

Н.О. Микитенко

## Новий підхід у використанні молекулярної динаміки для дослідження радіаційних процесів

*Південноукраїнський національний педагогічний університет ім. К.Д. Ушинського,  
вул. Старопортофранківська 26, 65020 Одеса, Україна; e-mail: mykytenkon@gmail.com*

Пропонується модифікація метода класичної молекулярної механіки, яка дозволяє досліджувати внесок різних інтервалів енергії в стаціонарному енергетичному спектрі інцидентних частинок в остаточний радіаційний ефект. Введена «функція удару», яка моделює передачу відповідного імпульса атому кристала. Ця функція пов'язана з випадковою функцією, яка визначає частоту ударів та величину імпульсів. Запропонований підхід проілюстрований на прикладі іонного опромінення триатомного кристалу. Показано, що у разі великої різниці між атомними масами у певному інтервалі енергії виникають так звані «важкі» атомні кластери.

**Ключові слова:** молекулярна динаміка, дефекти у багатоатомних кристалах.

*Стаття поступила до редакції 27.05.2014; прийнята до друку 15.06.2015.*

### Вступ

Метод молекулярної динаміки (МД) є особливо важливим у тих випадках, коли експериментальні дослідження забирають багато часу і є досить складними. Розрахунки методом МД ефективно використовуються при вивченні механізмів радіаційної деструкції матеріалів. Використовуючи метод МД було виявлено багато ефектів стосовно особливостей проходження швидких частинок через речовину [1-3].

При довгострокових незмінних умовах опромінювання, як правило, встановлюється стаціонарний розподіл енергії падаючих частинок. У кожному інтервалі енергетичного спектру цих частинок реалізуються відповідні механізми виникнення дефектів. Остаточний вплив випромінювання визначається суперпозицією радіаційних ефектів, викликаних падаючими частинками зі всіх інтервалів їх енергетичного спектру. Для того, щоб виявити механізми радіаційного дефектоформування, важливо з'ясувати механізми радіаційно-стимульованих процесів в різних інтервалах енергетичного спектру інцидентних частинок.

Розроблена програма використовує МД підхід для вивчення радіаційно-індукованих процесів в обраному діапазоні енергетичного ефектів, обумовлених певними інтервалами енергії інцидентних частинок. Ця функція визначає величину сили ( $F_{SH}$ ), яка діє на атоми кристалічної ґратки [4]. Введена також випадкова функція, що

визначає, який атом обирається для удару із опроміненої множини, величину енергії удару із обраного енергетичного інтервалу та напрямок удару.

Показано, що за допомогою моноенергетичного іонного пучка можна цілеспрямовано створювати певні дефектні структури. Ці результати можуть бути використані в трековій електроніці [5,6]. Властивості трекових пристроїв залежать від форми треків та електронної структури внутрішніх поверхонь треків. Такі необхідні властивості треків можна отримати за допомогою запропонованого підходу.

### I. Модифікація стандартної схеми МД

Запропонований підхід полягає у тому, що можна вивчити вплив випромінювання падаючих частинок в окремому діапазоні енергій ( $E_1$ ,  $E_2$ ) від загального енергетичного спектра. У цьому випадку, у разі опромінення іонами з масою  $m_{ion}$  передана енергія атомам ґратки дорівнюватиме:

$$e_{1,2} = \frac{4m_{ion}M}{(m_{ion} + M)^2} \cdot E_{1,2}, \quad (1)$$

де  $m_{ion}$  – маса іона,  $M$  – маса атома ґратки,  $e_1$ ,  $e_2$  – передана енергія, яка відповідає енергії інцидентних частинок  $E_1$  та  $E_2$ .

Для імітації ефекта падаючих частинок на атоми ґратки ми використовуємо випадкову функцію (ВФ), яка в розробленій програмі виконує три завдання:

- визначає атом ґратки, на який буде діяти  $F_{SH}$ ,
- визначає значення енергії з інтервалу ( $e_1$ ,  $e_2$ ),

- визначає напрямок удару на вибраний атом.

Випадкова функція реалізує алгоритм лінійного конгруентного генератора (ЛКГ), який видає послідовність псевдовипадкових чисел. Цей генератор є одним з найвідоміших алгоритмів генерації псевдовипадкових чисел, він легко реалізується і є швидким, тому що виконує арифметичні операції за двійковим модулем. Генератор визначається таким чином [7]:

$$X_{n+1} = (aX_n + c) \bmod m, \quad (2)$$

де  $X_0$  – початкове значення,  $m = 232$ ,  $a = 214013$ ,  $c = 2531011$  (типові дані при генерації випадкових чисел у мові програмування C#).

