

01

## **Размеры нейтральных кластеров и процессы их фрагментации при ионном распылении твердого тела**

© В.И. Матвеев, Д.Н. Макаров, С.Н. Капустин

Северный (Арктический) федеральный университет  
им. М.В. Ломоносова, Архангельск  
E-mail: mezon98@mail.ru

Поступило в Редакцию 18 марта 2015 г.

Развита теория ионного распыления твердого тела в виде возбужденных кластеров с их последующей фрагментацией, основанная на простых физических предположениях и находящаяся в согласии с экспериментом. Результаты представлены в виде удобных для использования формул. В качестве примера проведены расчеты полных выходов кластеров серебра и индия.

Известно, что полное количественное и детальное описание процессов ионного распыления в виде кластеров возможно лишь численными методами молекулярной динамики (см., например, обзоры [1–6] и приведенные там ссылки). Сложность таких расчетов существенно возрастает с ростом числа атомов в кластере. Однако до проведения таких расчетов, с целью предварительной оценки ситуации и описания физических механизмов формирования продуктов ионного распыления в виде кластеров следует применять [7] простые модельные расчеты. В данной статье развита теория ионного распыления в виде возбужденных кластеров, которые релаксируют до стабильного состояния путем испускания одиночных атомов, основанная на простых физических предположениях и находящаяся в неплохом согласии с экспериментом. Получены простые выражения для полных выходов стабильных кластеров. Предлагаемый подход принципиально неприменим к распылению в виде одиночных атомов или малых кластеров, а из сравнения с экспериментом может быть сделан вывод о применимости подхода для расчетов и оценок относительного выхода кластеров с числом атомов  $N$ , лежащим в интервале  $4 \leq N \leq 50$ .

Будем считать твердое тело (мишень) образованным из атомов, каждый из которых находится в связывающей потенциальной яме и имеет характерный период колебаний  $T$ . Пусть скорость падающего иона такова, что за время  $\tau \ll T$  ион и быстрые атомы отдачи при движении в мишени претерпевают большое число столкновений, в результате которых атомы мишени получают некоторые импульсы  $\mathbf{q}_i$  где  $i$  — номер атома. Экспериментально явление распыления наблюдают при бомбардировке поверхности твердого тела потоком ионов, каждый ион создает свой каскад со своим определенным набором  $\{\mathbf{q}_i\}$ . Будем считать все  $\mathbf{q}_i$  независимыми, а все направления  $\mathbf{q}_i$  равновероятными [7–9]. Выделим блок из  $N$  атомов. Далее, как и в [7], для простоты будем считать, что хотя все  $\mathbf{q}_i$  направлены совершенно хаотично, но по длине все одинаковы, т.е.  $|\mathbf{q}_i| = q$  для всех  $i = 1, 2, \dots, N$ . Центр масс блока получил импульс  $\mathbf{p} = \sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i$ , вероятности различных значений импульса центра масс блока  $\mathbf{p}$  при  $N \gg 1$  легко вычисляются и равны (см. формулу (3) статьи [7])

$$dw_N(\mathbf{p}) = \frac{d^3\mathbf{p}}{8\pi^{3/2}} \frac{1}{(Nq^2/6)^{3/2}} \exp\left(-\frac{p^2}{4(Nq^2/6)}\right). \quad (1)$$

Это распределение не содержит зависимости от углов вылета кластера и поэтому после интегрирования (1) по углам вылета кластера нетрудно получить (см. формулу (4) статьи [7]) распределение по энергиям вылетевших кластеров. Однако для описания степени возбуждения кластера нам необходимо переписать (1) в виде распределения по внутренним энергиям. Для этого учтем что, каждый атом блока получил энергию  $\varepsilon = q^2/(2m)$ , так что весь блок получил энергию  $N\varepsilon = Nq^2/(2m)$ , импульс  $\mathbf{p} = \sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i$  и соответствующую кинетическую энергию движения как целого  $p^2/(2Nm)$ , поэтому разница  $Nq^2/(2m) - p^2/(2Nm) = E_{int}$  — это приобретенная внутренняя энергия. Таким образом, распределение по  $E_{int}$  имеет вид

$$\frac{dw_N}{dE_{int}} = \Omega \frac{\sqrt{2(Nq^2/(2m) - E_{int})}}{8\pi^{3/2}(\varepsilon/3)^{3/2}} \exp\left(-\frac{3(Nq^2/(2m) - E_{int})}{2\varepsilon}\right), \quad (2)$$

где  $\Omega$  — телесный угол вылета кластера. Далее, как и в [7], считаем, что центр масс блока из  $N$  атомов находится в потенциальной яме

глубиной  $U_N$ , которую мы будем называть энергией связи кластера с мишенью. Блок из  $N$  атомов может вылететь, если его кинетической энергии движения как целого хватит на преодоление энергии связи  $U_N$ , т.е.  $p^2/(2Nm) > U_N$ . Поэтому внутренняя энергия находится в диапазоне  $0 < E_{int} < Nq^2/(2m) - U_N$ . Согласно [7], энергия связи кластера  $U_N$  с мишенью пропорциональна площади поверхности  $S_N$ , по которой блок из  $N$  атомов соприкасается с остальным твердым телом, и равна

$$U_N = \sigma S_N = \delta N^{2/3} h, \quad (3)$$

где безразмерный параметр  $h$  характеризует степень „изрытости“ поверхности до вылета кластера, причем  $0 < h < 1$ , при  $h = 0$  кластер до распыления лежит на поверхности мишени, при  $h = 1$  кластер до распыления полностью погружен в мишень,  $\delta$  не зависит от  $N$  и имеет смысл энергии связи на один атом в кластере, полностью погруженном в мишень.

