

УДК 537.534

ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ СПЕКТРЫ АТОМОВ, РАСПЫЛЕННЫХ ИОНАМИ НИЗКИХ ЭНЕРГИЙ: КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

© 2025 г. В. И. Шульга*

Институт ядерной физики им. Д. В. Скobelцына Московского государственного университета
имени М. В. Ломоносова, Москва, 119991 Россия

*e-mail: vish008@yandex.ru

Поступила в редакцию 20.09.2024 г.

После доработки 15.11.2024 г.

Принята к публикации 15.11.2024 г.

Проведен расчет энергетических спектров и средних энергий распыленных частиц для ряда аморфных мишеней (Si, Ti, Ni, V, Nb), бомбардируемых ионами Ar с энергией 1 кэВ. В расчетах использованы программы компьютерного моделирования OKSANA и SRIM-2013. Показано, что для мишеней, атомы которых тяжелее падающих ионов, при расчетах с помощью программы SRIM оказывается переоценен вклад в распыление быстрых атомов отдачи и сильно завышена средняя энергия распыленных частиц. Это особенно заметно в результатах вычислений с использованием поверхностной энергии связи, найденной путем достижения согласия между расчетными коэффициентами распыления и экспериментальными. Проведено сравнение результатов моделирования с аналитическими оценками средней энергии распыленных атомов, выполненными на основе линейной теории распыления. Показано, что во всех рассмотренных случаях эти оценки также сильно завышены, поскольку в них не учтена деградация каскадов соударений при низких энергиях бомбардировки. Отмечено хорошее согласие результатов моделирования с использованием программ OKSANA, TRIM.SP и ACAT.

Ключевые слова: ионная бомбардировка, распыление, энергетические спектры и средние энергии распыленных атомов, компьютерное моделирование

DOI: 10.31857/S1028096025030111, **EDN:** EMFPTF

ВВЕДЕНИЕ

Исследование закономерностей распыления твердых тел ионной бомбардировкой представляет большой интерес для более глубокого понимания процессов, связанных с атомными столкновениями в твердых телах, а также в связи с многочисленными практическими применениями этого явления [1, 2]. В настоящее время при теоретическом изучении распыления часто используют метод компьютерного моделирования траекторий частиц [2]. Для мишеней с неупорядоченной структурой (аморфных) одной из программ такого рода является программа SRIM-2013 [3], основанная на приближении парных столкновений и экранированном кулоновском потенциале. Программа находится в свободном доступе, удобна в использовании и получила широкое распространение.

Замечено, однако, что эта программа может сильно искажать как коэффициент распыления, так и угловое распределение распыленных атомов в области энергий ионов ~1 кэВ и ниже [4, 5].

Попытка повысить точность предсказаний, получаемых с помощью программы SRIM-2013, путем варьирования поверхностной энергии связи была сделана недавно в работах [6, 7]. Расчеты [6, 7] выполнены для большой группы переходных металлов и ряда других материалов при бомбардировке ионами Ar с энергией от 0.3 до 1.2 кэВ перпендикулярно поверхности мишени. Получены угловые и энергетические распределения распыленных атомов, а также их средние энергии. Наиболее неожиданным результатом работ [6, 7] является резкое изменение формы энергетического спектра, а также средних энергий распыленных

частиц при переходе от Si к Ti. Такое изменение не подтверждается аналитическими оценками, выполненными в рамках теории распыления Зигмунда–Томпсона и описанными ниже, что может указывать на существенные недостатки модели, лежащей в основе программы SRIM-2013.

В настоящей работе проведено моделирование распыления аморфных мишеней Si, Ti, Ni, V и Nb ионами Ar энергии 1 кэВ с использованием программ OKSANA и SRIM-2013 (в дальнейшем SRIM). Цель работы состояла в получении энергетических спектров и значений средней энергии распыленных частиц и сравнении их с имеющимися расчетами с помощью программ TRIM, SP и ACAT [8], а также с экспериментальными данными.

МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Вариант программы OKSANA, использованный в настоящей работе, подробно описан ранее [9]. Программа предназначена для расчета распыления кристаллических и аморфных мишеней при ионной бомбардировке. Расчет траекторий частиц проводят в приближении парных столкновений с учетом слабых взаимодействий при одновременных соударениях. Аморфную мишень моделируют вращением кристаллического блока атомов; процедуру вращения повторяют для каждого нового столкновения. Классическое рассеяние в столкновениях частиц описывают с помощью экранированного кулоновского потенциала. В настоящей работе в качестве потенциала выбран потенциал Зиглера–Бирсака–Литтмарка (Ziegler–Biersack–Littmark, ZBL) [10], использованный в SRIM. Неупругие энергетические потери заданы комбинацией локальных [11] и нелокальных [12] потерь. Атом считали распыленным, если он преодолевал плоский поверхностный потенциальный барьер высотой $E_s = U_0$, где U_0 — энергия сублимации материала мишени. Как и в программе TRIM.SP [2, 8], объемная энергия связи E_b положена равной нулю. Варьирование этой величины слабо влияет на результаты моделирования [2, 4, 6]. Программа OKSANA позволяет задавать рельеф поверхности мишени, однако для корректного сравнения с расчетами, выполненными с помощью программ SRIM, TRIM.SP и ACAT, влияние рельефа не учитывали, как не учитывали и дозовые эффекты.

Как отмечено выше, SRIM [3] относится к классу программ, реализующих расчеты по схеме парных столкновений. Подробное сравнение программ OKSANA и SRIM проведено в [5]. Одной из особенностей SRIM является то, что первое

столкновение падающего иона с атомом твердого тела происходит на глубине $\lambda \cos \alpha$ от поверхности, где $\lambda = 1/N^{1/3}$ — расстояние, которое проходит частица между столкновениями; N — атомная плотность мишени; α — угол падения ионов, отсчитываемый от нормали к поверхности мишени. Это искажает картину столкновений, особенно при скользящей бомбардировке [13]. В программе OKSANA реализована модель, в которой положение первого партнера по столкновению не является фиксированным, а задано с помощью случайных чисел. В качестве E_s в программе SRIM по умолчанию взята энергия сублимации U_0 . В настоящей работе, кроме $E_s = U_0$, в ряде случаев использованы значения E_s , предложенные в [6]. Эти случаи специально оговорены.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 показаны энергетические распределения атомов при распылении аморфных мишеней из Si и Ti ионами Ar с энергией 1 кэВ. Спектры рассчитаны с помощью программ OKSANA и SRIM при $E_s = U_0$, где $U_0 = 4.7$ и 4.89 эВ для Si и Ti соответственно [8]. Для сравнения показаны также энергетические спектры, которые предсказывает теория линейных каскадов Зигмунда–Томпсона [14, 15]:

$$N(E) \sim E/(E + E_s)^{3-2m}, \quad (1)$$

где m зависит от межатомного потенциала ($0 < m < 1$) и приближается к 0 при низкой энергии взаимодействия. При выводе (1) предполагали, что каскады столкновений являются изотропными, а поверхностный потенциальный барьер плоским. Кривые, представленные на рис. 1, рассчитаны при $m = 0$ и значениях E_s , указанных выше.

Из рис. 1 видно, что для мишеней из Si и Ti спектры, рассчитанные с помощью программы OKSANA, почти одинаковы. Этого следовало ожидать, поскольку указанные материалы обладают близкими свойствами (энергия сублимации, атомная плотность). Этим же объясняется сходство аналитически рассчитанных спектров (линии 3). В отличие от этих результатов, в спектрах, рассчитанных с помощью программы SRIM (кривые 2), имеет место резкое увеличение вклада быстрых распыленных атомов при переходе от Si к Ti. В целом данные рис. 1 свидетельствуют о сильном различии между спектрами, полученными разными способами. Такой же вывод можно сделать из рис. 2 в отношении средней энергии распыленных атомов $\langle E \rangle$, являющейся одной из важных интегральных характеристик

