

НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ ОСОБЕННОСТИ ТОКОВ ИОНОВ, ОТРАЖЕННЫХ ОТ ПОВЕРХНОСТИ ТВЕРДОГО ТЕЛА

Ф.И.Далидчик, С.А.Ковалевский, Н.Н.Колченко, Б.Р.Шуб

Институт химической физики РАН

117977 Москва, Россия

Поступила в редакцию 22 июля 1993 г.

Рассматриваются различные особенности энергетических зависимостей токов ионов, отраженных от поверхности твердого тела. Предсказано существование особенностей трех типов (Λ , V и h), возникающих в результате конкуренции различных электронных переходов (нейтрализации, идущей по различным каналам, реионизации, девозбуждения и ренеитрализации), сопровождающих движение атомной частицы. Обсуждены новые спектроскопические возможности экспериментов по нейтрализации медленных ($E < 200$ эВ) ионов вблизи поверхности твердого тела.

Взаимодействие пучков низкоэнергетических ($E < 500$ эВ) ионов A^+ ($A=He, Ne, Ar, N, N_2$ и др.) с поверхностью твердого тела (ПТТ) сопровождается, как хорошо известно, двумя легко детектируемыми процессами – их отражением и электронной эмиссией. Спектроскопия оже-электронов широко используется для изучения электронной структуры ПТТ [1]. Спектроскопические возможности измерений энергетических зависимостей токов отраженных ионов, J^+ , которые, как мы покажем ниже, достаточно интересны, до сих пор не рассматривались.

Принципиально новые возможности экспериментов по отражению медленных ионов от ПТТ связаны с тем, что функции $J^+(E)$ имеют различные, во многих случаях ярко выраженные, особенности – одиночные максимумы, изломы и комбинации изломов с максимумами. Эти особенности возникают в результате конкуренции различных электронных переходов, сопровождающих отражение ионов – оже- и резонансной нейтрализации, реионизации, девозбуждения и ренеитрализации. Энергии, при которых наблюдаются различные особенности, как правило, образуют последовательность:

$$E_{\Lambda} < E_h < E_V \quad (1)$$

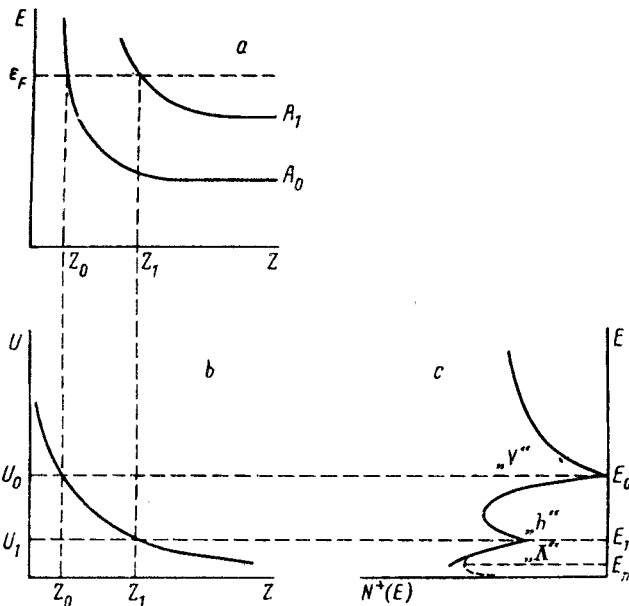
(максимумы, изломы и комбинации изломов с максимумами мы будем обозначать буквами Λ, V, h , соответственно).

Простейшая модель, достаточная для иллюстрации механизмов формирования особенностей всех трех типов, приведена на рисунке. Рисунок *a* воспроизводит схему одноэлектронных термов, $\epsilon_i(z)$, атомной частицы A , взаимодействующей с ПТТ (z – расстояние частицы до поверхности, индексы $i = 0, 1$ соответствуют основному и возбужденному состояниям).