Теперь, чтобы определить вероятность получения внутренней энергии на каком-либо интервале значений, нужно проинтегрировать выражение (2) на этом интервале. Будем считать, что энергия испарения одного атома равна  $\delta$ . Интегрируя выражение (2) от 0 до  $\delta$ , мы получим вероятность того, что у кластера не хватит энергии для развала и он окажется стабильным. Далее будем считать, что возбужденный кластер всегда релаксирует до стабильного состояния путем испускания только одноатомных фрагментов. Тогда, интегрируя от  $\delta$  до  $2\delta$ , получим вероятность испарения одного атома, от  $2\delta$  до  $3\delta$  — двух атомов. Действуя по аналогии и подставляя в выражение (2) в качестве пределов интегрирования значения, равные пороговым значениям энергии, необходимым для испарения  $n$  штук атомов из кластера, получим вероятность того, что  $N$ -атомный кластер испарит  $n$  мономеров:

$$W_N^n = \int_{n\delta}^{(n+1)\delta} \frac{dw_N}{dE_{int}} dE_{int}. \quad (4)$$

В результате образуется стабильный кластер с числом атомов  $N-n$ . Отметим, что при интегрировании по  $dE_{int}$  необходимо исключать случаи отрицательных значений подкоренного выражения в правой части (2). Таким образом, вероятность образования стабильного кластера из  $N$  атомов равна сумме вероятностей получить изначально

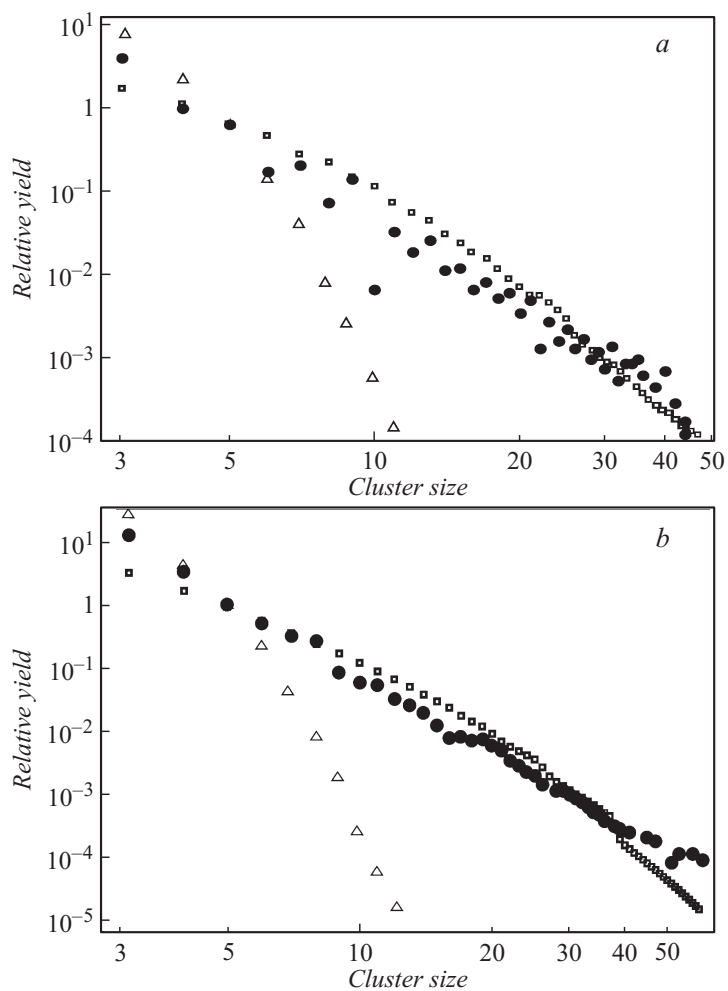
стабильный  $N$ -атомный кластер и вероятностей получить  $N$ -атомные остатки от испарения более тяжелых кластеров

$$W_N = W_N^0 + W_{N+1}^1 + W_{N+2}^2 + \dots + W_{N+n}^n + \dots + W_{N_0}^{N_0-N}, \quad (5)$$

