

На правах рукописи

КОЛЕСНИКОВ АНТОН СЕРГЕЕВИЧ

**Эрозия поверхности и первичное радиационное повреждение металлов
при бомбардировке многоатомными нанокластерами
с энергией (0.1...1) кэВ/атом.**

Специальность 01.04.07. - физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург

2005

Работа выполнена в государственном образовательном учреждении высшего профессионального образования «Санкт-Петербургский государственный политехнический университет» на кафедре «Экспериментальная ядерная физика».

Научный руководитель: к.ф.-м.н., доц. Журкин Евгений Евгеньевич

Официальные оппоненты – д.ф.-м.н., проф. Мелькер Александр Иосифович

– к.ф.-м.н., н.с. Харламов Владимир Сергеевич

Ведущая организация – НПО «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина»

Защита состоится 18 января 2006 года в 16.00 на заседании диссертационного совета Д 212.229.05 при ГОУ ВПО «Санкт-Петербургский государственный политехнический университет» по адресу 195251, Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29, 2-й учебный корпус, аудитория 265.

С диссертацией можно ознакомиться в фундаментальной библиотеке ГОУ ВПО «Санкт-Петербургский государственный политехнический университет»

Автореферат разослан 05.12.2005

Ученый секретарь

диссертационного совета

д.ф.-м.н., проф. Титовец Юрий Федорович

Диссертационная работа посвящена исследованию физических процессов, обуславливающих эрозию (распыление) поверхности металлов при бомбардировке ионами и многоатомными кластерами, содержащими от 1 до 55 атомов, с начальной энергией в диапазоне (0,1-1) кэВ/атом (что соответствует режиму имплантации-распыления с преобладанием ядерных потерь энергии за счет упругих атом-атомных соударений). Для изучения данных процессов был применен метод классической молекулярной динамики с использованием современных многочастичных моделей межатомного взаимодействия. Исследованы характерные особенности и закономерности процессов развития каскада атомных соударений, распыления поверхности, образования первичных дефектов и формирования структуры приповерхностной области (в частности, образование микрократера), в зависимости от числа атомов в налетающем кластере и его начальной энергии. При этом особое внимание уделено выявлению физических механизмов, обуславливающих существенные различия характера данных процессов, вызванных внедрением одноатомного иона и многоатомного кластера при идентичных начальных условиях облучения (в пересчете на один налетающий атом).

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

1.Актуальность

В настоящее время использование пучков ускоренных атомарных нанокластеров с целью анализа и модификации поверхности рассматривается как новый и многообещающий подход, существенно превосходящий по своим технологическим возможностям традиционные методы, основанные на использовании пучков одноатомных ионов [1-2]. Одной из главных причин, ограничивающей использование для этих целей пучков сфокусированных ионов с достаточно большой энергией, является радиационное повреждение облучаемых материалов. Наиболее очевидный путь уменьшения поверхностных повреждений – это использование ионов низких энергий (менее 1 кэВ), однако при этом существенно ухудшаются модифицирующие свойства пучка и, кроме того, резко падает качество его фокусировки. Использование кластерных пучков имеет ряд очевидных преимуществ. С одной стороны, энергия кластера возрастает кратно числу атомов в нем при той же скорости, что позволяет избежать больших оптических aberrаций в фокусирующих системах. С другой стороны, коэффициент распыления в пересчете на один налетающий атом также будет возрастать при той же скорости частиц, что позволит повысить эффективность травления [2]. Однако при этом будет так же расти и эффективность вносимых пучком радиационных повреждений [3]. Физическая модель

эрозии поверхности под воздействием кластерной бомбардировки пока не разработана до уровня, позволяющего делать надежные количественные оценки подобных эффектов, что отчасти сдерживает практическое использование кластерных пучков и, с другой стороны, стимулирует фундаментальные исследования в данной области. Проводимые экспериментальные исследования охватывают лишь отдельные явления и не носят систематического характера. Так, в ряде экспериментов выявлены эффекты неаддитивного (нелинейного) возрастания коэффициента распыления при кластерной бомбардировке (в пересчете на один налетающий атом) [4]. Бомбардировка тяжелыми ионами и кластерами может также способствовать формированию специфической топографии поверхности. В случае линейного режима распыления (характерного для ионной бомбардировки) основная топографическая особенность приповерхностной области мишени - это образование ад-атомов (атомов на поверхностном слое мишени), тогда как нелинейный режим обычно сопровождается формированием кратера в приповерхностной области мишени, что было установлено экспериментально [5-6]. Подобные эффекты, проявляющиеся при внедрении нанокластера, обусловлены аномально высокой локальной плотностью поглощенной в мишени энергии, что приводит к возникновению каскада атомных соударений с высокой плотностью энергии (так называемого “столкновительного пика”), который постепенно трансформируется в “тепловой пик”, представляющий собой долгоживущую (вплоть до нескольких десятков пикосекунд) локально расплавленную область вещества. Подобные величины локально поглощенной объемной плотности энергии практически недостижимы при внедрении в вещество одноатомных ионов, за исключением ряда случаев торможения сверхтяжелых ядер и осколков деления при энергии, соответствующей максимуму их ядерной тормозной способности. Теория, позволяющая адекватно описывать подобные явления, в настоящее время практически отсутствует. Эффекты “пиков” не могут быть также описаны и в рамках приближения парных соударений, широко используемого для моделирования распыления и дефектообразования при ионной бомбардировке, поэтому наиболее адекватным подходом к их моделированию является метод классической молекулярной динамики (МД). Данный метод был использован в ряде работ для исследования распыления и модификации структуры поверхности в нелинейном режиме при кластерной бомбардировке [7]. Однако какие-либо систематические исследования данных явлений не проводились. Следует особо отметить, что на сегодняшний день практически отсутствуют данные о характере радиационного повреждения вещества под воздействием кластерной бомбардировки. Хотя процесс радиационного повреждения при ионной бомбардировке различных материалов (в линейном режиме) хорошо изучен как в теории, так

и с помощью компьютерного моделирования [8-9], процессы дефектообразования в режиме каскадов высокой плотности энергии практически не изучались. Таким образом, исходя из анализа опубликованных работ, можно сделать вывод о необходимости дальнейших исследований для лучшего понимания физики процессов взаимодействия атомарного нанокластера с поверхностью, а также для количественного описания наблюдаемых при этом физических явлений (в частности, таких как распыление, изменение микроструктуры поверхности, радиационные повреждения и др.).

