

УДК 537.534.2:679.826

## ОСОБЕННОСТИ ФОРМИРОВАНИЯ ТЕРМОУПРУГИХ ПИКОВ ПРИ БОМБАРДИРОВКЕ ТЯЖЁЛЫХ МЕТАЛЛОВ 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](mailto:aikalinichenko@kipt.kharkov.ua)*

Received 23 January 2012, accepted 17 February 2012

Исследована возможность формирования приповерхностных нелокальных термоупругих пиков (ПНТП) тяжелыми ионами низких и промежуточных энергий  $E \leq 1$  МэВ в тяжелых металлах. На примерах имплантации ионов  $\text{Xe}^+(\text{U}^+)$  в аморфные или (нано) кристаллические Au (U) показано существование пороговой энергии ионов  $E_{\text{NTP}} \sim (15-50)$  кэВ, ниже которой пик формируется в соответствии с предложенной ранее моделью НТП низкоэнергетического иона. Методом экспертных оценок каскадов, возникающих при компьютерном моделировании процесса ионной бомбардировки, определены величины  $E_{\text{NTP}}$  для исследованных комбинаций «ион – металл». Показано, что при  $E > E_{\text{NTP}}$  возможно образование ПНТП как односвязной области перегрева, возникающей на основе приповерхностного (суб)каскада. Параметры ПНТП определяются размерами (суб)каскада, тепловым расплыванием за время ион-ионной релаксации и фоннными потерями в (суб)каскаде. Приведена оценка сверху для вероятности образования сферического ПНТП, в котором возможно плавление материала мишени, для комбинаций “ $\text{U}^+ - \text{U}$ ”, “ $\text{Xe}^+ - \text{Au}$ ” при энергиях ионов  $E = 400$  кэВ.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** низкоэнергетический ион, аморфная и/или (нано)кристаллическая мишень, тяжелые металлы, атомный каскад, термоупругий пик, плавление

## ОСОБЛИВОСТІ ФОРМУВАННЯ ТЕРМОПРУЖНИХ ПІКІВ ПРИ БОМБАРДУВАННІ ВАЖКИХ МЕТАЛІВ ІОНАМИ НИЗЬКИХ І ПРОМІЖНИХ ЕНЕРГІЙ

**О.І. Калініченко, С.С. Перепьолкін, В.Є. Стрельницький**

*Національний Науковий Центр „Харківський фізико-технічний інститут”  
61108, Академічна, 1, м. Харків, Україна*

Досліджено можливість формування приповерхневих нелокальних термопружних піків (ПНТП) важкими іонами низьких і проміжних енергій  $E \leq 1$  MeV у важких металах. На прикладах імплантації іонів  $\text{Xe}^+(\text{U}^+)$  в аморфні або (нано)кристалічні Au (U) показане існування граничної енергії іонів  $E_{\text{NTP}} \sim (15-50)$  кеВ, нижче якої пік формується відповідно до запропонованої раніше моделі НТП низкоенергетичного іона. Методом експертних оцінок каскадів, що виникають при комп'ютерному моделюванні процесу іонного бомбардування, визначені величини  $E_{\text{NTP}}$  для досліджених комбінацій «іон-метал». Показано, що при  $E > E_{\text{NTP}}$  можливо утворення ПНТП як однозв'язної області перегріву, що виникає на основі при поверхневого (суб)каскаду. Параметри ПНТП визначаються розмірами (суб)каскаду, тепловим розпливанням за час іон-іонної релаксації й фонними втратами у (суб)каскаді. Наведено оцінку зверху для ймовірності утворення сферичного ПНТП, у якому можливе плавлення матеріалу мішені, для комбінацій “ $\text{U}^+ - \text{U}$ ”, “ $\text{Xe}^+ - \text{Au}$ ” при енергіях іонів  $E = 400$  кеВ.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** низко энергетичний іон, аморфна та/або (нано)кристалічна мішень, важкі метали, атомний каскад, термопружний пік, плавлення.