ЛКГ не слід використовувати для моделювання, наприклад методом Монте-Карло або для криптографічних розрахунків, де неможливо використовувати збіг випадковостей. Але цей генератор зберігає свою корисність для некриптографічних розрахунків, таких як моделювання. Він є ефективним і найчастіше використовується в емпіричних тестах та показує хороші статистичні результати.

У запропонованій моделі передбачається, що число атомів, що одночасно піддаються ударам, пропорційна потужності дози, а число кроків пропорційно дозі опромінювання. Для визначення кінетичної енергії, яка передана атому ґратки, ми реалізували масштабування сили  $F_{SH}$ . При моделюванні ми виходили з того, що існує мінімальна енергія, яка необхідна для переміщення атома ґратки у міжвузля при пружному зіткненні ( $E_d$ ). Таким чином, можна використовувати наступне співвідношення:

$$\frac{(F_{SH}t)^2}{2M} = E_d, \quad (3)$$

де  $t$  – тривалість дії  $F_{SH}$ ,  $M$  – маса атома ґратки,  $E_d$  – енергія зміщення.

У комп'ютерному експерименті ми поступово збільшуємо значення сили  $F_{SH}$ , доти атоми починають необоротно покидати свої вузли. Таке значення сили  $F_{SH}$  відповідає енергії зміщення  $E_d \approx 25 - 30$  eV. Таким чином, можна визначити інтервал  $F_{SH}$ , який відповідає енергетичному інтервалу ( $\varepsilon_1, \varepsilon_2$ ), та, відповідно ( $E_1, E_2$ ), як це визначено рівнянням (1).

## II. Конструювання модельного кристала

В методі МД рух атомів кристала описується рівняннями руху класичної механіки із заданим потенціалом взаємодії [8]. Якщо система складається з  $N$  частинок, сила, що діє на  $i$ -ий атом, обчислюється як екторна сума сил, що діють з боку інших  $N-1$  атомів. Тоді для  $i$ -ого атома рівняння руху записується:

$$M \frac{d^2 \mathbf{r}_i(t)}{dt^2} = \sum_{i \neq j} \mathbf{F}(r_{ij}), \quad (4)$$

$$\mathbf{F}(r_{ij}) = - \sum \frac{\partial U(\mathbf{r}_{ij})}{\partial \mathbf{x}_i}, \quad (5)$$

де  $\mathbf{r}_i(t)$  – радіус-вектор  $i$ -ого атома,  $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$  – відстань між  $i$  та  $j$  атомами,  $\mathbf{F}(r_{ij})$  – сила, що діє на  $i$  атом з боку інших  $j$  атомів.

При роботі з методом МД необхідно визначити оптимальний розмір кристала, встановити величину кроку інтегрування  $\Delta t$ , форму масштабування величин та визначити потенціал міжатомної взаємодії  $U(r_{ij})$ .

Ключовим питанням при МД-моделюванні є вибір потенціала взаємодії між атомами кристала [8]. Їх вибір залежить від природи хімічних зв'язків досліджуваної речовини та характеру дослідження. У нашому випадку потенціал не повинен впливати на якість результату комп'ютерного експеримента.

Найбільш популярним парним потенціалом, що використовується при МД-моделюванні, є потенціал Ленарда-Джонса [9]:

$$U(r_{ij}) = \frac{A}{r_{ij}^{12}} - \frac{B}{r_{ij}^6}, \quad (6)$$

де  $A = 4\epsilon\sigma^{12}$ ,  $B = 4\epsilon\sigma^6$ ,  $r$  – міжатомна відстань,  $\epsilon$  – глибина потенційної ями,  $\sigma$  – відстань, на якій міжатомний потенціал дорівнює нулю. Цей потенціал є стандартним для будь-яких досліджень, де основна увага приділяється фундаментальним питанням, а не вивченню властивостей даного конкретного матеріала.

