

Объединенный институт ядерных исследований

На правах рукописи

Рымжанов Руслан Аликович

**Моделирование процессов возбуждения и релаксации
электронной подсистемы монокристаллов оксидов, облучаемых
быстрыми тяжелыми ионами**

01.04.07 - Физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических
наук

Научный руководитель
д. ф.-м. н., Скуратов Владимир Алексеевич

Дубна 2016

Оглавление

Оглавление	2
Введение	4
Актуальность темы исследования.....	4
Цели и задачи работы.....	7
Результаты работы, выносимые на защиту.....	8
Научная новизна работы	8
Достоверность	9
Теоретическая и практическая значимость работы	10
Методология и методы исследования	10
Апробация работы	11
Личный вклад автора.....	12
Структура и объем работы.....	13
Публикации автора	13
Глава 1. Современные модели, описывающие взаимодействие быстрых тяжелых ионов с веществом	14
1.1. Модель термической вспышки.....	16
1.2. Модель кулоновского взрыва.....	19
1.3. Модели ударных и акустических волн.....	20
1.4. Экситонная модель	21
1.5. Атермическое плавление	22
1.6. Численные мультимасштабные модели	23
Заключение к Главе 1.	25
Глава 2. Монте-Карло моделирование электронной кинетики в треке БТИ в Al₂O₃.....	27
2.1. Формализм комплексной диэлектрической функции.....	27
2.1.1. Построение функции энергетических потерь-Al ₂ O ₃	31
2.1.2. Зависимость ФЭП от переданного импульса	35
2.1.3. Проверка ФЭП.....	36
2.2. Монте-Карло модель возмущения электронной подсистемы материала в треке БТИ.....	38
2.2.1. БТИ и мишень.....	39
2.2.2. Ионизация атомов налетающей частицей	42
2.2.3. Разлет электронов и распады глубоких оболочек.	43
2.2.4. Перераспределение валентных дырок	45
2.3. Результаты Монте-Карло моделирования	48
2.3.1. Кинетика свободных электронов.....	49

2.3.2. Кинетика дырок валентной зоны.....	52
2.3.3. Передача избыточной энергии в ионную подсистему	56
Заключение к Главе 2.	59
Глава 3. Моделирование релаксации ионной подсистемы в треке	
БТИ методами молекулярной динамики	61
3.1. Молекулярная динамика в треке БТИ	61
3.1.1. Структура оксида алюминия.....	62
3.1.2. Межатомный потенциал Al_2O_3	64
3.1.3. Моделирование воздействия БТИ	67
3.2. Структурные изменения, создаваемые БТИ в Al_2O_3	69
3.2.1. Ион Хе 167 МэВ	70
3.2.2. Ионы Вi, Кr, Fe	75
3.2.3. Кинетика атомной подсистемы	77
3.2.4. Порог образования трека.....	81
3.3. Интерференция трековых областей	84
Заключение к Главе 3.	89
Заключение.....	92
Список литературы	94

Введение

Настоящая работа посвящена разработке модели, описывающей процессы возбуждения и релаксации электронной подсистемы диэлектриков, облучаемых быстрыми тяжелыми ионами, (БТИ, $E > 1$ МэВ/нуклон, масса больше массы атома гелия), моделирующими воздействие на эти материалы тормозящихся в режиме электронных потерь энергии осколков деления и космического излучения.

Актуальность темы исследования

Большую часть своей энергии ($>95\%$, $(dE/dx) \sim 10-50$ кэВ/нм, где dE/dx - линейные потери энергии иона (ЛПЭ)) БТИ теряют на возбуждение электронной подсистемы кристалла в ближайшей (~ 1 нм) окрестности своей траектории – ионизацию материала, приводящую к генерации быстрых дельта-электронов, дырок в валентной зоне и на глубоких атомных оболочках, возбуждение плазмонов.

Передача даже малой части избыточной энергии релаксирующей электронной подсистемы в решетку материала может приводить к её значительному возбуждению в наноразмерной окрестности траектории иона (трек БТИ). Последующая релаксация возбуждения ионной подсистемы может вызвать структурно-фазовые изменения в области трека [1, 2], которые могут существенно влиять на физические, химические и механические свойства облучаемых материалов, в том числе и на их радиационную стойкость.

Ускоренные пучки тяжёлых ионов, тормозящихся в режиме электронных потерь энергии, служат инструментом моделирования и исследования эффектов воздействия на материалы осколков деления и высокоэнергетических частиц в составе космического излучения [2], т.е. для тестирования и моделирования радиационной стойкости материалов оболочек топливных элементов ядерного реактора, контейнеров для отработанного ядерного топлива, материалов и электронных компонент космических аппаратов.

Представленный к исследованию материал - оксид алюминия (Al_2O_3) рассматривается в качестве перспективного материала инертных матриц для композитного топлива 4-го поколения ядерных реакторов [3] и материала нанoeлектроники [4, 5]. В процессе эксплуатации такие матрицы контактируют с ядерным топливом и их поверхностный слой (~15 мкм) постоянно подвергается облучению осколками деления ($M \sim 100$ а.е.м, $E \sim 100$ МэВ). Радиационные повреждения инертных матриц могут ухудшать механические свойства и радиационную стойкость интерфейсного слоя материал-топливо, что может сказаться на безопасности реактора. Эта проблема требует всестороннего исследования воздействия БТИ на материал с применением как экспериментальных, так и теоретических методов.

С другой стороны, облучение быстрыми тяжёлыми ионами может использоваться в качестве эффективного средства наноразмерной модификации материалов. Методики, основанные на использовании БТИ-облучения, уже эффективно применяются в технологиях получения трековых мембран [6], проводящих каналов [7], наноструктурирования поверхности [8], модификации наноструктур [9], например, содержащихся в облучаемом материале нанокластерах [10, 11] и т.д. Кроме этих приложений, пучки быстрых тяжёлых ионов используются при лечении онкологических заболеваний (метод ионно-лучевой терапии) [12] и для модификации генетического материала пучками БТИ [13].

При исследовании свойств материалов при облучении тяжёлыми ионами высоких энергий обычно выделяют два характерных режима: изолированных и перекрывающихся треков. Изолированные треки формируются при малых дозах ($\Phi < 10^{10} - 10^{11} \text{ см}^{-2}$), когда реализуется режим облучения материалов, при котором области треков не перекрываются. Такой режим очень важен для изучения механизмов наномодификации материалов, а так же воздействия космических лучей на электронику. Поэтому он исследовался достаточно подробно как экспериментально [14–16], так и теоретически (например, работы [17, 18], а также

[19, 20]). Режимы облучения с большими флюенсами ($\phi > 10^{12} \text{ см}^{-2}$) обеспечивают перекрытие трековых областей от разных ионов и их взаимодействие между собой. Этот режим имеет принципиальное значение для исследования изменения свойств материалов ядерной энергетики, контактирующих с ядерным топливом, так как они могут облучаться осколками деления до очень высоких флюенсов ($\sim 10^{16} \text{ см}^{-2}$).

Задача по исследованию кинетики треков БТИ носит так же и фундаментальный характер. Прохождение тяжелого иона через вещество приводит к сильному возбуждению материала в крайне малых временных и пространственных масштабах ($\sim 10 \text{ нм}$, $1 \text{ фс} - 1 \text{ пс}$). В этой области достигается настолько высокий уровень возбуждения, что при применении моделей, использующих макроскопические подходы для описания кинетики процессов в треке, возникают принципиальные проблемы.

В качестве иллюстрации можно привести две проблемы модели возбуждения решётки, основанной на разнице температур электронной и ионной подсистемы в треке БТИ (модель двухтемпературной термической вспышки [21, 22]). Эта модель требует, прежде всего, выполнения условий локального равновесия, обосновывающих введения параметра температуры. Однако в [23] показано, что термализация возбуждённой ионной подсистемы в треке происходит за время большее времени остывания электронной подсистемы за счёт пространственного распространения электронного возмущения. Кроме этого, пространственное распространение теплового возмущения в ионной подсистеме в нанометрической окрестности траектории БТИ не может быть описано в рамках обычного параболического уравнения теплопроводности т.к. малые времена кинетики трека требуют учёта конечной скорости (скорости звука) распространения фронта этого возбуждения.

Возникают проблемы и с применением привычного для физики твёрдого тела электрон-фононного механизма [24, 25] при описании кинетики обмена энергией и импульсом между возбуждённой электронной подсистемой и решёткой,

поскольку релаксация возбуждённой электронной подсистемы в наноразмерном треке БТИ за счёт пространственной диссипации энергии происходит за времена меньшие времён атомных осцилляций, т.е. меньшие времён образования фононов.

Поэтому, адекватным методом описания кинетики возникновения треков БТИ является построение экспериментально аргументированных моделей, которые основываются на наиболее общих фундаментальных принципах, используют современные численные методы, обеспечивающие количественную реализацию используемых фундаментальных подходов. Подобные модели позволят в едином подходе моделировать кинетику возбуждения материала (электронной и ионной подсистемы) в треке БТИ, последующую релаксацию этого возбуждения и кинетику структурных изменений, стимулированных этой релаксацией.

Цели и задачи работы

Цели и задачи настоящей работы формулируются следующим образом:

1. Построение микроскопической количественной Монте-Карло (МК) модели возбуждения электронной и ионной подсистем диэлектриков в наноразмерных треках БТИ.
2. Применение разработанной модели для определения пространственно-временных параметров возбуждения электронной и ионной подсистем кристаллов оксида алюминия, облучаемых различными ионами.
3. Моделирование кинетики структурно-фазовых изменений в Al_2O_3 оксиде алюминия, стимулированных релаксацией возбуждения решетки в треке БТИ. Сопоставление результатов моделирования с результатами исследований облученных образцов методами просвечивающей электронной микроскопии.

Результаты работы, выносимые на защиту

1. Модель, описывающая возбуждение и релаксацию электронной подсистемы в треке БТИ и учитывающая коллективную реакцию этих подсистем на вносимое возбуждение в рамках формализма динамического структурного фактора и комплексной диэлектрической функции (ДСФ - КДФ).
2. Результаты расчетов пространственно-временных параметров, характеризующих возбуждение электронной и ионной подсистем Al_2O_3 в треке БТИ: радиальные и временные зависимости плотности электронов и валентных дырок и их энергии, а также плотности энергии в решетке материала.
3. Результаты моделирования методами молекулярной динамики кинетики структурных изменений в треке БТИ. Основные параметры, характеризующие поврежденную область: радиальные распределения смещений атомов, плотность вещества после релаксации трека, остаточные напряжения. Результаты моделирования эффектов, возникающих при перекрытии трековых областей.

Научная новизна работы

В ходе выполнения диссертационной работы были впервые рассмотрены и решены следующие задачи:

1. Разработана количественная, основанная на формализме КДФ-ДСФ Монте-Карло модель, описывающая кинетику возбуждения и релаксации электронной подсистемы материалов с учетом эффектов пространственно-временных корреляций в системе рассеивателей (электронов мишени).
2. Описана кинетика возбуждения электронной подсистемы диэлектриков в треке тяжелого иона и получены количественные пространственно-временные параметры, характеризующие это возбуждение.

3. При описании кинетики возбужденного материала в треке БТИ было учтено пространственное перераспределение валентных дырок, а также их взаимодействие с ионной и электронной подсистемами мишени.
4. Проведено моделирование изменение структуры оксида алюминия в треках высокоэнергетических тяжелых ионов. Впервые продемонстрирован эффект восстановления структуры дефектных областей при перекрытии треков БТИ в Al_2O_3 . На основе этого эффекта было объяснено насыщение плотности треков с увеличением дозы облучения, наблюдаемое на эксперименте.

Достоверность

Применимость разработанной модели для описания возбуждения электронной и ионной подсистем в треках высокоэнергетических тяжелых ионов обосновывается тем, что:

1. Модель основана на общих фундаментальных принципах, не включает в себя свободные подгоночные параметры, а также базируется на минимальном количестве упрощающих приближений.
2. В расчетах применяются современные численные алгоритмы (Монте-Карло, асимптотических траекторий), которые широко используются при моделировании радиационных эффектов в физике твердого тела.
3. Используемые сечения взаимодействия электронов с электронной подсистемой материала хорошо согласуются с сечениями других авторов, собранными в базе данных NIST [26]. Рассчитанные потери энергии ионов на электронное торможение хорошо согласуются с данными, полученными с помощью общедоступных программ SRIM [27] и CasP [28].
4. Для моделирования релаксации материала использовался широко применяемый инструмент молекулярной динамики (пакет LAMMPS [29]) с межатомный потенциалом [30], хорошо описывающим структуру, температуру плавления и упругие константы Al_2O_3 .

5. Полученные в результате моделирования параметры трековой области (размеры, плотность материала, относительная деформация решетки) находятся в хорошем согласии с экспериментальными данными [31].

Теоретическая и практическая значимость работы

1. Разработана модель, описывающая кинетику экстремального возбуждения электронной и ионной подсистем материалов. Модель учитывает коллективную реакцию этих подсистем на внешнее возмущение на ультракоротких пространственных и временных масштабах. Параметры возбужденного состояния электронной и ионной подсистем материала, получаемые в результате применения данной модели, могут быть использованы для построения новых моделей, описывающих наноразмерные структурно-фазовые превращения в треках БТИ.
2. Разработанная модель и полученные в диссертации результаты могут использоваться при решении задач, связанных с моделированием радиационных эффектов, вызываемых прохождением тормозящихся в режиме электронных потерь энергии осколков деления и космических лучей в диэлектрических материалах ядерной энергетики и космической отрасли, а также при разработке технологий наноразмерной модификации материалов пучками БТИ.

Методология и методы исследования

В диссертационной работе были использованы современные аналитические методы статистической и квантовой механики, радиационной физики, теории конденсированного состояния и теории дефектов, а также подходы, разработанные для решения задач ионизационной кинетики и взаимодействия лазерного излучения с веществом.

Общим моментом применения этих методов является их необходимая модификация, связанная с крайне малыми временными и пространственными

масштабами процессов, протекающих в треках БТИ. Подобная модификация физических методов носит пионерский характер и представляет значительный интерес для описания кинетики быстропротекающих (пикосекунды) процессов релаксации неравновесных состояний вещества в пространственно-ограниченной (нанометры) области.

В расчетах применяются современные численные алгоритмы (Монте-Карло, асимптотических траекторий), которые широко используются в радиационной физике твердого тела.

Апробация работы

Материалы, представленные в диссертации, были доложены на следующих конференциях:

1. 17-я Международная Конференция по Радиационным эффектам в диэлектриках (REI-17), (Хельсинки, Финляндия, 30 июня – 5 июля 2013 г.);
2. Международная конференция молодых ученых и специалистов ОМУС-2014, (Дубна, Россия, 24 - 28 февраля 2014 г.);
3. Конференция европейского общества по исследованию материалов (E-MRS Spring Meeting 2014), (Лилль, Франция, 26-30 мая 2014 г.);
4. Международная конференция по радиационные эффектам в диэлектриках и неметаллических материалах (REINM-2015), (Астана, Казахстан, 2 - 5 июня 2014 г.);
5. Конференция европейского общества по исследованию материалов (E-MRS Spring Meeting 2015), (Лилль, Франция, 11-15 мая 2015 г.);
6. Международная конференция по быстрым тяжелым ионам в материалах (SHIM-2015), (Дармштадт, Германия, 18-21 мая 2015 г.);
7. IV ежегодная конференция молодых ученых и специалистов «Алушта-2015», (Алушта, Россия, 6-13 июня 2015 г.);

8. 4-ый симпозиум сотрудничества ОИЯИ и Южно-Африканской республики (4th JINR-South Africa symposium), (Дубна, Россия, 21-25 сентября 2015 г.);
9. XI Международная конференция взаимодействие излучения с твердым телом (ВИТТ-2015), (Минск, Беларусь, 23-25 сентября 2015 г.)

Результаты диссертации также обсуждались на научных семинарах Сектора №8 и Центра прикладной физики Лаборатории ядерных реакций имени Г.Н. Флерова.

Личный вклад автора

1. Построена Монте-Карло модель, количественно описывающая кинетику возбуждения и релаксации электронной подсистемы материалов. На основании формализма КДФ-ДСФ модель учитывает пространственно-временные корреляции во взаимодействующей системе рассеивателей. Модель протестирована по результатам экспериментов по облучению различных материалов пучками БТИ.
2. С использованием этой модели описано возбуждение электронной и ионной подсистем оксида алюминия в треках БТИ и получены количественные параметры этого возбуждения.
3. Проведено моделирование кинетики структурных изменений Al_2O_3 в треках БТИ методами молекулярной динамики. Получены размеры треков, пространственные распределения остаточных напряжений и плотности материала в трековой области. Продемонстрирован эффект восстановления исходной структуры в существующих дефектных трековых областях в результате близкого пролёта БТИ.

Все результаты работы, представленные в главах 2 и 3, получены автором лично или при его непосредственном участии.

Структура и объем работы

Работа состоит из введения, трех глав, заключения и списка цитируемой литературы. Работа содержит 109 страниц, включает 33 рисунка, 2 таблицы. Список цитированной литературы содержит 163 наименования.

В первой главе работы приводится обзор современных моделей, описывающих возбуждение материалов при облучении БТИ. В конце главы на основании проведенного анализа формулируется постановка задачи работы.

Во второй главе приводится описание модели возбуждения электронной подсистемы материала. В третьей главе собраны результаты численного моделирования релаксации материала в треке БТИ методами молекулярной динамики, а также проводится их обсуждение и сравнение с экспериментом. В заключении формулируются основные результаты работы.

Публикации автора

Диссертационная работа включает в себя исследования, выполненные в период с 2012 по 2016 годы в Лаборатории ядерных реакций имени Г.Н.Флерова ОИЯИ. Результаты диссертации изложены в 12 публикациях относящихся к категории статей в научных журналах и докладов в сборниках материалов конференций, 11 из которых входят в список рецензируемых журналов, индексируемых в системах Web of Science и SCOPUS, и рекомендованных ВАК Минобрнауки РФ. Все опубликованные работы внесены в список литературы.

Глава 1. Современные модели, описывающие взаимодействие быстрых тяжелых ионов с веществом

В настоящей главе приведен обзор работ по аналитическим и численным моделям, описывающим процессы возбуждения электронной подсистемы материала, передачу энергии в решетку и релаксацию возбуждения ионной подсистемы при пролете БТИ.

Интерес к исследованию треков заряженных частиц в значительной степени стимулировался проблемами ядерной физики. В первую очередь подобное внимание было связано с вопросами детектирования заряженных частиц. Наблюдения следов α -частиц в одной из первых детектирующих систем - камере Вильсона [32] - способствовали разработке теоретических представлений о треке заряженной частицы в веществе (Г. Яффе, 1913 г. [33]). В данном подходе Яффе предполагал, что выбитые заряженной частицей электроны удаляются достаточно далеко от материнских атомов, что приводит к формированию цилиндрической ионной колонны. Диффузионно-рекомбинационные процессы ионов каждого знака в этой области описывались с помощью дифференциального диффузионного уравнения.

В 30-40х гг. прошлого века начинается интенсивное развитие радиационной химии и радиобиологии, включающие активное исследование радиационных превращений в воде и водных растворах биологически важных веществ. Для описания процессов в треках заряженных частиц в воде и водных растворах была разработана модель диффузионной кинетики (Ли [34, 35]). Согласно его работам, основанным на подходе Яффе, в треке частицы образуются не только отдельные ион-электронные пары, но и локальные области ионизации и возбуждения, содержащие несколько ионных пар.

Сэмюэль и Маги [36] в своей модели шпор несколько иначе рассматривали судьбу ионизованных состояний воды, предполагая что выбитый из атома электрон не может преодолеть кулоновское поле атома и притягивается к нему

обратно. Формируется группа ионизаций из одной и более ионных пар (водород и гидроксильная группа), которая получила название «шпора».

Кроме описанных выше моделей, были разработаны еще несколько теорий эволюции водных растворов и твердых тел в треках заряженных частиц, например [37, 38]. Однако большинство этих работ для моделирования отклика конденсированной среды использовали приближение плотного газа, не учитывая тем самым коллективных взаимодействий в электронной и ионной подсистемах среды.

С разработкой метода расчета сечений взаимодействия заряженной частицы в рамках формализма диэлектрической функции $\text{Im}\left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, \mathbf{q})}\right]$ (функции энергетических потерь) [39, 40] и появлением экспериментальных данных по функции $\text{Im}\left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, \mathbf{q})}\right]$ для различных материалов открылась возможность моделирования ионизации среды с учетом коллективной реакции конденсированной фазы. Такие расчеты, например, были проведены для воды в работах [41, 42] методами Монте-Карло.

Недостатком ранних подходов к рассмотрению треков заряженных частиц было использование приближений, пригодных для описания рассеяния частиц малой массы и низких зарядов (электроны, протоны, α -частицы). В середине 20 века возникает интерес к изучению треков осколков деления, которые представляют собой ионы высокой зарядности с большими значениями линейных потерь энергии (ЛПЭ ~ 10 -50 кэВ/нм, для электронов ЛПЭ ~ 10 -100 эВ/нм). Стало очевидным, что модели треков легких заряженных частиц малоприспособны для описания процессов при пролете БТИ, что и было показано, впоследствии, в работах [43, 44].

Фундаментальный интерес к процессам, происходящим в треках осколков деления (ОД) или быстрых тяжелых ионов, связан с особенностями кинетики возникновения и релаксации области сильно возбужденного материала в наноразмерной окрестности траектории иона. Эти процессы начинаются с

сильного возбуждения электронной подсистемы среды вблизи траектории иона. При этом, первоначально, атомная подсистема остаётся невозмущенной. Подобное состояние материала существует короткое время (~1-10 фс), после чего релаксация возбуждения электронного ансамбля приводит к передаче части энергии в решетку материала (~100 фс) и последующим структурным изменениям в ней (~ 50 пс).

Следует учитывать, что кинетика трека БТИ сильно зависит от реализующихся начальных параметров возбуждения, что приводит к резкой зависимости структурно-фазовых изменений от условий облучения. Характерными проявлениями этого эффекта являются: (а) пороговые явления по уровню электронных потерь энергии [1, 45], (б) зависимость структурных изменений от температуры облучения (например, щелочно-галогидные кристаллы) [45, 46], (в) зависимость повреждений в треке БТИ от давления [14], толщины мишени и т.д.

В настоящее время можно выделить несколько основных направлений в теоретических исследованиях возбуждения и релаксации материалов:

1. Модель двухтемпературной термической вспышки (thermal spike) [24, 25];
2. Модель кулоновского взрыва [47];
3. Модели ударных акустических волн [48].
4. Экситонная модель [49].
5. Атермическое плавление [50].
6. Мультимасштабные модели

1.1. Модель термической вспышки

При интерпретации экспериментальных данных по структурно-фазовым изменениям в диэлектриках при облучении БТИ наиболее часто используется модель термической вспышки (ТВ) [19, 25, 51–53]. Физическое и математическое описание этой модели было разработано Лифшицем, Кагановым и Танатаровым

[22], а также в работах Гинзбурга и Шабанского [54]. В общем виде модель ТВ можно сформулировать следующим образом:

1. Материал состоит из двух подсистем: электронной и ионной.
2. Пролет БТИ инициирует возбуждение электронной подсистемы, которое выражается в увеличении температуры электронного газа.
3. Обмен энергии между подсистемами происходит за счет взаимодействия электронов с коллективными колебаниями решетки (фононами) и описывается константой электрон-фононного взаимодействия.
4. Наблюдаемые структурно фазовые превращения являются следствием нагрева решетки выше температуры плавления и последующего остывания.
5. Распространение тепла в ионной и электронной подсистемах материала, а также обмен энергией между ними, описывается уравнением диффузии тепла с источником (предполагается цилиндрическая симметрия) [22, 52]:

$$\begin{aligned}
 C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right) - g(T_e - T_i) + A(r, t) \\
 C_i(T_i) \frac{\partial T_i}{\partial t} &= \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_i(T_i) \frac{\partial T_i}{\partial r} \right) + g(T_e - T_i)
 \end{aligned}
 \tag{1.1}$$

Здесь r – расстояние от центра трека, C_e , C_i - удельные теплоёмкости, T_e , T_i - температуры, K_e , K_i - удельные теплопроводности (индексы i и e относятся к ионной и электронной подсистемам материала соответственно), g - константа электрон-фононного взаимодействия, $A(r, t)$ - пространственно-временной источник, описывающий нагрев электронной подсистемы материала налетающим ионом.

Популярность модели термического пика, прежде всего, обусловлена ее простотой, возможностью получения аналитического решения и использованием отработанных температурных подходов при описании структурно-фазовых изменений в треке БТИ. Модель термической вспышки достаточно удобно

применять для расчетов радиусов треков как аналитически, так и численными методами, например методами молекулярной динамики [55], для определения порогов образования треков [52, 56] и для исследования других различных процессов в треках БТИ, природу которых можно описать с помощью температурного подхода [19, 57].

В настоящее время в связи с активным развитием высокопроизводительных вычислительных средств, появилась возможность задавать в модели ТВ более сложные зависимости физических величин используемых в уравнениях теплопроводности. Например, зависимость константы электрон-фононной связи и термодинамических параметров электронной и ионной подсистем от температуры среды [52].

Однако модель термической вспышки имеет ряд принципиальных недостатков, которые ставят под сомнение применимость ее основных концепций для описания возбуждения материала при облучении БТИ [1] и которые связаны, прежде всего, с крайне малыми временами (фемто- пикосекунды) процессов, происходящих в треке [58, 59].

Так, (а) время термализация ионной подсистемы в треке больше времени остывания электронной подсистемы за счёт пространственного распространения возмущения [23].

(б) Распространение теплового возмущения ионной подсистемы в нанометрической окрестности траектории БТИ не может быть описано в рамках обычного параболического уравнения теплопроводности (1.1), так как малые времена кинетики трека требуют учёта конечной скорости (скорости звука) распространения фронта этого возбуждения [23].

(в) Малые времена остывания электронной подсистемы в треке БТИ ($\sim 10^{-14} <$ времени атомных осцилляций и возникновения фононов [60]) также накладывают ограничения на использования электрон-фононного механизма [61–63] на начальных стадиях процессов передачи энергии и импульса из возбуждённой электронной подсистемы материала в ионную.

(г) Следует также отметить, что модель термической вспышки для описания кинетики такой сильнонеравновесной микроскопической системы как трек БТИ использует макроскопические термодинамические параметры (температура, удельная теплота, удельная теплоемкость), которые зачастую определяются в рамках макроскопических подходов [1].

Результатом разрешения этих принципиальных проблем является то, что основной параметр, описывающий взаимодействие между электронной и ионной подсистемами, - константа электрон-фононной связи, используется как основной подгоночный параметр модели ТВ [1].

1.2. Модель кулоновского взрыва

В работе [47] были сформулированы базовые концепции модели кулоновского взрыва. Заряженная частица проходя через вещество ионизует атомы мишени и формирует область из положительно заряженных ионов. Электростатическое отталкивание таких ионов может привести к их смещению из позиций равновесия и формированию дефектной области [2].

В качестве критериев реализации механизма кулоновского взрыва в треках заряженных частиц можно выделить следующие пункты [47]:

1. Энергия электростатического отталкивания ионизованных атомов должна быть больше их энергии связи в узлах кристаллической решетки.
2. Для формирования протяженного непрерывного трека, средний заряд атома в единицах элементарного заряда должен быть больше 1.
3. Время нейтрализации заряженной области должно быть больше характерных времен атомных осцилляций ($\sim 10^{-13}$ с). Это условие более или менее выполняется для полупроводников и диэлектриков [64], а так же свидетельствует о том что треки не должны наблюдаться в металлах, что хорошо согласуется с экспериментом [2].
4. Подвижность дырок в материале не должна быть высокой, в противном случае, дырки могут диффундировать наравне с электронами, создавая,

так называемую, амбиполярную диффузию, вынося энергию за пределы трека и нейтрализуя заряженную область. Согласно этому критерию треки не должны наблюдаться в хороших полупроводниках.

Модель кулоновского взрыва достоверно описывает наблюдаемые экспериментально закономерности для восприимчивости веществ к формированию треков БТИ, в частности, объясняет отсутствие треков в металлах и полупроводниках с высокой подвижностью дырок.

Однако в работе [65] было показано, что центральная область трека на временах больших 10^{-14} с представляет собой квазинейтральный плазменный шнур со средним расстоянием между зарядами меньшим радиуса Дебая. Эта квазинейтральность может быть нарушена, если возбужденные электроны удаляются из области трека. Такое может происходить только на границах облучаемой мишени, в связи с чем, в настоящее время считается, что модель кулоновского взрыва может применяться только при описании процессов происходящих на поверхности материала при его облучении быстрыми тяжелыми ионами [2, 66].

1.3. Модели ударных и акустических волн

Основу этой группы моделей составляет предположение о возникновении ударной волны [48, 67] вблизи траектории БТИ вследствие резкого увеличения кинетической энергии атомов. Если скорость атомов, достигаемая при этом, превышает скорость звука в материале, то формируется ударная волна [2]. В качестве механизмов сообщения атомам избыточной энергии обычно используются различные модели, в том числе и описанные в двух предыдущих разделах. Поэтому модель ударных волн стоит рассматривать не как отдельный подход, описывающий возбуждение и релаксацию материала в треке БТИ, а лишь как альтернативный метод характеризующий механизмы релаксации избыточной энергии в ионной подсистеме материала.