2.Цель работы:

Целью данной диссертационной работы является исследование методом компьютерного моделирования характерных особенностей процессов распыления, первичного дефектообразования и микроструктуры приповерхностной области Cu(111) и Ni(111), подвергаемых облучению атомарными металлическими нанокластерами и ионами, содержащими от 1 до 55 атомов, с начальной энергией в диапазоне от 0.1 до 1 кэВ на один налетающий атом. При этом особо акцентировалась задача анализа нелинейных эффектов, или эффектов синергизма (т.е. качественных и количественных различий характера процессов, вызванных внедрением кластера и одноатомного иона при идентичных начальных условиях в пересчете на один налетающий атом), а также выявление физических механизмов, лежащих в основе данных эффектов. Так же в качестве одной из задач ставилось исследование особенностей преимущественного распыления при кластерной бомбардировке (на примере рассмотрения распыления упорядоченного сплава Ni₃Al). В работе также затронуты вопросы влияния электронной подсистемы металлов на процессы эрозии поверхности при кластерной бомбардировке Cu и Ni.

Для достижения основных целей диссертационной работы необходимо также решить ряд сопутствующих задач:

- выбрать наиболее адекватные модели элементарных процессов, определяющих взаимодействие ускоренных частиц с веществом и эффекты связи в веществе, а именно (в контексте используемого метода) выбрать потенциалы межатомного взаимодействия для всех рассматриваемых систем (включая двухкомпонентные), с учетом реалистичности как короткодействующей, так и дальнедействующей составляющей такого потенциала, а также выбрать наиболее оптимальные модели учета атом-электронных взаимодействий применительно к рассматриваемым задачам;

- оптимизировать математическую модель и компьютерную программу, реализующую метод классической молекулярной динамики применительно к задачам внедрения кластеров в кристалл.

3. Научная новизна.

В данной работе впервые проведено систематическое изучение характерных особенностей вторичной эмиссии, а также микроструктуры приповерхностной области металлов при бомбардировке кластерами различного размера в диапазоне энергий до 1 кэВ/атом, как в зависимости от числа атомов в налетающем кластере при фиксированной энергии на атом, так и в зависимости от энергии. Показано существование порога между линейным и нелинейным режимами распыления, который зависит от полной энергии кластера. Также впервые проведено исследование роли электронной подсистемы мишени при взаимодействии нанокластеров рассматриваемого диапазона энергий с металлами, при этом показано, что для ряда металлов (для которых характерно малое время релаксации электрон-фононного взаимодействия) ее влияние на вторичную эмиссию может быть существенным. Так же впервые изучены процессы первичного радиационного повреждения металлов, подвергаемых бомбардировке нанокластерами. Проведена сравнительная оценка относительных эффективностей радиационного повреждения и распыления при различных режимах облучения.

4. Научная и практическая ценность.

В результате выполнения данной работы был разработан комплекс программ, позволяющих проводить моделирование процессов внедрения ускоренного нанокластера в твердое тело, а также исследовать сопутствующие процессы: вторичную эмиссию, изменение микроструктуры поверхности и образование кратеров, первичное дефектообразование в мишени. С точки зрения фундаментальных исследований ценность работы заключается в том, что с помощью разработанных методик возможно изучать на атомарном уровне физические механизмы, обуславливающие нелинейные эффекты при кластерном распылении, каскады высокой плотности энергии, пост-каскадные тепловые пики и соответствующие им механизмы радиационного повреждения мишени. С точки зрения прикладной науки ценность полученных результатов и разработанных методик моделирования заключается прежде всего в возможности получать количественные оценки характеристик распыления и радиационного повреждения мишени при бомбардировке нанокластерами, что может быть использовано для оптимизации режимов облучения при

анализе поверхности с использованием кластерных пучков, а также при разработке новых прецизионных методов анализа и обработки поверхности с использованием пучков атомарных наночастиц.

5. Апробация работы и публикации.

Основные положения диссертационной работы были представлены в виде устных и стендовых докладов на целом ряде научных конференций: *19th International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS-19), Paris, 29 July- 3 August 2001* (стендовый доклад); *Sixth International Conference on Computer Simulation of Radiation Effects in Solids (COSIRES-2002), Dresden, Germany, June 23 - 27, 2002* (устный доклад); *"Неразрушающие методы контроля и компьютерное моделирование в науке и технике" (New Approaches to High-Tech: Nondestructive testing and Computer Simulations in Science and Engineering) - NDTCS-2002, 10-16 June 2002, St.Petersburg, Russia* (устный доклад); *NDTCS-2003, 9-15 June 2003, St.Petersburg, Russia* (устный доклад); *XXXIII Международная конференция по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами ФВЗЧК-2003 Москва, 26-28 мая 2003 г. МГУ им. Ломоносова* (устный доклад); *XXXIV международная конференция ФВЗЧК-2004, Москва, 31 мая – 2 июня 2004 г. МГУ им. Ломоносова* (устный доклад); *NDTCS-2004, 7-13 June 2004, St.Petersburg, Russia* (устный доклад);

Основные результаты диссертационной работы опубликованы в виде статей в российских и международных периодических изданиях, а также в виде тезисов докладов международных научных конференций (всего по теме диссертации опубликовано 15 работ). Список основных публикаций приведен в конце автореферата.

6. Положения диссертационной работы, выносимые на защиту.