При виборі кроку інтегрування, зазвичай, прагнуть зробити його якомога більшим, але таким, щоб уникнути накопичення занадто великої похибки при інтегруванні. У той же час, крок повинен бути відповідним до шкали, за якою відбуваються зміни у модельній системі. Найчастіше крок інтегрування дорівнює  $10^{-14}$ - $10^{-15}$  с. Ми вибрали крок інтегрування рівним  $10^{-14}$  с.

Для вирішення системи рівнянь руху розроблена велика кількість алгоритмів, наприклад, Ейлера, Верле, Рунге-Кутта. Стосовно МД-моделювання, найбільш популярним є алгоритм Верле [9]. Алгоритм передбачає подвійне інтегрування по швидкості і координаті на кожному кроці. Відповідно до алгоритму Верле, положення частинки і її швидкість на часовому кроці  $n$  визначаються рівняннями:

$$\mathbf{r}_i^n = \mathbf{r}_i^{n-1} + \Delta t \mathbf{v}_i^{n-1} + \frac{(\Delta t)^2}{2m} \mathbf{F}_i^{n-1}, \quad (7)$$

$$\mathbf{v}_i^n = \mathbf{v}_i^{n-1} + \frac{\Delta t}{2M} (\mathbf{F}_i^n + \mathbf{F}_i^{n-1}), \quad (8)$$

де  $\mathbf{v}_i$  – швидкість  $i$  атома,  $\Delta t$  – величина кроку інтегрування,  $n$  – номер кроку інтегрування.

У запропонованій моделі повна сила, що діє на  $i$  атом представлена у вигляді:

$$\mathbf{F}_i^n = - \sum \frac{\partial U(\mathbf{r}_{ij})}{\partial \mathbf{x}_i} + \mathbf{F}_{SH}, \quad (9)$$

де  $F_{SH}$  – додаткова «шокова» сила, яка імітує ефект атомних зіткнень.

Таблиця 1

Значення параметрів потенціалу модельної ґратки.  $A_1, B_1$  - значення параметрів потенціалу для малих атомів,  $A_2, B_2$  - для середніх атомів,  $A_3, B_3$  - для великих атомів,  $A_4, B_4$  - значення параметрів потенціалу для пар  $A_1 - B_1, A_5, B_5$  - для пар  $A_1 - A_3, A_6, B_6$  - для пар  $A_2 - A_3$ .

№	$A_1$	$B_1$	$A_2$	$B_2$	$A_3$	$B_3$
1	$3,7 \cdot 10^{-12}$	$0,16 \cdot 10^{-6}$	$2,9 \cdot 10^{-12}$	$0,17 \cdot 10^{-6}$	$2,7 \cdot 10^{-12}$	$0,017 \cdot 10^{-6}$
2	$3,5 \cdot 10^{-12}$	$0,12 \cdot 10^{-6}$	$2,5 \cdot 10^{-12}$	$0,15 \cdot 10^{-6}$	$2,5 \cdot 10^{-12}$	$0,012 \cdot 10^{-6}$
3	$3,1 \cdot 10^{-12}$	$0,09 \cdot 10^{-6}$	$2,3 \cdot 10^{-12}$	$0,12 \cdot 10^{-6}$	$2,1 \cdot 10^{-12}$	$0,01 \cdot 10^{-6}$

№	$A_4$	$B_4$	$A_5$	$B_5$	$A_6$	$B_6$
1	$3,3 \cdot 10^{-12}$	$0,17 \cdot 10^{-6}$	$3,2 \cdot 10^{-12}$	$0,09 \cdot 10^{-6}$	$2,8 \cdot 10^{-12}$	$0,19 \cdot 10^{-6}$
2	$3,0 \cdot 10^{-12}$	$0,13 \cdot 10^{-6}$	$3,0 \cdot 10^{-12}$	$0,066 \cdot 10^{-6}$	$2,5 \cdot 10^{-12}$	$0,08 \cdot 10^{-6}$
3	$2,7 \cdot 10^{-12}$	$0,11 \cdot 10^{-6}$	$2,6 \cdot 10^{-12}$	$0,05 \cdot 10^{-6}$	$2,2 \cdot 10^{-12}$	$0,065 \cdot 10^{-6}$

Комп'ютерний експеримент проводився з використанням модельного кристалу кубічної форми, що складається з трьох різних типів атомів. Кількість атомів у кристалі дорівнює 9000. Атомні маси умовно дорівнюють  $A_1 = 240, A_2 = 150, A_3 = 28$ . Значення параметрів потенціалу для взаємодії атомів з вказаними атомами взяті з [10-13]. Параметри різнорідних атомів були визначені як середні для кожної пари атомів:

$$X_{ij} = \frac{X_{ii} + X_{jj}}{2}, \quad (10)$$

де  $X_{ij}$  - значення параметрів потенціалу взаємодії між різнорідними атомами у парі,  $X_{ii}, X_{jj}$  - між однорідними.