В качестве одной из наиболее распространенных причин образования ударной волны рассматривается быстрый нагрев трековой области, порождающий резкий скачок давления [48]. Недостатком такого подхода является большое количество макроскопических приближений. Например, для описания потока тепла используется закон Фурье, который может применяться в случае, если размеры неравновесной области превышают длину свободного пробега частиц среды, а характерные времена – время столкновения между ними. Эти условия могут не выполняться в условиях малых размеров (~нм) трека БТИ и субпикосекундной кинетики процессов протекающих в нем.

Еще одним возможным механизмом возникновения ударной волны может выступать кулоновское расталкивание положительно заряженных ионов, генерируемых в треке БТИ [67, 68]. Однако как уже обсуждалось в разделе 1.2. сам процесс кулоновского расталкивания атомов в треке тяжелого иона маловероятен, вследствие квазинейтральности возбужденной области.

1.4. Экситонная модель

Помимо описанных в предыдущих разделах моделей формирования треков тяжелых ионов высоких энергий сообщество использует и некоторые другие, менее популярные и менее универсальные подходы, учитывающие определенную специфику рассматриваемой системы. В качестве такого метода можно привести экситонную модель, которая была сформулирована в работах [49, 69] и является удобной для описания структурно-фазовых изменений в треках БТИ в материалах с широкой запрещенной зоной.

Возбужденные электроны и дырки, поляризуя окружающую среду, могут формировать связанное состояние, которое называется поляроном. В случае, когда полярон локализуется вблизи неоднородностей решетки материала, он называется самозахваченным экситоном (*self-trapped exciton*). Такие экситонные состояния затем могут распадаться, передавая энергию в решетку материала, например, за счет образования фононов [70].

В щелочно-галлоидных кристаллах и широкозонных диэлектриках самозахват экситонов был обнаружен при облучении быстрыми тяжелыми ионами [49, 70]. В работе [49] авторы сделали заключение, что этот эффект может оказывать значительное влияние на величину порога формирования трека. Согласно этому исследованию, порог образования треков значительно ниже в материалах, в которых наблюдается образование самозахваченных экситонных состояний. Такая закономерность объясняется тем, что при формировании экситонов избыточная энергия, вносимая БТИ, локализуется в малой области вокруг траектории иона, в то время как в полупроводниках и металлах эта энергия выносится за пределы трека быстрыми электронами и делокализованными экситонами.

1.5. Нетермическое плавление

Одним из наиболее новых и перспективных направлений является описание структурно фазовых превращений в треках тяжелых ионов с помощью модели нетермического плавления, которое становится возможным вследствие изменения межатомного потенциала в треке БТИ [50, 71], стимулированного сильным возбуждением электронной подсистемы.

Для полноценного описания таких процессов модификации сил межатомного взаимодействия необходимо применение методов *ab initio* или методов из первых принципов. Так, в работе [72] для описания пролета легких заряженных ионов (протоны и α -частицы), тормозящихся в режиме электронных потерь энергии, применяется метод *ab initio*, основанный на время-зависящей теории функционала плотности. Показано, что подобные методы могут с успехом применяться для моделирования взаимодействия быстрых ионов с веществом как в режиме каналирования, так в режиме облучения с произвольными углами падения частиц. В качестве неоспоримых преимуществ методов *ab initio* можно назвать минимальное количество изначальных приближений о структуре материала и отсутствие подгоночных параметров. Однако даже применение передовых

технологий параллельного программирования и самых современных вычислительных суперкомпьютеров дает возможность одновременно моделировать лишь малое количество вещества (~ 100 атомов и 1000 электронов, размеры кристаллита ~3 нм), что не позволяет описать пространственные эффекты возбуждения и релаксации материала в треке БТИ полностью. Применение граничных условий для таких малых кристаллитов также сильно ограничивает рассматриваемые временные масштабы до ~ 1 фс. Таким образом, в настоящее время данный подход может быть применен только для описания первичных процессов возбуждения материала в очень небольшой области около траектории иона.

Чтобы избежать вычислительных сложностей, могут использоваться определенные упрощения. Так, например, в работе [73] для описания нетермического плавления был разработан межатомный потенциал, зависящий от температуры электронной подсистемы. Этот потенциал затем применялся в модели, объединяющей в себе методы молекулярной динамики и термической вспышки.

1.6. Численные мультимасштабные модели

С развитием компьютерных технологий популярными становятся подходы, базирующиеся на стохастических принципах – методы Монте-Карло. Такие модели [74–77] успешно используются для описания начальных стадий возбуждения и релаксации электронной подсистемы, так как сочетают в себе небольшое количество приближений, основаны на базовых физических принципах и не требуют большого количества вычислительных ресурсов.

Рассматривая указанные выше модели и принимая во внимание все многообразие процессов протекающих в такой сильнонеравновесной системе как трек БТИ, можно утверждать, что в формирование поврежденной области в треке тяжелого иона высокой энергии вносят вклад самые различные механизмы, в том числе и описанные в предыдущих разделах. В работе [78] отмечается, что каждая

из групп моделей не противоречит другим подходам, и стадии возбуждения и релаксации материала в треке БТИ (ионизация, баллистический разлет электронов, кулоновский взрыв, термическая релаксация и т.д.) могут протекать одновременно или следовать друг за другом.

Поэтому, в последние годы активно ведется разработка мультимасштабных моделей, сочетающих в себе различные механизмы на разных стадиях возбуждения и релаксации материала. Так как такие подходы можно реализовать только численно, то во многом прогресс мультимасштабных моделей стал возможен благодаря быстрому развитию высокопроизводительных вычислительных средств, что позволило создавать микроскопические компьютерные модели процессов, основанные на самых базовых физических принципах.

Так, например, в работах [79, 80] предлагается гибридная модель, которая рассматривает возбуждение электронной подсистемы материала методами Монте-Карло до времен ее термализации (~ 100 фс), а затем применяет модель термической вспышки для описания передачи избыточной энергии в решетку материала и последующей ее релаксации. Такой подход позволяет решить часть проблем модели ТВ, таких, например, как отсутствие баллистического распространения электронов на малых временах. Еще одним примером может служить работа [81] где модифицированная модель ТВ была объединена с классической молекулярной динамикой.

Из всего вышесказанного можно сделать вывод, что общая модель образования треков тяжёлых ионов высоких энергий по-прежнему до конца не разработана, и механизмы формирования наблюдаемых структурно-фазовых изменений в материалах облучаемых БТИ описаны сообществом не в полной мере. Все это свидетельствует о необходимости создания новой микроскопической модели возбуждения электронной и атомной подсистем материалов в треках БТИ, базирующейся на общих фундаментальных принципах,

описывающей кинетику различных стадий формирования повреждений и не использующей подгоночных параметров.

Представленная в диссертации количественная модель [31, 77, 82, 83] возбуждения и релаксации материала в треке быстрых тяжёлых ионов так же является мультимасштабным подходом. В ней применяется объединение упомянутой выше модели Монте-Карло, описывающей возбуждение электронной подсистемы среды [77, 84–86], модели передачи энергии в ионную подсистему материала, основанную на формализме динамического структурного фактора [58, 59, 87] и классической молекулярной динамики, описывающей кинетику релаксации решетки мишени. Модель учитывает особенности коллективных процессов, происходящих в электронной и ионной подсистемах материала при их возмущении, взаимодействии между собой и обмене энергией в треке БТИ.

Заключение к Главе 1.

В Главе 1 приведен обзор и анализ численных и аналитических моделей, использующихся в настоящее время для изучения воздействия тяжелых заряженных частиц высокой энергии на свойства материалов. Рассмотрены преимущества и недостатки этих моделей и проведен анализ применимости приближений, используемых в описанных подходах. Показана актуальность теоретических и экспериментальных исследований, посвященных изучению механизмов формирования треков тяжёлых ионов. На основании этого анализа сделаны следующие выводы:

1. Использование макроскопических подходов может привести к неверным результатам при описании наноразмерной и субпикосекундной кинетики процессов, происходящих при возбуждении материала быстрыми тяжелыми ионами.
2. Используемые в настоящее время модели возбуждения трековой области и структурных изменений в ней не учитывают всех особенностей

процессов протекающих при возбуждении материала БТИ, описывая только отдельные этапы формирования треков.

3. Принимая во внимание недостатки существующих моделей образования треков, сделан вывод что, наиболее целесообразным подходом представляется описание возбуждения материала в треке БТИ при помощи фундаментально обоснованной и проверенной в экспериментах мультимасштабной количественной микроскопической модели.

В главе определены основные проблемы и задачи, а также обоснована мотивация выбора целей и методов исследования диссертации.

Глава 2. Монте-Карло моделирование электронной кинетики в треке БТИ в Al_2O_3

В данной главе приводится описание разработанной модели Монте-Карло возбуждения электронной подсистемы материала, а также результаты моделирования электронной кинетики в нанометрической окрестности траектории БТИ в Al_2O_3 .

2.1. Формализм комплексной диэлектрической функции

Быстрые тяжелые ионы при прохождении через вещество основную часть своей энергии теряют на возбуждение электронной подсистемы (см. Рис. 2.1). Здесь и далее взаимодействие налетающей частицы с электронной подсистемой материала, приводящее к изменению внутренних состояний атома или зонных состояний будет именоваться *неупругим* и характеризоваться потерями энергии на электронное торможение $S_e (dE/dx_e)$. Столкновения налетающей частицы с ионной подсистемой материала, приводящие к передаче энергии атомам среды, будут называться *упругими* и характеризоваться ядерными потерями энергии $S_n (dE/dx_n)$. Так как в исследуемой области энергий БТИ S_e более чем на два порядка превышает S_n , в настоящей работе упругие потери налетающего иона S_n не учитываются при описании его взаимодействия с мишенью.

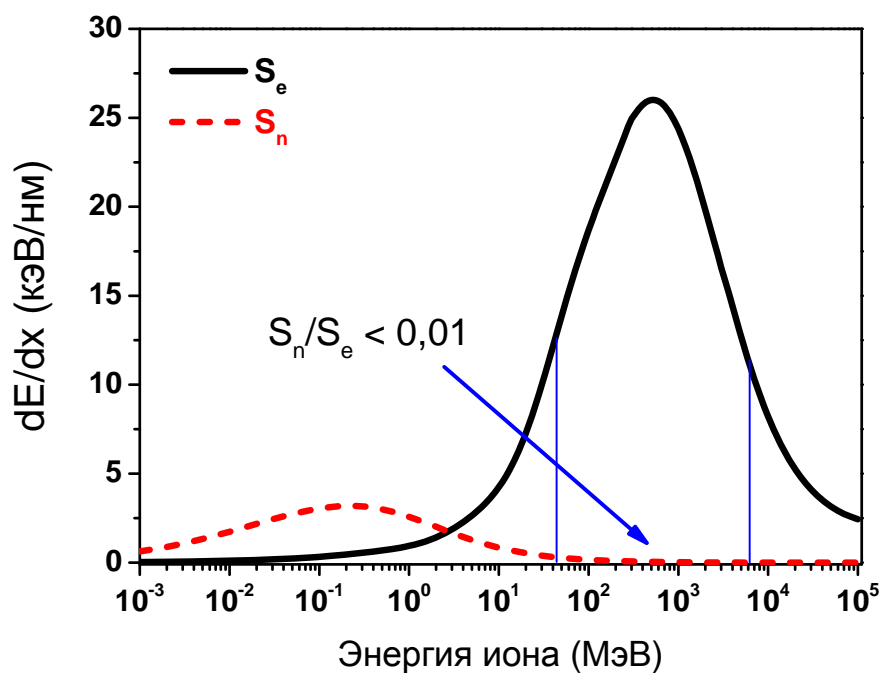


Рис. 2.1 Потери энергии иона на ионизацию (S_e) и на упругие столкновения (S_n), посчитанные с помощью SRIM [27].

Ключевым фактором количественного описания кинетики возбуждения электронной подсистемы налетающей заряженной частицей является выбор адекватных сечений взаимодействия этих частиц с электронным ансамблем материала. В частности, методика выбора этих сечений должна автоматически учитывать коллективную реакцию электронного ансамбля на вносимое возмущение.

В рамках первого борновского приближения (первый порядок теории возмущений) сечение рассеяния частицы на системе связанных частиц факторизуется и его можно представить в виде произведения сечения взаимодействия со свободным рассеивателем и динамического структурного фактора (ДСФ, $S(\mathbf{q}, \omega)$) [39, 88]. Будучи фурье-образом парной корреляционной функции, ДСФ автоматически учитывает пространственно-временные корреляции в системе рассеивателей [39].

Флуктуационно-диссипативная теорема [40] связывает ДСФ системы заряженных частиц с её комплексной диэлектрической функцией $\varepsilon(\mathbf{q}, \omega)$ (CDF, КДФ). В этом случае дифференциальное сечение рассеяния заряженной частицы на системе связанных заряженных рассеивателей имеет следующий вид [39, 88, 89]:

$$\frac{d^2\sigma}{d(\hbar\omega)d(\hbar q)} = \frac{2[Z_e(v, q)e]^2}{n_{sc}\pi\hbar^2v^2} \frac{1}{\hbar q} \operatorname{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, q)} \right] \quad 2.1$$

Функцию $\operatorname{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon(\mathbf{q}, \omega)} \right]$ часто называют функцией энергетических потерь (ФЭП, в англоязычной литературе – *loss function*). $Z_e(v, q)$ – эффективный заряд иона в среде, как функция его скорости v и переданного импульса q (для налетающего электрона или дырки $Z_e = 1$, для БТИ в среде Z_e определяется, например, формулой Баркаса [90]), $\hbar\omega$ – переданная налетающей частицей энергия, n_{sc} – плотность рассеивателей. Здесь $n_{sc} = n_e$ (плотность электронов) в случае рассеяния на электронах мишени и $n_{sc} = n_{at}$ (плотность атомов) при взаимодействии с атомами среды.

Предполагая однородное распределение рассеивателей в среде, средний свободный пробег налетающей частицы до взаимодействия можно определить как

$\lambda = \frac{1}{n_{sc}\sigma}$. Средние потери энергии этой частицы на единицу длины могут быть

рассчитаны из свободных пробегов по формуле [77]:

$$-\frac{dE}{dx} = \int_{E_{\min}^e}^{E_{\max}^e} \frac{d\lambda_e^{-1}}{d(\hbar\omega)} \hbar\omega \cdot d(\hbar\omega) + \int_0^{E_{\max}^{at}} \frac{d\lambda_{at}^{-1}}{d(\hbar\omega)} \hbar\omega \cdot d(\hbar\omega) \quad 2.2$$

Здесь λ_e в первом члена правой части выражения (2.2) соответствует пробегу заряженной частицы (иона, электрона) до неупругого взаимодействия, а λ_{at} – пробегу до упругого взаимодействия, которое в настоящей модели реализуется только для электронов и не учитывается при рассеянии БТИ на атомах мишени. Для диэлектриков нижний предел интегрирования в первом члене совпадает с шириной запрещённой зоны $E_{min}^e = E_g$ [91, 92], (E_g – ширина запрещенной зоны, $E_g = 8,8$ эВ для оксида алюминия [93]). Верхний предел для интегрирования по энергии неупругих сечений иона имеет вид $E_{max}^e = \hbar\omega_{max} = \frac{4E_{in}m_eM_{in}}{(M_{in} + m_e)^2}$, где E_{in} и M_{in} – энергия и масса налетающей частицы. В случае рассеяния электронов на электронной подсистеме материала, верхний предел интегрирования равен $E_{max}^e = E_{in} / 2$, принимая во внимание эквивалентность налетающего и выбитого электронов.

Для упругого взаимодействия электронов со средой верхний предел интегрирования E_{max}^{at} выбирается как большее из двух величин: $4E_{in}m_eM_{at}/(M_{at}+m_e)^2$ или $\hbar\omega_{ph}$, где M_{at} – средняя масса атомов мишени, а $\hbar\omega_{ph}$ максимальная частота фонона в материале в рамках приближения Дебая: $\hbar\omega_{ph} = (\hbar/e) \cdot V_s \sqrt[3]{6\pi^2 n_{at}}$, (V_s – скорость звука материала и n_{at} концентрация атомов мишени) [63].

Соответствующие пределы интегрирования по переданному импульсу в (2.2) определяются законами сохранения энергии и импульса [91, 94]:

$$\frac{d\lambda_\alpha^{-1}}{d(\hbar\omega)} = \int_{q_-}^{q_+} \frac{d^2\lambda_\alpha^{-1}}{d(\hbar\omega)d(\hbar q)} d(\hbar q),$$

$$q_\pm = \sqrt{2m_e/\hbar^2} \left(\sqrt{E_{in}} \pm \sqrt{E_{in} - \hbar\omega} \right), \text{ для электронов,} \quad 2.3$$

$$q_- = \omega/v, \quad q_+ = \sqrt{2m_e E_{max}}/\hbar, \text{ для ионов.}$$

гд, q_\pm - максимальный и минимальный переданный импульс.

2.1.1. Построение функции энергетических потерь-Al₂O₃

В зависимости от метода определения ФЭП, эта функция может автоматически содержать в себе особенности присущие твердому телу, например, коллективные эффекты в ансамбле электронов - образование плазмонов и т.д.

Аналитический вид КДФ или ФЭП в большинстве случаев не известен. Существует множество теоретических или полуэмпирических моделей построения приближенной диэлектрической функции, например [95–97]. Один из наиболее известных подходов был разработан в работах [98–100]. Этот метод использует диэлектрическую функцию вида Линдхарда в рамках приближения случайных фаз. В более поздних исследованиях используется диэлектрическая функция Мермина [101], впоследствии дополненная и улучшенная в работе [102]. О большинстве этих методов можно сказать что они являются слишком сложными для расчетов, либо их трудно применить к системе сильно связанных электронов, либо они не обеспечивают нужной точности.

В работах [84, 89, 94] для построения КДФ было предложено использовать экспериментальные оптические данные в виде суммы осцилляторных функций вида

$$\text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, \mathbf{q}=0)} \right] = \sum_i \frac{A_i \gamma_i \hbar \omega}{(\hbar^2 \omega^2 - E_{0i}^2)^2 + (\gamma_i \hbar \omega)^2} \quad 2.4$$

При рассеянии фотона передаваемый им импульс \mathbf{q} значительно меньше импульса электрона и поэтому предполагается, что $\mathbf{q}=0$.

В данном подходе для определения функции энергетических потерь и коэффициентов A_i, γ_i, E_{0i} экспериментальная кривая, полученная из спектров фотопоглощения, аппроксимируется с помощью функции вида (2.4). Здесь E_{0i} соответствует энергии осциллятора (положение пика на экспериментальной

зависимости $\text{Im}\left[\frac{-1}{\varepsilon(\mathbf{q}, \omega)}\right]$, см. Рис. 2.2), A_i и γ_i - это, соответственно, интенсивность (высота) и ширина пика КДФ.

В области низких энергий фотонов (до 100 эВ) для большинства практически значимых материалов доступны экспериментальные значения оптических постоянных: коэффициента преломления $n(\omega)$ и коэффициента поглощения $k(\omega)$ (например, базы данных [103, 104]), из которых может быть восстановлена функция энергетических потерь с помощью выражения [94]:

$$\text{Im}\left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, \mathbf{q} = 0)}\right] = \frac{2n(\omega)k(\omega)}{(n(\omega)^2 - k(\omega)^2)^2 + (2n(\omega)k(\omega))^2} \quad 2.5$$

Измерение оптических постоянных n и k для более высоких энергий затруднено, так как с ростом энергии электромагнитного излучения возрастает его проникающая способность и $k(\omega)$ становится малой величиной уже при энергиях фотонов ~ 100 эВ [103]. В этой области частот диэлектрическую функцию многокомпонентного материала можно получить с помощью усреднения КДФ его элементных составляющих с учетом стехиометрических коэффициентов. В базе данных [105] таким образом считается длина затухания λ_a , которая потом может быть пересчитана в обратную мнимую диэлектрическую функцию по формуле:

$$\text{Im}\left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, \mathbf{q} = 0)}\right] = \frac{c\lambda_a(\omega)}{\omega} \quad 2.6$$

где c – скорость света, а λ_a - длина затухания электромагнитного излучения в среде.

Восстановленная с помощью выражений (2.5) и (2.6) энергетическая зависимость обратной мнимой части диэлектрической функции представляет

собой набор пиков, которые соответствуют атомным электронным оболочкам элементов материала, зонной структуре и оптическим фононам (Рис. 2.2) [84]. К взаимодействию с оптическими фононами относятся пики КДФ, расположенные на энергиях до 0,1 эВ. Сравнением положения пика ФЭП и энергетических уровней оболочек элементов, например из [106], можно определить какой именно атомной оболочке соответствует каждый пик.

На Рис. 2.2 показана мнимая часть обратной комплексной диэлектрической функции $\text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, \mathbf{q} = \mathbf{0})} \right]$ Al_2O_3 , построенной с использованием экспериментальных оптических коэффициентов [103] и расчетных длин затухания [105]. На графике также изображены аппроксимирующие функции вида (2.4) с коэффициентами из Табл. 2.1 для каждой оболочки.

Построенная из экспериментальных и расчетных данных ФЭП (Рис. 2.2, кривая «Эксперимент») использовалась для определения коэффициентов A_i, γ_i, E_{oi} выражения (2.4) для восстановления функционального вида функции потерь энергии. Каждой оболочке соответствует одно или несколько слагаемых выражения (2.4), в которых значения E_{oi} были выбраны близкими к положению пиков на энергетической оси, подгонка осуществлялась варьированием коэффициентов A_i и γ_i до достижения максимального совпадения кривой в виде слагаемых (2.4) и экспериментальных значений.

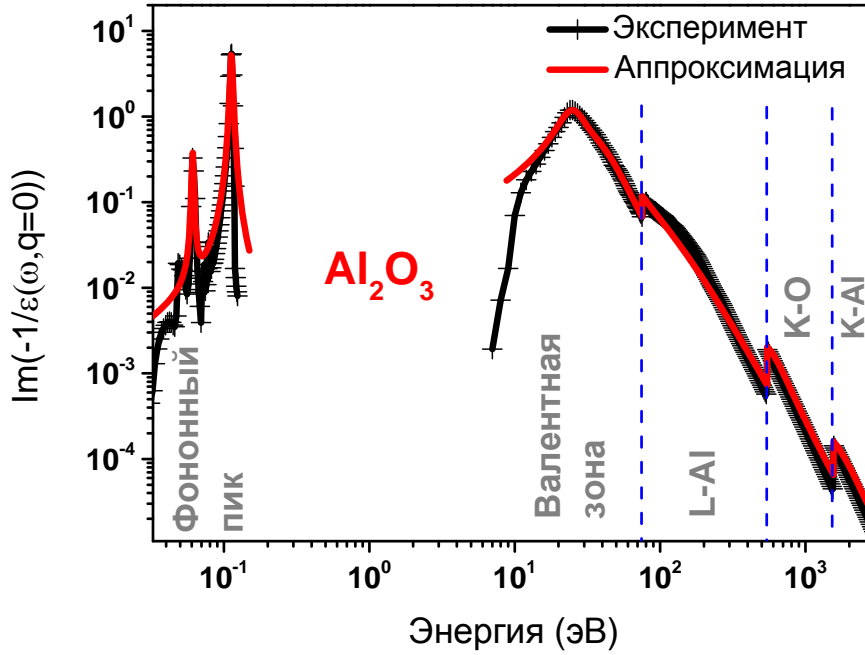


Рис. 2.2 Экспериментальные данные по оптическим константам и аппроксимирующие функции вида (2.4)

Построенная таким образом по оптическим константам диэлектрическая функция проверялась правилами сумм:

kk -сумма или предел интеграла Крамерса-Кронига

$$P_{eff} = \frac{2}{\pi} \int_0^{\hbar\omega_{max}} \text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, q=0)} \right] \frac{d(\hbar\omega)}{\hbar\omega} \quad 2.7$$

должна стремиться к единице при $\hbar\omega_{max} \rightarrow \infty$ [104, 107].

Основным критерием качества аппроксимации было выполнение правила f -сумм:

$$Z_{eff} = \frac{2}{\pi\Omega_p^2} \int_0^{\hbar\omega_{max}} \text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, q=0)} \right] \hbar\omega d(\hbar\omega) \quad 2.8$$

Это правило суммы отражает полное число электронов, которые могут быть ионизованы с данной оболочки (парциальный вес соответствующего канала рассеяния). При $\hbar\omega_{max} \rightarrow \infty$, Z_{eff} стремится к полному числу электронов в молекуле

вещества (или отдельной электронной оболочке атома), которое может быть ионизовано налетающим ионом [104, 107]. Здесь $\Omega_p = \left(\frac{4\pi n_m e^2}{m_0} \right)^{\frac{1}{2}}$ это плазменная частота, n_m – плотность молекул вещества, e – заряд электрона.

В Табл. 2.1 приведены коэффициенты A_i, γ_i, E_{oi} , соответствующие аппроксимирующей кривой вида (2.4) на Рис. 2.2 и их проверка правилами сумм (2.7) и (2.8).

Табл. 2.1 Подобранные коэффициенты для диэлектрической функции и правила сумм. В скобках для столбца значений f -суммы указано число электронов на оболочках.

Рассеяние на	E_{oi}	A_i	γ_i	kk -сумма	f -сумма (Ne)
Валентной зоне $N^{os}=3$	25,4	275	12,5	0,7051	24,42 (24)
	38	520	38		
	36	84	6		
L-оболочке Al	80	620	160	0,019	15,99 (16)
K- оболочке O	545	270	380	0,00027	5,84 (6)
K- оболочке Al	1565	178	1200	$2 \cdot 10^{-5}$	3,92 (4)
фононах $N^{os}=2$	0,1125	0,003	0,005	0,2491	--
	0,061	4,5E-05	0,002		
Всего:				0,9742	50,18 (50)

Хорошее совпадение аппроксимирующих парциальных (оболочечных) функций с экспериментальными данными и выполнение правил сумм свидетельствует о достоверном определении функционального вида ФЭП в виде (2.4).

2.1.2. Зависимость ФЭП от переданного импульса

Функция потерь в виде (2.4), восстановленная из данных по поглощению фотонов (безмассовых частиц), при описании взаимодействия со средой учитывает только обмен энергией и не содержит в себе информации о возможном обмене импульсом. Тем не менее, полученная таким образом ФЭП может быть с

успехом использована и для описания рассеяния частиц с ненулевой массой на электронной подсистеме материала [89, 91, 94]. Для этого в выражение (2.4) вместо частоты осциллятора вводится зависимость энергии от импульса рассеивающего центра (дисперсионный закон). Наиболее простым и удобным является приближение свободной частицы, в рамках которого, заменяя E_{0i} на $E_{0i}(q) = E_{0i} + \hbar^2 q^2 / (2M)$, можно получить следующее выражение для ФЭП в виде суммы осцилляторных функций [89, 107]:

$$\text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, q)} \right] = \sum_i \frac{A_i \gamma_i \hbar \omega}{\left[\hbar^2 \omega^2 - \left(E_{0i} + \frac{(\hbar q)^2}{2M} \right)^2 \right]^2 + (\gamma_i \hbar \omega)^2} \quad 2.9$$

где M – эффективная масса рассеивателя.

Это приближение хорошо работает в области больших передаваемых энергий, а так же при $q=0$ переходит в выражение (2.4) [107].

Кроме дисперсионного закона свободной частицы могут быть использованы и другие подходы, например однопольное приближение [98], выражение для которого представляет собой попытку учесть взаимодействие с плазмонами в явном виде. Так же в (2.4) может быть введена зависимость коэффициента γ_i от передаваемого импульса [89, 99].

2.1.3. Проверка ФЭП

Для проверки построенной диэлектрической функции помимо определения правил сумм было проведено сравнение расчетных длин пробегов электрона (выражение (2.1)) с базой данных NIST [26, 108]. Также результаты вычисления энергетических потерь БТИ (выражение (2.1)) сравнивались с выходными данными программ SRIM [27] и CasP 5.0 [28, 109].

В базе данных NIST собраны экспериментальные и расчетные данные по длинам свободных пробегов электронов до неупругого столкновения, а также используется собственная предсказательная формула расчета длин пробегов [26].

Сравнение рассчитанных длин пробегов с базой данных NIST приведено на Рис. 2.3.

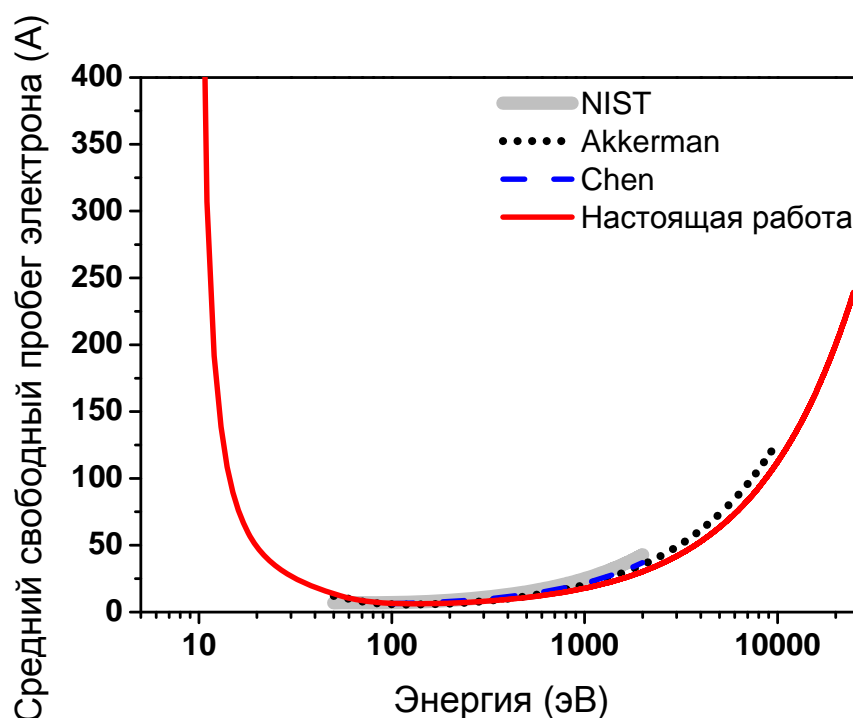


Рис. 2.3 Средние свободные пробеги электронов до неупругого столкновения в оксиде алюминия. Для сравнения приведены данные из базы NIST (Akkerman, Chen) [108] и расчетов по предсказательной формуле (NIST) [26].