- 1) Комплекс программ для компьютерного моделирования методом классической молекулярной динамики процессов внедрения ускоренных нанокластеров (с начальной энергией до нескольких кэВ/атом) в кристаллическую мишень, а также сопутствующих процессов распыления, модификации поверхности и первичного радиационного повреждения облучаемого кристалла; тестирование разработанной методики на основе сравнения с известными экспериментальными данными по ионному распылению металлов;
- 2) Результаты исследования пространственных, энергетических и временных характеристик нелинейных каскадов атомных соударений высокой плотности энергии и пост-каскадных эффектов, возникающих вследствие внедрения ускоренного нанокластера в мишень;

3) Результаты исследования нелинейных и неаддитивных эффектов при распылении металлов под воздействием кластерной бомбардировки при различных режимах облучения (в зависимости от энергии и размера налетающего кластера);

4) Результаты исследований особенностей микроструктуры приповерхностной области мишени, формируемой при внедрении нанокластера, а также характера первичных радиационных повреждений мишени.

7. Структура и объем диссертации.

Диссертационная работа состоит из оглавления, семи глав (включая введение и заключение), списка цитированной литературы, содержащего 180 наименований, приложений. Общий объем диссертационной работы - 176 страниц машинописного текста, включая 22 таблицы, 37 рисунков, 2 машинописные страницы приложений.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ.

В первой главе (введении) определена научная актуальность изученных в работе проблем, определены области возможного практического приложения полученных результатов, дан обзор литературы как по исследованиям процессов, сопутствующих внедрению ускоренных нанокластеров в вещество, так и по современным методам компьютерного моделирования, используемым для описания такого рода эффектов. Исходя из обзора современного состояния данной области исследований, сформулирован ряд наиболее актуальных проблем, изучение которых необходимо для дальнейшего прогресса в развитии методов количественного описания каскадов высокой плотности энергии и процессов взаимодействия нанокластеров с веществом. Сформулированы основные цели и задачи диссертационной работы, определены основные положения, выносимые на защиту.

Во второй главе представлены используемые в работе модели элементарных процессов атом-атомных и атом-электронных взаимодействий, лежащие в основе проведенного моделирования, а также дано подробное описание методик и алгоритмов численного моделирования и статистического анализа результатов. При расчетах использовался многочастичный потенциал межатомного взаимодействия, базирующийся на приближении второго момента модели сильной связи [10-11]. Короткодействующая часть данного потенциала была скорректирована в рамках ZBL модели [12] для адекватного учета близких соударений высокоэнергетичных атомов. Взаимодействие атомов с электронной подсистемой мишени учитывалось в рамках модели [13], при этом к каждому атому,

находящемуся внутри мишени, прикладывалась дополнительная вязкая сила, пропорциональная его скорости и обратно пропорциональная характерному времени релаксации атом-электронных взаимодействий. Величина времени релаксации выбиралась в зависимости от энергии атома таким образом, что для “быстрых” атомов (кинетическая энергия которых превышает удвоенную величину энергии когезии материала) время релаксации соответствует режиму электронного торможения, тогда как для более “медленных” атомов – режиму электрон-фононного взаимодействия. Время релаксации, характеризующее потери энергии (dE/dx) вследствие электронного торможения оценивалось в рамках модели Линхарда [14], скорректированной на значения (dE/dx) [12]. Время релаксации электрон-фононного взаимодействия (τ_{e-ph}) оценивалось в рамках модели [15]. При комнатной температуре ($T=300$ К) оно составило $\tau_{e-ph}=1$ пс для Ni и $\tau_{e-ph}=11$ пс для Cu.

Используемый метод МД базируется на стандартном алгоритме, в основе которого лежит решение системы уравнений движения Ньютона для каждого атома модельного кристалла методом численного интегрирования с определенным шагом по времени. В данной работе за основу был взят алгоритм, разработанный авторами работ [16-17], модифицированный с целью использования метода Верле с переменным временным шагом [18]. При проведении расчетов были использованы модельные кристаллы, содержащие от 30000 до 300000 атомов (в зависимости от размера налетающего кластера и его энергии) с поперечными периодическими граничными условиями. Демпфирующие силы на всех границах (исключая поверхность) обеспечивали отвод избытка энергии и гашение ударной волны, возникающей вследствие удара кластера о поверхность. Для каждого рассматриваемого случая моделировалось от 20 до 1000 индивидуальных историй, каждая из которых отслеживалась в течение 20 пикосекунд от момента удара налетающей частицы о поверхность. Для того чтобы исключить эффект каналирования, было выбрано наклонное направление удара (под углом 7° относительно нормали к поверхности мишени). Для исследования процессов распыления и кратерообразования вычислялись коэффициент распыления (Y), определяемый как число атомов, покинувших область действия межатомных сил всех поверхностных атомов мишени и адатомов, и объем кратера (V), определяемый как число вакантных узлов “идеального” кристалла, попадающих в область кратера. При этом узел считается принадлежащим области кратера, если все ближайшие узлы в пределах радиуса первой координационной сферы так же вакантны. Кроме того, для каждого атома мишени вычислялось его координационное число Z . Для анализа характера радиационного повреждения мишени фиксировались вызванные бомбардировкой изменения числа атомов мишени (ΔN^+ и ΔN^-), имеющих соответственно избыточное ($Z>12$), либо

недостаточное ($Z < 12$) значение Z . Кроме того, непосредственно оценивалось и число точечных дефектов в материале мишени (вакансий и межузлий). Для оценки влияния размера налетающего кластера на эффективность эрозии поверхности, все вышеприведенные величины пересчитывались на один атом налетающего кластера: $Y_N = Y/N$; $V_N = V/N$; $\Delta_N^+ = \Delta N^+ / N$; $\Delta_N^- = \Delta N^- / N$. Для эффективного поиска ближайших соседей каждого атома, а также для идентификации точечных дефектов и кратеров был разработан специальный алгоритм анализа атомных конфигураций, базирующийся на методе связанных ячеек [18].

В третьей главе представлены результаты тестовых расчетов распыления металлов одноатомными ионами с начальными энергиями в диапазоне 0.1 – 15 кэВ, полученные с помощью метода МД. Так, в качестве примера на рис.1 приведена энергетическая зависимость коэффициентов самораспыления Cu(111) и Ni(111). Видно, что расчеты хорошо согласуются с экспериментом [19, 20]. Небольшое систематическое завышение расчетных значений при энергиях свыше 1 кэВ устраняется при учете неупругих взаимодействий атомов с электронами.