При $E \gg \omega \sim 1$ (ω – характерная частота электронных переходов, $e = \hbar = m = 1$) движение частиц A^+ , A_1 и A_0 можно описывать единой траекторией:

$$dz = u(z)dt, \quad u(z) = [2(E - U(z))/M]^{1/2}$$

(M – масса иона, $U(z)$ – потенциал взаимодействия). В рассматриваемом интервале энергий потенциал взаимодействия с хорошей точностью аппрокси-



Механизмы формирования особенностей токов отраженных ионов: *a* – схема электронных термов частиц A_0 и A_1 , ϵ_F – уровень Ферми; *b* – потенциал взаимодействия частицы с поверхностью; *c* – энергетическая зависимость токов отраженных ионов, соответствующая *a* и *b*

мируется формулой Борна–Майера [2]:

$$U(z) = B \exp(-bz).$$

Последовательность электронных переходов начинается, очевидно, с акта нейтрализации иона, в результате которой образуется частица A_1 или (менее вероятно) частица A_0 . Для скоростей нейтрализации примем известную аппроксимацию [1]:

$$\Gamma_i(z) = \Gamma_i^0 \exp(-a_i z)$$

(отметим, что в соответствии с физическими представлениями о механизмах нейтрализации по каналам $A^+ \rightarrow A_{1,0}$ для параметров Γ_i^0 и a_i следует ожидать соотношений: $\Gamma_0^0 > \Gamma_1^0$, $a_0 > a_1$).

Частицы A_1 на любом расстоянии от поверхности могут испытывать девозбуждение (со скоростью $W(z)$). При $z < z_1$ (см. рисунок *a*) частицы A_1 реионизируются, образовавшиеся ионы могут затем ренейтрализоваться по каналу $A^+ \rightarrow A_0$ ($z > z_0$). При $z < z_0$ возможны лишь процессы реионизации частиц A_1 и A_0 и девозбуждение ($A_1 \rightarrow A_0$).

Необратимость электронных переходов позволяет описывать эволюцию электронной подсистемы атомной частицы методом кинетических уравнений, определяющих заселенности соответствующих состояний: $n_{0,1}(t)$.

В рассматриваемом случае (для систем, термы которых имеют вид, приведенный на рисунке *a*) решение кинетических уравнений может быть выписано в общем виде. Оно содержит неаналитичности, возникающие при учете процессов реионизации частиц $A_{1,0}$ (соответствующие энергетические пороги, U_1 и U_0 , отмечены на рисунке *b*).

Ниже мы приведем и проанализируем конечные выражения для заселенности ионного состояния $N^+(t) = 1 - n_0 - n_1$ при $t \rightarrow \infty$.

Для интервала энергий $E < U_1$ имеем

$$N^+(E) = \exp \left(-2 \sum_i \frac{\Gamma_i^0}{bu_0} \left(\frac{E}{B} \right)^{a_i/b} C(a_i, b) \right) \equiv N_0^+(E); \quad (2)$$

здесь $N^+(E) = N^+(t \rightarrow \infty)$, $u_0 = u(\infty) = (2E/M)^{1/2}$,

$$C(a, b) = \int_0^1 x^{\frac{a}{b}-1} (1-x)^{-1/2} dx \quad (3)$$

– числа порядка единицы (при $a_i \sim b \simeq 2$ [2]).

Согласно формуле (2), при $b/2 < a_1 < a_0$ имеем $\frac{dN_0^+}{dE} < 0$, то есть с ростом энергии ток отраженных ионов монотонно уменьшается [3-5]. На рисунке b этот, чаще всего встречающийся, случай отмечен сплошной линией. Однако, если $a_1 < b/2 < a_0$, то конкуренция двух каналов нейтрализации приводит к появлению у функции одиночного максимума, положение и полуширина которого определяются динамическими (B и b) и спектроскопическими (Γ_i^0 и a_i) параметрами.

Низкоэнергетический максимум наблюдался, например, в экспериментах по отражению ионов CO_2^+ от поверхности Pt (100) (см. рис.11 работы [5]). По положению ($E_m \simeq 40$ эВ) и полуширине ($\Delta E \simeq 40$ эВ) этого максимума нетрудно оценить отношение скоростей резонансной и оже-нейтрализации в рассматриваемой системе. Для a_1 можно принять $a_1 \ll 1$, $a_0 \simeq b$ [3], $b^{-1} = 0,5$ [2]; тогда имеем: $\Gamma_1^0/\Gamma_0^0 \approx 10^{-2}$.