На Рис. 2.4а-в представлена зависимость ионизационных потерь (dE/dx_e) ионов Ti ($Z=22$), Xe ($Z=54$), Au ($Z=79$) от энергии налетающей частицы. Эти ионы были выбраны для того чтобы провести сравнение расчетных ионизационных потерь для широкого интервала зарядов ионов Z с расчётами, использующими пакеты SRIM [27] и CasP [28, 109]. Из сравнения видно, что все три модели хорошо согласуются между собой (различие в предсказанных высотах брегговского пика менее 10%). Положение брегговского пика рассчитанного с помощью SRIM и диэлектрического формализма практически совпадают, в то время как пик на кривой потерь, определенных с помощью CasP, немного смещен в область меньших энергий.

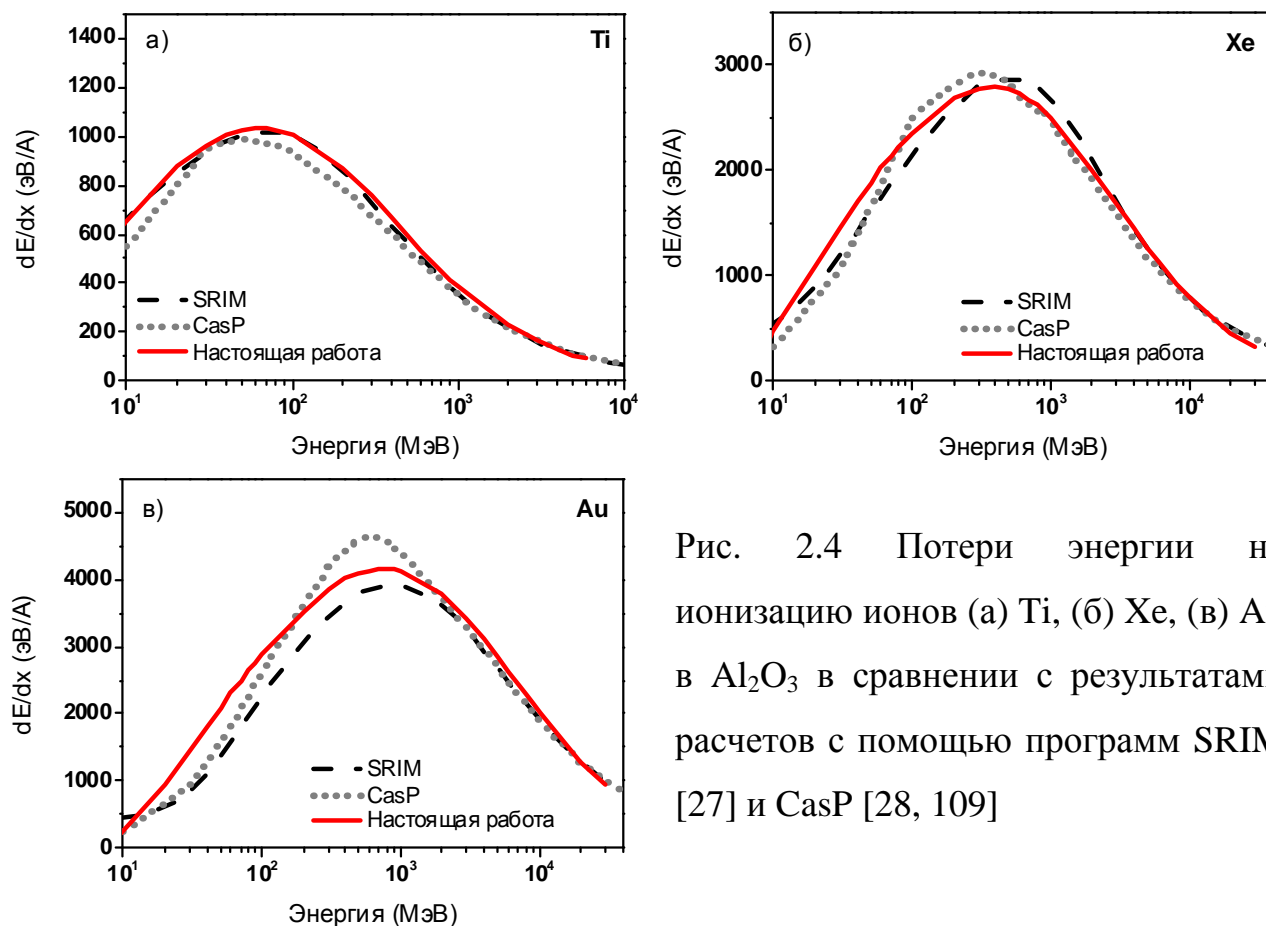


Рис. 2.4 Потери энергии на ионизацию ионов (а) Ti, (б) Xe, (в) Au в Al_2O_3 в сравнении с результатами расчетов с помощью программ SRIM [27] и CasP [28, 109]

Построенная и проверенная диэлектрическая функция материала использовалась для расчета дифференциальных сечений взаимодействия заряженной частицы с электронной подсистемой [89, 91, 92] согласно выражению (2.1). Эти сечения затем были использованы в Монте-Карло модели для описания возбуждения электронной подсистемы в треках тяжелых ионов высоких энергий в Al_2O_3 .

2.2. Монте-Карло модель возмущения электронной подсистемы материала в треке БТИ

Для количественного описания кинетики возмущения электронной подсистемы материала налетающим БТИ и генерируемыми в результате

ионизации материала быстрыми электронами была разработана оригинальная Монте-Карло модель TREKIS [75, 77, 84].

Эта МК модель основана на методе асимптотических траекторий. Модель использует сечения взаимодействия электронов со средой, базирующихся на формализме ДСФ-КДФ и учитывает коллективную реакцию материала на вносимое возбуждение. Модель описывает: (а) первичный пролет БТИ и ионизацию атомов мишени; (б) последующий разлет первичных электронов, их упругое и неупругое взаимодействие с атомами среды, а так же кинетику всех вторичных поколений электронов, образующихся в треке; (в) релаксацию дырок глубоких атомных оболочек, созданных ионизацией БТИ или электронами, включая межатомные Оже-процессы и радиационные распады; (г) пространственное перераспределение валентных дырок и их упругое и неупругое взаимодействие со средой.

Моделирование начинается с момента пролёта иона и заканчивается с завершением последних ионизационных каскадов и процессов передачи энергии в решетку материала (~100 фс). Выходными данными программы являются радиальные распределения плотности электронов и дырок и плотности их энергии, угловые распределения генерируемых электронов, распределение избыточной энергии в решетке материала к моменту окончания ионизационных каскадов.

Так как Монте-Карло метод основан на большом числе реализаций случайного процесса, то для получения статистически достоверного результата проводилось большое число итераций (~1000) программы. Одна итерация моделирует однократный пролет иона по невозмущенному материалу. Затем полученные данные усреднялись по всем итерациям.

2.2.1. БТИ и мишень

В настоящей работе твердая мишень рассматривалась как равномерное и однородное распределение атомов. Такой подход не учитывает кристаллическую

структуру исследуемого материала, однако, как было показано в [110] функция энергетических потерь для кристаллического и аморфного образцов оксида кремния отличаются незначительно, что приводит лишь к небольшим отличиям в сечениях взаимодействия. Полагалось также, что в исследуемом материале нет примесей и дефектов, за исключением тех, которые присутствовали в образцах при измерении спектров фотопоглощения и эффекты которых автоматически учитывались в экспериментальной диэлектрической функции.

Предполагалось, что энергия иона в веществе теряется только на возбуждение электронной подсистемы, так как потери на упругое столкновение БТИ с ядрами пренебрежимо малы (менее 1%). Траектория налетающего иона выбиралась перпендикулярно поверхности материала и считалась прямолинейной на длине моделирования (~ 10 нм), так как масса ионов много больше массы электронов и можно пренебречь поперечным изменением импульса БТИ. Так же не принимались во внимание черенковское (скорость иона и электронов значительно меньше скорости света в веществе) и тормозное излучение [75].

Важной характеристикой иона, движущегося сквозь сплошную среду, является его равновесный эффективный заряд $Z_e(v, q)$, который определяет ионизирующую способность налетающей частицы. В литературе имеется большое количество эмпирических и полуэмпирических моделей точечного равновесного заряда тяжелого иона в твердых или газообразных телах, например формулы Баркаса [90, 111], Бора [111], Николаева-Дмитриева [112], Шивица-Гранде [113] и т.д.

Помимо модели точечного заряда, когда эффективное зарядовое состояние БТИ зависит только от его скорости $Z_e(v, q) = Z_e(v)$, можно выделить также и модель заряженной частицы конечных размеров, которая учитывает зависимость эффективного заряда $Z_e(v, q)$ от передаваемого в столкновении импульса [114]. Модель заряда конечных размеров, разработанная Брандтом и Китагавой в работе [114], позволяет учитывать эффекты столкновений с малыми прицельными параметрами (меньших радиуса иона), когда электрон мишени может

взаимодействовать с не полностью экранированным зарядом ядра иона. Анализ [84] двух этих подходов в рамках используемого формализма показал, что различие в величине S_e в обоих случаях незначительно и поэтому в настоящей работе налетающий ион предполагается точечной частицей, обладающей эффективным равновесным зарядом $Z_e(v)$.

Кроме того, исследование применения различных зарядовых формул в рамках формализма КДФ-ДСФ показало, что использование формулы Баркаса [90, 111] дает наилучшее согласие рассчитанных потерь энергии на электронное торможение с экспериментальными и расчетными данными [77], и поэтому эта формула использовалась во всех дальнейших расчетах.

Формула Баркаса основана на идее, что вероятность отрыва от налетающего иона электронов, имеющих скорости выше скорости БТИ, мала. Поэтому, после небольшого количества столкновений с атомами вещества, БТИ приобретает эффективный равновесный заряд, который можно описать выражением [90, 111]:

$$Z_e(v) = Z_{ion} \left[1 - \exp\left(-\frac{V_{ion}}{V_0} Z_{ion}^{\frac{2}{3}}\right) \right], \quad 2.10$$

где Z_{ion} – порядковый номер БТИ, V_{ion} – скорость БТИ, $V_0 = \alpha c$ – Боровская скорость ($\alpha = \frac{1}{137}$ постоянная тонкой структуры).

Глубина проникновения, на которой устанавливается равновесный заряд, называется глубиной уравнивания и обычно не превышает 100 нм [64, 115, 116], что гораздо меньше характерных максимальных пробегов тяжелых ионов в материале (>10 мкм). Кроме того, в экспериментах по облучению твердотельных мишеней БТИ на ускорительных установках тяжелые ионы обычно имеют высокую зарядность вследствие перезарядки при прохождении через выводные фольги. Это позволяет пренебречь приповерхностной областью уравнивания заряда и предполагать, что ион обладает данным равновесным зарядом на всем

пути с момента его проникновения в вещество, который изменяется только с замедлением иона вследствие электронного торможения.

2.2.2. Ионизация атомов налетающей частицей

Ионизация диэлектрика налетающим ионом происходит в результате выбивания электронов глубоких атомных оболочек и валентной зоны материала. Взаимодействие БТИ с электронами мишени описывалось в рамках независимых парных столкновений. Однако, использование формализма КДФ позволяет учесть в сечениях этих столкновений коллективную реакцию электронной подсистемы в рамках формализма КДФ.

Пространственное распределение электронов глубоких оболочек и валентной зоны считалось однородным. Каждому каналу рассеяния (валентная зона, атомные оболочки или рассеяние электронов на оптических фононах) соответствуют определенные пики ФЭП. Выбор оболочки (канала рассеяния), на которой реализовывался акт рассеяния иона, и определение параметров электрона и дырки, производились следующим образом:

- 1) Парциальные сечения (длины пробегов) рассеяния иона на каждой оболочке рассчитывались с учетом коллективной реакции электронной подсистемы на вносимое возбуждение (формализм КДФ, выражение (2.1)). Так же рассчитывались дифференциальные по переданной энергии сечения рассеяния иона.
- 2) Канал рассеяния выбирался с помощью разыгранной случайной длины пробега иона с учетом парциальных сечений взаимодействия с электронами каждой оболочки.
- 3) Взаимодействие заряженной частицы с электронами валентной зоны приводит к образованию плазмонов. В настоящей работе не учитывалось пространственное распространение плазмонов и предполагалось, что они мгновенно распадаются на электронно-дырочную пару.

- 4) Энергетическое распределение электронов в валентной зоне учитывалось в виде плотности ее состояний (Density of states, DOS) [117].
- 5) Считалось что, энергетическое распределение электронов глубоких оболочек – это дельта функции, т.е. все электроны оболочки имеют одинаковую энергию связи равную потенциалу ионизации данной оболочки. Тонкая структура оболочек в представленной работе не рассматривалась.
- 6) В каждом соударении переданная ионизируемому электрону от БТИ энергия ΔE рассчитывалась из дифференциального сечения рассеяния $(d\sigma(\omega)/d\omega)$ иона.
- 7) Если величина переданной энергии превышала потенциал ионизации, то электрон в дальнейшем считался свободным, и его энергия определялась как разность переданной ионом энергии и потенциала ионизации соответствующей оболочки.
- 8) Начальный импульс делокализованного электрона определялся из значения переданной энергии с учетом угла рассеяния θ , задаваемого законом сохранения энергии-импульса, и угла φ , выбираемого случайным образом в интервале $(0, 2\pi]$.
- 9) Энергия образовавшейся дырки равнялась потенциалу ионизации. В представленной версии МК модели релаксация дырок глубоких оболочек учитывалась в рамках кинетики Оже процессов и распадов с испусканием фотона.

2.2.3. Разлет электронов и распады глубоких оболочек.

При описании дальнейшего разлета первичных электронов и их упругих и неупругих рассеяний использовались парциальные сечения взаимодействия с атомными оболочками и валентной зоной, рассчитанные согласно выражению (2.1).

Процесс взаимодействия свободных электронов со средой аналогичен описанному выше для ионов. Различие заключалось в том, что при описании кинетики разлета электронов учитывалось их рассеяние на оптических фонах (упругие взаимодействия). Сечениям этого рассеяния соответствуют пики КДФ на энергиях $< 0,1$ эВ.

Траектория электрона между каждыми двумя последовательными соударениями предполагалась прямолинейной, а скорость – постоянной. Импульс и энергия электрона изменялись только в момент рассеяния. Такие приближения подразумевают пренебрежимо малое взаимодействие между возбужденными электронами.

Для дырок глубоких оболочек, образованных в результате ионизации, существует несколько возможных каналов распада: а) внутри- и межатомные Оже процессы, когда электрон из верхних энергетических оболочек занимает вакантное место, а избыточная энергия при этом передается другому электрону того же или соседнего атома [118, 119]; б) радиационный процесс, при котором при заполнении дырок глубоких оболочек электронами рождаются фотоны [118]. Радиационные процессы доминируют для глубоких оболочек тяжелых элементов ($Z > 30-40$), а Оже-распады для легких.

В настоящей работе при учете Оже- и радиационных процессов для глубоких атомных оболочек использовалось распределение Пуассона для времени распада дырки на каждой оболочке. Времена Оже-распадов взяты из работы [118], времена радиационных распадов из базы данных EADL [120]. Если разыгранное время оказывалось меньше времени проведения анализа, то происходило рождение Оже-электрона или фотона.

В случае Оже-процесса случайно выбиралось, какие электроны более высоких оболочек участвуют в распаде: один электрон заполнял дырку, второй получал избыточную энергию. Если эта энергия была больше потенциала ионизации, то второй электрон оказывался возбужденным в зоне проводимости.

Направление движения этого электрона задавалось случайным образом в полный телесный угол.

В случае радиационного распада также случайным образом выбиралась верхняя энергетическая оболочка, переход электрона с которой на нижнее состояние вызывал излучение фотона с частотой равной разнице энергий уровней, участвующих в процессе. Распространение фотонов и их взаимодействие со средой описывались таким же образом, как и для электронов.

Стоит так же отметить, что разработанная модель позволяет описывать эмиссию электронов с поверхности материала, учитывая наличие потенциального барьера на границе раздела среда-вакуум. Подобные расчеты проводились в работе [121] и представляют интерес для исследований связанных с поверхностными эффектами, вызываемыми облучением тяжелыми ионами высоких энергий.

2.2.4. Перераспределение валентных дырок

В работе [122] было показано, что для объяснения наблюдаемых экспериментально концентраций дефектов, создаваемых БТИ в LiF, необходимо принимать во внимание диффузию дырок валентной зоны. Так же в [84] упоминалось, что доля энергии, запасенная в валентных дырках может быть сравнимой или даже большей чем в электронах, что свидетельствует о том, что эту долю нужно учитывать при описании возбуждения и релаксации электронной подсистемы материала.

В данной работе валентная дырка рассматривается как независимая точечная квазичастица, занимающая энергетический уровень E_h в валентной зоне, согласно плотности электронных состояний материала $D(E)$. Для того чтобы реализовать МК процедуру для движения и взаимодействия валентной дырки, необходимо знать ее дисперсионное соотношение $q(E)$. Эту зависимость импульса от энергии можно определить из плотности состояний валентной зоны $D(E)$ в рамках однозонного эффективного приближения [123]:

$$D(E) = \frac{s}{2\pi^2} q^2(E) \frac{dq}{dE} \quad 2.11$$

где s – спиновый фактор, равный 2 для фермиона. В рамках такой однозонной модели [123] и в приближении однородной и изотропной среды, выражение (2.11) можно разрешить аналитически, получая среднее изотропное дисперсионное соотношение $q(E)$:

$$q(E) = \sqrt[3]{\frac{6\pi^2}{s} \int_0^E d\varepsilon \cdot D(\varepsilon)} \quad 2.12$$

Сечение рассеяния заряженной частицы в виде (2.1) не зависит явно от массы налетающей частицы, а зависит от квадрата скорости. Если же рассматривать зависимость $\frac{d^2\sigma}{d(\hbar\omega)d(\hbar q)}$ от энергии частицы, то можно отметить, что сечение рассеяния будет прямо пропорционально массе налетающей частицы.

Вводя понятие эффективной массы валентной дырки, m_h^{eff} , можно заменить выражение (2.1) дисперсионным соотношением свободной частицы $E_h = \frac{\hbar^2 q_h^2}{2m_h^{eff}}$, где m_h^{eff} теперь будет являться функцией энергетического состояния дырки E_h . С помощью приближения эффективной массы можно вычислить скорость движения дырки, находящейся в определенном энергетическом состоянии валентной зоны E_h , чтобы использовать ее в выражении (2.1) для расчета сечений её взаимодействия с электронной и ионной подсистемами материала в рамках формализма комплексной диэлектрической функции.

На Рис. 2.5 показана зависимость эффективной массы дырки от энергии ее состояния в валентной зоне, рассчитанная из плотности электронных состояний [117].

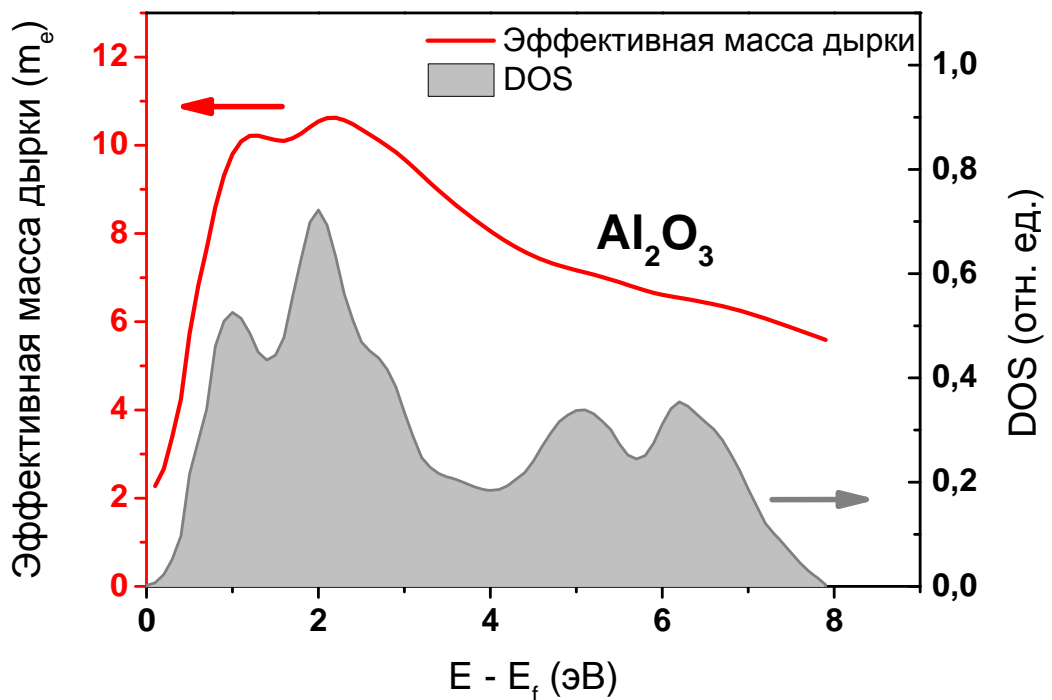


Рис. 2.5 Эффективная масса валентной дырки, рассчитанная из плотности состояний (DOS) [117] оксида алюминия.

Распространение валентной дырки описывает коллективное движение состояний электронов валентной зоны. Это движение может происходить без изменения энергетического состояния дырки или с изменением ее энергии. Последний тип процессов относится к взаимодействию дырки с атомами мишени: ионизацией или упругим рассеянием. Так как максимальная энергия дырки ограничена шириной валентной зоны E_{VB} , ударная ионизация дыркой валентной зоны в диэлектриках может происходить только в том случае если ширина ВЗ E_{VB} больше ширины запрещенной зоны E_{gap} , [124]. В случае оксида алюминия $E_{gap}=8,8$ эВ и поэтому валентная дырка не может вызывать ионизацию в этом материале (см. Рис. 2.5).

Рис. 2.6 демонстрирует рассчитанные средние пробеги электронов и валентных дырок до упругих и неупругих взаимодействий в зависимости от кинетической энергии частиц. Энергия электронов отсчитывается от дна зоны

проводимости, а энергия дырок от потолка валентной зоны. Хорошо видно, что пробеги валентных дырок в несколько раз меньше пробегов электронов, что есть результат большей эффективной массы дырки в материале (см. Рис. 2.5).

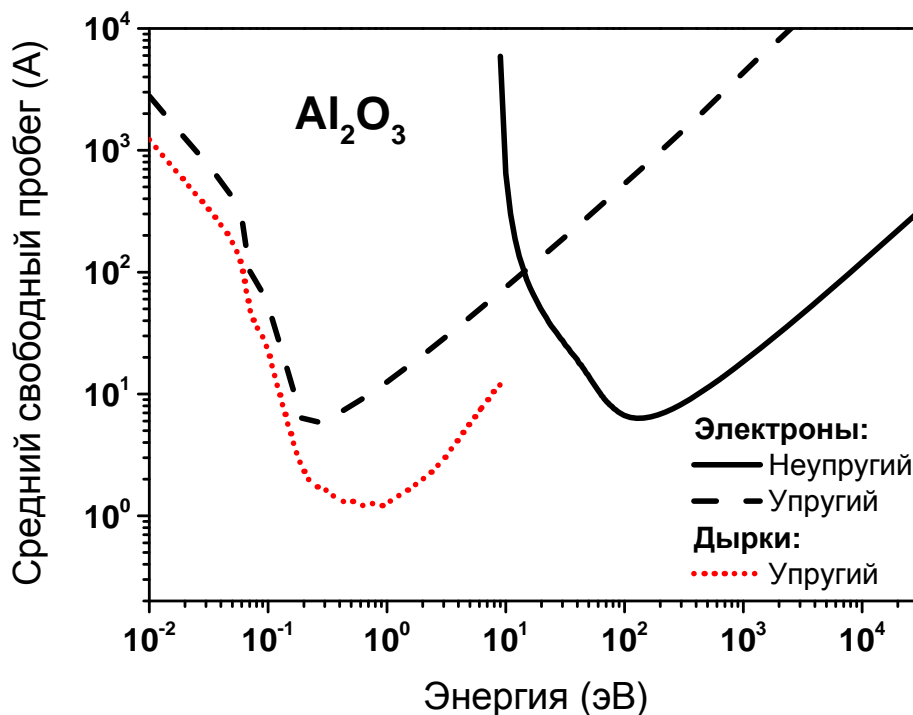


Рис. 2.6 Сравнение средних свободных пробегов электронов и дырок до упругих и неупругих столкновений в оксиде алюминия.

Для пространственного перераспределения валентных дырок использовалась такая же процедура Монте-Карло [77, 85] что и для электронов и БТИ.

2.3. Результаты Монте-Карло моделирования

Монте-Карло расчеты были выполнены с помощью программы TREKIS для двух типов ионов, которыми облучались образцы оксида алюминия в экспериментах [16, 31]: Xe 167 МэВ и Bi 700 МэВ. По результатам расчётов, были фиксированы состояния электронной подсистемы на различных временах до 100 фс после пролета иона. Также, для исследования временной зависимости

кинетики возбужденного электронного ансамбля было проведено моделирование до 1000 фс.

2.3.1. Кинетика свободных электронов

На Рис. 2.7 и Рис. 2.8 показаны радиальные распределения и радиальные распределения энергии электронов в треке ионов Вi и Хе в Al_2O_3 в различные моменты времени после пролёта иона. На графиках с радиальным распределением энергии (Рис. 2.7б и Рис. 2.8б) видно распространение двух фронтов. Первый фронт – это баллистическое распространение возбужденных электронов по невозмущенному материалу. Возникновение второго фронта обусловлено появлением большого количества электронов выделенной энергии при возбуждении и распаде плазмонов в валентной зоне (максимум сечения взаимодействия приходится на переданную энергию ~ 20 эВ). На больших временах этот фронт размывается за счет взаимодействия электронов со средой.

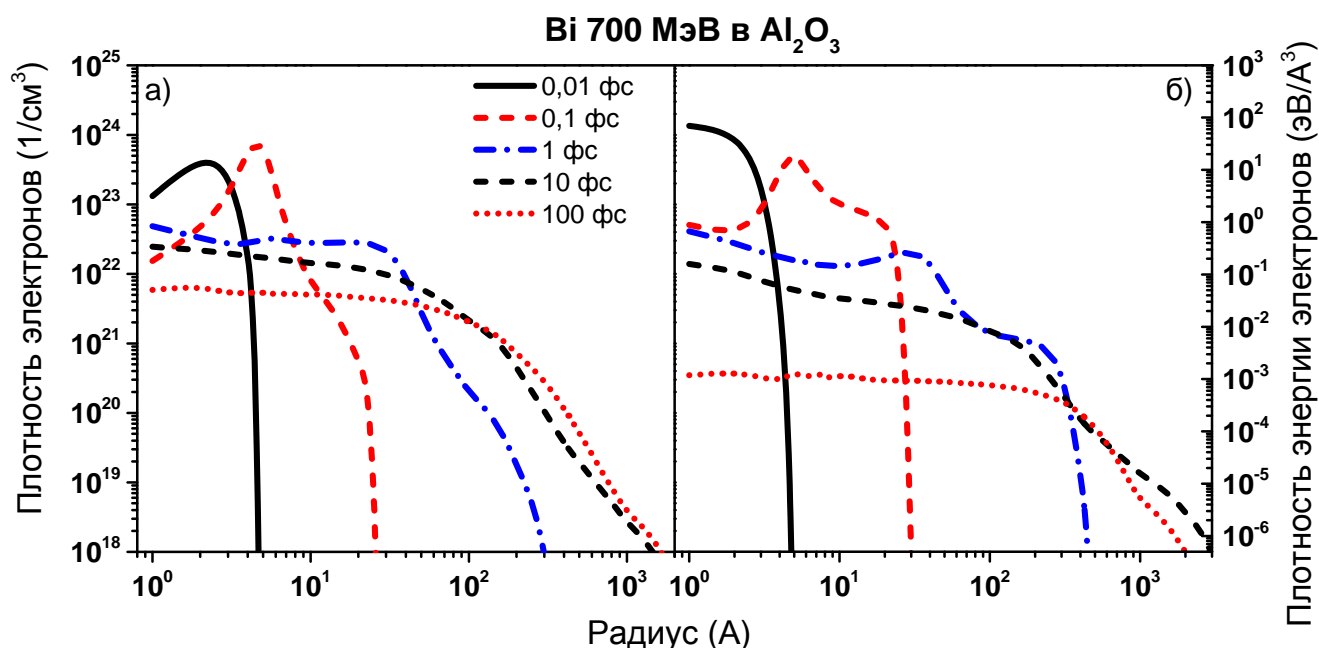


Рис. 2.7 Радиальная зависимость (а) плотности электронов и (б) их кинетических энергий в треке иона Вi с энергией 700 МэВ в Al_2O_3 .