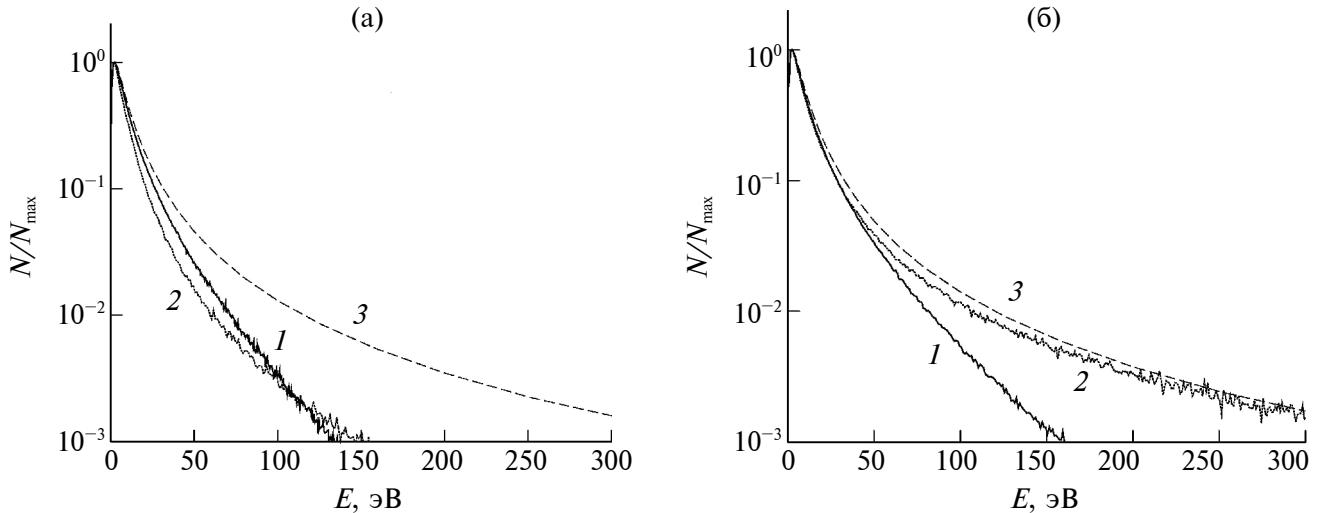


Рис. 1. Энергетические спектры распыленных атомов при бомбардировке мишеней из Si (а) и Ti (б) ионами Ar с энергией 1 кэВ при нормальном падении, рассчитанные с помощью OKSANA (1); SRIM при $E_s = U_0$ (2); по формуле (1) при $E_s = U_0$ и $m = 0$ (3).

распыления. Значения $\langle E \rangle$ даны в зависимости от полярного угла вылета частиц J , отсчитываемого от нормали к поверхности.

Горизонтальными линиями на рис. 2 отмечены значения средней энергии, вычисленные по формуле [16]:

$$\langle E \rangle \approx 2E_s \ln(E_{\max}/E_s) - 3E_s, \quad (2)$$

где $E_{\max} = 4M_1 M_2 (M_1 + M_2)^{-2} E_0$ — энергия, переданная в центральном лобовом столкновении падающего иона массой M_1 с атомом мишени

массой M_2 ; E_0 — начальная энергия иона. Формула (2) получена интегрированием (1) при $m = 0$ в пределах от 0 до максимально возможной переданной энергии E_{\max} и не учитывает зависимость $\langle E \rangle$ от направления вылета частиц.

При использовании в программе SRIM модифицированных значений E_s [6] (3.8 и 5.2 эВ для Si и Ti соответственно) форма угловых зависимостей средней энергии (рис. 2) остается прежней. Численные значения $\langle E \rangle$ уменьшаются на 13–14% в случае Si (рис. 2а) и увеличиваются на 5–6% в случае Ti (рис. 2б). Примерно в такой же про-