## FORMING FEATURES OF THERMOELASTIC PEAKS AT HEAVY METAL BOMBARDMENT BY IONS OF LOW AND INTERMEDIATE ENERGIES

**A.I.Kalinichenko, S.S.Perepelkin, V.E.Strelnitskij**

*National Science Centre “Kharkov Institute of Physics and Technology”  
61108, Akademicheskaya, 1, Kharkov, Ukraine*

Possibility of forming of the subsurface nonlocal thermoelastic peaks (SNTP) by ions of low and intermediate energies  $E \leq 1$  MeV in heavy metals is investigated. By examples of ions  $\text{Xe}^+(\text{U}^+)$  implanted to amorphous or (nano)crystalline Au (U), the existence of such ion boundary energy  $\sim (15-50)$  keV is shown that the SNTP with energy  $E < E_{\text{NTP}}$  forms according to the model of NTP of low-energy ion which was earlier proposed. By the judgement method of cascades appearing at computer simulation of ion bombardment process the values  $E_{\text{NTP}}$  are determined for examined combinations of “ion-metal”. It is shown that SNTP formation is possible at  $E > E_{\text{NTP}}$  as a simply heating region appearing on basis of subsurface (sub)cascade. SNTP parameters are determined by (sub)cascade size, heat smearing and phonon loss in the (sub)cascade. Upper estimate of probability of spherical SNTP formation with material melting for combinations “ $\text{U}^+ - \text{U}$ ”, “ $\text{Xe}^+ - \text{Au}$ ” and ion energy  $E = 400$  keV is given.

**KEY WORDS:** low-energy ion, amorphous and/or (nano)crystalline target, heavy metals, atomic cascade, thermoelastic peak, melting.

Модель нелокального термоупругого пика (НТП), використовувалася для описання процесів взаємодії низкоенергетических іонів с твердотельними мішенями, дозволила об'яснити широкий круг

наблюдаемых эффектов и проводить оптимизацию процессов обработки плёнок и покрытий ионными пучками [1]. Применимость модели ограничена диапазоном энергий ионов  $E_{\min} < E < E_{\text{НТР}}$ , где минимальная энергия  $E_{\min} \sim 25$  эВ определяется возможностью термодинамического описания физических процессов в НТП, а максимальная допустимая энергия  $E_{\text{НТР}}$  изменяется в зависимости от сорта иона и материала мишени. Так, в случае легких ионов ( $\text{C}^+$ ,  $\text{B}^+$ ,  $\text{Al}^+$ ,  $\text{Ti}^+$ ), бомбардирующих мишень из легких материалов ( $\text{C}$ ,  $\text{BN}$ ,  $\text{AlN}$ ,  $\text{Ti}$ ),  $E_{\text{НТР}}$  находится в пределах от 1 кэВ до 4 кэВ [1].

При переходе к более тяжелым ионам ( $\text{Fe}^+$ ,  $\text{Xe}^+$ ,  $\text{Au}^+$ ,  $\text{U}^+$  и др.) и материалам мишени ( $\text{Fe}$ ,  $\text{Au}$ ,  $\text{U}$  и др.) энергетический диапазон применения модели НТП может существенно расширяться, и появляется возможность описания новых эффектов, нехарактерных для ионов с энергиями  $E < 10$  кэВ. Речь, в частности, идет о фазовых переходах в пиках ионов [2], об эффекте кластерного распыления материала мишени тяжелыми ионами [3,4] и сопровождающей его поверхностной эрозии [5,6]. В области пороговой энергии  $E \sim E_{\text{НТР}}$  происходит качественное изменение в структуре каскада, приводящее к образованию более сложных по форме и зачастую многосвязных перегретых областей нанометрового масштаба, что проявляется в изменении подходов при определении параметров образующегося теплового пика. Для ионов с промежуточными энергиями  $E_{\text{НТР}} < E < 1$  МэВ уже нельзя использовать ранее разработанную модель НТП, согласно которой каждый бомбардирующий ион гарантированно создает единственный приповерхностный НТП (ПНТП) с вполне определенными радиусом и энергосодержанием. В этом случае для исследования возможности возникновения ПНТП с заданными пространственными и энергетическими характеристиками требуется рассмотрение всего многообразия образующихся каскадов и отбор тех из них, которые удовлетворяют определенным требованиям.