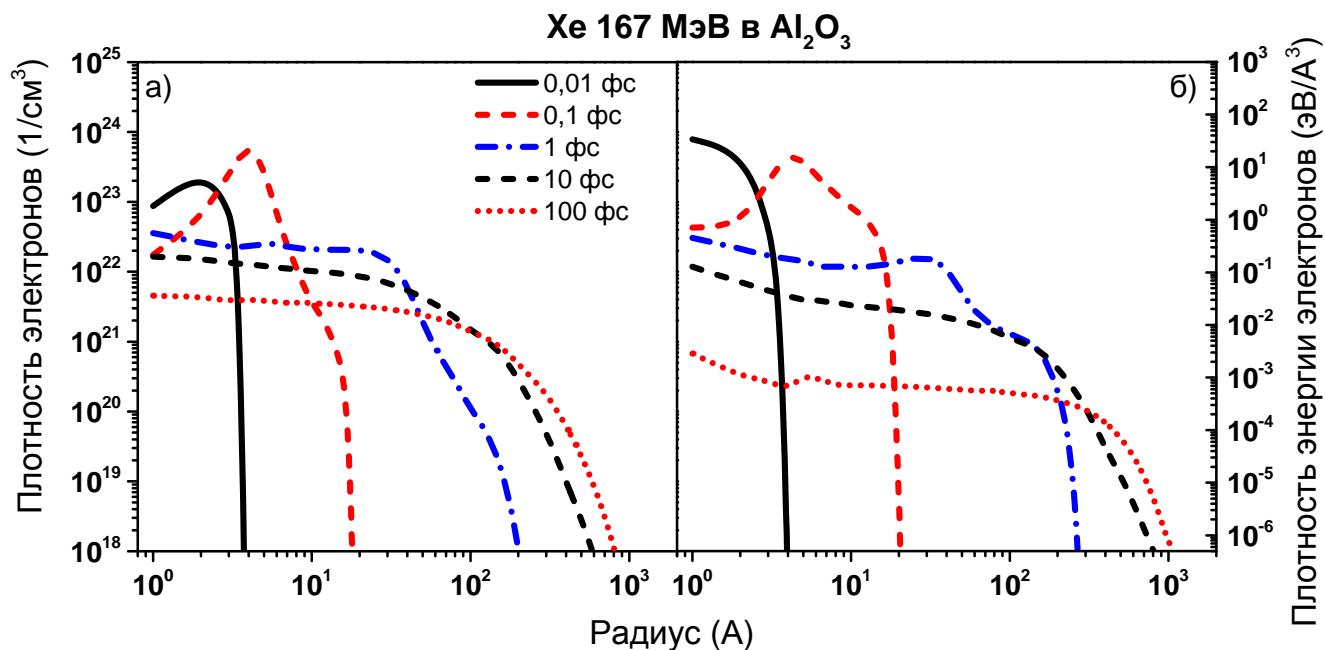


Рис. 2.8 Радиальная зависимость (а) плотности электронов и (б) их энергий в треке иона Хе с энергией 167 МэВ в оксиде алюминия.

На Рис. 2.9а приведены рассчитанные спектры электронов в треке иона Вi с энергией 700 МэВ в Al₂O₃. В низкоэнергетической области можно наблюдать пик в спектре на энергиях ~20 эВ, который образуется в результате распада плазмонов валентной зоны и генерации большого числа электронов примерно одинаковой энергии. Этот пик отвечает за формирование второго фронта, который обсуждался в предыдущем абзаце. Рис. 2.9б демонстрирует распределение сгенерированных в треке электронов по зенитному углу. Так как масса иона во много раз больше массы электрона, то угол вылета электрона при столкновении близок к 90°, что хорошо видно на Рис. 2.9б.

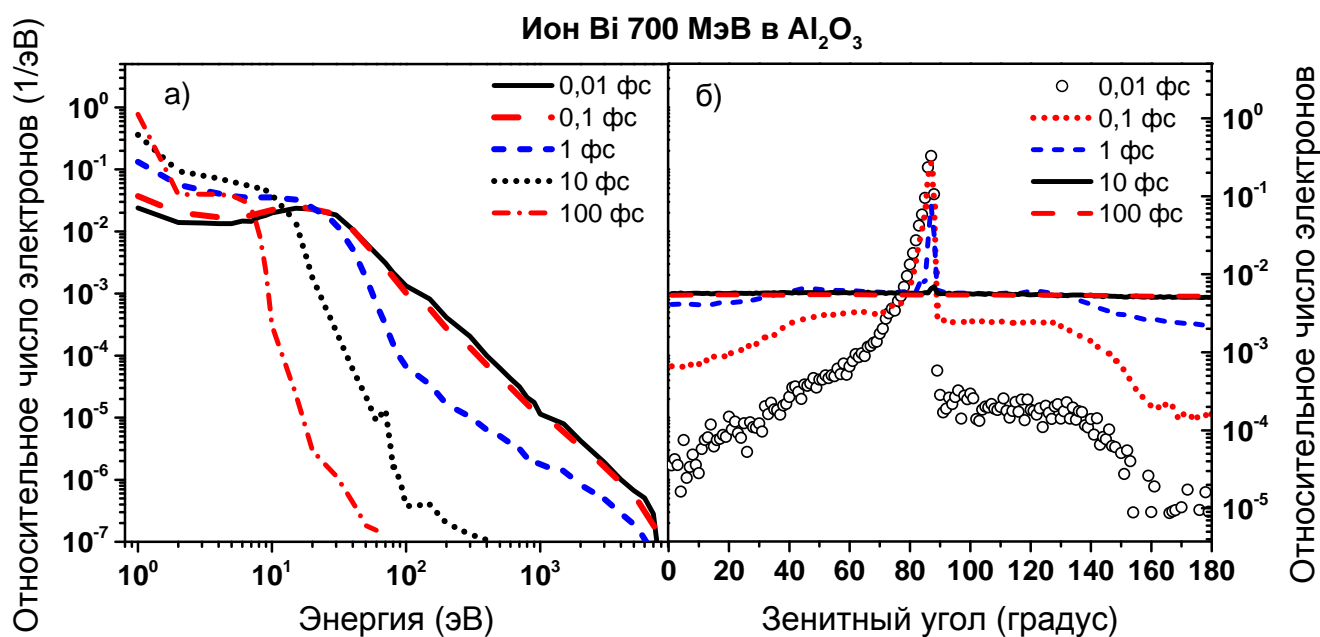


Рис. 2.9 Спектр выбитых электронов (а) и их распределение по зенитному углу (б) на различных временах после пролета иона висмута с энергией 700 МэВ.

Распространение электронов в среде может носить баллистический или диффузионный характер [75]. В случае баллистического разлета, дистанция разлета пропорциональна времени ($x \sim t$), и в этом случае электроны распространяются от центра трека, практически не испытывая никаких взаимодействий. Баллистический характер движения электронов на начальных стадиях образования трека не может быть описан обычным диффузионным уравнением.

В случае диффузионного распространения, многократное взаимодействие электронов с системой рассеивателей приводит к тому, что средняя дистанция, которую проходит электрон за промежуток времени, становится пропорциональна квадратному корню времени разлета ($x \sim \sqrt{t}$).

Хорошо видно, что спектры первичных электронов на 0,01 фс и 0,1 фс практически полностью совпадают (Рис. 2.9а), то есть энергия электронов до 0,1 фс остается неизменной. Так же можно наблюдать на Рис. 2.9б что на этих

временах сохраняется выделенное направление движения электронов, из чего следует, что на этих временах быстрые электроны разлетаются баллистически, не успевая взаимодействовать с электронной подсистемой вещества.

Разлет электронов на временах до 1 фс носит смешанный баллистический и диффузионный характер, так как к этому моменту времени электроны низких энергий начинают взаимодействовать с электронной подсистемой материала (распространяться диффузионно), значительно изменяя распределение концентрируемой в них кинетической энергии и направление их движения относительно траектории иона.

Для времен ≥ 10 фс, многократное взаимодействие приводит к практически однородному распределению свободных электронов по углам, кроме самых высокоэнергетических электронов, которые к этому моменту успевают преодолеть несколько десятков нанометров от центра трека и доля которых мала.

Базируясь на приведенных результатах, можно утверждать, что макроскопические уравнения, в т.ч. уравнение диффузии тепла для электронной подсистемы, используемое в модели термической вспышки [24], не могут применяться для описания распространения избыточной энергии электронной подсистемы до времен меньших ~ 10 фс. Т.е. 10 фс это наиболее интересный момент времени с точки зрения дальнейшего применения результатов моделирования кинетики электронной подсистемы в моделях, описывающих передачу энергии из электронной подсистемы материала в ионную.

2.3.2. Кинетика дырок валентной зоны

На Рис. 2.10 показаны сравнения плотностей валентных дырок и ионизованных электронов для расчетов с подвижными и неподвижными дырками на различных временах. Можно видеть, что учет пространственного перераспределения дырок не влияет на кинетику распространения сгенерированных электронов, поскольку в представленной модели не учтено взаимодействие между возбужденными носителями заряда. Еще одной причиной

такого поведения является то, что дырки не способны ионизовать атомы Al_2O_3 , как обсуждалось в разделе 2.2.4.

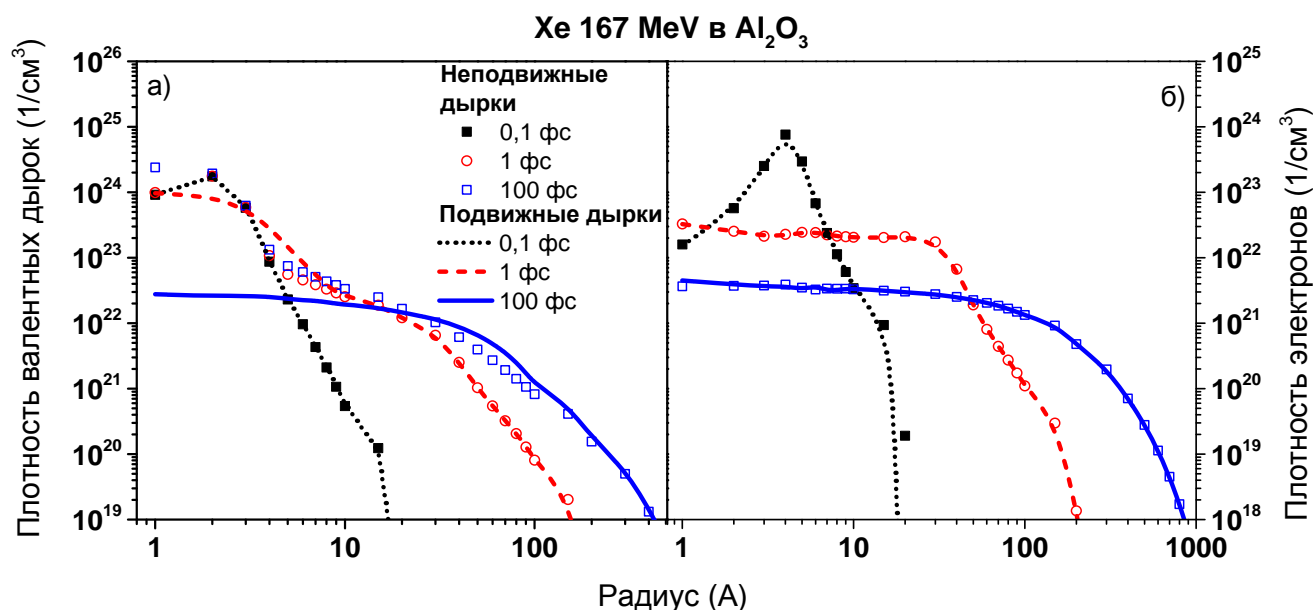


Рис. 2.10 Радиальная зависимость (а) плотности валентных дырок и (б) выбитых электронов на различных временах в треке иона Хе с энергией 167 МэВ в Al_2O_3 .

Однако можно видеть, что распространение дырок приводит к значительному изменению их плотности на расстоянии до 10 нм, что очень важно для кинетики трека БТИ, так как это типичные размеры поврежденной области.

Как известно из эксперимента [16, 31], пролет иона ксенона с энергией 167 МэВ в оксиде алюминия приводит к формированию поврежденной цилиндрической области с поперечным размером около 1,5-2 нм. На Рис. 2.11 (незакрашенные точки) можно видеть, что энергии вносимой электронами в решетку недостаточно для формирования структурно-фазовых изменений, наблюдаемых экспериментально. Даже на временах полного остывания электронной подсистемы (~100 фс), плотность избыточной энергии решетки на характерных радиусах треков (до 10 Å) составляет ~ 0,01 эВ/Å³, что эквивалентно

температуре решетки в 1000 К и что значительно ниже температуры плавления Al_2O_3 (2345 К [125]).

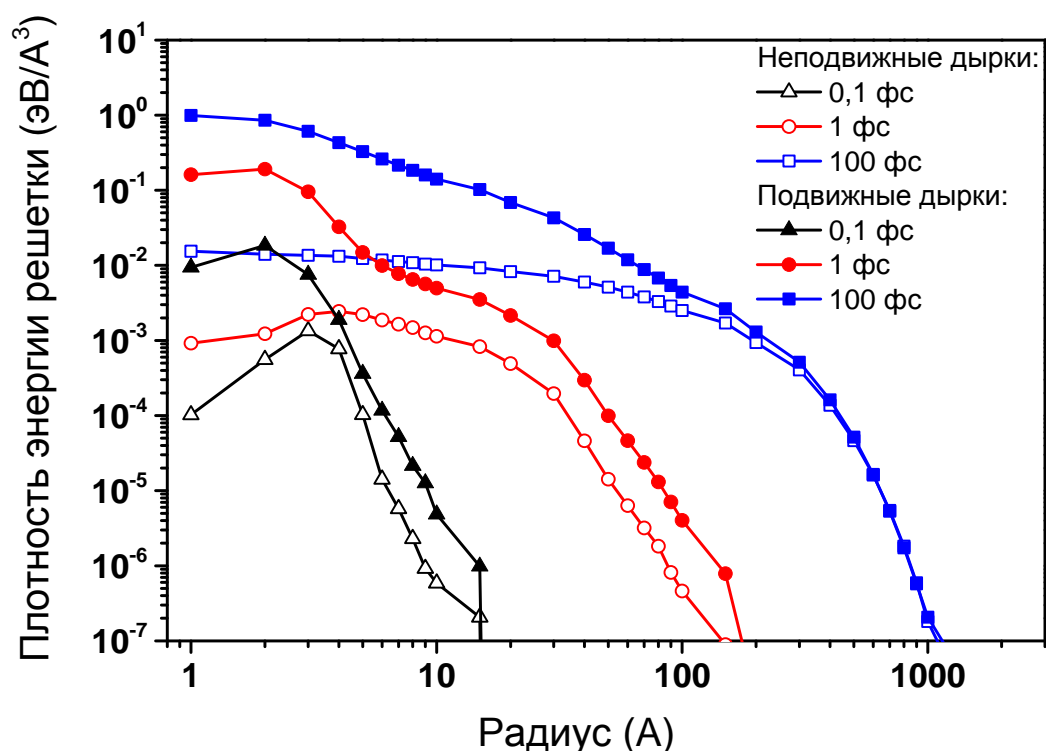


Рис. 2.11 Плотность энергии переданной в ионную подсистему Al_2O_3 после пролета иона Хе с энергией 167 МэВ. Результаты расчетов с подвижными и неподвижными дырками.

Пространственное перераспределение валентных дырок и их взаимодействие с ионной подсистемой материала приводит к более сильному нагреву решетки Рис. 2.11 (закрашенные точки) по сравнению с результатами моделирования с неподвижными дырками. Согласно Рис. 2.12 доля энергии, вносимая дырками в ионную подсистему материала сравнима с долей энергии вносимой делокализованными электронами (17% и 21 % соответственно), причем область наибольшего влияния взаимодействия дырок с решеткой сосредоточена на расстояниях до 10 нм от центра трека (Рис. 2.11).

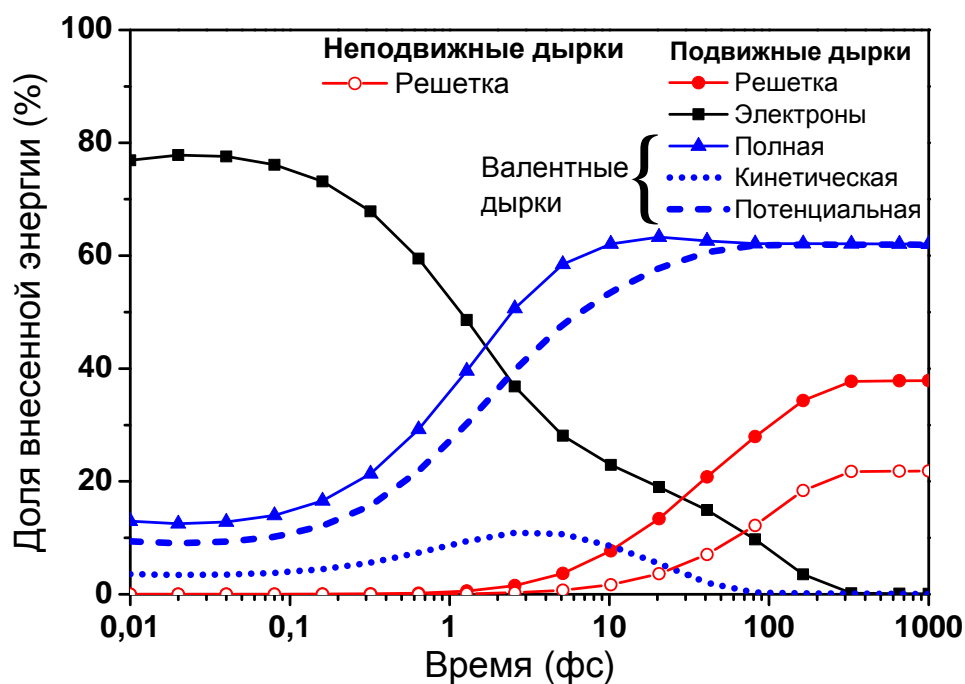


Рис. 2.12 Доля переданной ионом энергии в каждую подсистему оксида алюминия в треке Хе 167 МэВ.

Используя Рис. 2.12 можно отследить временные характеристики кинетики электронной подсистемы материала в треке БТИ. Так можно наблюдать, что ионизационные каскады заканчиваются примерно на временах ~ 50 фс после пролета иона. Об этом свидетельствует выход на насыщение суммарной потенциальной энергии валентных дырок (здесь под потенциальной энергией дырки подразумевается ее потенциал ионизации, для валентной зоны $\text{Al}_2\text{O}_3 - 8,8$ eV), то есть перестают образовываться новые дырки – прекращаются процессы ионизации атомов.

Передача энергии в решетку материала электронами и дырками заканчивается на временах ~ 200 фс, причем взаимодействие дырок с ионной подсистемой длится лишь до 80-100 фс (см. точечную кривую на Рис. 2.12). Стоит отметить, что в настоящей работе не учитываются процессы передачи энергии от решетки материала к делокализованным электронам, и поэтому указанное время ~ 200 фс соответствует состоянию, когда почти все возбужденные электроны

материала находятся в нижайших энергетических состояниях зоны проводимости и более не обладают избыточной кинетической энергией.

2.3.3. Передача избыточной энергии в ионную подсистему

Комплексная диэлектрическая функция, восстановленная из экспериментов по фотопоглощению, включает в себя пики на энергиях ниже 0,1 эВ (см. Рис. 2.2), которые соответствуют взаимодействию с оптическими фононами. Используя эти данные, были рассчитаны сечения упругого взаимодействия электронов и дырок валентной зоны с оптическими фононами и использованы в МК процедуре в качестве возможного канала рассеяния заряженных частиц.

Рассеяние свободных электронов на решётке с возбуждением коллективных колебательных мод (оптических фононов) значительно влияет на кинетику распространения электронов. Поэтому, учет этого канала рассеяния ускоряет переход от баллистического движения к диффузионному, за счет того что при рассеянии на ионной подсистеме материала может сильно изменяться импульс электрона. На Рис. 2.13 показано распределение свободных электронов по углам θ_e , рассчитанное с учетом взаимодействия с ионной подсистемой материала (нижняя панель) и без этого взаимодействия (верхняя панель) на временах 10 и 100 фс. Здесь θ_e это угол между импульсом электрона и траекторией иона.

Можно наблюдать, что доля электронов, имеющих выделенное направление движения ($\theta_e \sim 90^\circ$) на временах 10-100 фс значительно меньше в том случае, когда электроны испытывают рассеяние на решетке материала. Выделенным направлением движения ($\theta_e \sim 90^\circ$) обладают первичные δ -электроны, сгенерированные непосредственно ионом. Так как масса иона намного больше массы электрона, то при взаимодействии направление импульса выбитого электрона будет составлять угол $\theta_e \sim 90^\circ$ к траектории иона.

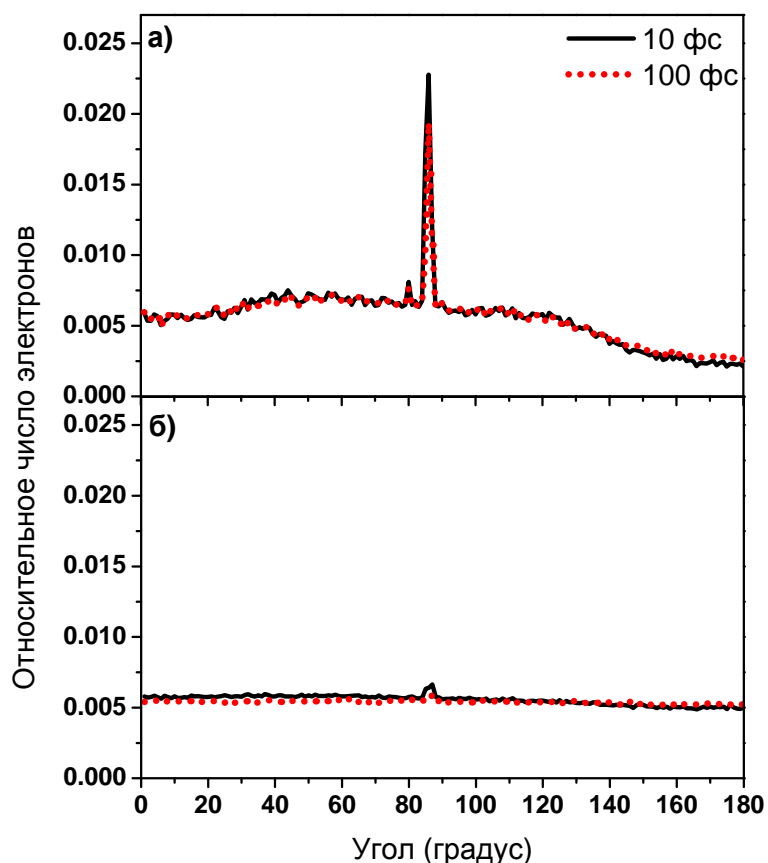


Рис. 2.13 Угловое распределение свободных электронов в треке БТИ в оксиде алюминия: (а) рассчитанное без учета взаимодействия с решеткой и (б) с учётом этого взаимодействием на временах 10 и 100 фс. Распределение нормировано на полное количество электронов.

Характерные времена атомных осцилляций составляют $\sim 10^{-13}$ с [88], и поэтому кинетические процессы в электронной и ионной подсистемы можно разделить во времени и моделировать последовательно. Принимая во внимание этот факт, в рассматриваемой модели возбуждения и релаксации электронной подсистемы TREKIS предполагалось, что на временах до 100 фс избыточная энергия в решетке не релаксирует, а только накапливается.

На Рис. 2.14 показано радиальное распределение избыточной энергии, переданной свободными электронами и дырками в ионную подсистему Al_2O_3 на

временах 100 фс после пролета иона, к моменту завершения основных процессов, связанных с этой передачей, (см. Рис. 2.12 и его обсуждение).

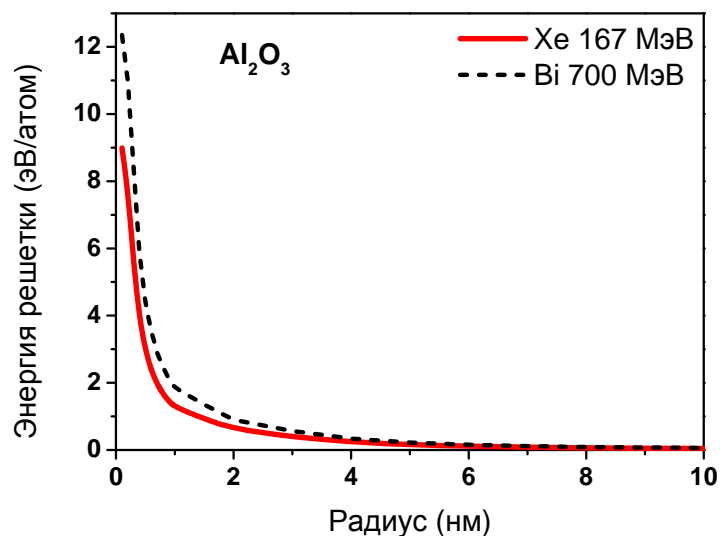


Рис. 2.14 Избыточная энергия ионной подсистемы оксида алюминия на временах 100 фс после пролета ионов Xe с энергией 167 МэВ и Bi с энергией 700 МэВ.

В распределении энергии возбуждения решетки оксида алюминия, показанном на Рис. 2.14 не учтена избыточная потенциальная энергия, накопленная валентными дырками. Эта энергия представляет собой разность энергий невозбужденного атомного состояния и его ионизованного состояния, при котором валентный электрон находится на дне зоны проводимости (равна ширине запрещенной зоны E_{gap}). Механизмом релаксации такой энергии может выступить испускание фотонов, которые затем могут взаимодействовать с решеткой, или прямая передача энергии в ионную подсистему материала. В настоящей работе сделана первичная попытка учета подобного механизма путем мгновенной передачи избыточной потенциальной энергии дырок в решетку материала. Суммарная плотность энергии ионной подсистемы материала показана на Рис. 2.15. Эти данные были в дальнейшем использованы при моделировании

релаксации атомной подсистемы материала в треке методами молекулярной динамики.

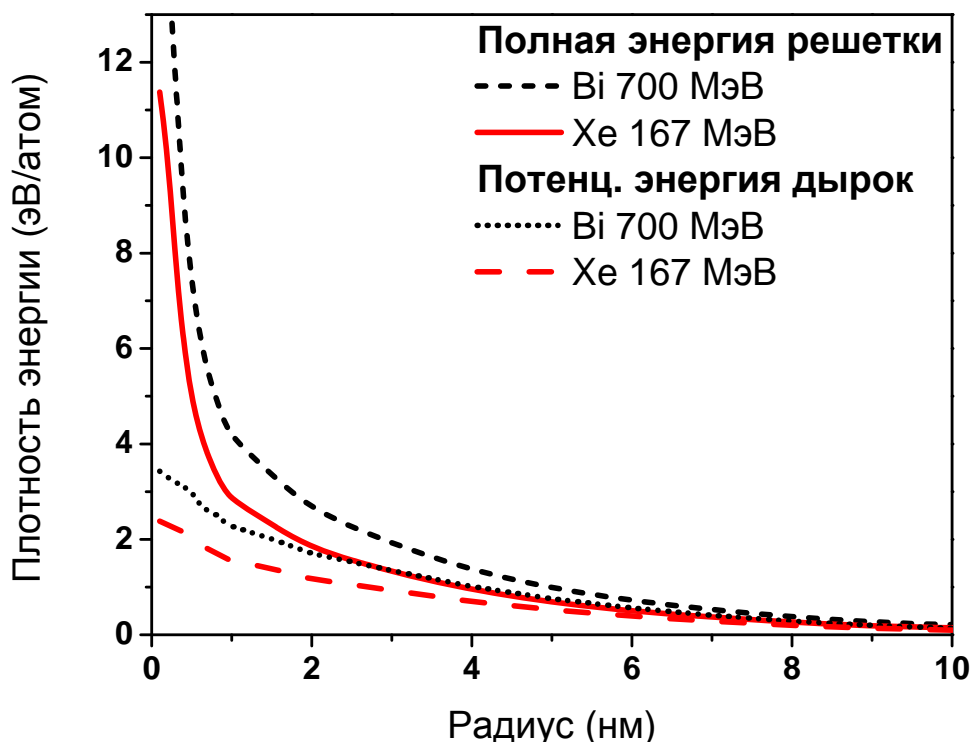


Рис. 2.15 Избыточная энергия ионной подсистемы оксида алюминия после пролета ионов Хе с энергией 167 МэВ и Ви с энергией 700 МэВ с учетом потенциальной энергии, накопленной в валентных дырках.

Заключение к Главе 2.

В Главе 2 представлена разработанная Монте-Карло модель возбуждения и релаксации электронной подсистемы, основанная на формализме комплексной диэлектрической функции и динамического структурного фактора, который автоматически учитывает коллективную реакцию материала на внешнее возмущение.

С помощью разработанной модели Монте-Карло:

1. Рассчитаны сечения взаимодействия заряженных частиц с твердым телом, потери энергии и свободные пробеги до упругого и неупругого

столкновений. Сравнением с существующими моделями и базами данных показана применимость использованного подхода и приближений.

2. Получены и проанализированы пространственно-временные распределения быстрых электронов и валентных дырок, а так же их энергии и импульса, в треках ионов висмута (700 МэВ) и ксенона (167 МэВ) в Al_2O_3 .
3. При моделировании временной кинетики возбуждения электронной подсистемы в треке было обнаружено распространение двух фронтов быстрых электронов.
4. Исследована временная кинетика и определены характерные времена процессов, происходящих в треках БТИ: каскады ионизации заканчиваются на временах ~ 50 фс, процессы передачи энергии в решетку - $\sim 150-200$ фс.
5. Показано, что баллистическое распространение электронов, сгенерированных тяжелым ионом высокой энергии ограничивает применимость термодиффузионных уравнений временами < 10 фс.
6. Исследовано влияние пространственного перераспределения валентных дырок на кинетику возбуждения и релаксации электронной подсистемы, продемонстрирована важность этого процесса для описания передачи энергии в ионную подсистему материала.
7. Исследовано взаимодействие электронов и валентных дырок с ионной подсистемой материала и рассчитаны радиальные распределения избыточной энергии в решетке оксида алюминия к моменту остывания электронной подсистемы. Эти распределения затем будут применяться для описания структурно-фазовых превращений методами молекулярной динамики.