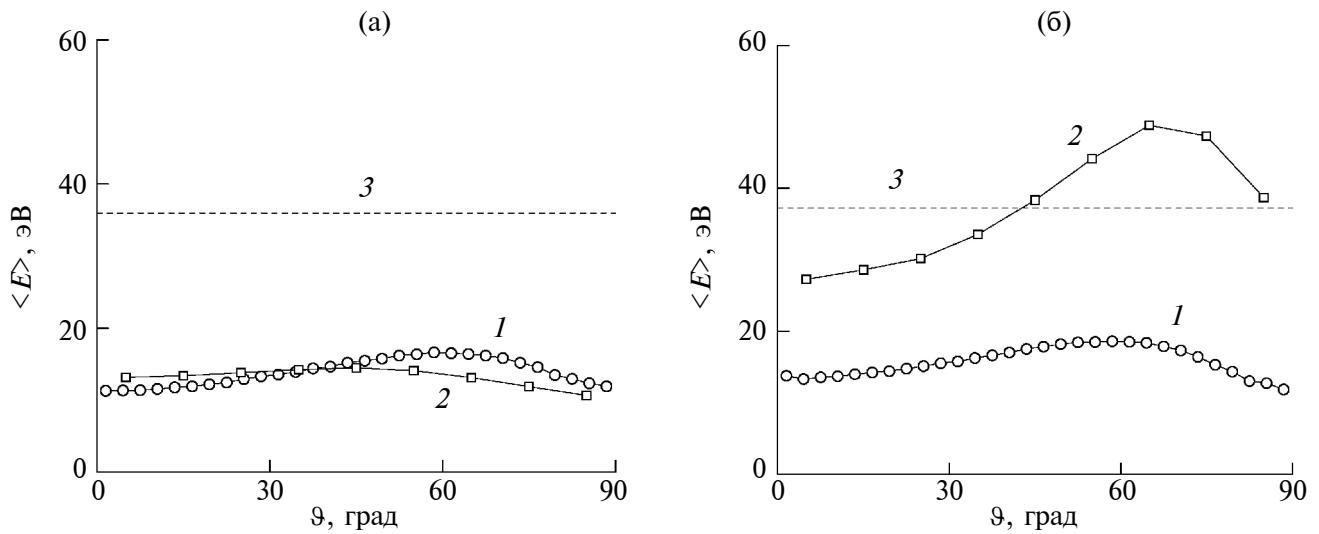


Рис. 2. Средняя энергия распыленных атомов $\langle E \rangle$ как функция угла эмиссии ϑ для мишеней из Si (а) и Ti (б), бомбардируемых ионами Ar с энергией 1 кэВ при нормальном падении, рассчитанные с помощью OKSANA (1); SRIM при $E_s = U_0$ (2); по формуле (2) при $E_s = U_0$ (3).

порции меняются и значения E_s , рассчитанные по формуле (2).

Принимая во внимание противоречивость результатов, представленных на рис. 1 и 2, сравним результаты моделирования, выполненных с помощью программ OKSANA и SRIM, с данными других авторов. Такое сравнение проведено на рис. 3 для мишеней из Ni и V, бомбардируемых ионами Ar с энергией 1 кэВ при нормальном падении. Рис. 3а относится ко всем распыленным атомам ($\vartheta = 0^\circ\text{--}90^\circ$), рис. 3б — к атомам, распыленным вблизи нормали к поверхности ($\vartheta = 0^\circ\text{--}10^\circ$). Рисунки дополнены результатами расчета с помощью программы TRIM.SP [17] и экспериментальными данными [18]. Последние получены для нейтральных частиц, эмитированных перпендикулярно поверхности (диапазон углов ϑ в работе [18] не указан).

Из рис. 3 следует, что для быстрых распыленных атомов результаты работ [17, 18] согласуются с расчетами с помощью программы OKSANA и не подтверждают наличие высокоэнергетической части спектра ни для Ni (рис. 3а), ни для V (рис. 3б). Некоторое отличие результатов моделирования с помощью программ OKSANA и TRIM.SP (рис. 3а) можно объяснить тем, что траектории частиц в этих программах моделируются по-разному [9], а также разницей в использованных значениях межатомных потенциалов (расчеты [17] проведены с потенциалом Kr—C). Расчеты для мишени из ванадия (рис. 3б) выполнены при значении $E_s = U_0 = 5.33$ эВ. Использование в программе SRIM модифицированного значения

$E_s = 5.5$ эВ [6] приводит к увеличению вклада быстрых распыленных атомов, что лишь усиливает расхождение с экспериментом.

Рис. 3а и 3б относятся к случаю, когда падающие ионы легче атомов мишени ($M_1 < M_2$). С учетом этого можно заключить, что в программе SRIM переоценен вклад распыления обратно рассеянными ионами. Об этом свидетельствует также большая разница между значениями $\langle E \rangle$, рассчитанными с помощью программы SRIM для случаев бомбардировки ионами Ar кремния ($M_1 > M_2$) и титана ($M_1 < M_2$) (рис. 2). Назвать более точную причину расхождений затруднительно, поскольку программа SRIM недостаточно хорошо документирована, что отмечено в литературе [19]. Не исключено, что какую-то роль могла сыграть ошибка в вычислительном алгоритме программы SRIM, которую обсуждали в работе [5]. Что касается формул (1) и (2), они получены без учета деградации каскада при бомбардировке частицами с низкой энергией, что приводит к сильному завышению вклада быстрых эмитированных частиц [20, 21].