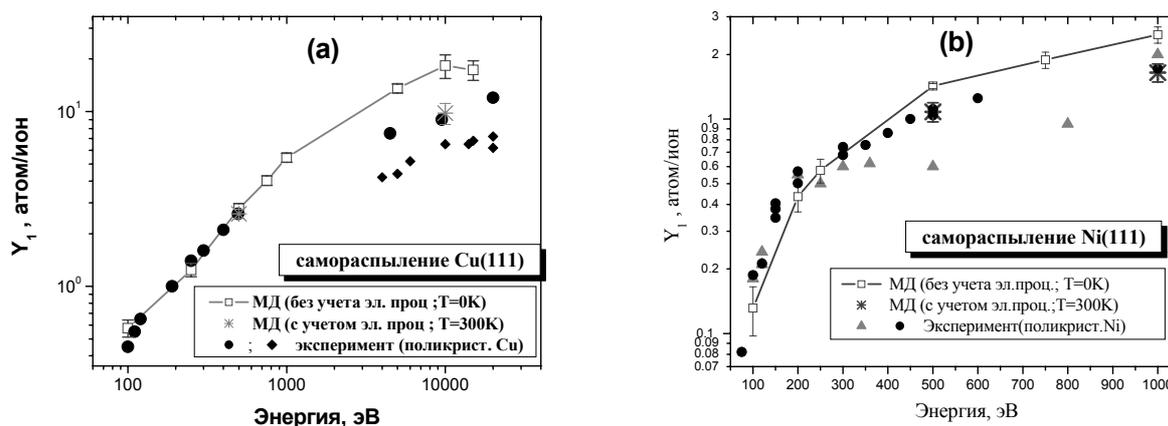


Рисунок 1. Энергетические зависимости коэффициентов самораспыления Y при бомбардировке одноатомными ионами мишеней: (a) Ni(111) и (b) Cu(111) – сравнение результатов МД моделирования (полученных как с учетом, так и без учета атом-электронных взаимодействий) с экспериментальными данными работ [19,20].

Кроме того, в рамках МД моделирования были получены дифференциальные спектры распыленных частиц (по энергии и по углам вылета из мишени). Энергетическое распределение полностью согласуются с известным распределением Зигмунда-Томпсона, которое имеет многочисленные экспериментальные подтверждения [21]. Угловой спектр имеет характер $\cos^n \theta$, где $n > 1$, и имеет характерный максимум, связанный с высокой вероятностью вторичной эмиссии вдоль плотноупакованного направления {110}, что

соответствует экспериментальным наблюдениям [22]. При моделировании распыления упорядоченного сплава Ni_3Al с плоскостями поверхности (100) и (111) установлен эффект преимущественного распыления Al, что качественно согласуется с имеющимися экспериментальными данными [23]. При этом (в отличие от моделей, базирующихся на приближении парных столкновений) согласие результатов МД моделирования с экспериментом достигнуто без введения в модель каких-либо дополнительных эмпирических параметров, описывающих поверхностную связь атомов. Таким образом, выбранный многочастичный потенциал межатомного взаимодействия автоматически позволяет корректно учесть поверхностные силы связи.

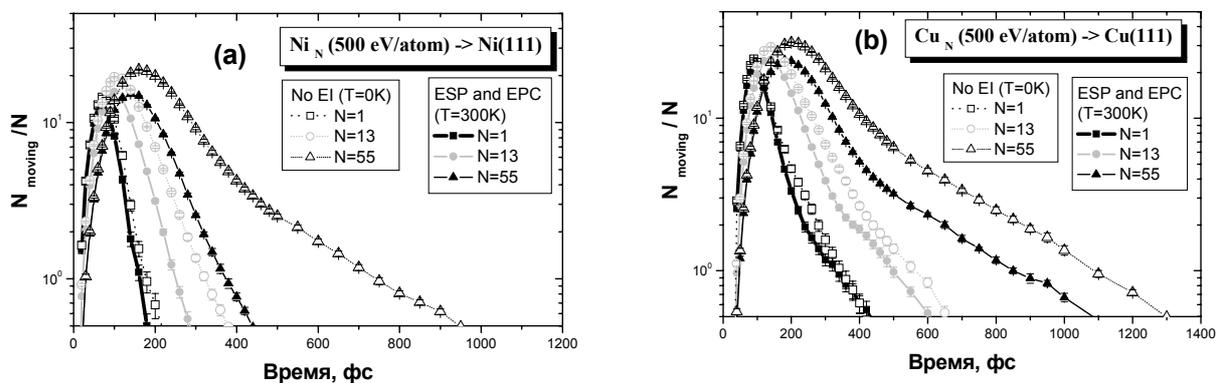


Рисунок 2. Временная зависимость среднего числа «движущихся» атомов мишени в пересчете на один атом внедренного N -атомного кластера (атом считается «движущимся», если его кинетическая энергия превышает величину энергии когезии материала мишени) при внедрении кластеров а) Ni_N в $Ni(111)$ и б) Cu_N в $Cu(111)$ с начальной энергией 500 эВ/атом. Закрашенными символами отмечены данные, полученные с учетом электронного торможения (ESP) и электрон-фононного взаимодействия (EPC), незакрашенными – данные, полученные без учета атом-электронных взаимодействий (EI).