Глава 3. Моделирование релаксации ионной подсистемы в треке БТИ методами молекулярной динамики

В настоящей главе исследуется релаксация возбуждения ионной подсистемы материала в треке БТИ методами классической молекулярной динамики с использованием результатов применения МК модели (TREKIS). Моделирование применялось для проверки разработанной модели возбуждения электронной подсистемы TREKIS путем сравнения расчетных структурных повреждений, вызванных пролетом иона, с экспериментальными данными просвечивающей электронной микроскопии.

3.1. Молекулярная динамика в треке БТИ

Классическая молекулярная динамика (МД) представляет собой подход, в котором временная эволюция системы взаимодействующих атомов отслеживается интегрированием их уравнений движения. Межатомное взаимодействие обычно представляется в виде классических парных потенциальных сил.

Методы молекулярной динамики широко применяются для описания структурно-фазовых изменений, вызываемых в материалах облучением БТИ (например, [10, 19, 25, 55, 126]). Для использования данного подхода, прежде всего, необходимо реализовать следующие этапы: а) построить систему атомов, которая будет отражать кристаллическую структуру исследуемого материала и его основные свойства; б) охарактеризовать внешнее начальное воздействие на материал и (в) отследить кинетику релаксации материала.

Первый этап включает в себя задание позиций атомов материала с учетом особенностей структуры и симметрии кристалла. На данном этапе может использоваться как идеальная структура, так и содержащая в себе дефекты. Кроме этого, необходимо выбрать адекватную модель для качественного и количественного описания сил межатомного взаимодействия, которая отражала бы свойства реального кристалла.

Характерным подходом для второго этапа является описание возбуждения электронной подсистемы, ее релаксации и передачи энергии в решетку в рамках одной из моделей, описанных в Главе 1. В качестве входных данных зачастую используется модель термического пика [19, 55, 126]. МД применяется для отслеживания релаксации внесённой избыточной энергии ионной подсистемы.

В настоящей работе начальные данные для метода молекулярной динамики (использовался пакет LAMMPS [29, 127]) были получены в результате применения модели Монте-Карло (TREKIS), описывающей возбуждение и релаксацию электронной подсистемы, а также передачу энергии в решетку в рамках формализма динамического структурного фактора и комплексной диэлектрической функции, которая автоматически учитывает коллективную реакцию мишени на внешнее воздействие. Модель описывается в Главе 2.

3.1.1. Структура оксида алюминия

В данной работе при описании структурно-фазовых изменений в треке БТИ использовалась структура корунда (α -Al₂O₃) оксида алюминия. Стоит отметить, что образцы с такой же структурой облучались быстрыми тяжелыми ионами в экспериментах [16, 31].

Корунд обладает тригональной сингонией с пространственной группой R-3c. Кристаллическая решетка состоит из ионов Al³⁺ и O²⁻. Ионы кислорода формируют искаженную гексагональную плотную упаковку, а катионы алюминия занимают 2/3 октаэдрических пустот [128, 129].

В работе использовалась гексагональная ячейка с параметрами (4,759 4,759 12,991 90 90 120) [128]. После минимизации энергии параметры элементарной ячейки составили $a = 4,758$ А, $c = 12,989$ А, длина кратчайшей связи между атомами Al и O равнялась 1,846 А (экспериментальное значение 1,852 А [130]). Описанная выше элементарная ячейка затем была использована для построения нескольких ортогональных суперячеек с размерами $9,4 \times 9,8 \times 7,7$ нм³ (86400 атомов), $18,8 \times 12,2 \times 5,25$ нм³ (144400 атомов). Пример последней ячейки приведен

на Рис. 3.1а. Ось X здесь соответствует направлению [100], Y – [120], Z – [001] гексагональной элементарной ячейки (Рис. 3.1б).

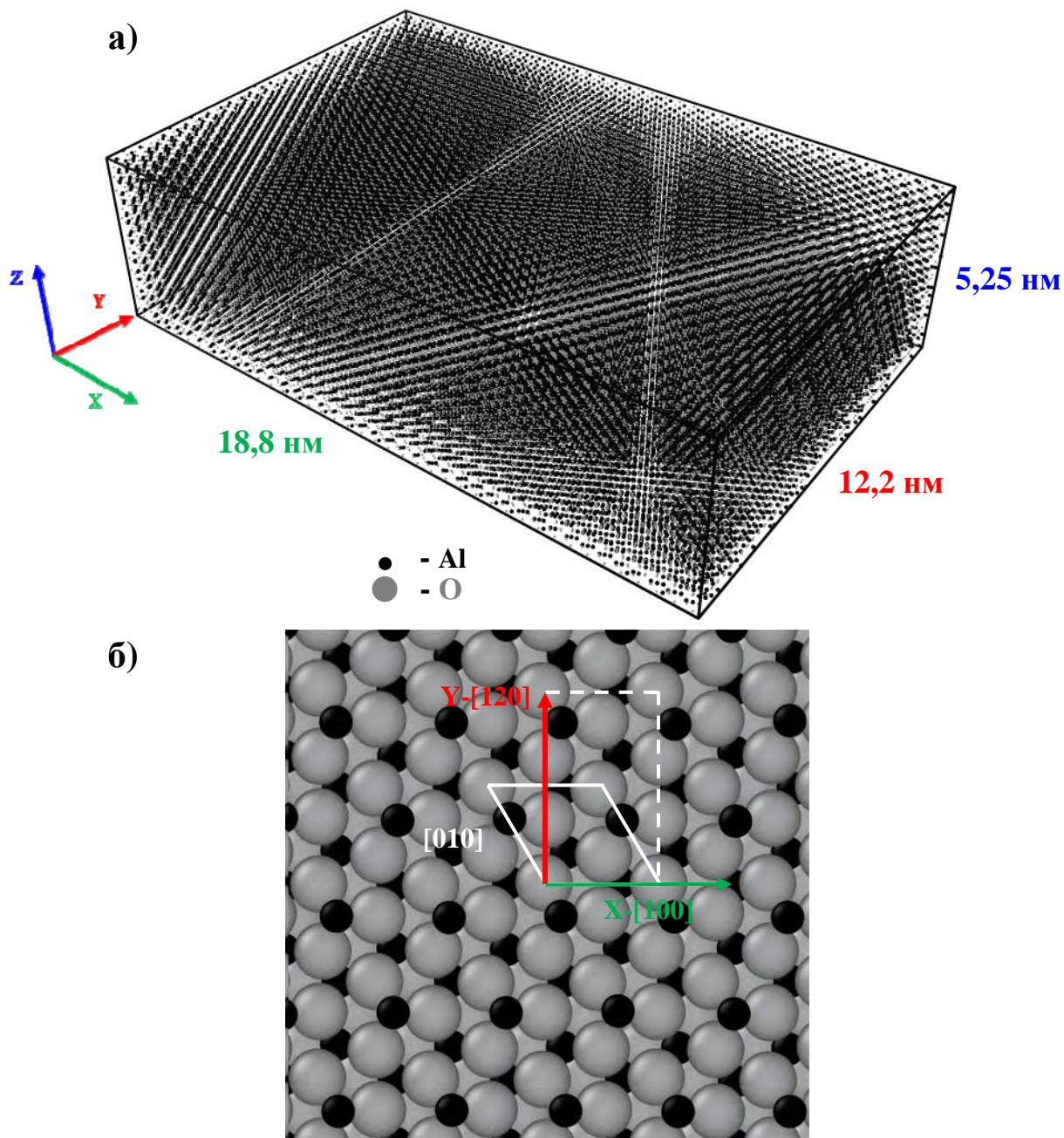


Рис. 3.1 а) Суперячейка Al_2O_3 , использованная для моделирования пролета БТИ, б) Структура оксида алюминия. Белыми сплошными линиями выделена гексагональная элементарная ячейка. Штрихованная линия соответствует ортогональной ячейке.

3.1.2. Межатомный потенциал Al_2O_3

Межатомная связь в оксиде алюминия носит преимущественно ионный характер (~80%), дополняемый ковалентными связями (~20%) [128]. Поэтому для моделирования сил межатомного взаимодействия в этом материале удобно использовать парный потенциал вида

$$V(r_{ij}) = \frac{q_i q_j}{r_{ij}} - \frac{C_{ij}}{r_{ij}^6} + A_{ij} \cdot e^{-\frac{r_{ij}}{\rho_{ij}}} \quad 3.1$$

Первый член описывает кулоновское взаимодействие между двумя атомами с зарядом q_i и q_j , находящимися на расстоянии r_{ij} . Второй соответствует притяжению Ван-Дер-Ваальса, а третий - энергии отталкивания между атомами на малых расстояниях за счет принципа Паули. Второй и третий члены так же носят название потенциала Букингема (Buckingham) [131]. Для определения коэффициентов C_{ij} , A_{ij} , ρ_{ij} обычно используется подгонка свойств моделируемого кристалла под экспериментально наблюдаемые величины, такие как параметры решетки и ее структура, длины межатомных связей, модуль упругости, упругие константы, температуру плавления и т.д.

Параметры потенциала межатомного взаимодействия оксида алюминия в виде (3.1) были взяты из [30]. Согласно этой работе коэффициенты C_{ij} , A_{ij} , ρ_{ij} подгонялись таким образом, чтобы хорошо описывать структуру оксида алюминия (корунд, $\alpha-Al_2O_3$), параметры решетки, объемный модуль упругости и длины межатомных связей.

Для дополнительной проверки качества потенциала, в настоящей работе также были определены упругие постоянные оксида алюминия и температура плавления, которые затем сравнивались с экспериментальными значениями.

На Рис. 3.2 показан результат моделирования равномерного нагрева ячейки оксида алюминия, межатомное взаимодействие в котором описывалось потенциальными силами в виде выражения (3.1) с коэффициентами из [30].

Ячейка, содержащая ~7500 атомов, нагревалась в течение 500 пс до температуры 3500 К при постоянном давлении. Линейный рост относительного объема ячейки при увеличении температуры от 0 до ~2500 К соответствует тепловому расширению твердого тела. В области ~2600 К объем резко увеличивается, что свидетельствует о фазовом переходе оксида алюминия в жидкую фазу. Температура фазового перехода ~2600 К, описываемого данным межатомным потенциалом, достаточно хорошо согласуется с экспериментальным значением температуры плавления $T_m = 2345$ К [125], разница составляет ~ 10%.

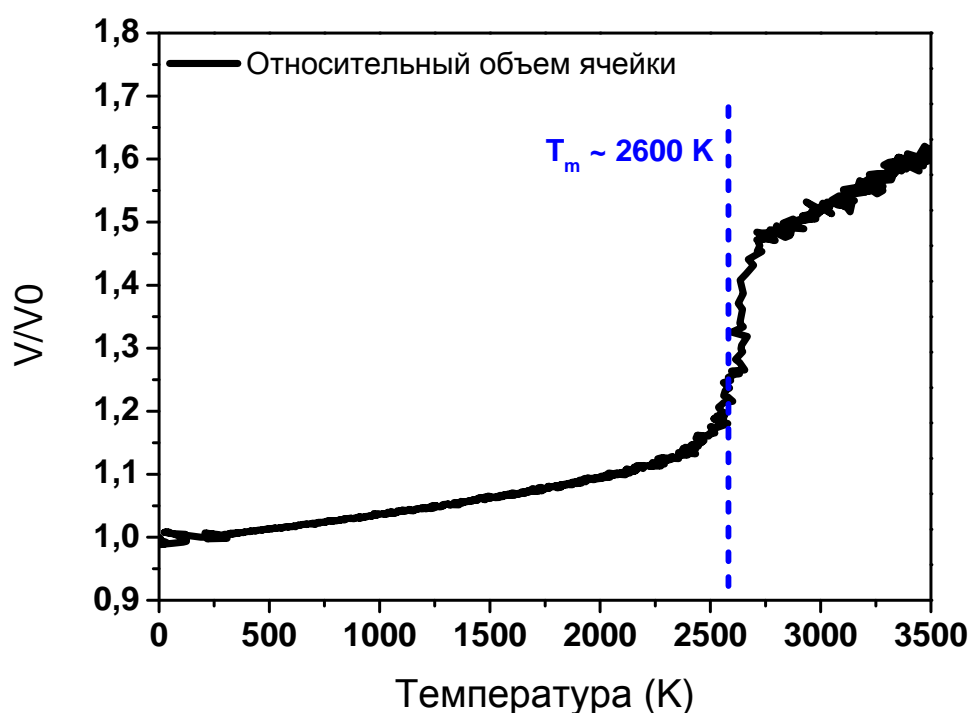


Рис. 3.2 Зависимость относительного объема ячейки от температуры, полученная в результате моделирования. Вертикальной штрихованной линией показана температура плавления.

В Табл. 3.1 приведены расчетные и экспериментальные упругие постоянные оксида алюминия. Результат моделирования также хорошо согласуется с экспериментальными данными, взятыми из работ [132, 133]. Принимая во внимание этот факт, а так же хорошее согласие структурных параметров и температуры плавления с экспериментальными значениями, можно утверждать,

что выбранный потенциал применим для моделирования кристаллического оксида алюминия методами молекулярной динамики.

Табл. 3.1 Сравнение расчетных значений упругих постоянных с экспериментальными данными [132, 133].

Упругие константы	Экспериментальное значение, ГПа	Рассчитанное значение, ГПа
C_{11}	498	473,6
C_{12}	163	181,7
C_{13}	117	150,8
C_{14}	-23	-19,2
C_{33}	502	520,5
C_{44}	147	115,7
C_{66}	167	146,3

Стоит отметить, что в работе не учитывались возможная модификация сил межатомного взаимодействия, которая может быть связана с изменением электронной структуры кристалла при его возбуждении (так называемое нетермическое плавление [134]). Нетермические процессы могут происходить только на очень малых расстояниях от траектории иона ($\sim 1-2 \text{ \AA}$), и только в том случае, если высокий уровень возбуждения электронной подсистемы среды будет сохраняться достаточно длительное время, чтобы вызвать значительное изменение межатомного потенциала [135].

Классические потенциальные силы в виде (3.1) с коэффициентами из [30] были применены к построенным кристаллитам (см. раздел 3.1.1.) для минимизации полной энергии системы атомов. Полученные ячейки затем выдерживались при комнатной температуре в течение 50 пс для воссоздания структуры образца при условиях близких к условиям облучения.

3.1.3. Моделирование воздействия БТИ

В настоящей работе воздействие быстрого тяжелого иона на оксид алюминия моделировалось следующим образом:

1. В рамках МК модели было получено радиальное распределение плотности энергии ионной подсистемы в треке ко времени 100 фс после пролёта иона (Рис. 2.14) .
2. Избыточная энергия решетки затем распределялась между атомами в цилиндрических слоях в рамках распределения Гаусса со средней энергией в слое соответствующей точкам кривой на Рис. 2.14.
3. Полученный кристаллит с распределением скоростей атомов затем использовался в МД моделировании для отслеживания релаксации возбуждения ионной подсистемы оксида алюминия (Рис. 3.3).

Динамика атомов отслеживалась в рамках микроканонического ансамбля при помощи свободно распространяемого МД пакета LAMMPS [29, 127]. В качестве выходных данных были получены координаты атомов и их скорости, относительные смещения атомов, напряжения, приходящиеся на один атом. Для визуализации выходных данных программы молекулярной динамики использовался пакет OVITO [136].

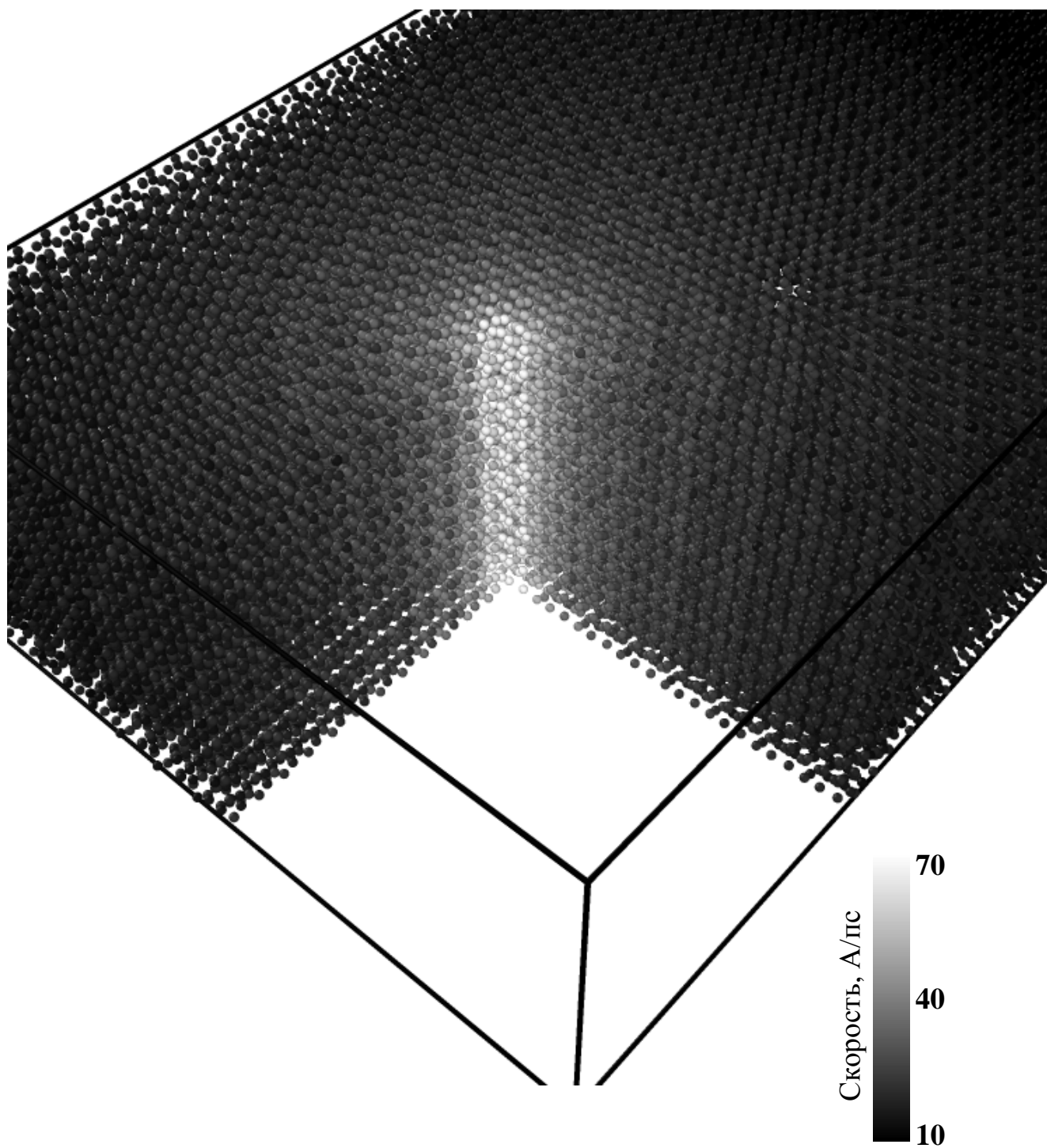


Рис. 3.3 Распределение скоростей атомов в треке иона Хе 167 МэВ на временах 100 фс.

Отслеживание траекторий атомов проводилось вплоть до 50 пс, когда температура ячейки опускалась ниже 350 К и можно было пренебречь эффектами дальнейшего остывания. Крайние 0,5 нм каждой грани ячейки вдоль направлений X и Y охлаждались до комнатной температуры при помощи термостата Берендсена [137], что моделирует отвод тепла от ячейки окружающим материалом.

Траектория иона в моделировании была выбрана параллельно оси c [001] кристалла оксида алюминия, аналогично экспериментальному облучению тяжелыми ионами высоких энергий [16, 138].

Стоит отметить, что подобный подход уже успешно применялся автором для моделирования облучения оливина (Mg_2SiO_4) быстрыми тяжелыми ионами в работах [139, 140]. Эти исследования были выполнены в рамках сотрудничества с ФИАН имени П.Н.Лебедева по изучению механизмов травления треков заряженных частиц больших масс и высоких энергий в метеоритном оливине.

3.2. Структурные изменения, создаваемые БТИ в Al_2O_3

В настоящем разделе приводятся результаты моделирования структурных изменений в нанометрической окрестности траектории БТИ методами молекулярной динамики. Эти результаты анализируются и сравниваются с данными просвечивающей электронной микроскопии образцов [16, 31, 138, 141], которые облучались при нормальных условиях ионами Хе (167 МэВ) и Вi (700 МэВ) на ускорителях ЛЯР ОИЯИ до флюенсов 10^{10} – 10^{13} см⁻².

Исследования с помощью просвечивающей электронной микроскопии проводились в Nelson Mandela Metropolitan University (Порт Элизабет, ЮАР) на микроскопе JEOL ARM-200F. Они включали в себя как наблюдения вдоль траектории иона, так и снимки в перпендикулярном направлении (снимки сечения образцов). Для получения локальных деформаций и напряжений в области трека

использовался геометрический фазовый анализ комплексных электронных волн на выходной поверхности образца [142, 143].

3.2.1. Ион Хе 167 МэВ

На Рис. 3.4а,б показан результат моделирования взаимодействия иона Хе с энергией 167 МэВ с оксидом алюминия, полученный в рамках представленной в данной работе модели. Прохождение иона через материал вызывает формирование прерывистой цилиндрической поврежденной области. Можно наблюдать, что трек не является полностью аморфным, а скорее представляет собой кластеры точечных дефектов, расположенных вдоль траектории иона. Поперечный размер поврежденной трековой области иона Хе, полученный с помощью описанного подхода составляет ~ 1,8 нм,

Согласно данным просвечивающей электронной микроскопии (Рис. 3.4в,г), поврежденная трековая область не является полностью аморфной (см. дифракционные контрасты на Рис. 3.4в), а представляет собой материал с искаженной решеткой. На снимке ПЭМ поперечного сечения образца (Рис. 3.4г) видно, что трек состоит из контрастов округлой формы, которые можно описать как пороподобные области с пониженной плотностью [16]. Размеры этих формирований составляют 1,1-1,3 нм. Поперечный размер трековой области составляет ~ 1,7-1,9 нм [31].

Таким образом, можно заключить, что применение разработанной модели к системе хорошо согласуется с экспериментальными данными из [16, 31, 138] (Рис. 3.4в,г).

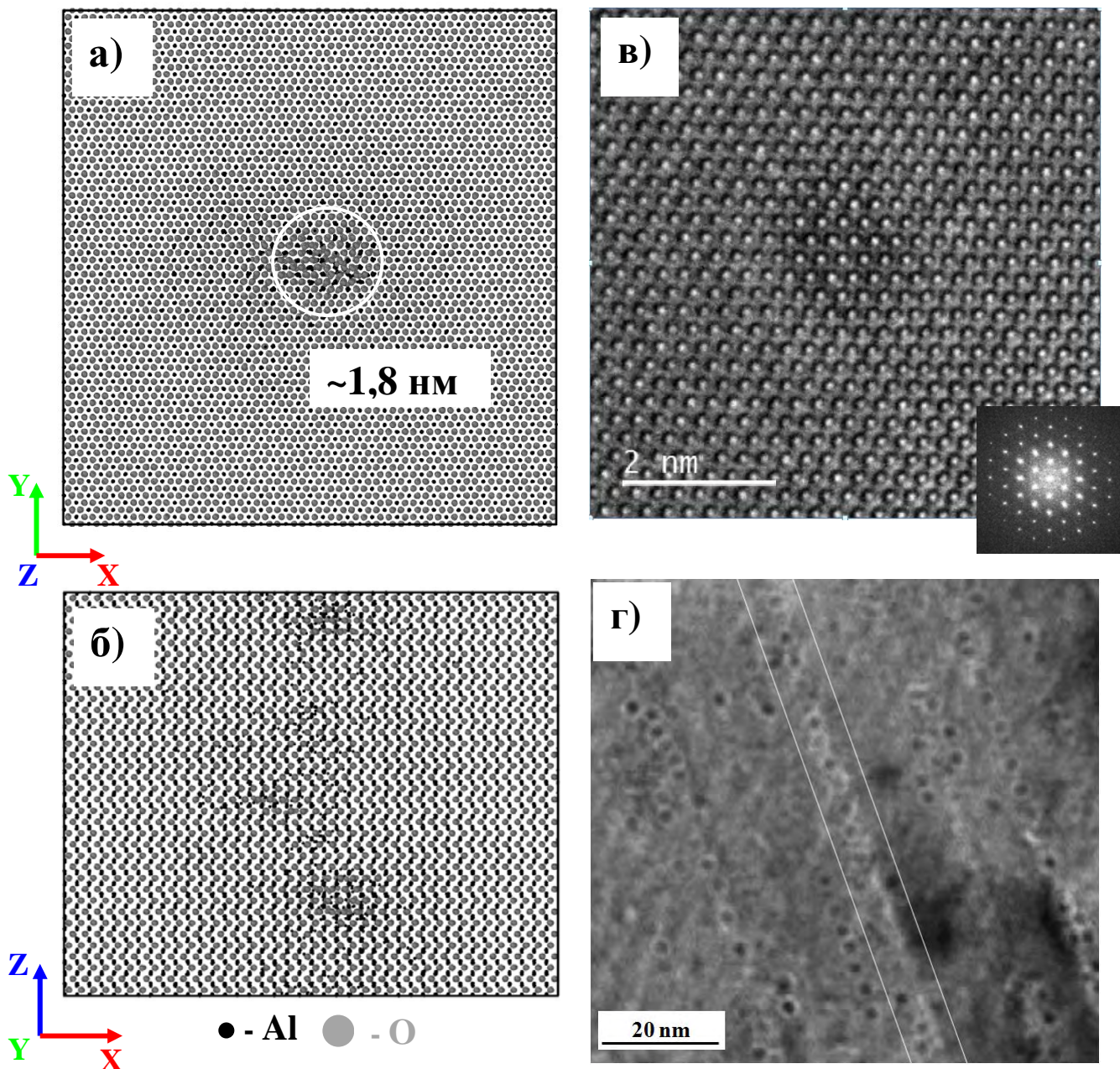


Рис. 3.4 (а) Результат моделирования пролета иона Хе 167 МэВ в Al_2O_3 : проекция вдоль оси Z, (б) проекция вдоль оси Y. Размер кристаллита $9,4 \times 9,8 \times 7,7 \text{ нм}^3$. (в) ПЭМ изображение высокого разрешения вдоль оси c [138], (г) снимок ПЭМ в поперечном направлении [16].

Моделирование модификации плотности оксида алюминия Рис. 3.5а показало, что центральная наиболее поврежденная область диаметром $\sim 1,8 \text{ нм}$ имеет пониженную плотность ($\sim 7\%$). Для оценки плотности материала в области

трека был определен объем ячейки Вороного для каждого атома (пакет Voro++ [144, 145]), что соответствует объему приходящемуся на один атом. Затем плотность материала рассчитывалась в цилиндрических слоях толщиной 0,5 нм путем усреднения плотности материала в объеме одного атома. Стоит отметить, что первая точка на Рис. 3.5а не является достоверной из-за малого количества атомов в соответствующем цилиндрическом слое радиусом 0,1 нм. Полученный результат нормировался на плотность исходного кристалла.

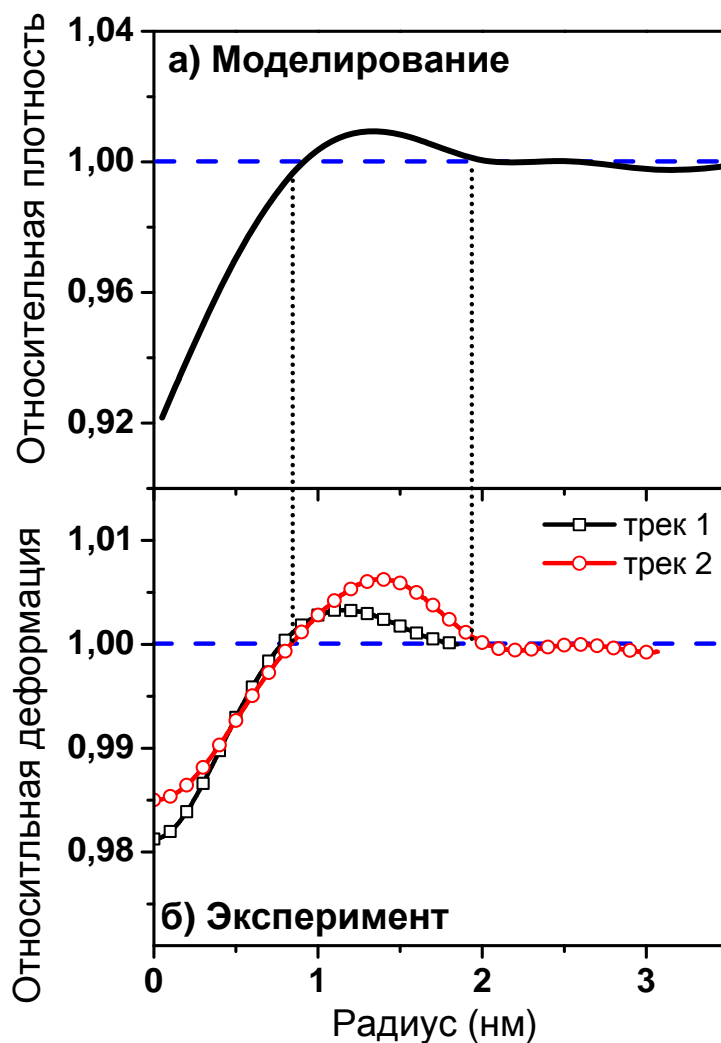


Рис. 3.5 (а) Рассчитанная радиальная зависимость плотности оксида алюминия вокруг траектории иона. (б) Относительная деформация, определенная с помощью анализа снимков ПЭМ [31].