Целью настоящей работы является определение параметров низкоэнергетических ( $E_{\min} < E < E_{\text{НТР}}$ ) ПНТП, возникающих при имплантации ионов  $\text{Xe}^+$  ( $\text{U}^+$ ) в аморфные или кристаллические мишени  $\text{Au}$ , ( $\text{U}$ ), включая пространственные характеристики и энергосодержание пика, и величину пороговой энергии  $E_{\text{НТР}}$ . Также на основе компьютерного моделирования каскадов исследуется возможность возникновения ПНТП с плавлением материала для указанных комбинаций «ион-мишень» при энергии ионов  $E = 400$  кэВ.

### ПАРАМЕТРЫ ПНТП ИОНОВ НИЗКИХ И ПРОМЕЖУТОЧНЫХ ЭНЕРГИЙ

Как показано в [1,8], в области низких энергий  $E < E_{\text{НТР}}$  образующийся ПНТП иона аппроксимируется сферическим сегментом, содержащим энергию фононных потерь  $E_{ph}^<(E) = \eta(E)E$ , с центром в середине среднего проективного пробега иона  $L(E)$  и радиусом

$$R_z(E, d) = L(E) / 2 + R_T(d), \quad (1)$$

где  $R_T(d)$  определяется следующим приближенным выражением:

$$R_T(d) = \begin{cases} 2\sqrt{sd\tau/6}, & d \leq d_{\max}, \\ 2s\tau, & d > d_{\max}. \end{cases} \quad (2)$$

Здесь  $d$  – эффективный размер кристаллита,  $d_{\max} = 9a[2(1-\Pi)/(1-2\Pi)]^{1/2}$ ,  $\Pi$  – коэффициент Пуассона материала мишени. Доля фононных потерь  $\eta(E)$ , так же как средний проективный пробег иона  $L(E)$ , вычислялась с помощью программного пакета SRIM2008 [7]. Отметим, что случаю аморфного материала соответствует предел  $R_T(d)$  при  $d \rightarrow 2a$ , где  $a$  – среднее межатомное расстояние.

Определение пороговой энергии  $E_{\text{НТР}}$ , задающей предел применимости модели НТП низкоэнергетического иона, требует детального статистического анализа параметров образующихся областей термализации фононных потерь иона с оценкой вероятности благоприятных конфигураций в широком диапазоне энергий [9]. В настоящей работе величина пороговой энергии определялась методом экспертных оценок с использованием моделирования образующихся каскадов с помощью программного пакета SRIM2008. Процедура определения величины  $E_{\text{НТР}}$  заключалась в следующем. Для каждой фиксированной энергии иона  $E$  производилось  $N = 100$  розыгрышей каскадов, из которых выбиралось  $N_+(E)$  розыгрышей, приводящих к возникновению благоприятных конфигураций области термализации. К числу таковых относились все односвязные области термализации, продольный

$$l_l = l_l' + 2R_T(d) \quad (3)$$

и поперечный

$$l_t = l_t' + 2R_T(d) \quad (4)$$

размеры которых удовлетворяли неравенству

$$\xi^{-1} \leq \frac{l_l'}{l_l} \leq \xi, \quad (5)$$

где  $l_l'$  и  $l_l'$  - эффективные продольный и поперечный размеры каскада, порождающего тепловой пик. Значение  $l_l'$  определялось шириной продольного распределения фононных потерь иона  $dE_{ph}/dy$  на высоте  $1/e \approx 0,369$  от максимума распределения и контролировалось визуально по глубине каскада. Величина  $l_l'$  оценивалась визуально по эффективному поперечному диаметру каскада. Параметр формы  $\xi$  выбирался равным 1,5.