Виходячи з того, що наш кристал є модельним, ми варіювали значеннями параметрів потенціалу для того, щоб стабілізувати кристалічну ґратку. Значення параметрів потенціалу приведено у таблиці 1.

### III. Реалізація

Ми розробили комп'ютерну програму, використовуючи мову програмування C#.Net [14, 16] та можливості потужного графічного двигуна Unity3d [16]. Програма має графічний інтерфейс, де

відображена динаміка атомів, додаткові вікна з параметрами програми та інформацією про вибрані атоми (рис. 1).

Виходячі з основних принципів об'єктно-орієнтованого програмування, програма має декілька класів. Один з них обчислює положення і характеристики кожного атома за методом МД-моделювання з використанням алгоритму Верле. Розрахунки системи рівнянь руху, а також отримання випадкових значень введеної випадкової функції забезпечуються за допомогою класів та методів середовища .Net, а саме Math, Random та ін. Інший клас відповідає за рендеринг графічних результатів у режимі реального часу. Для простеження положення атомів та їх відображення на екрані монітору використовуються методи графічного двигуна UnityEngine. Також за допомогою подібних методів встановлюються нові координати та напрямки руху атомів. Для масштабування параметрів у програмі введені відповідні коефіцієнти.

Програма дозволяє простежити за координатами кожного окремого атома ґратки. Вибраний атом підсвічується певним чином, його дані, а саме координати XYZ у тривимірній системі координат, виводяться у додаткове вікно. Також виводиться відстань, на яку відлітає атом при пружному ударі, та

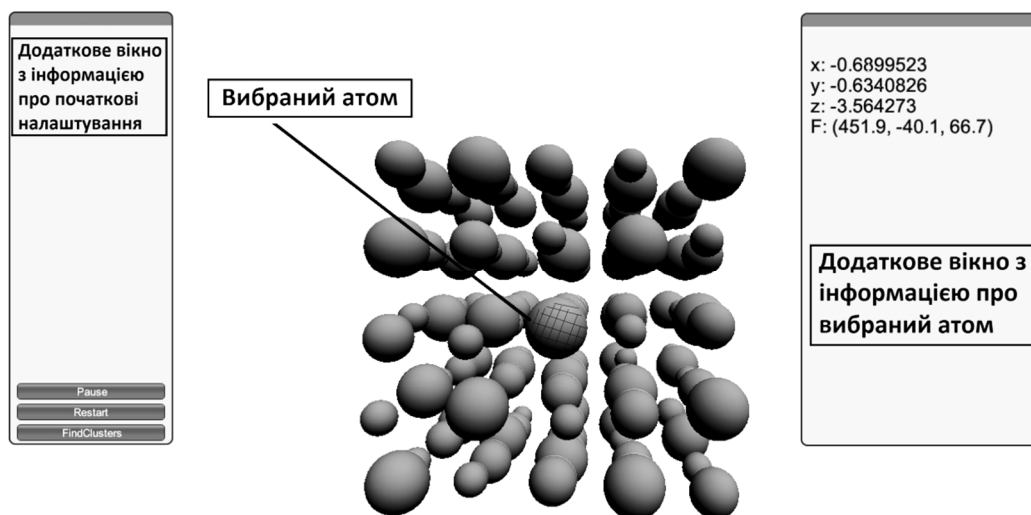
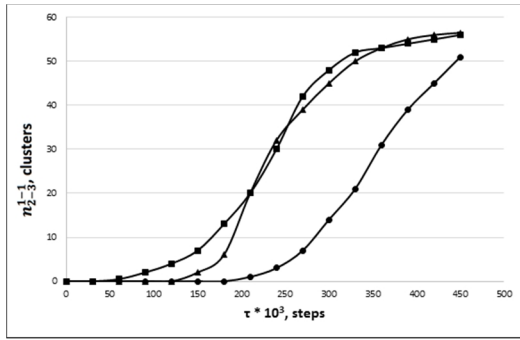
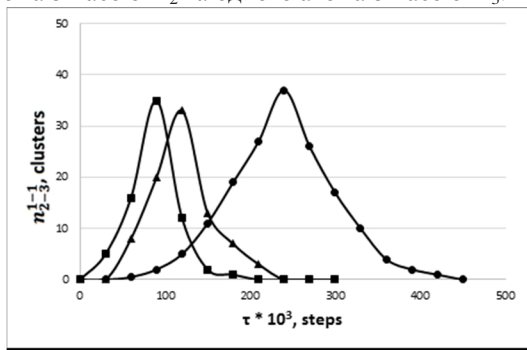