Согласно результатам расчетов, центральная менее плотная область трека окружена оболочкой с повышенной плотностью (~1%) и диаметром ~4 нм. На Рис. 3.5б для сравнения показаны относительные деформации вокруг траектории иона, полученные с помощью фазового анализа изображений ПЭМ [31]. Можно наблюдать, что характерные размеры и магнитуда такой структуры ядро-оболочка хорошо согласуются для расчетных и экспериментальных данных. Для большей наглядности был построен двумерный профиль относительной линейной деформации решетки в области трека (Рис. 3.6), также демонстрирующий наличие структуры ядро-оболочка.

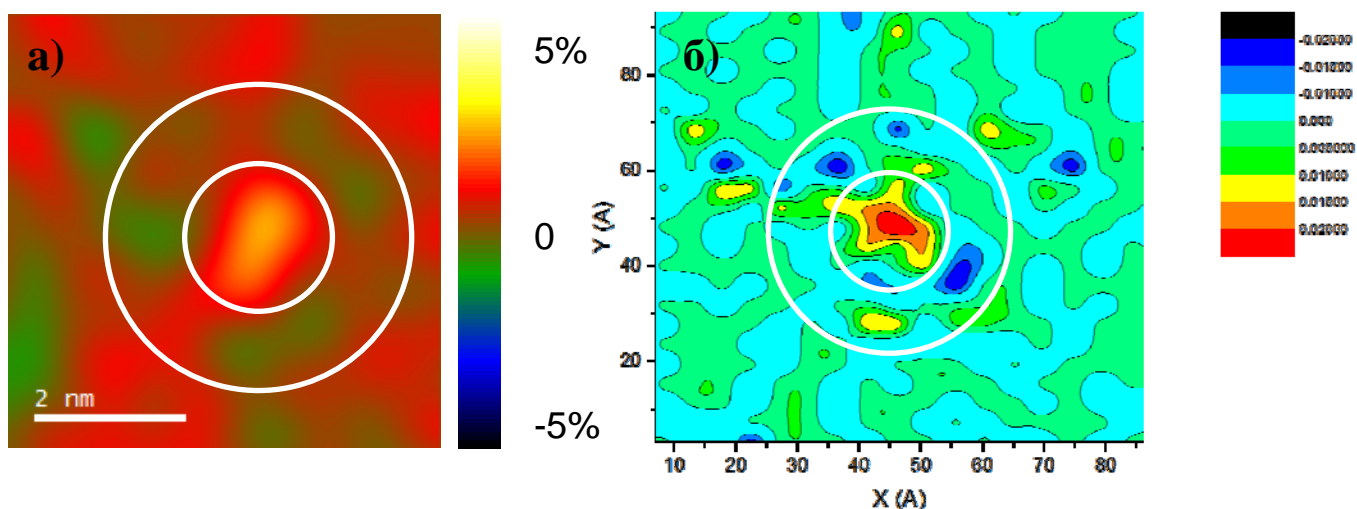


Рис. 3.6 Двумерный график относительной деформации решетки Al_2O_3 вблизи траектории БТИ: (а) экспериментальный, (б) расчетный.

Для определения структуры трековой области был проведен расчет порошковой рентгеновской дифрактограммы (Рис. 3.7) с помощью программы *Debyer* [146] по данным МД моделирования. Для этих расчетов использовалось начальное состояние кристаллита оксида алюминия (исходный кристалл) и конечное состояние после пролета иона ксенона с энергией 167 МэВ (облученный кристалл), которое показано на Рис. 3.4а).

Для сравнения показана экспериментальная дифрактограмма необлученного образца из работы [147]. Можно видеть, что некоторые пики различаются по

высоте в случае экспериментальных и расчетных данных, а также присутствует их небольшое смещение вдоль оси X, что можно объяснить отличием используемого межатомного потенциала от реальных межатомных сил.

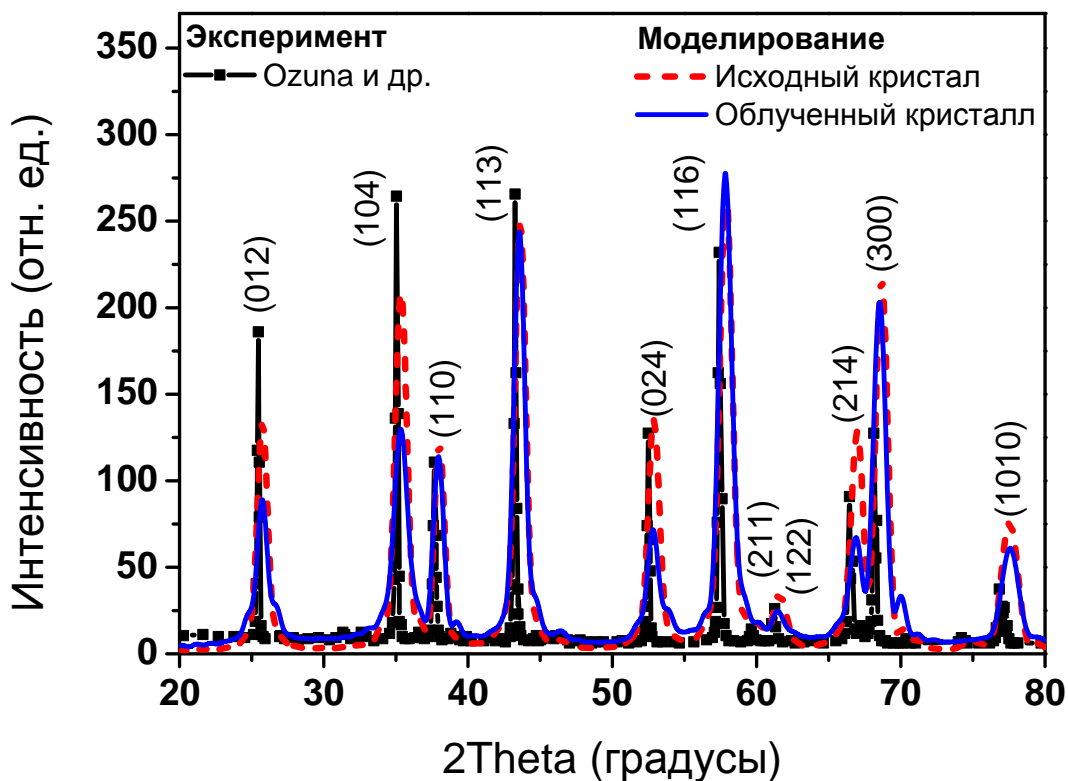


Рис. 3.7 Сравнение расчетной рентгеновской дифрактограммы исходного кристаллита $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ и кристаллита с треком иона Хе 167 МэВ. Так же показана экспериментальная рентгенограмма исходного кристалла из работы Ozuna и др. [147].

Данные моделирования показывают, что облучение быстрыми тяжелыми ионами приводит к погасанию рефлексов (012), (104), (024), (214), которые соответствуют плоскостям подрешетки алюминия. Таким образом, можно утверждать, что подрешетка ионов алюминия в Al_2O_3 повреждается сильнее, чем подрешетка атомов кислорода. Такое поведение можно объяснить наличием свободных октаэдрических пустот в решетке, в которые могут перемещаться атомы алюминия [148]. Как уже говорилось выше, ионы кислорода образуют

искаженную гексагональную плотную упаковку, две трети октаэдрических пустот в которой заняты атомами алюминия [128, 129]. Это согласуется с экспериментальными данными из [148], где было показано что пороговая энергия смещения атомов Al значительно ниже, чем у атомов O.

3.2.2. Ионы Bi, Kr, Fe

На Рис. 3.8 показаны (а) результаты моделирования пролета БТИ и (б) снимки ПЭМ треков иона висмута 700 МэВ [141]. Размер трека, полученный с помощью моделирования, равен ~3 нм, в то время как экспериментальное значение ~3-4 нм [141]. Можно также наблюдать, что материал в области трека поврежден гораздо сильнее, чем для трека иона ксенона. Центральная часть трека имеет структуру близкую к аморфной.

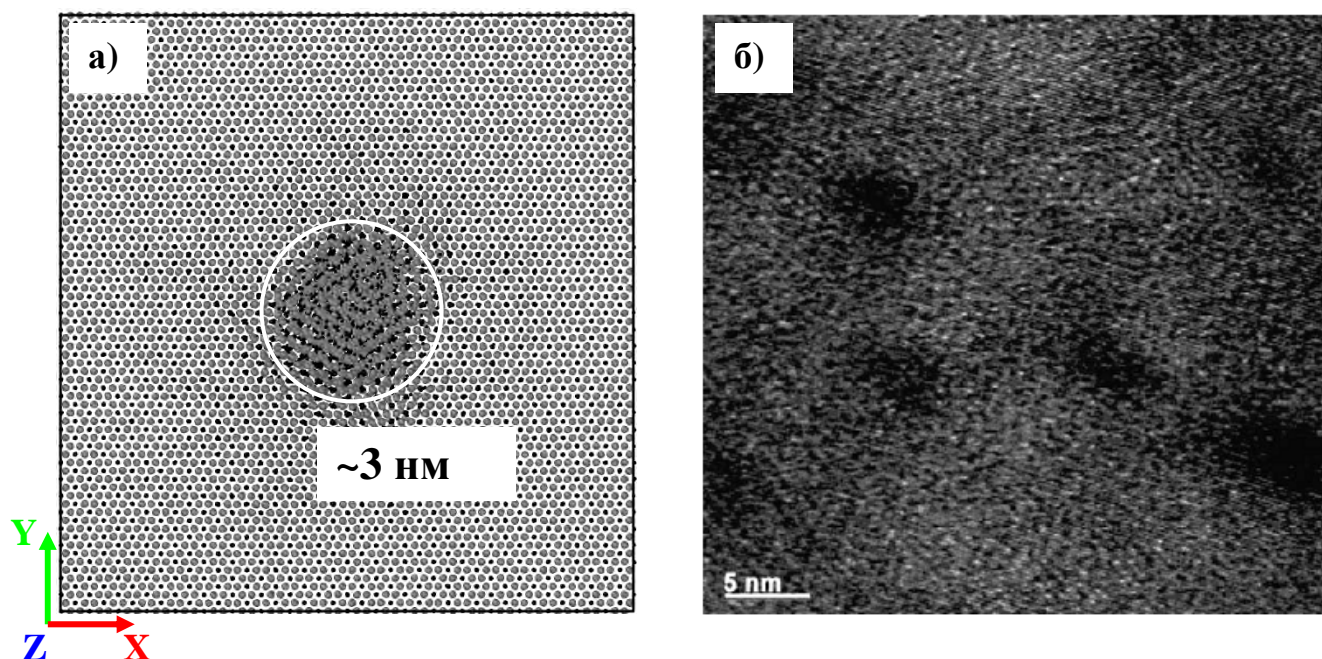


Рис. 3.8 (а) Результат моделирования воздействия иона висмута (700 МэВ) на Al_2O_3 . (б) ПЭМ изображение повреждённого материала вдоль траектории этого иона [141].

Анализ морфологии трека иона висмута в оксиде алюминия затруднен из-за недостаточного количества экспериментальных данных в литературе. Среднее значение диаметра трека согласно Рис. 3.8б и работе [141] составляет примерно 3,5 нм. Так же можно утверждать, что трековая область является преимущественно аморфной, что не позволяет исследовать искажения атомных плоскостей методами геометрического фазового анализа комплексных электронных волн, как это было сделано для иона ксенона.

На Рис. 3.9 показано распределение остаточных напряжений в области трека БТИ, рассчитанное из данных молекулярной динамики оксида алюминия после пролета иона висмута с энергией 700 МэВ. Так же как и в случае с ионом ксенона наблюдается характерная структура ядро-оболочка, когда менее плотная центральная часть трека, окружена более плотной оболочкой.

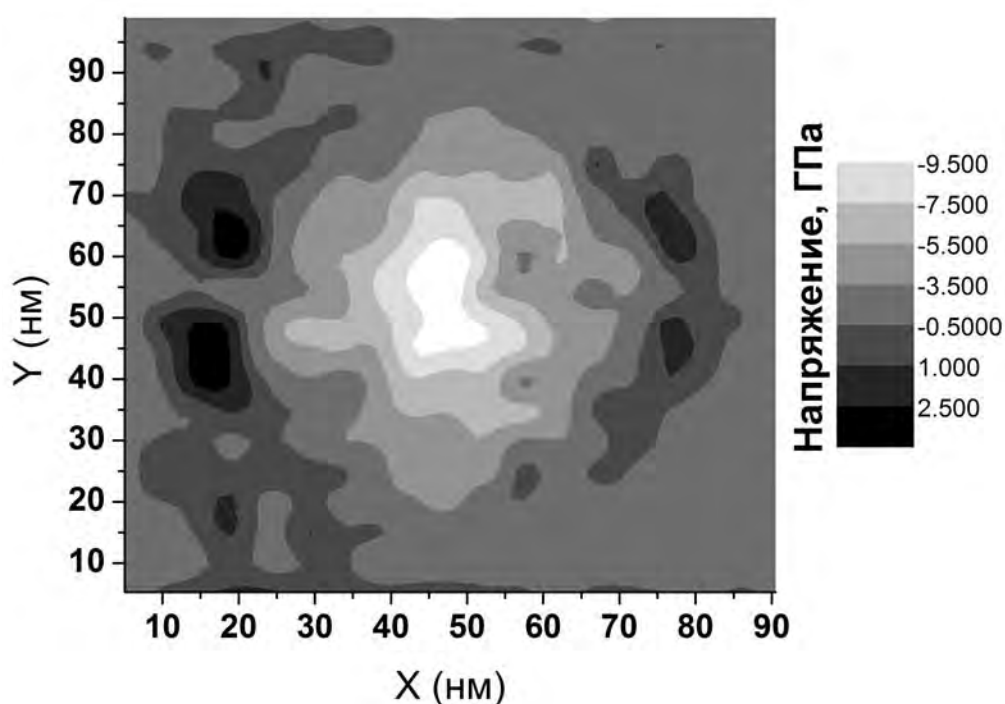


Рис. 3.9 Карта остаточных напряжений в Al₂O₃ после пролета иона Bi с энергией 700 МэВ.

На Рис. 3.10а и Рис. 3.10б показаны структурные изменения, вызываемые прохождением ионов Kr с энергией 107 МэВ и Fe с энергией 22,5 МэВ

соответственно. Пролет иона криптона вызывает формирование цилиндрической поврежденной области с поперечными размерами около 1,25 нм, структура которой схожа со структурой трека иона ксенона.

В случае с ионом железа, образуется поврежденная область с диаметром близким к размеру элементарной ячейки оксида алюминия, вследствие чего точное определение размеров трека затруднено и возможна лишь приблизительная оценка $D \sim 0,5$ нм. Также не представляется ясным, возможно ли обнаружить трек такого размера методами просвечивающей электронной микроскопии.

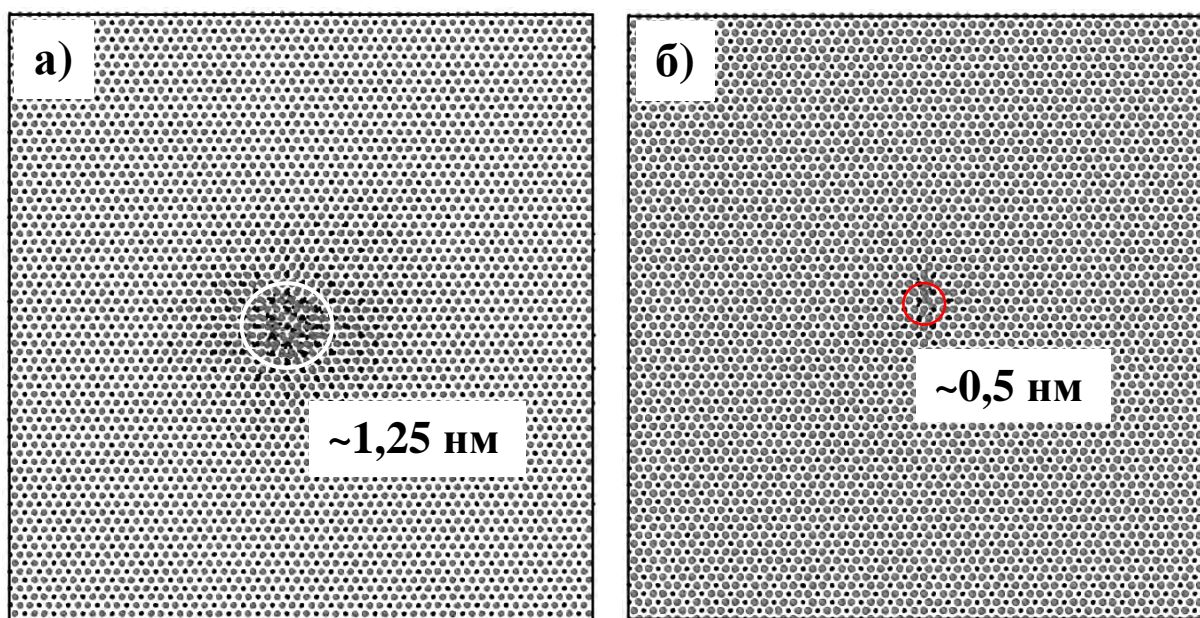


Рис. 3.10 Результат моделирования воздействия ионов (а) Кг с энергией 107 МэВ и (б) Fe с энергией 22,5 МэВ на оксид алюминия.

3.2.3. Кинетика атомной подсистемы

На Рис. 3.11а,б,в,г показана динамика изменения состояния оксида алюминия в окрестности траектории быстрого тяжелого иона. Приведены состояния кристаллита ($9,4 \times 9,8 \times 7,7$ нм³) на временах 1, 10, 15, 20 пс. На Рис. 3.11а можно наблюдать аморфную поврежденную область диаметром ~ 5 нм, которая окружена цилиндрическим слоем с искаженной кристаллической решеткой диаметром

около 7 нм. Однако на более поздних временах, размеры поврежденной области быстро уменьшается – наблюдается эпитаксиальная рекристаллизация материала (в данном случае речь идет о цилиндрических слоях). Финальное состояние системы (50 пс) показано на Рис. 3.4а.

На Рис. 3.11д,е,ж,з показаны порошковые рентгенограммы состояний кристаллита на различных временах, которые также демонстрируют восстановление кристаллической фазы оксида алюминия в треке БТИ.

Такое поведение материала при возбуждении быстрым тяжелым ионом идет в разрез с методом определения радиуса трека по размерам области, в которой достигается температура плавления материала, так как это обычно выполняется в рамках модели термической вспышки, например работы [52, 149]. Полученные данные указывают на то что для определения размеров трека недостаточно знать диаметр расплавленной области, но необходимо знание о кинетике последующей релаксации этой области.

Интересным является вопрос, почему, несмотря на такую способность оксида алюминия к восстановлению структуры, в этом материале все же можно наблюдать поврежденную трековую область. Очевидно, что в области наблюдаемого трека должен достигаться крайне высокий уровень возбуждения, такой, что атомы материала удаляются достаточно далеко от своих первоначальных позиций, формируя скопления точечных дефектов или аморфную структуру. Пороговая величина возбуждения решетки оксида алюминия, требуемая для формирования поврежденной трековой области, оценена в конце следующего раздела настоящей работы.

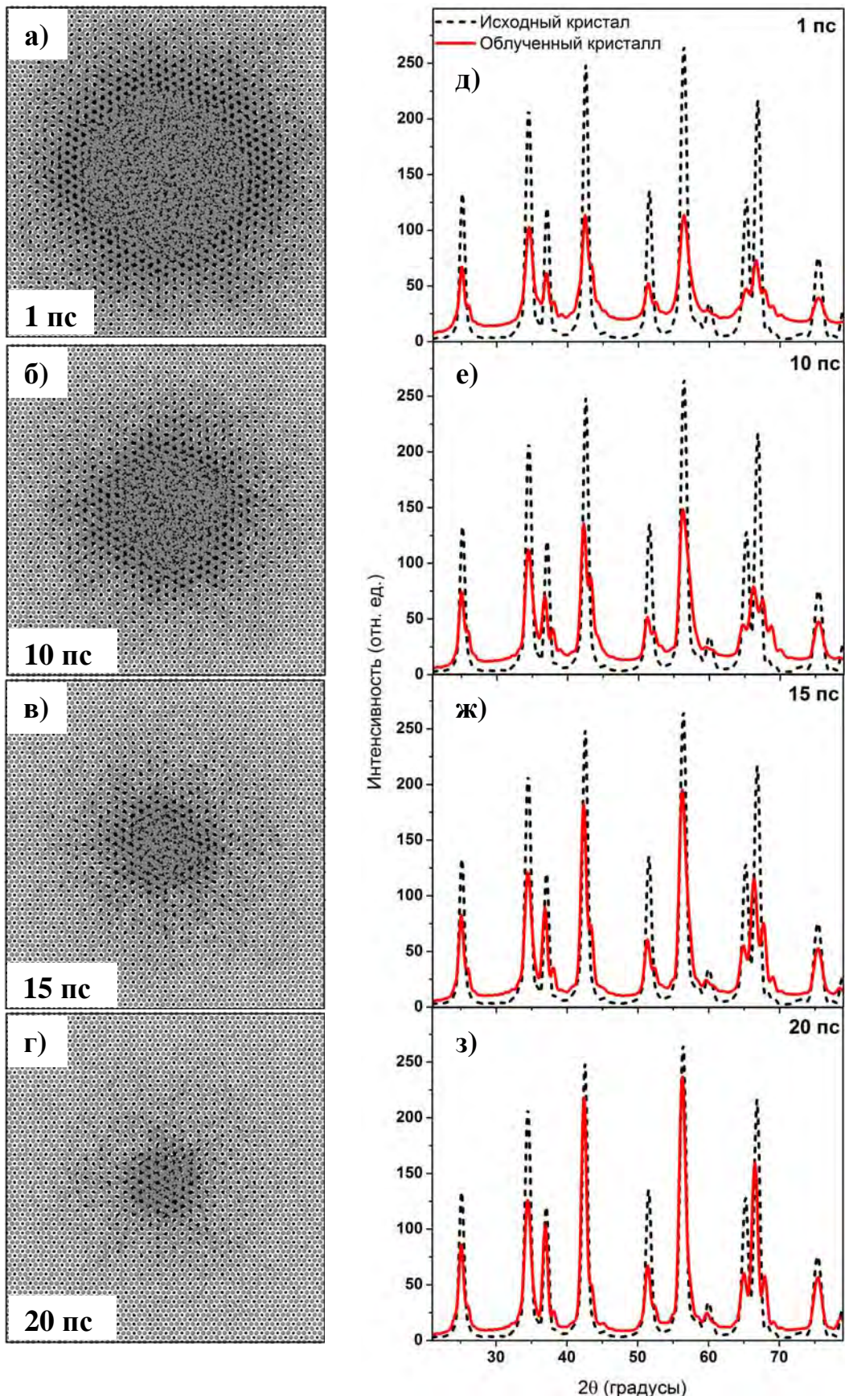


Рис. 3.11 Состояние кристаллита Al_2O_3 после моделирования облучения ионом Хе (167 МэВ) на различных временах: (а) - 1 пс; (б) - 10 пс; (в) - 15 пс; (г) - 20 пс; и рассчитанные рентгенограммы этих состояний: (д) - 1 пс; (е) - 10 пс; (ж) - 15 пс; (з) - 20 пс;

Исследование изменения плотности с течением времени в области трека демонстрирует периодические колебания плотности оксида алюминия (Рис. 3.12). График был получен путем оценки плотности материала в цилиндрическом слое на расстоянии 3 нм от траектории иона. Толщина слоя составляла 2 нм. Для определения плотности материала использовалась процедура аналогичная той, что была использована для расчёта радиальной зависимости плотности энергии Рис. 3.5а.

Из полученных данных можно сделать вывод, что избыточная энергия решетки выносится за счет упругих волн с периодом колебаний $\sim 1,9 \times 10^{-12}$ с, что соответствует частотам $\sim 0,5$ ТГц. Согласно фоновым дисперсионным кривым [150], данная частота лежит в области акустических фононов. Стоит, однако, отметить, что временное разрешение на Рис. 3.12 составляет 0,2 пс, что не позволяет наблюдать более тонкие эффекты.

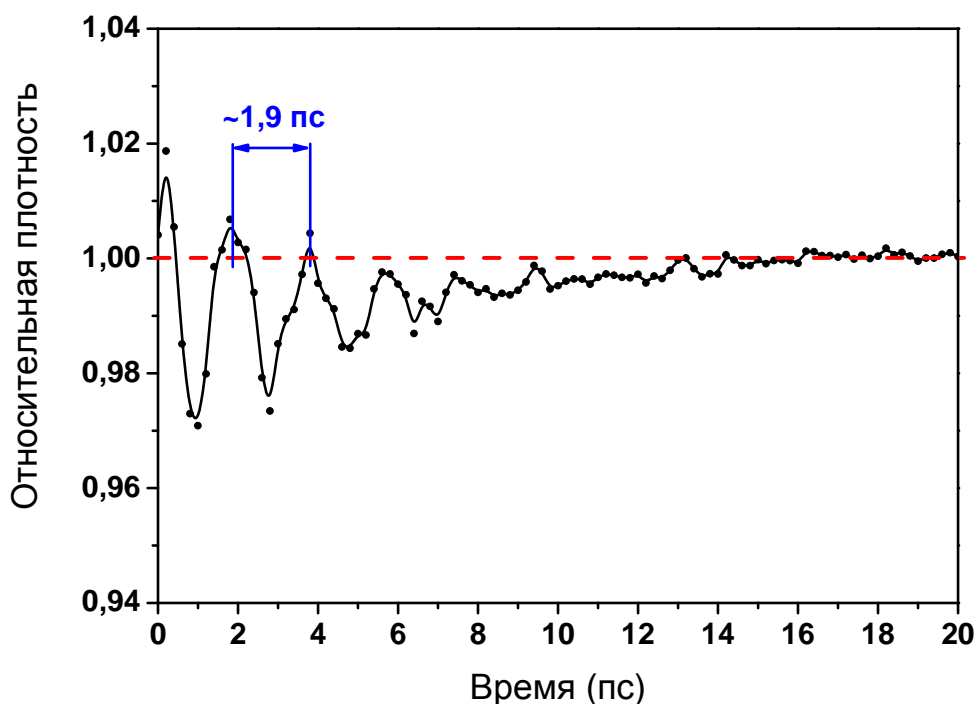


Рис. 3.12 Изменение со временем относительной плотности оксида алюминия в цилиндрическом слое на расстоянии 3 нм от траектории иона Хе (167 МэВ). Сплошная линия соответствует сглаженной кривой.

3.2.4. Порог образования трека

В радиационной физике твердого тела в качестве критерия формирования треков быстрых тяжелых ионов вводится количественная величина dE/dx_{th} , называемая ионизационным порогом образования трека. Эта величина определяется как пороговое значение ионизационных потерь иона dE/dx , при котором наблюдаются треки БТИ и является одной из характеристик радиационной стойкости материала.

Порог трекообразования оксида алюминия исследовался сообществом достаточно подробно. В качестве одного из первых экспериментальных исследований можно привести работу [151], где было получено значение $dE/dx_{th} \sim 20$ кэВ/нм. Такой большой порог формирования треков не характерен для диэлектрических материалов и поэтому полученный результат явился неожиданностью для исследователей. Позднее появилось еще несколько работ, показавших схожее значение порога формирования трека в Al_2O_3 [152–154]. Однако все эти данные были получены косвенным путем с помощью обратного резерфордовского рассеяния, атомно-силовой микроскопии, методов фотолюминесценции и т.д. Прямое наблюдение аморфных треков на снимках ПЭМ было осуществлено только в работе [152], где оксид алюминия облучался фуллеренами C_{60} , потери энергии на ионизацию (~ 76 кэВ/нм для энергии C_{60} $E=30$ МэВ) которых гораздо больше чем у самых тяжелых БТИ.

Одним из первых прямых наблюдений трека БТИ в оксиде алюминия с помощью просвечивающей электронной микроскопии является работа [155], где значение dE/dx_{th} было оценено в ~ 9 кэВ/нм. Расчеты в рамках модели термической вспышки [52], сделанные в том же году, продемонстрировали значение близкое к этой величине ~ 10 кэВ/нм. Впоследствии, еще несколько экспериментальных работ [16, 56] подтвердили, что порог формирования треков в оксиде алюминия находится в области ионизационных потерь ~ 10 кэВ/нм.

На Рис. 3.13 демонстрируется результат расчета порога формирования трека dE/dx_{th} по ионизационным потерям. Для определения этой величины была

проведена серия моделирований пролета ионов с различными dE/dx : 10 кэВ/нм (Fe 22,5 МэВ), 16 кэВ/нм (Kr 107 МэВ), 26 кэВ/нм (Xe 167 МэВ), 44 кэВ/нм (Bi 700 МэВ) (см. Разделы 3.2.1 и 3.2.2). Полученные точки были экстраполированы в область значений $R_{tr} = 0$, что соответствует $dE/dx_{th} \sim 7$ кэВ/нм. Этот результат достаточно хорошо согласуется с величиной, полученной экспериментальным путем.

