

служить своеобразной альтернативой упомянутой выше компактификации размерностей.

Литература

1. Томсон Дж. Дж. Электричество и материя. (Прилож.: Томсон В. О вихревых атомах). М.; Л.: Госиздат, 1928.
2. Тимирязев А. К. Введение в теоретическую физику. М.; Л.: ГТИ, 1933.
3. Кастерин Н. П. // *Phil. Mag.* 1926. Vol. 2. P. 1208.

4. Грин М., Шварц Дж., Виттен Э. Теория суперструн: В 2 т. М.: Мир, 1990.
5. Гельфанд И. М., Шилов Г. Е. Обобщенные функции и действия над ними. М.: Гос. изд. физ.-мат. лит., 1958.
6. Poroova A. D. Impossible solutions? E-print Archive: *math-ph/0010022*.
7. Ламб Г. Гидродинамика. М.: ГТТИ, 1947.

Поступила в редакцию
20.08.01

УДК 539.19+539.2

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПОЛИАТОМНЫХ МОЛЕКУЛ ПРИ МАЛЫХ ЭНЕРГИЯХ

В. В. Комаров, А. М. Попова, И. О. Стурейко, Х. Юнгклас*)

(НИИЯФ)

E-mail: stureiko@mail.ru

Обсуждается теоретическая модель коллективных колебательных состояний — эксимолей, которые возникают в полиатомных молекулах, взаимодействующих при низких энергиях. Предполагается, что молекулы содержат подструктуры, состоящие из периодически упорядоченных одинаковых двухатомных диполей. В подструктурах происходит накопление эксимолей при скольжении молекул со скоростями ниже скорости Бора вдоль поверхности, содержащей молекулы такого же вида. Приводится аналитическое выражение для вероятности диссоциации молекулы в рассматриваемом процессе. Обсуждается возможный спектр фрагментов диссоциации.

Введение

В последнее время было проведено значительное число экспериментальных исследований, посвященных взаимодействию полиатомных органических молекул, движущихся с относительными скоростями, меньшими скорости Бора ($v_B < 5 \cdot 10^8$ см/с) [1–6].

Анализ результатов этих экспериментов показал, что, несмотря на малые энергии молекул, рассеивающихся на газовых или твердых мишенях, которые содержат органические полиатомные молекулы, происходит диссоциация участвующих в процессе молекул, а именно первичных молекул и молекул мишени. Было замечено, что в рассматриваемых процессах вероятность фрагментации существенно возрастает, если падающие и составляющие мишень полиатомные молекулы содержат подструктуры в виде цепей упорядоченных идентичных валентных связей — диполей. При этом фрагментами являются главным образом атомные группы, связанные со скелетными атомами цепи молекулы [5] и не принадлежащие цепным подструктурам.

В работах [1, 4] экспериментально показано, что вероятность диссоциации полиатомных молекул зависит от их относительной скорости, а также от угла падения на мишень. Было обнаружено, что вероятность фрагментации максимальна в случае

малых углов падения первичных молекул на поверхность мишени. Для объяснения этих эффектов нами была предложена теоретическая модель процесса диссоциации скользящих молекул под воздействием кулоновского периодического поля, создаваемого упорядоченными экранированными зарядами атомов поверхности. В рамках этой модели получено аналитическое выражение для вероятности диссоциации скользящих по поверхности полиатомных молекул, которые содержат подструктуры в виде цепей упорядоченных одинаковых валентных связей, имеющих дипольный момент [1, 4, 6, 7]. Анализ функции вероятности фрагментации скользящих полиатомных молекул при их взаимодействии с поверхностью показал, что эта вероятность зависит от горизонтальной составляющей их скорости, от параметров упорядоченных диполей в подструктуре падающей молекулы, а также от структурных и кулоновских параметров молекул поверхности.

Проведенные нами в рамках предложенной модели расчеты вероятности диссоциации полиатомных молекул, содержащих указанные выше подструктуры, при падении или скольжении молекул вдоль различных поверхностей оказались в хорошем согласовании с экспериментальными данными. Тем самым была подтверждена справедливость предложенной

*) Philipps-Universität Marburg, Marburg/Lahn, Germany.

модели [1, 4]. Это позволило сделать следующие выводы о природе рассматриваемого процесса:

1. Аккумуляция энергии в полиатомных молекулах при их скольжении вдоль поверхности на атомных расстояниях происходит локально в подсистемах в виде цепей упорядоченных валентных связей за счет множественного возбуждения эксимоней — коллективных колебательных состояний цепи диполей.

2. Вероятность диссоциации полиатомных молекул при их скольжении по поверхности имеет близкое к нулю значение, когда их скорости скольжения выше скорости Бора.

3. Вероятность диссоциации резонансным образом зависит от скорости скольжения молекул.

В настоящей работе в рамках изложенного выше теоретического подхода показано, что при рассеянии полиатомной молекулы на другой полиатомной молекуле, содержащейся в газовой фазе или в поверхностном слое мишени, происходит диссоциация обеих молекул, участвующих в процессе рассеяния, если, во-первых, относительные скорости движения молекул ниже скорости Бора и, во-вторых, молекулы содержат подструктуры упорядоченных двухатомных валентных связей, имеющих значительный дипольный момент. Результаты теоретических исследований сравниваются с экспериментально полученными данными по рассеянию полиатомных молекул на органических поверхностях.