В четвертой главе проведено сравнение характеристик каскада атомных соударений и посткаскадного теплового пика в металле, инициированных бомбардировкой одноатомными ионами и N -атомными кластерами. Также изучены характерные особенности распределений пробегов внедренных атомов. Показано, что начальная стадия каскада соударений слабо зависит от размера (N) налетающего кластера. Однако поздняя стадия каскада и характер посткаскадной стадии охлаждения существенно зависят от N . Так, на рис.2 показано число «движущихся» атомов мишени в пересчете на один налетающий атом. Видно, что с увеличением числа атомов налетающего кластера N наблюдается постепенный переход от режима линейных каскадов к режиму столкновительных пиков, сопровождаемый увеличением времени жизни каскада, а также возникновением пост-каскадного теплового

пика. Так же установлен эффект возрастания величины среднего проективного пробега внедренных атомов с ростом N (при заданной скорости снаряда), однако данный эффект ослабляется с увеличением энергии налетающего кластера. Во всех рассмотренных случаях с ростом N существенно возрастает страгглинг пробегов, что приводит к размытию распределения имплантированных частиц. Показано, что в рассматриваемом диапазоне энергий электронные потери энергии не влияют существенным образом на характер развития каскада соударений. В то же время установлено, электрон-фононное взаимодействие может влиять на характер охлаждения каскада. Так, в частности, показано, что учет электрон-фононного взаимодействия ведет к существенному уменьшению времени жизни теплового пика в Ni, в то время как в Cu подобный эффект выражен слабее.

В пятой главе приведены результаты моделирования распыления грани (111) Cu и Ni при кластерной бомбардировке. Получены интегральные и дифференциальные характеристики распыления, проведено их сравнение с соответствующими характеристиками распыления одноатомными ионами при одинаковой энергии на один атом налетающего снаряда. Поскольку в рассматриваемой ситуации распыление одноатомными ионами является линейным, то отношение Y_N/Y_1 (где Y_N - коэффициент распыления, приходящийся на один атом налетающего кластера) можно рассматривать как характеристику степени “линейности” распыления при кластерной бомбардировке. Величина отношения Y_N/Y_1 для Cu и Ni при их бомбардировке кластерами Cu_N и Ni_N , соответственно, приведена на Рис.3 в зависимости от числа атомов (N) в налетающем кластере. Видно, что как для Ni, так и для Cu при $N \geq 10$ наблюдается неаддитивное увеличение коэффициента распыления, приходящегося на один атом кластера ($Y_N/Y_1 > 1$), тогда как при меньших размерах кластера имеет место линейный режим, при котором распыление практически аддитивно (т.е. $Y_N/Y_1 \cong 1$). Также установлено, что отмеченный эффект нелинейности сопровождается характерными изменениями вида энергетического и временного спектров распыленных частиц. При этом возрастает доля низкоэнергетических распыленных частиц (с энергиями ниже 1 эВ), а так же возникает так называемая “поздняя эмиссия” (т.е. вторичная эмиссия наблюдается в течение более чем 1 пс после удара). Все отмеченные выше тенденции сохраняются и при учете атом-электронных взаимодействий. При этом характер вторичной эмиссии в случае медной мишени изменяется незначительно, в то время как для Ni учет электронных процессов ведет к заметному ослаблению как эффекта неаддитивного распыления (см. рис.3), так и поздней эмиссии, что коррелирует с уже отмеченным выше эффектом уменьшения времени жизни пост-каскадного теплового пика в Ni за счет влияния электрон-фононного взаимодействия.

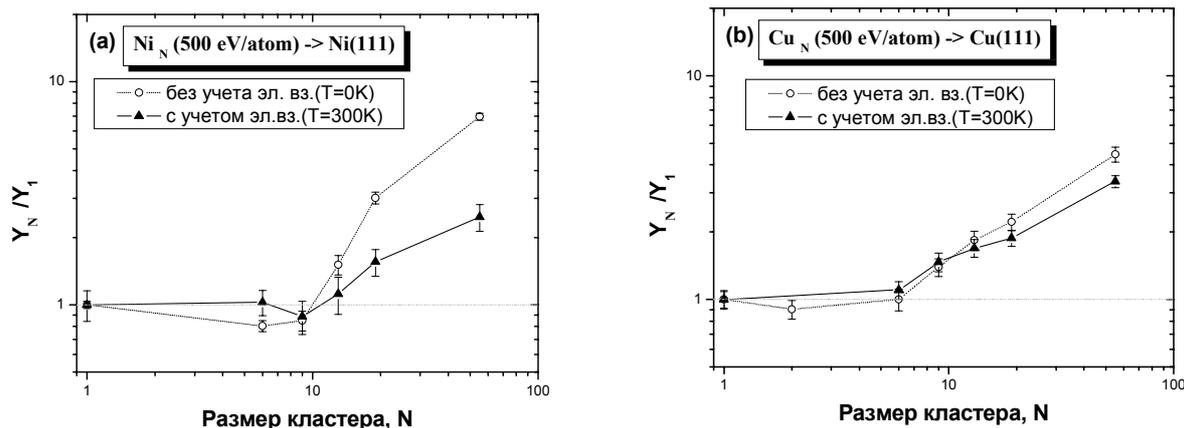


Рисунок 3 Величина отношения Y_N/Y_1 в зависимости от числа атомов (N) в налетающем кластере при бомбардировке а) $Ni(111)$ кластерами Ni_N и б) $Cu(111)$ кластерами Cu_N с начальной энергией 500 эВ/атом. Закрашенными символами отмечены данные, полученные с учетом процессов атом-электронных взаимодействий (ESP и EPC), незакрашенными – без учета атом-электронных взаимодействий.

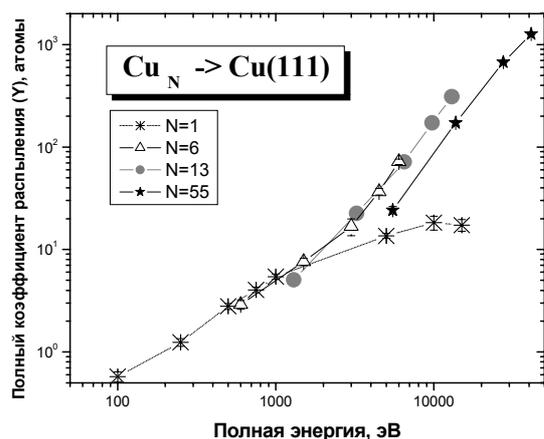


Рисунок 4 Полный (суммарный) коэффициент распыления $Cu(111)$ при бомбардировке ионами и кластерами Cu_N ($N=1-55$) как функция полной (суммарной) кинетической энергии налетающего снаряда.