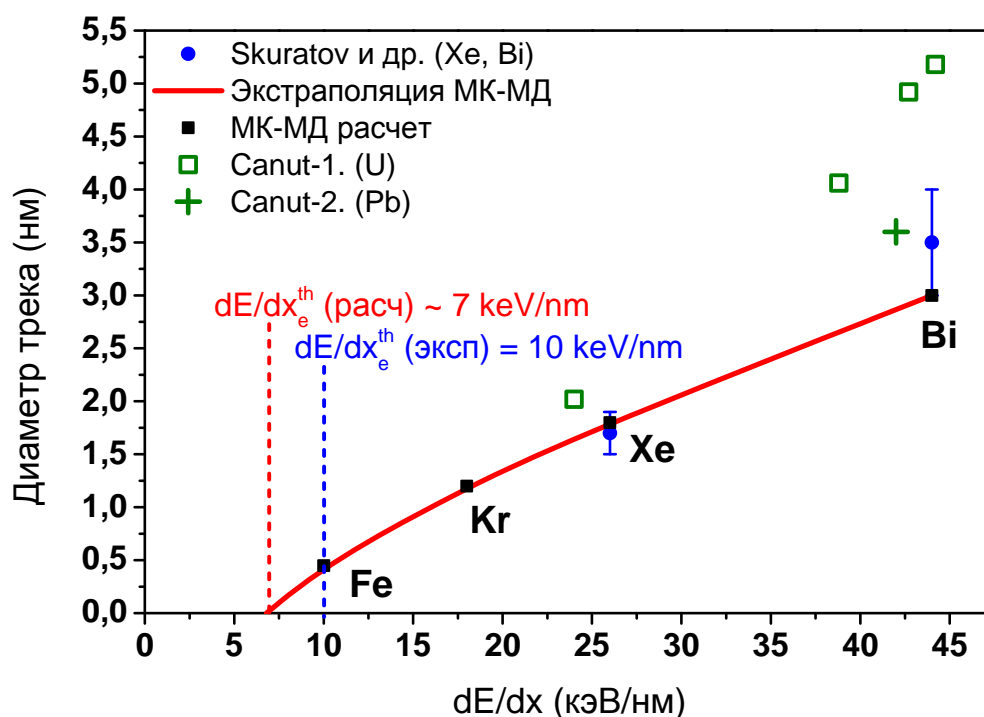


Рис. 3.13 Результат расчета пороговых значений формирования трека и его сравнение с экспериментальными данными: Skuratov и др. [16, 141], Canut-1 [151], Canut-2 [156]. Сплошной красной линией показан результат экстраполяции расчетных данных.

Стоит отметить, что данные Canut и др. [151, 156] получены косвенным путем. В этих экспериментах из данных по обратному резерфордовскому рассеянию и каналированию определялось относительное разупорядочивание образца. Затем с помощью модели прямых столкновений [157] определялся радиус трековой области, исходя из предположения цилиндрической геометрии трековых областей. Такой подход не является достоверным, так как он не

учитывает всех особенностей процессов в треках БТИ, например, возможного отжига дефектов при интерференции трековых областей между собой. Как будет показано в следующем разделе, этот эффект отжига возможен в случае оксида алюминия.

На Рис. 3.14 показано пороговое значение избыточной энергии ионной подсистемы материала $E_{tr}^{th} \sim 3,1 \frac{\text{эВ}}{\text{атом}}$, при котором формируется поврежденная трековая область. Значения радиусов треков R_{tr} для различных ионов хорошо согласуются с наблюдаемыми визуально размерами трековой области, показанными на Рис. 3.4, Рис. 3.8, Рис. 3.13. Это свидетельствует о том, что формирование треков носит пороговый эффект и величина порогового значения в основном не зависит от параметров облучения, а лишь от свойств материала.

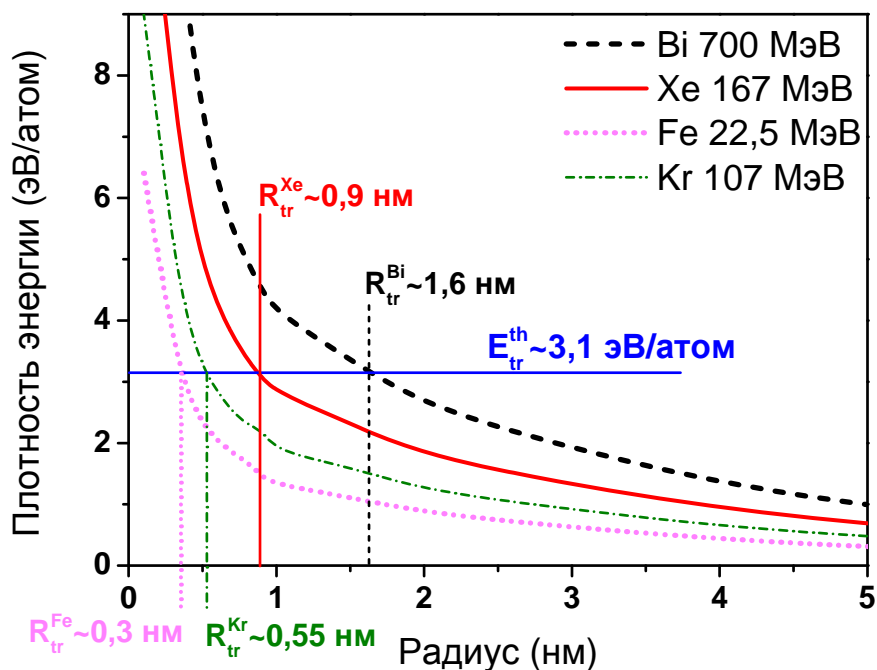


Рис. 3.14 Избыточная энергия, переданная в ионную подсистему Al_2O_3 , в треках ионов Xe (167 МэВ), Bi (700 МэВ), Fe (22,5 МэВ), Kr (107 МэВ) на временах 100 фс. Горизонтальной линией показана пороговая энергия образования трека.

3.3. Интерференция трековых областей

Материалы ядерных реакторов, использование которых предполагает тесный контакт с ядерным топливом, подвергаются облучению осколками деления до очень высоких флюенсов ($\sim 10^{16}$ см⁻²). Это приводит к многократному перекрытию трековых областей, и поэтому исследование кинетики процессов, происходящих при взаимодействии треков от различных ионов между собой, имеет принципиальное значение для изучения радиационной стойкости материалов.

Экспериментальное исследование взаимодействия трековых областей затруднено, так как невозможно наблюдать в динамике крайне быстрые процессы, происходящие в треке БТИ. Одной из возможностей косвенного изучения эффектов возникающих при интерференции треков БТИ является исследование дозовых зависимостей различных свойств. На Рис. 3.15а показана зависимость плотности треков от флюенса ионов Хе с энергией 167 МэВ. Данная зависимость определялась при помощи прямого подсчёта наблюдаемых треков на изображениях ПЭМ, полученных на образцах, облученных до различных флюенсов. Пример такого снимка образца оксида алюминия, облученного ионами ксенона до флюенса 1×10^{13} см⁻², показан на рис Рис. 3.15б [138].

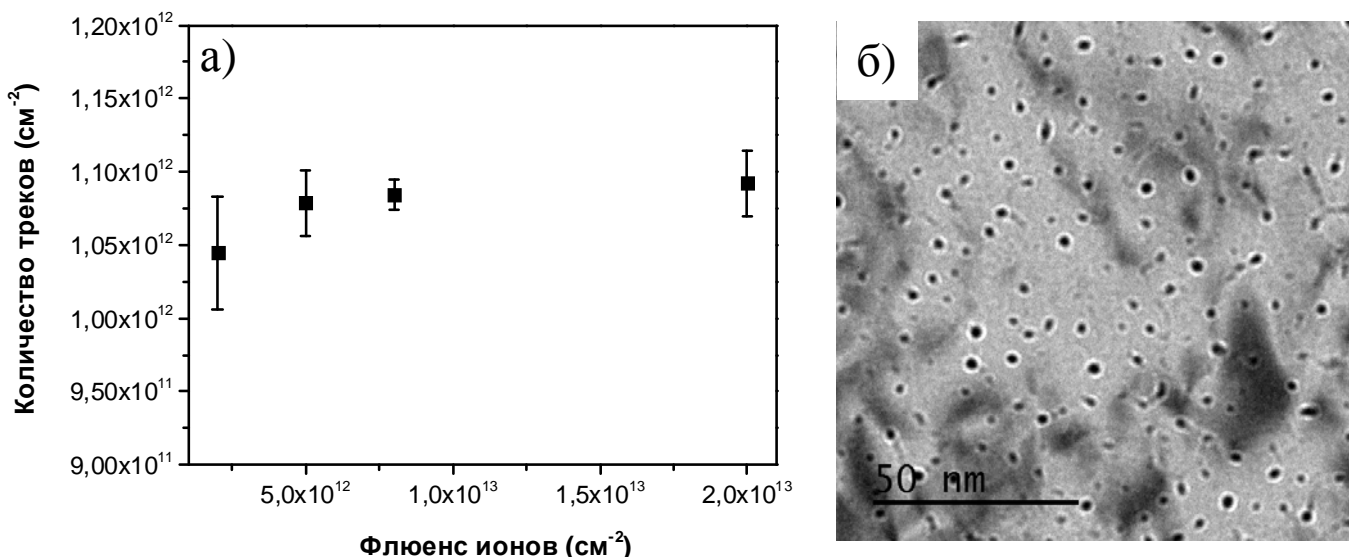


Рис. 3.15 (а) Зависимость плотности треков от флюенса ионного облучения [31, 138]; (б) ПЭМ изображение образца Al_2O_3 , облученного ионами Хе 167 МэВ (флюенс $1 \times 10^{13} \text{ см}^{-2}$).

Можно наблюдать, что плотность треков достигает насыщения при флюенсах около $1,1 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$. Таким образом, на один трек иона ксенона приходится площадь около 90 нм^2 . Предполагая, что эта трек имеет цилиндрическую форму, можно определить эффективный радиус области индивидуального трека $\sim 5,4 \text{ нм}$.

Для исследования механизмов насыщения плотности треков в зависимости от дозы была проведено моделирование последовательного пролета двух ионов ксенона на некотором расстоянии друг от друга. Результат такого моделирования для ионов ксенона на Al_2O_3 демонстрируется на Рис. 3.16. Хорошо видно, что пролет второго иона на расстоянии 2,8 нм от первого приводит практически к полному восстановлению исходной структуры в трековой области первого иона.

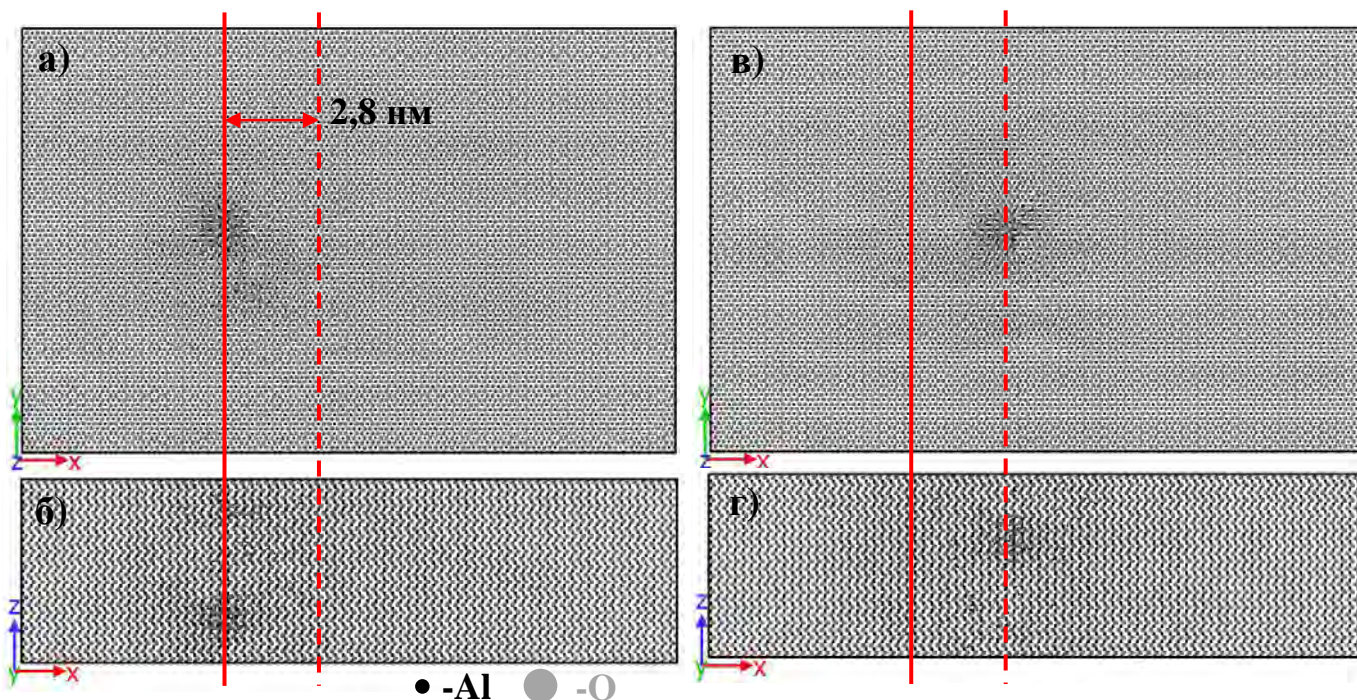


Рис. 3.16 Результат моделирования пролета двух ионов Хе (167 МэВ): (а) проекция ячейки вдоль оси Z и (б) проекция вдоль оси Y после пролета первого иона; (в) проекция вдоль оси Z и (г) проекция вдоль оси Y после пролета второго иона на расстоянии $\sim 2,8$ нм от первого. Сплошная вертикальная линия указывает на траекторию первого иона, штрихованная – второго иона. Траектории ионов параллельны и направлены вдоль оси Z. Размер кристаллита $18,8 \times 12,2 \times 5,25$ нм³.

Подобное восстановление структуры при перекрытии эффективных трековых областей может служить объяснением наблюдаемого экспериментально насыщения количества треков при увеличении флюенса облучения. Для выяснения максимального расстояния между двумя треками, при котором наблюдается такое восстановление, была проведена серия моделирований пролета второго иона на различных расстояниях от первого. На Рис. 3.17 показано состояние кристаллита оксида алюминия после последовательного моделирования прохождения двух ионов Хе с энергией 167 МэВ на расстоянии 6 нм друг от друга.

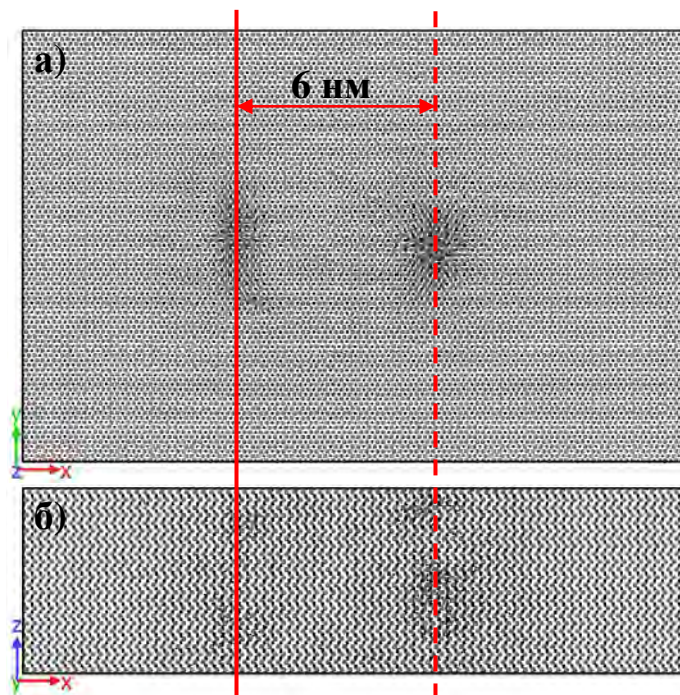


Рис. 3.17 Результат моделирования пролета двух ионов Хе (167 МэВ) на расстоянии 6 нм друг от друга: (а) проекция вдоль оси Z, (б) проекция вдоль оси Y. Сплошная вертикальная линия указывает на траекторию первого иона, штрихованная – второго иона. Траектории ионов параллельны и направлены вдоль оси Z. Размер кристаллита $18,8 \times 12,2 \times 5,25 \text{ нм}^3$

Хорошо видно, что на таких расстояниях между траекториями ионов прохождение второго иона вызывает лишь частичное восстановление поврежденной области, изменяя форму первого трека. Таким образом, можно утверждать, что эффективное расстояние рекомбинации материала составляет около 6,5 нм. Это соответствует максимальному наблюдаемому флюенсу $\sim 8,8 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$.

Исследование радиальной зависимости избыточной энергии решетки материала в треке иона Хе 167 МэВ (Bi 700 МэВ), показанное на Рис. 3.18, показывает, что радиусу восстановления $R_R^{\text{Xe}} \sim 6,5 \text{ нм}$ ($R_R^{\text{Bi}} \sim 7,8 \text{ нм}$) соответствует

энергия ионной подсистемы $E_R^{th} \sim 0,4 \frac{\text{эВ}}{\text{атом}}$ (температурный эквивалент ~ 2800 К).

Принимая во внимание тот факт, что в данной работе возбуждение решетки описывалось только за счет изменения скоростей атомов материала, можно рассматривать термический отжиг дефектов в качестве одного из возможных механизмов демонстрируемого эффекта «залечивания» поврежденных трековых областей.

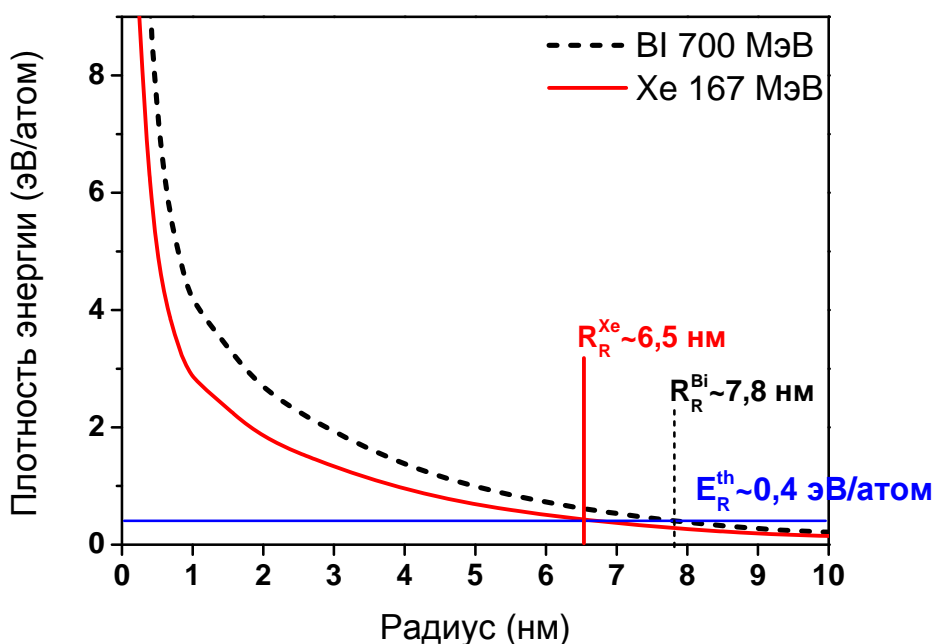


Рис. 3.18 Избыточная энергия ионной подсистемы оксида алюминия после пролета ионов Xe (167 МэВ), Bi (700 МэВ). Горизонтальной линией показано пороговое значение избыточной энергии, при котором наблюдается восстановление структуры в треке.

Эффект отжига дефектной структуры облучением быстрыми тяжелыми ионами наблюдался также в карбиде кремния (SiC) [158–161]. В этих работах проводилась имплантация ионов низких энергий в образцы карбида кремния, за счет чего формировалась дефектная структура. Затем облученные образцы облучались быстрыми тяжелыми ионами, после чего при помощи обратного

резерфордовского рассеяния/каналирования и ПЭМ наблюдалась эпитаксиальная рекристаллизация поврежденной области [158, 161].

Стоит отметить, что в работах [15, 162, 163], посвященных изучению воздействия тяжелых ионов высоких энергий на SiC, в отличие от оксида алюминия, было обнаружено, что БТИ не формируют латентных треков в кристаллических образцах при $dE/dx < 34$ кэВ/нм. В [162] на снимках ПЭМ образцов, подвергнутых пострadiационному отжигу, были видны лишь созданные БТИ точечные дефекты.

Исследование эффекта рекристаллизации быстрыми тяжелыми ионами принципиально важно для материалов ядерных реакторов, которые облучаются интенсивными потоками нейтронов и осколков деления. В частности, подобное явление рекристаллизации может проявиться в конструкционных материалах ядерных реакторов в условиях облучения потоками частиц, генерируемых в актах деления. Здесь может возникнуть баланс между аморфизацией нейтронами (за счет упругих потерь энергии) и восстановлением структуры осколками деления (за счет электронного торможения), что, несомненно, скажется на физических свойствах материала, а так же может служить дополнительным фактором, обеспечивающим радиационную стойкость рассматриваемых материалов в условиях работы ядерных реакторов. Таким образом, процессы рекристаллизации тяжелыми ионами высоких энергий в материалах ядерной энергетики (Al_2O_3 , SiC) необходимо всесторонне исследовать и принимать во внимание при выборе материалов конструкционных элементов ядерно-энергетических установок.

Заключение к Главе 3.

В Главе 3 разработанная модель возбуждения электронной подсистемы материала в треке БТИ была скомбинирована с методами классической молекулярной динамики для описания релаксации возбуждения решетки и применена к материалам, допускающим экспериментальную проверку. Для кристаллического оксида алюминия проведено теоретическое исследование

воздействия различных БТИ на структуру материала, расчетные данные затем сравнивались с данными просвечивающей электронной микроскопии.

В первом разделе Главе 3 описаны методы и приближения, использованные в рамках моделирования с помощью молекулярной динамики, показана их применимость к исследуемой системе. В частности, продемонстрирована достоверность используемого потенциала межатомного взаимодействия Al_2O_3 сравнением свойств кристалла с экспериментальными данными.

Начальные условия, полученные в результате МК-моделирования (радиальные распределения избыточной энергии решетки) позволили вычислить начальные пространственно-временные параметры возбужденной ионной подсистемы и произвести дальнейшее моделирование релаксации этого возбуждения.

Результатом релаксации возбуждения решетки материала в треке иона ксенона с энергией 167 МэВ, согласно разработанной модели, является формирование прерывистой поврежденной области цилиндрической формы (трек БТИ). Трек иона с поперечным размером около 1,8-2 нм представляет собой область пониженной плотности, окруженную более оболочкой из более плотного материала. Трек сохраняет свою кристаллическую структуру, однако наблюдается искажение атомных плоскостей, что приводит к формированию напряжений. Исследование остаточных напряжений также выявило структуру ядро-оболочка. Сравнение расчетных данных с результатами ПЭМ показало хорошее согласие теории с экспериментом и подтвердило применимость используемой модели.

Для выявления изменений структуры кристалла оксида алюминия при облучении БТИ проводилась симуляция порошковой рентгеновской дифракции, которая показала, что подрешетка алюминия повреждается больше чем подрешетка кислорода.

Исследование трека иона висмута с энергией 700 МэВ показало, что трек имеет структуру близкую к аморфной, но диаметр поврежденной области ~ 3 нм оказался несколько меньше экспериментального значения $\sim 3,5$ нм.

Используя значения размеров трековой области для ионов Хе и Вi, а так же проведя дополнительные моделирования воздействия ионов с меньшими значениями dE/dx , была сделана оценка порога образования трека и получено значение ~ 7 кэВ/нм, что качественно соответствует экспериментальному значению 9-10 кэВ/нм.

При исследовании взаимодействия трековых областей между собой при их перекрытии был обнаружен эффект отжига поврежденной области при прохождении последующих ионов вблизи существующего трека. За счет этого эффекта можно объяснить наблюдаемое экспериментально насыщение плотности треков с ростом флюенса облучения. Рассчитанный эффективный радиус восстановления исходной структуры составил $\sim 6,5$ нм, что соответствует флюенсу насыщения $8,8 \times 10^{11}$ см⁻². Возможным механизмом этого восстановления может выступать термический отжиг дефектов.

Также в данной главе демонстрируется важность исследования эффекта восстановления структуры дефектных областей быстрыми тяжелыми ионами для материалов ядерной энергетики, контактирующими с ядерным топливом.

Заключение

Основные результаты диссертационной работы могут быть сформулированы следующим образом:

1. Разработана Монте-Карло модель (TREKIS) возбуждения электронной подсистемы материала, основанная на формализме динамического структурного фактора - комплексной диэлектрической функции. В модель включены эффекты пространственно-временных корреляций в системе рассеивателей, а так же процессы перераспределения валентных дырок и их взаимодействия со средой.
2. С помощью модели Монте-Карло получены пространственно-временные распределения электронов и валентных дырок, их энергии и импульса, а также плотность энергии, переданной в решетку материала в треке ионов Хе (167 МэВ), Вi (700 МэВ), Кr (107 МэВ), Fe (22,5 МэВ). Показано распространения двух фронтов начального возбуждения электронной подсистемы. Исследованы характерные времена первичных процессов возбуждения и релаксации материала в треке БТИ. Показано, что баллистическое распространение генерируемых налетающим ионом электронов, ограничивает применимость диффузионных уравнений для описания процессов в треке на временах $t < 10$ фс.
3. Методами молекулярной динамики изучена кинетика структурных изменений в треке тяжелого иона в монокристаллах Al_2O_3 . Исследована структура треков ионов Хе (167 МэВ) и Вi (700 МэВ) в оксиде алюминия, получено хорошее согласие с экспериментальными данными. Определены остаточные напряжения после релаксации решётчного возбуждения и показано, что трековая область состоит из менее плотного ядра и более плотной оболочки. Впервые продемонстрирован эффект восстановления трековых областей в оксиде алюминия при их интерференции. Наличие этого

эффекта позволяет качественно объяснить наблюдаемое экспериментально насыщение плотности треков в зависимости от флюенса ионов.

В заключение считаю своим приятным долгом выразить благодарность научному руководителю Скуратову Владимиру Алексеевичу за постановку задачи и помощь в работе, Волкову А.Е. (НИЦ «Курчатовский институт», Москва) Медведеву Н.А. (Центр лазеров на свободных электронах, Электронный синхротрон "ДЭЗИ", Гамбург, Германия) и Горбунову С.А. (Физический институт имени П.Н.Лебедева РАН, Москва) за помощь в построении аналитических и численных моделей, представленных в диссертации, Авхачеву К. (Университет Хельсинки, Хельсинки, Финляндия) за консультации по методам молекулярной динамики, Ж. О'Коннелу (Центр ПЭМ высокого разрешения, Университет имени Нельсона Манделы, Порт-Элизабет, Южно-Африканская Республика) за обсуждение результатов исследования образцов с помощью ПЭМ, сотрудникам Центра прикладной физики и сектора №8 за помощь при проведении измерений и структурных исследований, сотрудникам научно-технического отдела ускорителей ЛЯР ОИЯИ за помощь в проведении экспериментов на ускорителях ИЦ-100 и У-400М.

Численные результаты данной работы были получены с использованием вычислительных ресурсов ЦИВК ОИЯИ (<http://lit.jinr.ru/>), гетерогенного кластера HybriLit ОИЯИ (<http://hybrilit.jinr.ru/>) и МВК НИЦ «Курчатовский институт» (<http://computing.kiae.ru/>).