Рис. 4 аналогичен рис. 2, но описывает распыление мишени из Nb ионами Ar с энергией 1 кэВ. Выбор Nb объясняется тем, что для этого материала имеются результаты моделирования по программе ACAT [18], что дает дополнительную возможность тестирования программ. Из рис. 4 следует, что поведение кривых 1—3 близко к тому, что наблюдается на рис. 2б. Это связано с тем, что оба рисунка относятся к случаю распыления при $M_1 < M_2$. Из рис. 4 также видно, что расчеты

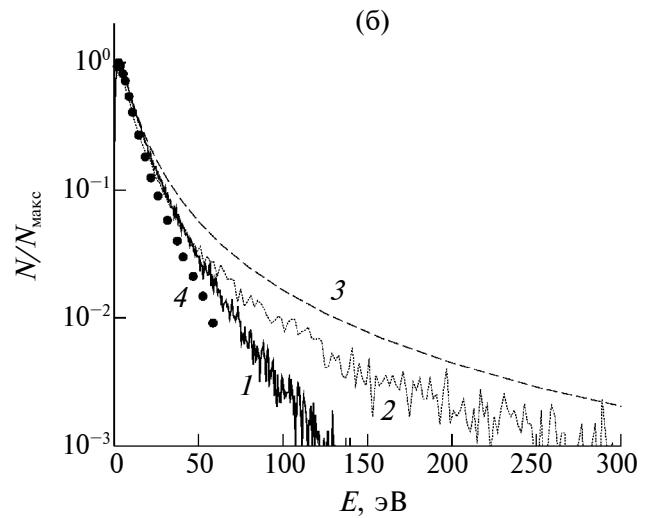
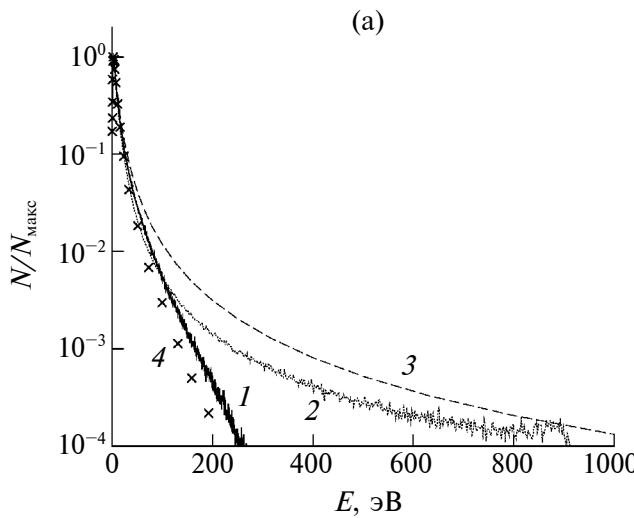


Рис. 3. Энергетические спектры распыленных атомов при бомбардировке мишеней из Ni (а) и V (б) ионами Ar с энергией 1 кэВ при нормальном падении, рассчитанные с помощью OKSANA (1); SRIM при $E_s = U_0$ (2); по формуле (1) при $E_s = U_0$ и $m = 0$ (3). Спектры 4 — расчет по программе TRIM.SP (а) и эксперимент [18] (б).