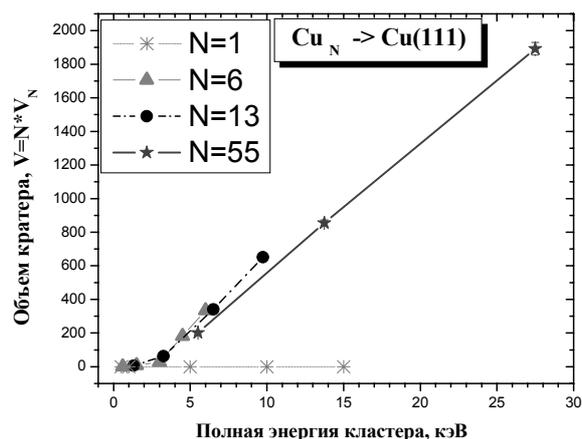


Рисунок.5. Объем кратера (выраженный в количестве вакантных узлов решетки) образующегося в $Cu(111)$ при внедрении кластеров Cu_N при $N=1-55$ в зависимости от суммарной кинетической энергии налетающего кластера.

Кроме того, изучен характер распыления Cu в зависимости от энергии и массы налетающего кластера. Установлено, что при бомбардировке кластерами, содержащими более 6 атомов, распыление становится нелинейным (неаддитивным) если полная кинетическая энергия кластера (E_{tot}) превышает 5 кэВ, при этом суммарный коэффициент распыления (Y) может быть приближенно аппроксимирован некоторой “универсальной”

кривой. Так, на рис.4 показана зависимость Y от E_{tot} . Видно, что нелинейный режим соответствует области $E_{tot} \geq (4-5)$ кэВ, в которой все точки группируются достаточно близко друг к другу. Аналогичный эффект был ранее установлен в экспериментах по самораспылению золота [4]. Также в данной главе рассмотрены особенности преимущественного распыления упорядоченного сплава Ni_3Al . Показано, что эффект преимущественного распыления, отмеченный ранее для случая ионной бомбардировки, сохраняется и в режиме нелинейного распыления кластерами.

В шестой главе приведены результаты исследования топографии приповерхностной области мишени, формируемой вследствие внедрения ускоренного нанокластера, а также сопутствующих процессов первичного радиационного повреждения. Изучение процессов эрозии поверхности $Cu(111)$ и $Ni(111)$ показало, что бомбардировка одноатомными ионами приводит к образованию адатомов на поверхности облучаемой мишени. При внедрении N -атомного кластера ($N > 6$) характер топографии поверхности зависит от его суммарной кинетической энергии (E_{tot}): при этом происходит либо формирование адатомов и мелкозалегающего кратера, если $E_{tot} < 5$ кэВ, либо образование отчетливо выраженного глубокого кратера, если $E_{tot} \geq (4-5)$ кэВ. В последнем случае, как видно из рис.5, объем кратера V линейно растет с ростом E_{tot} , при этом зависимость V от E_{tot} для налетающих кластеров различных размеров может быть приближенно описана универсальной кривой (для заданного элементного состава снаряда и мишени). Образование кратера коррелирует с образованием теплового пика в облучаемой мишени.

Анализ характера радиационных повреждений мишеней $Cu(111)$ и $Ni(111)$ при бомбардировке одноатомными ионами и N -атомными кластерами Cu_N , Ni_N и Au_N ($N=1-55$) в диапазоне энергий от 0.1 до 1 кэВ на один атом налетающего снаряда указывает на то, что преобладающим типом радиационных дефектов являются вакансии (и их скопления). При этом доля дефектов межузельного типа оказывается мала и, более того, она существенно уменьшается с увеличением размера налетающего кластера N при фиксированной энергии, приходящейся на один атом снаряда. Также было показано, что с ростом размера налетающего кластера, наблюдается неаддитивный рост числа дефектов вакансионного типа (в пересчете на один налетающий атом кластера). При этом установлено, что с увеличением размера налетающего кластера (при фиксированной скорости) эффективность распыления мишени в пересчете на один налетающий атом растет быстрее, чем соответствующая эффективность радиационного повреждения (см. рис.6).

В заключении (главе 7) приведены основные результаты, полученные в результате выполнения работы, и сформулированы выводы.

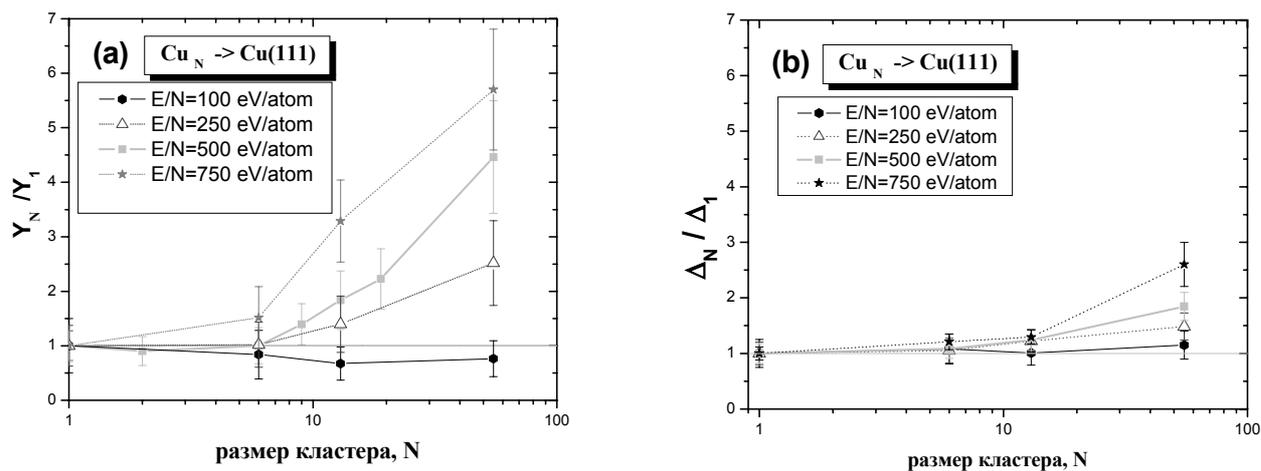


Рисунок.6. (а) Отношение коэффициентов распыления (в пересчете на один атом налетающего кластера) при бомбардировке $\text{Cu}(111)$ N -атомным кластером (Y_N) и одноатомным ионом (Y_1), и (б) отношение количества атомов мишени, имеющих координационное число $Z \neq 12$ (в пересчете на один атом налетающего кластера) после бомбардировки N -атомным кластером (Δ_N) и одноатомным ионом (Δ_1) в зависимости от N в диапазоне энергий $E/N=100..750$ эВ/атом.