где  $N_0$  — некоторый максимальный размер возбужденной зоны. Дополним выражение (5). Каждое слагаемое домножим на множитель  $N_0/(N+n)$ , показывающий возможное количество кластеров размером  $N+n$ , помещающихся в  $N_0$ -атомной зоне, и получим окончательное выражение для вероятности образования стабильного кластера из  $N$  атомов

$$\tilde{W}_N = \sum_{n=0}^{N_0-N} \frac{N_0}{(N+n)} W_{N+n}^n. \quad (6)$$

В эксперименте обычно измеряют относительные вероятности  $Y_N$  выхода кластеров с различным числом атомов, поэтому можно не обращать внимание на нормировку выражения (6). Для сравнения с экспериментом, вероятность (6) следует сначала поделить на вероятность отрыва кластера с  $N=5$  (точнее, можно выбрать любое  $N$ , лежащее в пределах применимости модели, но нам удобнее  $N=5$ , как в [7]), аналогично нормируются и экспериментальные данные. Далее при необходимости можно перейти к любым удобным произвольным единицам. Таким образом, по нашему определению относительный выход кластеров  $Y_N = \tilde{W}_N / \tilde{W}_{N=5}$ . При проведении расчетов с целью уменьшения числа подгоночных параметров мы принимали  $\delta$  равным энергии сублимации [10] для распыляемого вещества, так что единственными варьируемыми параметрами в (6) являлись импульс  $q$  и содержащийся в выражении для энергии связи (3) множитель  $h$ , характеризующий степень „изрытости“ поверхности металла в данном эксперименте. На рисунке приведены результаты расчетов относительных выходов кластеров при распылении мишеней из серебра и индия ионами  $\text{Xe}^{+1}$  с энергией 15 keV в сравнении с экспериментальными данными [11,12]. Значения подгоночных параметров  $q$  и  $h$  указываются в подписях к рисунку. Значение же  $N_0 = 100$  — максимального размера возбужденной зоны (точнее, числа атомов в ней), было выбрано так, чтобы результаты расчета в рассматриваемых на рисунках диапазонах не изменялись при удвоении значения  $N_0$ . Как видно из рисунка результаты расчетов демонстрируют неплохое согласие с экспериментом



Относительный выход кластеров в зависимости от  $N$  — числа атомов в них при распылении поверхности поликристаллического серебра ионами  $\text{Xe}^{+1}$  с энергией 15 keV: квадраты — результат нашего расчета  $Y_N = \tilde{W}_N / \tilde{W}_{N=5}$  с использованием формулы (6), круглые отметки — экспериментальные данные (только нейтральные кластеры) [11] (a) и [12] (b). Значения подгоночных параметров:  $q = 130$ ;  $h = 0.14$ ;  $\delta = 2.7$  eV (a) и  $q = 190$ ;  $h = 0.09$ ;  $\delta = 2.52$  eV (b); треугольники — расчет без учета процессов фрагментации.

в широком диапазоне размеров кластеров. Для иллюстрации необходимости учета процессов фрагментации мы привели треугольниками на рисунке расчет относительного выхода без учета фрагментации (т.е. в формуле (6) учитывается только первое слагаемое с  $n = 0$ ). Как видно из рисунка, поправка на фрагментацию позволяет уточнить прогнозирование выхода тяжелых кластеров и значительно расширить область применения модели [7–9].

Работа выполнена в рамках КГЗ Министерства образования и науки РФ (№ 3.1726.2014/К).

## Список литературы

- [1] *Машикова Е.С.* (сост.) // *Фундаментальные и прикладные аспекты распыления твердых тел. Сб. статей.* М.: Мир, 1989. 399 с.
- [2] *Sigmund P.* // *Special issue on Ion Beam Science: Solved and Unsolved Problems.* K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 2006. V. 52.
- [3] *Behrisch R., Eckstein W.* // *Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies.* Berlin. Springer, 2007.
- [4] *Wucher A.* // *Appl. Surf. Sci.* 2006. V. 252. P. 6482.
- [5] *Баранов И.А., Мартыненко Ю.В., Цепелевич С.О., Явлинский Ю.Н.* // *УФН.* 1998. Т. 156. С. 478.
- [6] *Распыление под действием бомбардировки частицами.* Вып. 3. Под ред. Р. Бериша и К. Виттмака. М.: Мир, 1998. 551 с.
- [7] *Матвеев В.И., Кочкин С.А.* // *ЖЭТФ.* 2010. Т. 137. С. 820.
- [8] *Матвеев В.И., Белых С.Ф., Веревкин И.В.* // *ЖТФ.* 1999. Т. 69. В. 3. С. 64–68.
- [9] *Belykh S.F., Matveev V.I., Veryovkin I.V.* et al. // *Nucl. Instrum. Meth. B.* 1999. Т. 155. С. 409.
- [10] *Kittel C.* // *Введение в физику твердого тела.* М.: Наука, 1978. 792 с.
- [11] *Staudt C., Heinrich R., Wucher A.* // *Nucl. Instrum. Meth. B.* 2000. V. 164–165. P. 677–686.
- [12] *Staudt C., Wucher A.* // *Phys. Rev. B.* 2002. V. 66. P. 075 419.