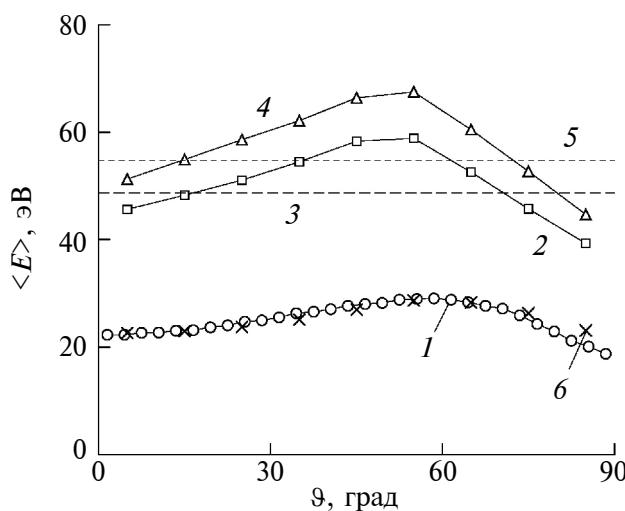


Рис. 4. Средняя энергия распыленных атомов $\langle E \rangle$ как функция угла эмиссии φ для мишени из Nb, бомбардируемой ионами Ar с энергией 1 кэВ при нормальном падении, рассчитанные с помощью OKSANA (1); SRIM при $E_s = U_0$ (2); по формуле (2) при $E_s = U_0$ (3); с помощью OKSANA (4) и SRIM (5) при E_s , предложенных в работе [6]; с помощью программы ACAT [18] (6).

с помощью программ ACAT и OKSANA хорошо согласуются друг с другом и не подтверждают результаты моделирования с использованием SRIM.

Расчеты с помощью программы SRIM, представленные на рис. 4, выполнены при энергии связи $E_s = U_0 = 7.59$ эВ и значении $E_s = 9$ эВ, найденном в [6] путем достижения согласия между расчетными коэффициентами распыления и экспериментальными. Как и следовало ожидать, энергия связи $E_s = 9$ эВ дает еще более завышенные значения $\langle E \rangle$, чем $E_s = 7.59$ эВ (линии 4 и 5). Это, в частности, означает, что в расчетах с помощью SRIM указанная подгонка приводит к искажению результатов расчета $\langle E \rangle$. Заметим, что для всех рассмотренных выше комбинаций ион–мишень коэффициенты распыления Y , рассчитанные с помощью программы OKSANA, хорошо согласуются с экспериментальными данными. Например, в случае, представленном на рис. 4, программа OKSANA дает коэффициент распыления $Y = 0.99$ ат./ион, что близко к экспериментальному значению $Y \sim 1$ ат./ион [2].

Сходство значений $\langle E \rangle$, которые генерирует программа SRIM, и тех, что следуют из формулы (2) (рис. 2б и 4), было истолковано в [7] как признак того, что при $M_1 < M_2$ результаты SRIM являются более достоверными, чем при $M_1 > M_2$. Расчеты, выполненные в настоящей работе, показывают, что указанное сходство является обманчивым и происходит из-за того, что в рассмотренной

области энергий программа SRIM и формула (2) примерно в одинаковой степени переоценивают среднюю энергию распыленных атомов. Более подробно этот вопрос обсуждался недавно в работе [22]. Заметим, что для ионов, масса которых значительно превышает массу атомов мишени, SRIM также работает неудовлетворительно и сильно искажает как коэффициент распыления, так и угловое распределение эмитированных частиц [4–7].

ВЫВОДЫ

Методом компьютерного моделирования (программы OKSANA и SRIM) проведен расчет распыления ряда аморфных материалов ионами Ar с энергией 1 кэВ при нормальном падении на поверхность мишени. Показано, что для мишней, масса атомов которых превышает массу бомбардирующих частиц, в результате расчетов по уравнению (1) оказывается переоцененным вклад быстрых атомов, а по уравнению (2) — завышена средняя энергия распыленных частиц, проинтегрированная по углам вылета. Это же относится к расчетам с помощью программы SRIM, в том числе в отношении зависимости средней энергии от полярного угла эмиссии. Использование модифицированных значений поверхностной энергии связи, предложенных в работе [6], не устраняет указанный недостаток программы SRIM, а лишь усиливает его проявление.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Автор данной работы заявляет об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Распыление под действием бомбардировки частицами. III. Характеристики распыленных частиц, применения в технике. / Ред. Бериш Р., Виттмак К. М.: Мир. 1998. 551 с.
2. Sputtering by Particle Bombardment. Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies. / Ed. Behrisch R., Eckstein W. Springer, Berlin, 2007. 459 р.
3. Ziegler J.F., Ziegler M.D., Biersack J.P. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2010. V. 268. P. 1818. <https://www.doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.091>.
4. Hofsäss H., Zhang K., Mutzke A. // Appl. Surf. Sci. 2014. V. 310. P. 134. <https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2014.03.152>
5. Shulga V.I. // Appl. Surf. Sci. 2018. V. 439. P. 456. <https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2018.01.039>
6. Mahne N., Čekada M., Panjan M. // Coatings. 2022. V. 12. P. 1541. <https://www.doi.org/10.3390/coatings12101541>

