. – 297 p.
16. Kalinichenko A.I., Perepelkin S.S., Strel'nitskij V.E. O formoobrazovanii kraterov pri ionnoj bombardirovke // Voprosy atomnoj nauki i tekhniki. Serija: Fizika radiatsionnyh povrezhdenij i radiatsionnoe materialovedenie (101). - 2013. - №2(84).- S. 128-133.
17. Birtcher R.C., Donnelly S.E. Radiation damage from single heavy ion impacts on metal surfaces // Proc. SPIE. – 1998. – Vol.3413. – P.174 - 182.