Основные результаты, полученные в диссертационной работе, сводятся к следующему:

- разработан комплекс программ для моделирования на атомарном масштабе расстояний процессов эрозии поверхности металлов при внедрения ускоренных ионов и нанокластеров, проведено его тестирование путем сравнения с имеющимися в литературе экспериментальными данными;

- впервые систематически исследованы закономерности вторичной эмиссии с поверхности (111) ряда металлов (Ni , Cu) и сплава Ni_3Al при бомбардировке нанокластерами Ni_N , Cu_N , Al_N , Au_N , ($N=1-55$) в энергетическом диапазоне от 0.1 до 1 кэВ/атом, получены количественные значения коэффициентов распыления и их флуктуаций, а также дифференциальные спектры вторичной эмиссии. Найдены характерные зависимости коэффициентов распыления как от энергии, так и от размера налетающего кластера, исследованы особенности преимущественного распыления Ni_3Al ;

- найдены распределения пробегов внедренных частиц, а также характерные времена жизни столкновительного и теплового пика в зависимости от размера и энергии налетающего кластера;

- изучены характерные особенности топографии приповерхностной области мишени при кластерной бомбардировке в зависимости от размера и энергии налетающего кластера, получены критерии образования кратеров;

- впервые выявлены качественные и количественные характеристики первичного радиационного повреждения мишени при кластерной бомбардировке;

- впервые исследовано влияние атом-электронных взаимодействий на характер эволюции нелинейных каскадов и процессы вторичной эмиссии при кластерной бомбардировке металлов; показано, что электрон-фононные взаимодействия по-разному влияют на характер охлаждения каскада в меди и никеле, несмотря на их близкие атомные номера. Так, в Ni ($Z=28$) электрон-фононное взаимодействие уменьшает время жизни теплового пика, заметно ослабляя при этом нелинейные эффекты при распылении кластерами, в то время как в Cu ($Z=29$) данный эффект выражен существенно слабее.

На основании полученных в диссертационной работе результатов можно сделать следующие **выводы**:

- внедрение нанокластера, содержащего более 6 атомов с суммарной кинетической энергией, превышающей 5 кэВ, приводит к неаддитивному возрастанию коэффициента распыления (в пересчете на один налетающий атом), сопровождаемому эффектом поздней эмиссии, возрастанием доли низкоэнергетических частиц в спектре распыления, а также образованием микрократера в приповерхностной области мишени. В тоже время внедрение одноатомных ионов или кластеров меньшего размера не приводит к возникновению нелинейных эффектов при распылении во всем рассматриваемом диапазоне энергий, при этом характерной особенностью морфологии приповерхностной области мишени, как правило, являются скопления адатомов или мелкозалегающий кратер (с глубиной порядка межатомного расстояния); Установлено, что нелинейность распыления и образование кратера тесно коррелируют с возникновением “столкновительного” и “теплового” пиков;

- зависимость суммарного коэффициента распыления в нелинейном режиме от полной кинетической энергии N -атомного кластера может быть описана универсальной кривой (с точностью порядка 30 %). С ростом N при фиксированной энергии на один налетающий атом, эффект неаддитивности распыления проявляется, начиная с некоторого порогового размера кластера, зависящего энергии;

- доминирующим типом радиационных дефектов, образующихся в материале мишени при внедрении нанокластера, являются дефекты вакансионного типа; при этом наблюдается неаддитивное возрастание числа вакансий (в пересчете на один налетающий атом) с ростом размера кластера при заданной энергии на атом, а относительная доля дефектов межузельного типа, напротив, уменьшается;

- с увеличением размера налетающего кластера при фиксированной энергии на атом, возрастание относительной эффективности распыления в пересчете на один налетающий

атом существенно опережает соответствующее возрастание относительной эффективности радиационного повреждения мишени;

- в рассмотренном диапазоне энергий процессы электронного торможения не оказывают заметного влияния на вторичную эмиссию и микроструктуру облучаемой мишени, однако процесс электрон-фононного взаимодействия может существенно влиять на характер охлаждения каскада высокой плотности, уменьшая при этом время жизни теплового пика и, как следствие, уменьшая эффект поздней эмиссии и неаддитивного возрастания коэффициента распыления. Однако данный эффект является существенным лишь для тех металлов, для которых характерно малое время релаксации электрон-фононного взаимодействия, величина которого оказывается существенно меньше времени жизни теплового пика. В противном случае указанный эффект практически не проявляется.