Список литературы

- [1] F.F. Komarov *Defect and track formation in solids irradiated by superhigh-energy ions* // Physics-Uspekhi 46 (2003) 1253–1282.
- [2] A.M. Miterev *Theoretical aspects of the formation and evolution of charged particle tracks* // Physics-Uspekhi 45 (2002) 1019–1050.
- [3] B.E. Burakov, M.I. Ojovan, W.E. Lee *Crystalline Materials for Actinide Immobilization* // London: Imperial College Press, 2010.
- [4] B. Lee, S.-Y. Park, H.-C. Kim, K. Cho, E.M. Vogel, et al. *Conformal Al₂O₃ dielectric layer deposited by atomic layer deposition for graphene-based nanoelectronics* // Appl. Phys. Lett. 92 (2008) 203102.
- [5] A.B. Kaul ed. *Microelectronics to Nanoelectronics: Materials, Devices & Manufacturability* // Boca Raton: CRC Press, Taylor & Francis Group, 2013.
- [6] P. Apel *Swift ion effects in polymers: industrial applications* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 208 (2003) 11–20.
- [7] K.K. Jana, B. Ray, D.K. Avasthi, P. Maiti *Conducting nano-channels in an induced piezoelectric polymeric matrix using swift heavy ions and subsequent functionalization* // J. Mater. Chem. 22 (2012) 3955.
- [8] F. Aumayr, S. Facsko, A.S. El-Said, C. Trautmann, M. Schleberger *Single ion induced surface nanostructures: A comparison between slow highly charged and swift heavy ions.* // J. Physics. Condens. Matter 23 (2011) 393001.
- [9] S. Klaumünzer *Modification of nanostructures by high-energy ion beams* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 244 (2006) 1–7.
- [10] A.A. Leino, O.H. Pakarinen, F. Djurabekova, K. Nordlund, P. Kluth, et al. *Swift Heavy Ion Shape Transformation of Au Nanocrystals Mediated by Molten Material Flow and Recrystallization* // Mater. Res. Lett. 2 (2013) 37–42.
- [11] D.K. Avasthi, Y.K. Mishra, F. Singh, J.P. Stoquert *Ion tracks in silica for*

- engineering the embedded nanoparticles* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 268 (2010) 3027–3034.
- [12] J.R. Castro, W.M. Saunders, C.A. Tobias, G.T. Chen, S. Curtis, et al. *Treatment of cancer with heavy charged particles.* // Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys. 8 (1982) 2191–8.
- [13] T. Vilaithong, L.D. Yu, P. Apavatjirut, B. Phanchaisri, S. Sangyuenyongpipat, et al. *Heavy ion induced DNA transfer in biological cells* // Radiat. Phys. Chem. 71 (2004) 927–935.
- [14] M. Lang, J. Lian, F. Zhang, B.W.H. Hendriks, C. Trautmann, et al. *Fission tracks simulated by swift heavy ions at crustal pressures and temperatures* // Earth Planet. Sci. Lett. 274 (2008) 355–358.
- [15] S.J. Zinkle, V.A. Skuratov, D.T. Hoelzer *On the conflicting roles of ionizing radiation in ceramics* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 191 (2002) 758–766.
- [16] V.A. Skuratov, J. O’Connell, N.S. Kirilkin, J. Neethling *On the threshold of damage formation in aluminum oxide via electronic excitations* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 326 (2014) 223–227.
- [17] T. Bierschenk, R. Giulian, B. Afra, M.D. Rodriguez, D. Schauries, et al. *Latent ion tracks in amorphous silicon* // Phys. Rev. B 88 (2013) 174111.
- [18] M.C. Ridgway, T. Bierschenk, R. Giulian, B. Afra, M.D. Rodriguez, et al. *Tracks and Voids in Amorphous Ge Induced by Swift Heavy-Ion Irradiation* // Phys. Rev. Lett. 110 (2013) 245502.
- [19] A. Debelle, M. Backman, L. Thomé, W. Weber, M. Toulemonde, et al. *Combined experimental and computational study of the recrystallization process induced by electronic interactions of swift heavy ions with silicon carbide crystals* // Phys. Rev. B 86 (2012) 2–5.
- [20] O. Osmani, N. Medvedev, M. Schleberger, B. Rethfeld *Energy dissipation in*

- dielectrics after swift heavy-ion impact: A hybrid model* // Phys. Rev. B 84 (2011) 214105.
- [21] Ю.В. Мартыненко, Ю.Н. Явлинский *Возбуждение электронов металла осколком деления* // Атомная энергия 62 (1987) 80.
- [22] M.I. Kaganov, I.M. Lifshitz, L.V. Tanatarov *Relaxation between Electrons and the Crystalline Lattice* // J. Exp. Theor. Phys. 31 (1957) 232.
- [23] V.P. Lipp, A.E. Volkov, M.V. Sorokin, B. Rethfeld *Kinetics of propagation of the lattice excitation in a swift heavy ion track* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 269 (2011) 865–868.
- [24] M. Toulemonde, C. Dufour, E. Paumier *Transient thermal process after a high-energy heavy-ion irradiation of amorphous metals and semiconductors* // Phys. Rev. B 46 (1992) 14362–14369.
- [25] D.M. Duffy, S.L. Daraszewicz, J. Mulroue *Modelling the effects of electronic excitations in ionic-covalent materials* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 277 (2012) 21–27.
- [26] C.J. Powell, A. Jablonski *Evaluation of Calculated and Measured Electron Inelastic Mean Free Paths Near Solid Surfaces* // J. Phys. Chem. Ref. Data 28 (1999) 19.
- [27] J.P. Ziegler, U. Biersack, J.F. Littmark *The Stopping and Range of Ions in Solids* // New York: Pergamon Press, 1985.
- [28] P.L. Grande, G. Schiwietz *CasP* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 267 (2009) 859–863.
- [29] S. Plimpton *Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics* // J. Comput. Phys. 117 (1995) 1–19.
- [30] M. Matsui *Molecular dynamics simulation of structures, bulk moduli, and volume thermal expansivities of silicate liquids in the system CaO-MgO-Al₂O₃-SiO₂* // Geophys. Res. Lett. 23 (1996) 395–398.
- [31] J.H. O’Connell, R.A. Rymzhanov, V.A. Skuratov, A.E. Volkov, N.S. Kirilkin

- Latent tracks and associated strain in Al₂O₃ irradiated with swift heavy ions // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 374 (2016) 97–101.
- [32] C.T.R. Wilson *On a Method of Making Visible the Paths of Ionising Particles through a Gas // Proc. R. Soc. A* 85 (1911) 285–288.
- [33] G. Jaffe *Zur Theorie der Ionisation in Kolonnen // Ann. der Phys.* 42 (1913) 303.
- [34] D.E. Lea *The theory of ionisation measurements in gases at high pressures // Math. Proc. Cambridge Philos. Soc.* 30 (1934) 80.
- [35] D.E. Lea *Actions of Radiations on Living Cell // Cambridge: University Press,* 1946.
- [36] A.H. Samuel, J.L. Magee *Theory of Radiation Chemistry. II. Track Effects in Radiolysis of Water // J. Chem. Phys.* 21 (1953) 1080.
- [37] A. Mozumder, J.L. Magee *Model of Tracks of Ionizing Radiations for Radical Reaction Mechanisms // Radiat. Res.* 28 (1966) 203–214.
- [38] I. Santar, J. Bednář *Theory of radiation chemical yield—V. Initial structure of the track of a fast electron in a dense medium // Int. J. Radiat. Phys. Chem.* 1 (1969) 133–152.
- [39] L. Van Hove *Correlations in Space and Time and Born Approximation Scattering in Systems of Interacting Particles // Phys. Rev.* 95 (1954) 249–262.
- [40] R. Kubo *The fluctuation-dissipation theorem // Reports Prog. Phys.* 29 (1966) 255–284.
- [41] J.E. Turner, H.G. Paretzke, R.N. Hamm, H.A. Wright, R.H. Ritchie *Comparative Study of Electron Energy Deposition and Yields in Water in the Liquid and Vapor Phases // Radiat. Res.* 92 (1982) 47–60.
- [42] J.E. Turner, J.L. Magee, H.A. Wright, A. Chatterjee, R.N. Hamm, et al. *Physical and Chemical Development of Electron Tracks in Liquid Water // Radiat. Res.* 96 (1983) 437–449.
- [43] Л.А. Буланов, Е.В. Стародубцева, Е.А. Борисов *Особенности радиолиза*

- метанола под действием осколков деления // Химия высоких энергий* 6 (1972) 476.
- [44] А.М. Митерев, И.Г. Каплан, Е.А. Борисов *Структура трека многозарядного иона // Химия высоких энергий* 8 (1974) 537.
- [45] L.T. Chadderton *Nuclear tracks in solids: registration physics and the compound spike // Radiat. Meas.* 36 (2003) 13–34.
- [46] K. Schwartz, A. Volkov, M. Sorokin, C. Trautmann, K.-O. Voss, et al. *Effect of electronic energy loss and irradiation temperature on color-center creation in LiF and NaCl crystals irradiated with swift heavy ions // Phys. Rev. B* 78 (2008) 24120.
- [47] R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker *Ion Explosion Spike Mechanism for Formation of Charged-Particle Tracks in Solids // J. Appl. Phys.* 36 (1965) 3645.
- [48] В.И. Гольданский, Е.Я. Ланцбург, П. Ямпольский *О гидродинамическом эффекте при прохождении осколков деления через конденсированное вещество // Письма в ЖЭТФ* 21 (1975) 365.
- [49] N. Itoh, A. Marshall Stoneham *Excitonic model of track registration of energetic heavy ions in insulators // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 146 (1998) 362–366.
- [50] N. Medvedev, H.O. Jeschke, B. Ziaja *Nonthermal graphitization of diamond induced by a femtosecond x-ray laser pulse // Phys. Rev. B* 88 (2013) 224304.
- [51] G.H. Vineyard *Thermal spikes and activated processes // Radiat. Eff.* 29 (1976) 245–248.
- [52] M. Toulemonde, C. Dufour, A. Meftah, E. Paumier *Transient thermal processes in heavy ion irradiation of crystalline inorganic insulators // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 166–167 (2000) 903–912.
- [53] L.T. Chadderton, H.M. Montagu-Pollock *Fission Fragment Damage to Crystal Lattices: Heat-Sensitive Crystals // Proc. R. Soc. A* 274 (1963) 239–252.

- [54] В.Л. Гинзбург, В.П. Шабанский *Кинетическая температура электронов в металлах и аномальная электронная эмиссия // Доклады Академии Наук СССР* 100 (1955) 445.
- [55] O.H. Pakarinen, F. Djurabekova, K. Nordlund, P. Kluth, M.C. Ridgway *Molecular dynamics simulations of the structure of latent tracks in quartz and amorphous SiO₂* // *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 267 (2009) 1456–1459.
- [56] N. Khalfaoui, J.P. Stoquert, F. Haas, C. Traumann, A. Meftah, et al. *Damage creation threshold of Al₂O₃ under swift heavy ion irradiation* // *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 286 (2012) 247–253.
- [57] A. Benyagoub, A. Audren *Mechanism of the swift heavy ion induced epitaxial recrystallization in predamaged silicon carbide* // *J. Appl. Phys.* 106 (2009) 83516.
- [58] S.A. Gorbunov, P.N. Terekhin, N.A. Medvedev, A.E. Volkov *Combined model of the material excitation and relaxation in swift heavy ion tracks* // *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 315 (2013) 173–178.
- [59] S.A. Gorbunov, N.A. Medvedev, P.N. Terekhin, A.E. Volkov *The microscopic model of material excitation in swift heavy ion tracks* // *Phys. Status Solidi C* 10 (2013) 697–700.
- [60] A.E. Volkov, V.A. Borodin *Heating of metals in swift heavy ion tracks by electron–ion energy exchange* // *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 146 (1998) 137–141.
- [61] Z. Lin, L. Zhigilei, V. Celli *Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon nonequilibrium* // *Phys. Rev. B* 77 (2008) 75133.
- [62] J. Vorberger, D.O. Gericke, T. Bornath, M. Schlages *Energy relaxation in dense,*

- strongly coupled two-temperature plasmas* // Phys. Rev. E 81 (2010) 46404.
- [63] B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicanek, G. Simon *Ultrafast dynamics of nonequilibrium electrons in metals under femtosecond laser irradiation* // Phys. Rev. B 65 (2002) 214303.
- [64] G. Schiwietz, K. Czerski, M. Roth, F. Staufenbiel, P.L. Grande *Femtosecond dynamics – snapshots of the early ion-track evolution* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 226 (2004) 683–704.
- [65] R.H. Ritchie, C. Claussen *A core plasma model of charged particle track formation in insulators* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. 198 (1982) 133–138.
- [66] I.A. Baranov, Y.V. Martynenko, S.O. Tsepelevich, Y.N. Yavlinskii *Inelastic sputtering of solids by ions* // Physics-Uspeski 31 (1988) 1015–1034.
- [67] I.S. Bitensky, E.S. Parilis *Shock wave mechanism for cluster emission and organic molecule desorption under heavy ion bombardment* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 21 (1987) 26–36.
- [68] D.A. Thompson *High density cascade effects* // Radiat. Eff. 56 (1981) 105–150.
- [69] Y.N. Yavlinskii *Electron excitation relaxation in wide-gap single crystal insulators under swift heavy-ion irradiation* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 166–167 (2000) 35–39.
- [70] W. Wesch, E. Wendler eds. *Ion Beam Modification of Solids* // Switzerland: Springer International Publishing, 2016.
- [71] K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, M. Boing, A. Cavalleri, D. von der Linde *Thermal and nonthermal melting of gallium arsenide after femtosecond laser excitation* // Phys. Rev. B 58 (1998) R11805–R11808.
- [72] A. Schleife, Y. Kanai, A.A. Correa *Accurate atomistic first-principles calculations of electronic stopping* // Phys. Rev. B 91 (2015) 14306.
- [73] S.T. Murphy, S.L. Daraszewicz, Y. Giret, M. Watkins, A.L. Shluger, et al.

- Dynamical simulations of an electronically induced solid-solid phase transformation in tungsten* // Phys. Rev. B 92 (2015) 134110.
- [74] M. Murat, A. Akkerman, J. Barak *Can swift heavy ions create latent tracks in silicon?* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 269 (2011) 2649–2656.
- [75] N.A. Medvedev, A.E. Volkov, N.S. Shcheblanov, B. Rethfeld *Early stage of the electron kinetics in swift heavy ion tracks in dielectrics* // Phys. Rev. B 82 (2010) 125425.
- [76] M. Murat, A. Akkerman, J. Barak *Electron and Ion Tracks in Silicon: Spatial and Temporal Evolution* // IEEE Trans. Nucl. Sci. 55 (2008) 3046–3054.
- [77] N.A. Medvedev, R.A. Rymzhanov, A.E. Volkov *Time-resolved electron kinetics in swift heavy ion irradiated solids* // J. Phys. D. Appl. Phys. 48 (2015) 355303.
- [78] D.. Young *On the mechanism of the formation of latent tracks in dielectric solids* // Radiat. Meas. 27 (1997) 575–586.
- [79] O. Osmani, N. Medvedev, M. Schleberger, B. Rethfeld *Energy dissipation in dielectrics after swift heavy-ion impact: A hybrid model* // Phys. Rev. B 84 (2011) 214105.
- [80] O. Osmani, N. Medvedev, M. Schleberger, B. Rethfeld *Excitation and Relaxation of Swift Heavy Ion Irradiated Dielectrics* // e-Journal Surf. Sci. Nanotechnol. 8 (2010) 278–282.
- [81] S.L. Daraszewicz, D.M. Duffy *Hybrid continuum–atomistic modelling of swift heavy ion radiation damage in germanium* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 303 (2013) 112–115.
- [82] R.A. Rymzhanov, N.A. Medvedev, A.E. Volkov *Effect of valence holes kinetics on material excitation in tracks of swift heavy ions* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 365 (2015) 462–467.
- [83] P.N. Terekhin, R.A. Rymzhanov, S.A. Gorbunov, N.A. Medvedev, A.E. Volkov *Effect of valence holes on swift heavy ion track formation in Al₂O₃* // Nucl.

- Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 254 (2015) 200–204.
- [84] N.A. Medvedev, R.A. Rymzhanov, A.E. Volkov *Complex dielectric function formalism for description of the electron kinetics in swift heavy ion tracks in LiF and Y2O3* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 315 (2013) 85–89.
- [85] R.A. Rymzhanov, N.A. Medvedev, A.E. Volkov *Monte-Carlo modeling of excitation of the electron subsystem of Al2O3 and polyethylene after swift heavy ion impact* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 326 (2014) 238–242.
- [86] R.A. Voronkov, R.A. Rymzhanov, N.A. Medvedev, A.E. Volkov *Monte-Carlo modeling of excitation of the electron subsystem of ZnO and MgO in tracks of swift heavy ions* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 365 (2015) 468–471.
- [87] S.A. Gorbunov, N.A. Medvedev, P.N. Terekhin, A.E. Volkov *Electron–lattice coupling after high-energy deposition in aluminum* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 354 (2015) 220–225.
- [88] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin *Solid States Physics* // New York: Rinehart and Winston Holt, 1976.
- [89] R.H. Ritchie, A. Howie *Electron excitation and the optical potential in electron microscopy* // Philos. Mag. 36 (1977) 463–481.
- [90] W.H. Barkas *Nuclear research emulsions.* // New York: Academic Press, 1963.
- [91] A. Akkerman, T. Boutboul, A. Breskin, R. Chechik, A. Gibrekhterman, et al. *Inelastic Electron Interactions in the Energy Range 50 eV to 10 keV in Insulators: Alkali Halides and Metal Oxides* // Phys. Status Solidi B 198 (1996) 769–784.
- [92] J.-C. Kuhr, H.-J. Fitting *Monte Carlo simulation of electron emission from solids* // J. Electron Spectros. Relat. Phenomena 105 (1999) 257–273.
- [93] W. Strehlow, E. Cook *Compilation of energy band gaps in elemental and binary*

- compound semiconductors and insulators* // J. Phys. Chem. Ref. Data 2 (1973) 163–199.
- [94] A. Akkerman, J. Barak, D. Emfietzoglou *Ion and electron track-structure and its effects in silicon: model and calculations* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 227 (2005) 319–336.
- [95] C. Ambrosch-Draxl, J.O. Sofo *Linear optical properties of solids within the full-potential linearized augmented planewave method* // Comput. Phys. Commun. 175 (2006) 1–14.
- [96] G. Norman, I. Saitov, V. Stegailov, P. Zhilyaev *Ab initio calculation of shocked xenon reflectivity* // Phys. Rev. E 91 (2015) 23105.
- [97] F. Trani, G. Cantele, D. Ninno, G. Iadonisi *Tight-binding calculation of the optical absorption cross section of spherical and ellipsoidal silicon nanocrystals* // Phys. Rev. B 72 (2005) 75423.
- [98] Z.-J. Ding, R. Shimizu *Inelastic collisions of kV electrons in solids* // Surf. Sci. 222 (1989) 313–331.
- [99] J.C. Ashley *Interaction of low-energy electrons with condensed matter: stopping powers and inelastic mean free paths from optical data* // J. Electron Spectros. Relat. Phenomena 46 (1988) 199–214.
- [100] D.R. Penn *Electron mean-free-path calculations using a model dielectric function* // Phys. Rev. B 35 (1987) 482–486.
- [101] N. Mermin *Lindhard Dielectric Function in the Relaxation-Time Approximation* // Phys. Rev. B 1 (1970) 2362–2363.
- [102] M.D. Barriga-Carrasco *Full conserving dielectric function for plasmas at any degeneracy* // Laser Part. Beams 28 (2010) 307–311.
- [103] E.D. Palik *Handbook of Optical Constants of Solids* // San Diego: Academic Press, 1985.
- [104] S. Adachi *The Handbook on Optical Constants of Semiconductors: In Tables and Figures* // New Jersey, London, Singapore: World Scientific Publishing Company,

- 2012.
- [105] B.L. Henke, E.M. Gullikson, J.C. Davis *X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at $E = 50\text{-}30,000$ eV, $Z = 1\text{-}92$* // *At. Data Nucl. Data Tables* 54 (1993) 181–342.
- [106] J.A. Bearden, A.F. Burr *Reevaluation of X-Ray Atomic Energy Levels* // *Rev. Mod. Phys.* 39 (1967) 125–142.
- [107] T. Boutboul, A. Akkerman, A. Breskin, R. Chechik *Electron inelastic mean free path and stopping power modelling in alkali halides in the 50 eV–10 keV energy range* // *J. Appl. Phys.* 79 (1996) 6714.
- [108] C.J. Powell, A. Jablonsky *NIST Electron Inelastic-Mean-Free-Path Database: Version 1.2*. Gaithersburg: National Institute of Standards and Technology, 2014, <http://www.nist.gov/srd/nist71.cfm>.
- [109] P.L. Grande, G. Schiwietz *The unitary convolution approximation for heavy ions* // *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 195 (2002) 55–63.
- [110] R.A. Rymzhanov, N.A. Medvedev, A.E. Volkov *Effect of atomic structure on excitation of the electronic subsystem of a solid by a swift heavy ion* // *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 354 (2015) 292–296.
- [111] H.-D. Betz *Charge States and Charge-Changing Cross Sections of Fast Heavy Ions Penetrating Through Gaseous and Solid Media* // *Rev. Mod. Phys.* 44 (1972) 465–539.
- [112] V.S. Nikolaev, I.S. Dmitriev *On the equilibrium charge distribution in heavy element ion beams* // *Phys. Lett.* 28 (1968) 277–278.
- [113] G. Schiwietz, P.L. Grande *On the treatment of light-ion electronic stopping in dense matter* // *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 90 (1994) 10–19.
- [114] W. Brandt, M. Kitagawa *Effective stopping-power charges of swift ions in*

- condensed matter* // Phys. Rev. B 25 (1982) 5631–5637.
- [115] J.P. Rozet, C. Stéphan, D. Vernhet *ETACHA: a program for calculating charge states at GANIL energies* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 107 (1996) 67–70.
- [116] K. Shima, T. Ishihara, T. Miyoshi, T. Mikumo *Equilibrium charge-state distributions of 35–146-MeV Cu ions behind carbon foils* // Phys. Rev. A 28 (1983) 2162–2168.
- [117] P.W. Peacock, J. Robertson *Band offsets and Schottky barrier heights of high dielectric constant oxides* // J. Appl. Phys. 92 (2002) 4712.
- [118] O. Keski-Rahkonen, M.O. Krause *Total and partial atomic-level widths* // At. Data Nucl. Data Tables 14 (1974) 139–146.
- [119] M.L. Knotek, P.J. Feibelman *Stability of ionically bonded surfaces in ionizing environments* // Surf. Sci. 90 (1979) 78–90.
- [120] S.T. Perkins *Tables and Graphs of Atomic Subshell and Relaxation Data Derived from the LLNL Evaluated Atomic Data Library (EADL). Z=1-100.* // Livermore, CA: Lawrence Livermore National Laboratory, 1991.
- [121] R.A. Rymzhanov, N.A. Medvedev, A.E. Volkov *Electron emission from silicon and germanium after swift heavy ion impact* // Phys. Status Solidi B 252 (2015) 159–164.
- [122] N.A. Medvedev, A.E. Volkov, K. Schwartz, C. Trautmann *Effect of spatial redistribution of valence holes on the formation of a defect halo of swift heavy-ion tracks in LiF* // Phys. Rev. B 87 (2013) 104103.
- [123] B.Y. Mueller, B. Rethfeld *Relaxation dynamics in laser-excited metals under nonequilibrium conditions* // Phys. Rev. B 87 (2013) 35139.
- [124] N. Medvedev, B. Rethfeld *Transient dynamics of the electronic subsystem of semiconductors irradiated with an ultrashort vacuum ultraviolet laser pulse* // New J. Phys. 12 (2010) 73037.
- [125] P. Patnaik *Handbook of inorganic chemicals* // New York: McGraw-Hill, 2002.

- [126] D. Schwen *Structural and electronic properties of swift heavy ion tracks in amorphous carbon*. Göttingen University, no date.
- [127] S. Plimpton *LAMMPS WebPage*. 2016, <http://lammmps.sandia.gov>.
- [128] V. Pishchik, L.A. Lytvynov, E.R. Dobrovinskaya *Sapphire* // Boston, MA: Springer US, 2009.
- [129] A.F. Wells *Structural Inorganic Chemistry* // Oxford: Oxford University Press, 1984.
- [130] N. Ishizawa, T. Miyata, I. Minato, F. Marumo, S. Iwai *A structural investigation of [alpha]-Al₂O₃ at 2170 K* // *Acta Crystallogr. Sect. B* 36 (1980) 228–230.
- [131] R.A. Buckingham *The Classical Equation of State of Gaseous Helium, Neon and Argon* // *Proc. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci.* 168 (1938) 264–283.
- [132] P. Vashishta, R.K. Kalia, A. Nakano, J.P. Rino *Interaction potentials for alumina and molecular dynamics simulations of amorphous and liquid alumina* // *J. Appl. Phys.* 103 (2008) 83504.
- [133] J.H. Gieske, G.R. Barsch *Pressure Dependence of the Elastic Constants of Single Crystalline Aluminum Oxide* // *Phys. Status Solidi* 29 (1968) 121–131.
- [134] A. Rousse, C. Rischel, S. Fourmaux, I. Uschmann, S. Sebban, et al. *Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution*. // *Nature* 410 (2001) 65–8.
- [135] V.V. Stegailov *Stability of LiF Crystal in the Warm Dense Matter State* // *Contrib. to Plasma Phys.* 50 (2010) 31–34.
- [136] A. Stukowski *Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO—the Open Visualization Tool* // *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* 18 (2010) 15012.
- [137] H.J.C. Berendsen, J.P.M. Postma, W.F. van Gunsteren, A. DiNola, J.R. Haak *Molecular dynamics with coupling to an external bath* // *J. Chem. Phys.* 81 (1984) 3684.
- [138] J.H. O’Connell, R.A. Rymzhanov, V.A. Skuratov *Track interference in swift*

- heavy ion irradiated Al₂O₃*. In: Сборник материалов конференции Взаимодействие излучений с твердым телом-2015. Минск, Беларусь, 2015, <http://elib.bsu.by/handle/123456789/120015>.
- [139] S.A. Gorbunov, N.A. Medvedev, R.A. Rymzhanov, P.N. Terekhin, A.E. Volkov *Excitation and relaxation of olivine after swift heavy ion impact // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 326 (2014) 163–168.
- [140] S.A. Gorbunov, R.A. Rymzhanov, N.I. Starkov, A.E. Volkov, A.I. Malakhov *A model of chemical etching of olivine in the vicinity of the trajectory of a swift heavy ion // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 365 (2015) 656–662.
- [141] V.A. Skuratov, S.J. Zinkle, A.E. Efimov, K. Havancsak *Swift heavy ion-induced modification of Al₂O₃ and MgO surfaces // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 203 (2003) 136–140.
- [142] R.R. Meyer, A.I. Kirkland, W.O. Saxton *A new method for the determination of the wave aberration function for high resolution TEM // Ultramicroscopy* 92 (2002) 89–109.
- [143] M.J. Hÿtch, E. Snoeck, R. Kilaas *Quantitative measurement of displacement and strain fields from HREM micrographs // Ultramicroscopy* 74 (1998) 131–146.
- [144] C.H. Rycroft *VORO++: a three-dimensional voronoi cell library in C++ // Chaos* 19 (2009) 41111.
- [145] C.H. Rycroft, G.S. Grest, J.W. Landry, M.Z. Bazant *Analysis of granular flow in a pebble-bed nuclear reactor. // Phys. Rev. E. Stat. Nonlin. Soft Matter Phys.* 74 (2006) 21306.
- [146] *Debyer*. 2010, <https://code.google.com/archive/p/debyer/>.
- [147] O. Ozuna, G.A. Hirata, J. McKittrick *Pressure influenced combustion synthesis of γ - and α -Al₂O₃ nanocrystalline powders // J. Phys. Condens. Matter* 16 (2004) 2585–2591.

- [148] G. Das *Determination of the threshold-displacement energy in α -Al₂O₃ by high-voltage electron microscopy* // J. Mater. Sci. Lett. 2 (1983) 453–456.
- [149] K. Awazu, X. Wang, M. Fujimaki, T. Komatsubara, T. Ikeda, et al. *Structure of latent tracks in rutile single crystal of titanium dioxide induced by swift heavy ions* // J. Appl. Phys. 100 (2006) 44308.
- [150] Y. Wang, J.J. Wang, W.Y. Wang, Z.G. Mei, S.L. Shang, et al. *A mixed-space approach to first-principles calculations of phonon frequencies for polar materials* // J. Phys. Condens. Matter 22 (2010) 202201.
- [151] B. Canut, A. Benyagoub, G. Marest, A. Meftah, N. Moncoffre, et al. *Swift-uranium-ion-induced damage in sapphire* // Phys. Rev. B 51 (1995) 12194–12201.
- [152] S.M.M. Ramos, N. Bonardi, B. Canut, S. Bouffard, S. Della-Negra *Damage creation in α -Al₂O₃ by MeV fullerene impacts* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 143 (1998) 319–332.
- [153] T. Mohanty, N.C. Mishra, F. Singh, U. Tiwari, D. Kanjilal *Swift heavy ion irradiation induced modifications in sapphire* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 212 (2003) 179–183.
- [154] K.R. Nagabhushana, B.N. Lakshminarasappa, K. Narasimha Rao, F. Singh, I. Sulania *AFM and photoluminescence studies of swift heavy ion induced nanostructured aluminum oxide thin films* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 266 (2008) 1049–1054.
- [155] T. Aruga, Y. Katano, T. Ohmichi, S. Okayasu, Y. Kazumata *Amorphization behaviors in polycrystalline alumina irradiated with energetic iodine ions* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 166–167 (2000) 913–919.
- [156] B. Canut, S.M.M. Ramos, P. Thevenard, N. Moncoffre, A. Benyagoub, et al. *High energy heavy ion irradiation effects in α -Al₂O₃* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 80–81 (1993) 1114–1118.

- [157] J.F. Gibbons *Ion implantation in semiconductors* Part II: *Damage production and annealing* // Proc. IEEE 60 (1972) 1062–1096.
- [158] A. Benyagoub, A. Audren, L. Thomé, F. Garrido *Athermal crystallization induced by electronic excitations in ion-irradiated silicon carbide* // Appl. Phys. Lett. 89 (2006) 241914.
- [159] A. Benyagoub, A. Audren *Study of the damage produced in silicon carbide by high energy heavy ions* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 267 (2009) 1255–1258.
- [160] E. Wendler, A. Heft, W. Wesch *Ion-beam induced damage and annealing behaviour in SiC* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 141 (1998) 105–117.
- [161] J.H. O’Connell, V.A. Skuratov, A.S. Sohatsky, J.H. Neethling *1.2 MeV/amu Xe ion induced damage recovery in SiC* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 326 (2014) 337–340.
- [162] I. Lhermitte-Sebire, J.L. Chermant, M. Levalois, E. Paumier, J. Vicens *Study of defects created by swift Xe ions in 6H α SiC single crystals* // Radiat. Eff. Defects Solids 126 (1993) 173–176.
- [163] A. Audren, I. Monnet, Y. Leconte, X. Portier, L. Thomé, et al. *Structural evolution of SiC nanostructured and conventional ceramics under irradiation* // Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 266 (2008) 2806–2809.