Принималось, что образуемые ионами определенной энергии нанометровые области термализации можно описывать в рамках модели НТП, если доля благоприятных конфигураций составляла не менее 50%. В соответствии с этим уравнение для определения  $E_{NTP}$  может быть записано в виде:

$$N_+(E_{NTP}) = 0,5N. \quad (6)$$

При энергиях, превышающих  $E_{NTP}$ , согласно результатам моделирования с помощью SRIM2008, происходит изменение структуры каскада. Формирующийся каскад порождает или односвязную область термализации с, вообще говоря, 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. Таким образом, каждый образующийся тепловой пик аппроксимируется либо эллипсоидом вращения (вокруг продольной оси) с размерами осей  $l_l$  и  $l_t$ , определяемых соотношениями (3), (4), если пик целиком лежит внутри мишени, либо сегментом такого эллипсоида, если пик образуется на приповерхностном (суб)каскаде. В последнем случае центр эллипсоида отстоит от поверхности на расстояние  $l_l/2$ .

Моделирование с помощью SRIM 2008 показало, что в некоторых (довольно редких) случаях возможно образование ПНТП, размеры которого удовлетворяют условию (5). В этом случае можно говорить о возникновении сферического ПНТП, аппроксимируемого сферическим сегментом с радиусом

$$R_>(E, d) = l_l/2 + R_T(d), \quad (7)$$

с центром, находящимся на расстоянии  $l_l/2$  от поверхности мишени.

Образующийся ПНТП содержит тепловую энергию, равную энергии фононных потерь в приповерхностном каскаде или субкаскаде

$$E_{ph}^>(E) = \int_0^{l_l} (dE_{ph}/dy) dy, \quad (8)$$

значение которой определяется продольным распределением фононных потерь  $dE_{ph}/dy$ , вычисляемым в рамках SRIM2008. Как показали оценки, при промежуточных энергиях  $E_{NTP} < E < 1$  МэВ ионизационные потери также не вносят существенного вклада в формирование теплового поля ПНТП.

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

$$\varepsilon(E, d) = \frac{E_T(E)}{V(E, d)}, \quad (9)$$

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  $V(E, d)$  равен:

$$V(E, d) = \frac{4\pi}{3} \left[ R(E, d)^3 - \frac{3}{8} R_T(d)^2 l - \frac{R_T(d)^3}{2} \right], \quad (10)$$

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  $E > E_{NTP}$ .

### РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Моделирование, выполненное с помощью программного пакета SRIM2008, позволяет определить форму, геометрические параметры тепловых пиков, образующихся в мишенях из тяжёлого металла (Au, U), при нормальном падении тяжёлого иона ( $\text{Xe}^+$ ,  $\text{U}^+$ ) на поверхность мишени, а также фононные потери  $E_{ph}$  в мишени для энергий как ниже, так и выше порогового значения энергии  $E_{NTP}$ . Значения  $E_{NTP}$  вычислялись методом экспертной оценки образующихся каскадов в диапазоне энергий от 5 кэВ до 100 кэВ при  $0,75 < l_l/l_t < 1,5$  [9]. Для комбинаций “ $\text{U}^+ - \text{U}$ ” и “ $\text{Xe}^+ - \text{Au}$ ” пороговая энергия принимает следующие значения: для

поликристаллических мишеней  $E_{NTP} = 45$  кэВ и 30 кэВ, для нанокристаллических мишеней с  $d = 2$  нм  $E_{NTP} = 35$  кэВ и 20 кэВ, для аморфных мишеней  $E_{NTP} = 25$  кэВ и 15 кэВ, соответственно.

На рис. 1 приведены энергетические зависимости параметров ПНТП для аморфного и (нано)кристаллического урана (золота), бомбардируемого ионами  $U^+(Xe^+)$ , при  $E < E_{NTP}$ . Вычисления проводились при следующих параметрах мишеней U(Au): плотность  $\rho = 19,04 \cdot 10^3$  кг/м<sup>3</sup> ( $19,31 \cdot 10^3$  кг/м<sup>3</sup>), энергия смещения  $E_d = 25$  эВ, энергия связи  $E_b = 3$  эВ. Из рис. 1 видно, что с ростом размера кристалла и энергии иона начальный радиус ПНТП  $R_c(E, d)$  возрастает и достигает максимального значения  $R_{cmax}$  для поликристаллических мишеней при  $E = E_{NTP}$ :  $R_{cmax} = 5,2$  нм (5,3 нм) для комбинации “Xe<sup>+</sup> - Au” (“U<sup>+</sup> - U”).