Рис. 1. Інтерфейс програми з фрагментом модельного кристала. Великі за розміром атоми умовно відовідають  $A_3$ , середні -  $A_2$ , найменші -  $A_1$ .



**Рис. 2.** Ілюстрація залежності порогової енергії виникнення  $m_2$ - $m_3$  кластерів від інтенсивності іонного опромінення в I інтервалі енергій.  $n_{2-3}^{1-1}$  - кількість кластерів, які складаються з одного атома з масою  $m_2$  та одного атома з масою  $m_3$ .



**Рис. 3.** Ілюстрація залежності порогової енергії виникнення  $m_2$ - $m_3$  кластерів від інтенсивності іонного опромінення в II інтервалі енергій.  $n_{2-3}^{1-1}$  - таке ж, як на попередньому рисунку.

значення сили, що діє на вибраний атом.

Початкова міжатомна відстань у модельній ґратці між різнорідними атомами  $a = 5.3 \text{ \AA}$  (треба зауважити, що це значення масштабується відповідно з іншими параметрами програми), між малими атомами  $2a = 10,6 \text{ \AA}$ . Ми вважаємо, що два або більше атомів сформували кластер, якщо вони зблизилися один до одного на відстань, менше за  $\frac{1}{2}a$ . Так як нам відомі координати кожного атома ґратки, ми можемо визначити, які атоми сформували кластер та загальну їх кількість у кластері.

#### IV. Іонне бомбардування трьохатомного кристала

Запропонований підхід ми застосували для вивчення радіаційних дефектів в модельному трьохатомному кристалі, який піддається бомбардуванню іонами азоту ( $N^+$ ). Атомні маси обрані таким чином, щоб продемонструвати результати застосування підходу. Далі ми позначимо маси відповідно  $m_1$ ,  $m_2$  та  $m_3$ . У комп'ютерному експерименті бомбардування виконується в двох інтервалах  $E$ : (I)  $34 \text{ eV} - 93 \text{ eV}$  і (II)  $93 \text{ eV} - 142 \text{ eV}$ ,

що визначається у відповідності з виразом (1). При проведенні експериментів ми варіюємо значення інтенсивності іонного опромінення.

Почнемо з розгляду поведінки атомів в першому інтервалі енергій ( $34 \text{ eV} - 93 \text{ eV}$ ) під час радіаційно-індукованих структурних змін цільової кристала. Було встановлено, що в результаті розупорядкування підґратки А1 важкі атоми ( $A_2$ ,  $A_3$ ) утворюють кластери. Кінетика накопичення кластерів  $m_2$ - $m_3$  в залежності від інтенсивності іонного опромінення відображена на рис. 2. Крива з позначенням кола відповідає найменшій інтенсивності опромінення, крива з позначенням квадрата – найбільшій інтенсивності, крива з позначенням трикутника – середній, відповідно. Можна бачити, що існує порогова доза, коли починається утворення важких кластерів. Потім, при певних значень дози, криві йдуть до насичення. При подальшому збільшенні дози накопичення двохатомних кластерів  $m_2$ - $m_3$  припиняється, а утворюються кластери тільки з  $m_3$  атомів.

При бомбардуванні модельного кристала іонами у другому енергетичному інтервалі ( $93 \text{ eV} - 142 \text{ eV}$ ) ми спостерігаємо подібне формування  $m_2$ - $m_3$  кластерів, які руйнуються з накопиченням дози, як це показано на рис. 3. Крива з позначенням кола відповідає найменшій інтенсивності опромінення, крива з позначенням квадрата – найбільшій, крива з позначенням трикутника – середній інтенсивності опромінення. У цьому енергетичному інтервалі спочатку відбувається руйнування підґратки А1, що призводить до формування кластерів  $m_2$ - $m_3$  ( $A_2$ ,  $A_3$ ). Одночасно з руйнуванням двохатомних кластерів  $m_2$ - $m_3$  утворюються  $m_3$  кластери.