С увеличением энергии ионов в выражении для $N^+(E)$ появляются дополнительные слагаемые, $\delta N_i^+(E) \sim \eta(E - U_i)$, учитывающие вклады ионов, образовавшихся в результате реионизации частиц A_1 и A_0 ($\eta(x)$ – ступенчатая функция Хевисайда):

$$N^+(E) = N_0^+(E) + \sum_i \delta N_i^+(E). \quad (4)$$

Слагаемое $\delta N_1^+(E)$ имеет вид

$$\delta N_1^+(E) = 2P_1 P_2 P_3 \int_{z_1(E)}^{z_1} dz \frac{\Gamma_1}{u(z)} \text{ch} \left[\int_{z_1(E)}^z (W + \Gamma_1 - \Gamma_0) \frac{dz'}{u(z')} \right] \eta(E - U_1). \quad (5)$$

Здесь $P_1(E)$ – вероятность достижения точки z_1 частицей A_1 , $P_2(E)$ – вероятность "выживания" ионов при движении от точки z_1 до бесконечности, $P_3(E)$ – вероятность отсутствия электронных переходов при движении частицы на отрезке $[z_1, z_1]$, $z_1(E)$ – классическая точка поворота: $U(z_1) = E$. Величины P_1, P_2, P_3 в точке $E = U_1$ особенности не имеют. Нетрудно видеть, что в точке $E = U_1$ функция $N^+(E)$, определенная формулами (2)–(5), имеет характерный излом:

$$\begin{aligned} \text{при } E < U_1, \quad \frac{dN^+}{dE} < 0, \quad \left| \frac{dN^+}{dE} \right| \sim \text{const } E^{a_1/b-3/2}, \\ \text{при } E > U_1, \quad \frac{dN^+}{dE} > 0, \quad \left| \frac{dN^+}{dE} \right| \sim \text{const } (E - U_1)^{-1/2}. \end{aligned} \quad (6)$$

Наличие в решении $N^+(E)$ корневой особенности ($\delta N_0^+ \sim \text{const}(E - U_1^{1/2})$) приводит к тому, что непосредственно за порогом реионизации частиц A_1 вероятность отражения ионов резко возрастает. Затем, при достижении условия

$$\int_{z_t(E)}^{z_1} \Delta \frac{dz}{u(z)} \sim 1 \quad (\Delta \approx \max(\Gamma_0, W))$$

функция $\delta N_0^+(E)$ (за счет множителя P_3) экспоненциально быстро убывает, то есть особенность, соответствующая реионизации электронновозбужденных частиц, имеет весьма характерную форму, отмеченную на рисунке *b* буквой *h*.

Форма пороговой особенности, соответствующей реионизации невозбужденных частиц A_0 , существенно иная. Эта особенность содержится в слагаемом $\delta N_0^+(E)$, которое имеет вид

$$\delta N_0^+(E) = 2P_1 P_2 P_3 \text{sh} \left[\int_{z_t(E)}^{z_0} \frac{\Gamma_0 dz}{u(z)} \right] \eta(E - U_0). \quad (7)$$

Здесь $P_1(E)$ – вероятность достижения точки z_0 частицей A_0 , $P_2(E)$ – вероятность "выживания" иона при движении от точки z_0 до бесконечности, $P_3(E)$ – вероятность "выживания" частицы A_0 на отрезке $[z_t, z_0]$.

Функция $\delta N_0^+(E)$, как и функция $\delta N_1^+(E)$, имеет в точке $E = U_0$ особенность корневого типа (функция $N^+(E)$ имеет излом, описываемый формулами (6)). Однако из-за отсутствия на отрезке $[z_t(E), z_0]$ конкурирующих процессов (девозбуждения и ренейтрализации) в надпороговой области изменения E спада слагаемого $\delta N_0^+(E)$ не происходит: $\frac{d}{dE} \delta N_0^+ > 0$ при всех значениях E . При $E \gg U_0$ имеем $\delta N_0^+ \sim \exp(-\frac{\text{const}}{U_0})$, что соответствует известной формуле Хэгструма [1]. Пороговая особенность в этом случае имеет форму одиночного асимметричного провала, отмеченного на рисунке *b* буквой *V*. Масштабы этих особенностей значительно больше масштабов особенностей типа *h*. Их легче обнаружить экспериментально (при небольших углах падения (α) и отражения (β)).