Список публикаций, содержащих основные результаты диссертационной работы:

1. E.E.Zhurkin, A.S.Kolesnikov, *Molecular Dynamics Study of Al and Ni₃Al sputtering by Al clusters bombardment* // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, Vol. **193**, No 1-4 (2002), P. 822-829.
2. E.E.Zhurkin, A.S.Kolesnikov, *Atomic scale modelling of Al and Ni(111) surface erosion under cluster impact* // Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B, Vol. **202** (2003), P. 269-277.
3. Е.Е.Журкин, А.С.Колесников, В.Ф.Космач, *Моделирование распыления поверхности Cu(111) и Ni(111) под воздействием пучков ускоренных ионов и кластеров* // Поверхность. - 2004. №4. - С. 23-27.
4. Е.Е.Журкин, А.С.Колесников, В.Ф.Космач, *Компьютерное моделирование процессов эрозии поверхности металлов при бомбардировке N-атомными кластерами (N=1-55)* // Поверхность.- 2005. №3. - С. 51-56.
5. E.E.Zhurkin, A.S.Kolesnikov, *Sputtering of Ni and Ni₃Al(111) surfaces under cluster bombardment: a molecular dynamics study* // Proc. SPIE, Vol: **5127** (2003), P. 107-115
6. E.E.Zhurkin, A.S. Kolesnikov, *Atomic scale study of Cu and Ni(111) surface erosion under cluster bombardment* // Proc. SPIE, Vol. **5400**, (2004), P.69-77
7. E.E. Zhurkin, A.S. Kolesnikov, *Molecular dynamics study of nonlinear sputtering* // Proc. SPIE, Vol. **5400** (2004), P.78-84
8. A.S. Kolesnikov, E.E. Zhurkin, *Molecular dynamics study of surface erosion and defect generation in copper under cluster bombardment: influence of projectile mass and energy* // Proc. SPIE, Vol. **5831**, (2005), P.33-43.

Список цитированной литературы

1. I.Yamada, J.Matsuo, Z.Insepov, T.Aoki, T.Seki, N.Toyoda, *Nano-processing with gas cluster ion beams* // Nucl. Instr. and Meth.in Phys.Res.B, Vol. **164-165** (2000) pp.944-959
2. M.Dobeli, P.W.Nebiker, R.Muhle, M.Suter, *Sputtering and defect production by focused gold cluster ion beam irradiation of silicon* // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B, Vol. **132** (1997), P.571-577
3. B. Canut, M. Fallavier, O. Marty and S. M. M. Ramos, *Damage creation in silicon single crystals irradiated with 200 keV/atom Au_n⁺ clusters* // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B, Vol. **164-165** (2000), P.396-400
4. H.H. Andersen, A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet, Y. Le Beyec, J. Chaumont, H. Bernas, *Gigant Metal Sputtering Yields Induced by 20-5000 keV/atom Gold Clusters* // Phys. Rev. Lett., Vol **80**, (1998), P. 5433-5436
5. Merkle K.L., Jäger W., *Direct Observation of Spike Effects in Heavy-Ion Sputtering*, // Philos. Mag., Vol. **A44**, No. 4 (1981), P. 741-762
6. Z.Insepov, L.P.Allen, C.Santeufemio, K.S. Jones, I.Yamada, *Computer modeling and electron microscopy of silicon surfaces irradiated by cluster ion impacts* // Nucl. Instrum. and Meth. in Phys.Res. B, Vol. **202** (2003), P. 261-268
7. T. J. Colla, R. Aderjan, R. Kissel, and H. M. Urbassek, *Sputtering of Au (111) induced by 16-keV Au cluster bombardment: Spikes, craters, late emission, and fluctuations* // Phys. Rev. B, Vol. **62** (2000), P. 8487–8493
8. Кирсанов В.В., Суворов А.В., Трушин Ю.В. Процессы радиационного дефектообразования в металлах. - М.: Энергоатомиздат, 1985. - 272 с.
9. Экштайн В. Компьютерное моделирование взаимодействия частиц с поверхностью твердого тела. - М.: Мир, 1995. - 320 с.
10. F.Gao, D. Bacon, G.Ackland, *Point-defect and threshold displacement energies in Ni₃Al* // Philos. Mag. A, Vol. **67**, No. 2 (1993), P. 275-288
11. M.Hou, Z.-Y.Pan, *Cascade statistics in the binary collision approximation and in full molecular dynamics* // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B, Vol. **102** (1995), P. 93-102
12. J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solid*. - Pergamonn Press, New York, 1985. - 321 p.
13. M. W.Finnis, P.Agnew, and A.J.E.Foreman, *Thermal excitation of electrons in energetic displacement cascades* // Phys. Rev.B, Vol. **44**, (1991), P. 567-574
14. Lindhard J. Scharff M. *Energy dissipation by ions in the keV region* // Phys. Rev., v.**124**, (1964) pp. 128-130
15. Q.Hou, M.Hou, L.Bardotti, B.Prevel, P.Melinon, A.Perez, *Deposition of Au_N clusters on Au(111) surfaces.I. Atomic-scale modelling* // Phys. Rev. B, Vol. **63**, (2000) P. 2826-2834
16. E.E. Zhurkin, M. Hou, *Structural and thermodynamic properties of elemental and bimetallic nanoclusters: an atomic scale study* // J. Phys.: Condens. Matter **12** (2000), P. 6735-6754
17. M.Hou, V.S.Kharlamov, E.E.Zhurkin, *Atomic scale modelling of cluster assembled Ni_xAl_{1-x} thin films* // Phys. Rev. B, Vol. **66** (2002), P.195408:1-14
18. Allen M.P., Tildesley D.J. *Computer simulation of liquids*. - Clarendon Press, Oxford, 1987. - 387 p.
19. H.H. Andersen, H.L.Bay, *Sputtering Yield Measurements* // R. Behrisch. *Sputtering by Particle Bombardment*. - Springer-Verlag, Berlin, 1981. - P.145-218
20. W.Eckstein. C.Garcia-Rosles, J.Roth, W.Ottenberger, *Sputtering data*. - Rep. IPP 9/82, Max-Planck-Institute-Fur-Plasmaphysik, Garching, Munchen, 1993
21. M.W. Thompson, *The Velocity Distribution of Sputtered Atoms* // Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B, Vol. **18** (1987), P. 411-429
22. R.Behrisch, K.Wittmaack *Sputtering by Particle Bombardment III*. - Springer-Verlag, Berlin, 1991. - 410 p.
23. G.Betz, G.K. Werner, *Sputtering of multicomponent materials* // R.Behrisch. *Sputtering by Particle Bombardment II*. - Springer-Verlag, Berlin, Top.Appl.Phys. Vol. **52** (1983) P. 11-90