#### Висновки

Для вивчення радіаційно-індукованих процесів в обраному діапазоні енергетичного спектру падаючих частинок ми модифікували МД підхід завдяки впровадженню «шокової функції»,  $F_{SH}$ , яка визначає величину сили, що діє на атоми кристалічної ґратки. Для імітації імпульсів, що передаються атомам ґратки при опроміненні, ми вводимо випадкову функцію. Ця функція визначає, який атом обирається для удару із опроміненої множини, величину енергії удару із обраного енергетичного інтервалу та напрямок удару.

Аналіз модельних результатів бомбардування трьохатомного модельного кристала у певному інтервалі енергій випромінювання дозволяє прогнозувати особливості формування кластерів у різних енергетичних інтервалах. Ці результати можуть бути корисними при створенні треккових електронних приладів, модифікації електронних матеріалів і в інших випадках.

- [1] J. Edward, Jr. Smiley, *Molecular Dynamics Simulations of Atomic and Cluster Bombarded Surfaces* (The Pennsylvania State University, School of chemistry, 2006).
- [2] R.S. Nelson, *The Observation of Atomic Collisions in Crystalline Solids*, Series “Defects in crystalline solids” (Eds. S. Amelinskx, R. Gevers, J. Nihoul) (North-Holland Publishing Company, 2013).
- [3] P.M. Derlet, D. Nguyen-Manh, S.L. Dudarev, *Phys. Rev. B* 76, 054107 (2007).
- [4] N. Mykytenko, D. Fink, A. Kiv, *Journal Comp. Sci.* 6, 34 (2015).
- [5] D. Fink et al, *Int. J. Nanosci.* 04, 965 (2005).
- [6] D. Fink, I. Klinkovich, O. Bukelman, R.S. Marks, A. Kiv, D. Fuks, W.R. Fahrner, L. Alfonta, *Biosensors and Bioelectronics* 24, 2702 (2009).
- [7] J. Honerkamp, *Statistical Physics: An Advanced Approach with Applications*, 3rd edition (Springer, 2012).
- [8] M. Griebel, S. Knapek, G. Zumbusch, *Numerical Simulation in Molecular Dynamics* (Springer, 2007).
- [9] E. Hairer, Ch. Lubich, G. Wanner, *Acta Numerica* 1, 399 (2003).
- [10] Y. Li, T.R. Shan, T. Liang, S.B. Sinnott, S.R. Phillpot, *J. Phys.: Condens. Matter* 24(23), 5403 (2012).
- [11] D.E. Smirnova, S.V. Starikov, V.V. Stegailov, *J. Phys.: Condens. Matter* 24(1), 015702 (2012).
- [12] V.V. Ogorodnikov, V.V. Pokropivny, *Phys. Status Solidi B* 166(1), 69 (1991).
- [13] K. Albe, R. Benedek, D. N. Seidman, R.S. Averbach, *Classical Interatomic Potential for Nb-Alumina Interfaces*, MRS 654 (2000).
- [14] J.M. Winey, Alison Kubota, Y.M. Gupta, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* 17, 055004 (2009).
- [15] A. Troelsen, *C# 2010 and the.NET 4 Platform*, 5th Edition, (APRESS, 2010).
- [16] P.J. Deitel, *C# 2010 for Programmers*, 4th ed. (Prentice Hall, 2010).

N. Mykytenko

## **The New Molecular Dynamics Approach to Study Radiation Processes**

*South-Ukrainian National Pedagogical University after K.D. Ushinskij, 26 Staroportofrankivska str., 65020 Odessa, Ukraine; e-mail: [mykytenkon@gmail.com](mailto:mykytenkon@gmail.com)*

A new modification of the classic method of molecular dynamics is proposed. Method allows clarifying the input of different intervals of the stationary energy spectrum of the incident particles to the final radiation effect. A shock function is introduced that describes the transfer of the corresponding pulse to the crystal atom. The action of shock function is determined by the random function that provides the necessary frequency and the magnitude of shocks. The approach is demonstrated on the example of the ion irradiation of trihydric crystal. It was found that in certain energy intervals “heavy clusters” are formed.