Особенности типа *V* были впервые обнаружены (но не интерпретированы) в экспериментах по отражению ионов Ag^+ , N^+ и N_2^+ от Pt (100) [3]. Впоследствии их наблюдали те же авторы для ионов He^+ , Ne^+ [4], C^+ , CO^+ , CO_2^+ [5]. Особенности типа *h* остались незамеченными, хотя они заметны (а в некоторых случаях отчетливо видны) на многих экспериментальных кривых, приведенных в работах [3-5]. Они имеются для систем A^+/Pt (100), где

$A^+ = Ag^+$	(см. рис.2 работы [3],	$\alpha = \beta = 70^\circ$,	$E_h \simeq 25$ эВ),
$A^+ = N^+$	(рис.3 [3],	$\alpha = \beta \leq 70^\circ$,	$E_h \simeq 50$ эВ),
$A^+ = N_2^+$	(рис.4 [3],	$\alpha = \beta \leq 70^\circ$,	$E_h \simeq 50$ эВ),
$A^+ = C^+$	(рис.9 [5],	$\alpha = \beta \leq 70^\circ$,	$E_h \simeq 45$ эВ),
$A^+ = CO^+$	(рис.10 [5],	$\alpha = \beta \leq 70^\circ$,	$E_{h_1} \simeq 30$ эВ и $E_{h_2} = 90$ эВ),
$A^+ = CO_2^+$	(рис.11 [5],	$\alpha = \beta \leq 70^\circ$,	$E_h \simeq 50$ эВ).

Наличие *h* особенности у системы Ag^+/Pt (100) особенно интересно. В асимптотической области z термы всех электронновозбужденных состояний Ag

лежат выше уровня Ферми (см. рис.1 работы [3]). Особенность типа h в этом случае свидетельствует об образовании вблизи поверхности Pt(100) электронно-возбужденного столкновительного комплекса, одноэлектронный терм которого дважды пересекает уровень Ферми (на далеких расстояниях, где действуют поляризационные силы, и на достаточно малых, где возникает электронный обмен). По асимптотическому дефекту резонанса и положению особенности h нетрудно оценить энергию связи этого комплекса, E_d , и значение точки z_1 . Имеем: $E_d > 1$ эВ, $z_1 = b^{-1} \ln \frac{B}{E_h} \simeq 3,5$ ($B = 746,3$ [2], $b = 1,9$ [2], $E_h \simeq 25$ эВ [3]).

Зависимость особенностей Λ, V и h от основных динамических и спектроскопических параметров столкновительных комплексов, в том числе электронно-возбужденных, информация о которых в настоящее время практически отсутствует, указывает на новые интересные возможности экспериментов по отражению медленных ионов от ПТТ. Для реализации этих возможностей в полном объеме необходимо повышение точности измерений токов (прежде всего, улучшение энергетического разрешения) и параллельное компьютерное моделирование процессов отражения ионов, учитывающее зависимость измеряемых величин от характеристик рассеяния. Мы провели такое моделирование для процессов отражения медленных ионов Ag^+ от различных поверхностей Pt (для $E = 10$ эВ \div 200 эВ и $\alpha(\beta) = 5^\circ - 90^\circ$). Результаты расчетов воспроизводят все качественно важные особенности функций $J^+(E, \alpha, \beta)$ для этой системы (как опубликованные в работе [3], так и полученные в наших экспериментах). Подробности наших экспериментов и траекторных расчетов будут опубликованы отдельно.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант N93-03-18519).

-
1. Х.Хэгстрем, Электронная и ионная спектроскопия твердых тел, М.: Мир, 1981 г., стр. 281.
 2. A.A.Abrahamson, Phys. Rev. **178**, 76 (1969).
 3. H.Akazawa and Y.Murata, Phys. Rev. Lett. **61**, 1218 (1988).
 4. H.Akazawa and Y.Murata, Phys. Rev. **B39**, 3449 (1989).
 5. H.Akazawa and Y.Murata, J. Chem. Phys. **92**, (9) 5551 (1990).