7. Mahne N., Čekada M., Panjan M. // Coatings. 2023. V. 13. P. 1448.
<https://www.doi.org/10.3390/coatings13081448>
8. Экштайн В. Компьютерное моделирование взаимодействия частиц с поверхностью твердого тела. М.: Мир. 1995. 319 с.
9. Shulga V.I., Eckstein W. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 1998. V. 145. P. 492.
[https://www.doi.org/10.1016/S0168-583X\(98\)00626-0](https://www.doi.org/10.1016/S0168-583X(98)00626-0)
10. Ziegler J.F., Biersack J.P., Littmark U. The Stopping and Range of Ions in Solids, Vol. I. Pergamon, New York, 1985.
11. Oen O.S., Robinson M.T. // Nucl. Instrum. Methods. 1976. V. 132. P. 647.
[https://www.doi.org/10.1016/0029-554X\(76\)90806-5](https://www.doi.org/10.1016/0029-554X(76)90806-5)
12. Lindhard J., Scharff M. // Phys. Rev. 1961. V. 124. P. 128.
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRev.194.128>
13. Шульга В.И. // ЖТФ. 2023. Т. 93. С. 1401.
<https://www.doi.org/10.21883/JTF.2023.10.56276.147-23>
14. Sigmund P. Sputtering by ion bombardment: theoretical concepts. // Sputtering by Particle Bombardment I. Physical Sputtering of Single-Element Solids. / Ed. Behrisch R. Springer, Berlin. 1981. P. 9.
15. Thompson M.W. // Philos. Mag. 1968. V. 18. P. 377.
<https://www.doi.org/10.1080/14786436808227358>
16. Held J., Hecimovic A., von Keudell A., Schulz-von der Gathen V. // Plasma Sources Sci. Technol. 2018. V. 27. P. 105012.
<https://www.doi.org/10.1088/1361-6595/aae236>
17. Eckstein W. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 1986. V. 18. P. 344.
[https://www.doi.org/10.1016/S0168-583X\(86\)80056-8](https://www.doi.org/10.1016/S0168-583X(86)80056-8)
18. Dembowksi J., Oechsner H., Yamamura Y., Urbassek M. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 1986. V. 18. P. 464.
[https://www.doi.org/10.1016/S0168-583X\(86\)80072-6](https://www.doi.org/10.1016/S0168-583X(86)80072-6)
19. Lindsey S., Hobler G. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2013. V. 303. P. 142.
<https://www.doi.org/10.1016/j.nimb.2012.12.087>
20. Brizzolara R.A., Cooper C.B., Olson T.K. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 1988. V. 35. P. 36.
[https://www.doi.org/10.1016/0168-583X\(88\)90095-x](https://www.doi.org/10.1016/0168-583X(88)90095-x)
21. Mousel T., Eckstein W., Gnaser H. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 1999. V. 152. P. 36.
[https://www.doi.org/10.1016/s0168-583X\(98\)00976-8](https://www.doi.org/10.1016/s0168-583X(98)00976-8)
22. Shulga V.I. // Vacuum. 2024. V. 230. P. 113644.
<https://www.doi.org/10.1016/j.vacuum.2024.113644>

Energy Spectra of Atoms Sputtered by Low-Energy Ions: Computer Simulation

V. I. Shulga*

¹D.V. Skobeltsin Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia

*e-mail: vish008@yandex.ru

The energy spectra and average energies of sputtered atoms were calculated for a number of amorphous targets (Si, Ti, Ni, V and Nb) bombarded with 1 keV Ar ions. The calculations were carried out using the computer simulation programs OKSANA and SRIM-2013. It is shown that for targets whose atoms are heavier than incident ions, SRIM can greatly overestimate the contribution of fast sputtered atoms. This is especially noticeable in calculations with the surface binding energy found by adjusting the calculated sputtering yields to the experimental ones. The simulation results are compared with analytical estimates of the average energy of ejected atoms based on the linear theory of sputtering. It is shown that in all the cases considered, these estimates are also greatly overestimated, since they do not take into account the degradation of collision cascades at low bombarding energies. A good agreement of the OKSANA, TRIM, SP and ACAT simulations is noted.

Keywords: ion bombardment, sputtering, energy spectra and average energies of sputtered atoms, computer simulation.