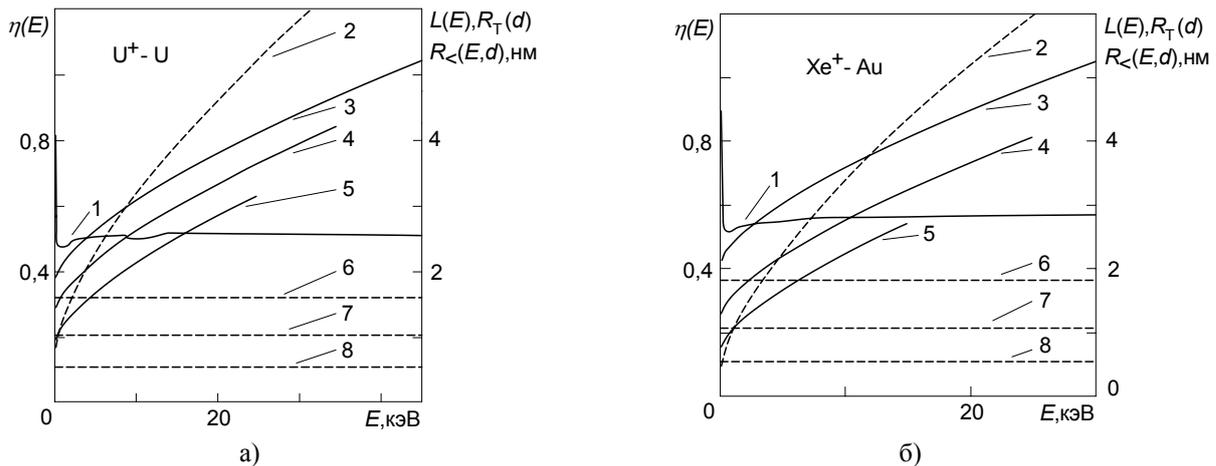


Рис. 1. Доля фоновых потерь  $\eta(E)$  (кривая 1), средний проективный пробег  $L(E)$  (пунктирная кривая 2), начальный радиус ПНТП  $R_c(E, d)$  (кривые 3, 4, 5) и радиус теплового размывания  $R_T(d)$  (пунктирные линии 6, 7, 8) для поликристаллической, нанокристаллической ( $d=2$  нм) и аморфной мишеней из: а) урана, бомбардируемого ионами  $U^+$ ; б) золота, бомбардируемого ионами  $Xe^+$  при  $E \leq E_{NTP}$ .

Радиус теплового размывания  $R_T(d)$  превосходит по величине среднюю длину проективного пробега иона  $L(E)$  для поликристаллических мишеней из U(Au) при  $E < 1,9$  кэВ (3,5 кэВ). С уменьшением размера кристаллита интервал энергий, в котором выполняется неравенство  $R_T(d) > L(E)$ , сокращается. Так, для аморфных мишеней из урана (золота) значение  $L(E)$  становится больше, чем  $R_T(2a)$  уже при  $E = 25$  эВ (при  $E = 120$  эВ). Таким образом, размер НТП определяется процессом диффузии тепла только в поликристаллических мишенях и только для энергий ионов  $E \leq 5$  кэВ  $\ll E_{NTP}$ . С ростом энергии иона и уменьшением размера кристаллита размер пика определяется, в основном, длиной среднего проективного пробега иона  $L(E)$ , то есть, вкладом процессов каскадообразования.

На рис.2 приведены зависимости плотности энергии в ПНТП  $\varepsilon(E, d)$  для мишени из урана (золота) от энергии бомбардирующего иона  $U^+(Xe^+)$ . Из выражения (9) и рис.2 следует, что с уменьшением  $d$  плотность тепловой энергии в НТП возрастает и может превысить величину, необходимую для начала плавления материала мишени. В этом случае весь объём пика или его часть переходит в жидкое состояние. Весь материал пика иона  $U^+(Xe^+)$  переходит в расплавленное состояние для поликристаллического U (Au) при  $E > 1$  кэВ (4,7 кэВ); для аморфного U (Au) - при  $E > 350$  эВ (50 эВ).

Моделирование, выполненное с помощью SRIM2008, позволило определить форму и размеры каскада, образующегося в мишени при нормальном падении тяжёлого иона на поверхность мишени, а также распределение фоновых потерь  $dE_{ph}/dy$  в мишени при  $E > E_{NTP}$ .

На рисунках 3-5 приведены примеры каскадов различных конфигураций, образуемых ионами  $U^+$  и  $Xe^+$  в мишенях из кристаллического урана и золота, соответственно, при энергии ионов  $E = 400$  кэВ. На рис. 3 показан каскад, у которого продольный размер  $l_l$ , по порядку величины, совпадает с поперечным размером  $l_t$  (рис. 3а), и соответствующее продольное распределение фоновых потерь в мишени (рис. 3б).

Показанный на рис. 3а приповерхностный каскад можно аппроксимировать сферическим сегментом радиусом  $R_s \sim 7,6$  нм при  $l_l \sim 12$  нм и  $R_T \sim 1,6$  нм (граница ПНТП показана сплошной кривой). Плотность тепловой энергии в пике иона составляет  $\varepsilon \sim 2,8$  эВ/ат и превосходит плотность тепловой энергии, соответствующую полному расплавлению урана  $\varepsilon_{m2} \sim 0,83$  эВ/ат. На рис. 4 показаны каскад, у которого продольный размер  $l_l$  значительно превосходит поперечный размер  $l_t$  (рис. 4а), и соответствующее

продольное распределение фоновых потерь в мишени (рис. 4б).

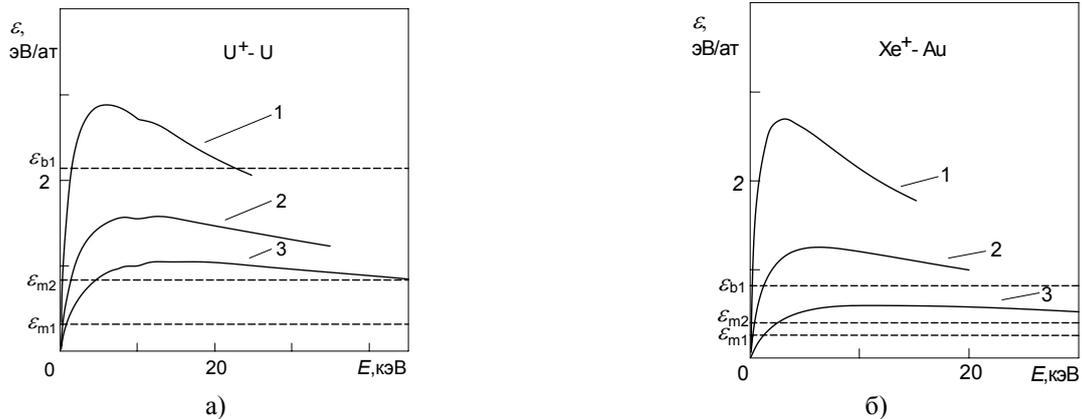


Рис. 2. Плотность тепловой энергии  $\varepsilon$  в ПНТП ионов в аморфной (кривая 1), нанокристаллической,  $d = 2$  нм (кривая 2), поликристаллической (кривая 3) мишени: а)  $U^+$  в уране; б)  $Xe^+$  в золоте при  $E \leq E_{NTP}$ . Пунктирные линии соответствуют плотности энергии начала ( $\varepsilon_{m1}$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

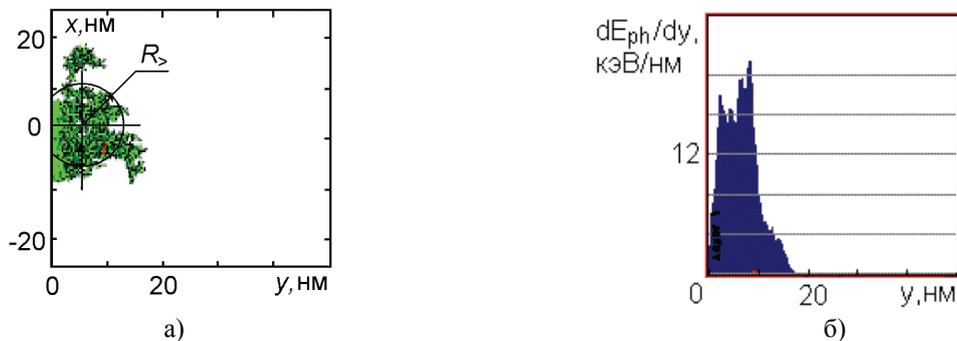


Рис. 3. Односвязный каскад с  $l_l \sim l_t$ , образующийся при взаимодействии иона  $U^+$  с атомами мишени из поликристаллического урана (а); продольное распределение фоновых потерь иона в материале мишени (б). Энергия иона  $E = 400$  кэВ,  $L = l_l = 12$  нм.

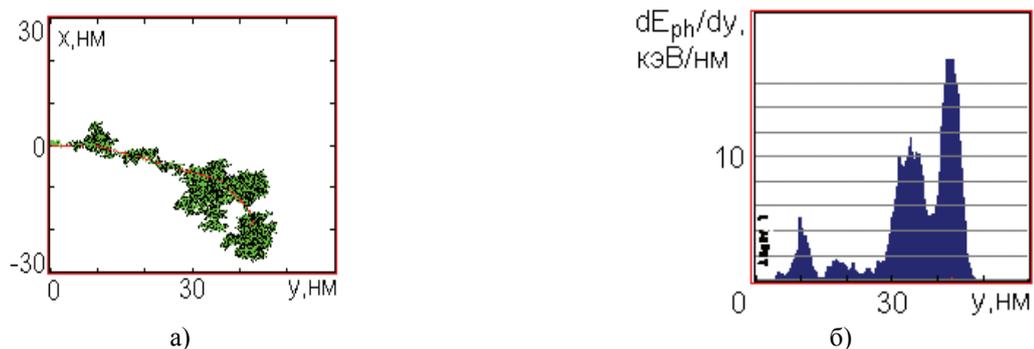


Рис. 4. Многосвязный каскад, образующийся при взаимодействии иона  $U^+$  с атомами поликристаллической мишени из урана (а); продольное распределение фоновых потерь иона в мишени (б). Энергия иона  $E = 400$  кэВ,  $L \sim 46$  нм.

Как видно из рис. 4, форма образующегося каскада далека от сферы, а энергосвыделение происходит, в основном, в глубине мишени. В приповерхностном субкаскаде не выделяется тепловая энергия, необходимая для плавления материала мишени.

На рис. 5 показаны каскад, разделяющийся на три слабо связанных субкаскада (рис. 5а), и соответствующее продольное распределение фоновых потерь иона в материале мишени (рис. 5б). Приповерхностный субкаскад на рис. 5а можно аппроксимировать сферическим сегментом радиусом  $R_s \sim 5,8$  нм при  $l_l \sim 8$  нм и  $R_T \sim 1,8$  нм (граница ПНТП показана сплошной кривой). Плотность тепловой энергии в образующемся ПНТП иона составляет  $\varepsilon \sim 0,9$  эВ/ат и превосходит плотность тепловой энергии, соответствующую полному расплавлению золота  $\varepsilon_{m2} \sim 0,4$  эВ/ат.

Таким образом, моделирование с помощью программного пакета SRIM2008 показало, что при энергии