Теория

В предлагаемом теоретическом анализе рассеяния полиатомной молекулы, движущейся со скоростью ниже скорости Бора, на другой полиатомной молекуле предполагается, что участвующие в этом процессе молекулы содержат подсистемы упорядоченных валентных связей — диполей. Структура этих подсистем такова, что один конец каждого диполя является атомом скелетной цепи молекулы.

Например, молекулярными подсистемами такого вида являются углеводородные цепи $(\text{CH}_2)_n$ органических молекул. В таких цепях атомы углерода образуют скелетную цепь молекулы, определяющую ориентацию системы в пространстве.

В данном случае предполагается также, что при кулоновском рассеянии полиатомных молекул указанного вида существует некоторый интервал времени T_{sl} , в течение которого подструктура в виде упорядоченной цепи валентных связей падающей молекулы движется со скоростью ниже скорости Бора (т. е. $v_{||} \leq v_B = 5 \cdot 10^8$ см/с) параллельно цепным структурам в виде цепей одинаковых упорядоченных валентных связей, входящим в состав молекул мишени.

Такое движение можно рассматривать как скольжение системы диполей одной молекулы в кулоновском поле упорядоченных зарядов другой молекулы.

В результате такого взаимодействия происходит взаимное возбуждение эксимоней в обеих молекулах.

Как было показано в работах [1, 4], накопление эксимоней в цепях каждой молекулы происходит независимо и приводит к существенному увеличению внутренней энергии обеих взаимодействующих молекул и их диссоциации. Спектр фрагментов диссоциации в таких процессах должен содержать фрагменты, принадлежащие обоим молекулам. Для анализа таких спектров следует независимо рассматривать процессы фрагментации падающей молекулы в поле молекулы мишени и наоборот.

При расчете вероятности фрагментации первичной (рассеиваемой) молекулы на молекуле мишени будем рассматривать подструктуру первичной молекулы как систему упорядоченных диполей, в которых возникают эксимоны под действием периодического поля, создаваемого упорядоченными экранированными зарядами подструктур молекул поверхности. Можно считать, что в данном процессе подструктуры молекулы поверхности движутся относительно покоящихся первичных молекул. Покажем, что движущаяся с относительной скоростью $v_{||}$ система конечного числа упорядоченных кулоновских экранированных зарядов создает систему периодических полей, частоты которых кратны величине $2\pi v_{||}/a$, где a — среднее расстояние между диполями в подструктуре [6].

Аналогично подходу, примененному в работах [4, 5], где рассматривалось поле, создаваемое зарядами, расположенными на плоскости в узлах решетки с координатами узлов (n_1, n_2) , $n_1 \in (0, \dots, N_1)$, $n_2 \in (0, \dots, N_2)$, рассчитаем поле системы экранированных зарядов атомов, входящих в подструктуры молекул мишени. При этом нас будут интересовать упорядоченные экранированные заряды отдельных атомов или некоторые усредненные заряды валентных связей подструктуры мишени, относительное движение которых коллинеарно движению падающей молекулы.

Используя методы расчета полей зарядов, расположенных в узлах решетки [1, 4, 5, 7], получим потенциал, создаваемый подструктурой молекулы мишени и действующий на диполи подструктуры первичной молекулы. Будем считать, что атомы подструктуры мишени образуют двумерную решетку на плоскости с постоянной решетки a и что диполи подструктуры падающей молекулы движутся на атомном расстоянии R_z (порядка нескольких ангстрем) параллельно плоскости, в которой расположена подструктура молекулы мишени.

Не ограничивая общности, в силу произвольности выбора осей молекулярной подструктуры на поверхности предположим, что направление движения системы зарядов подструктуры совпадает с одной из этих осей, т. е. относительная скорость системы имеет вид $v = \{v_x, 0, 0\}$. Тогда потенциал системы

экранированных зарядов может быть выражен следующим образом:

$$V(R, t) = \sum_m V_{m0}(R_z) \exp(i\mathbf{G}_{m0}\mathbf{R}_x) \exp(i\omega_{m0}t),$$

где $\mathbf{G}_{m0} = 2\pi \frac{m}{a}$, $\omega_{m0} = 2\pi \frac{mv}{a}$, $V(R) = \frac{eZ}{R_z} \times \exp\left\{-\frac{R_z}{a_{\text{eff}}}\right\}$, $a_{\text{eff}} = \frac{0,44}{\sqrt[3]{Z}} \cdot 10^{-8}$, Z — величина одного заряда,

$$V_m(R_z) = \int_{-\infty}^{\infty} dR_x \int_{-\infty}^{\infty} dR_y V(R) \cos\left(2\pi \frac{mR_x}{a}\right). \quad (1)$$

При анализе рассеяния полиатомной молекулы с относительной скоростью ниже скорости Бора на другой полиатомной молекуле можно предположить, что это рассеяние является потенциальным. При этом будем считать, что на протяжении некоторого времени молекулы движутся параллельно друг другу на расстоянии R_z , называемом прицельным параметром.

Как было показано в работе [4], собственные частоты эксимоля меньше собственных частот возбужденной изолированной валентной связи, входящей в структуру упорядоченных связей, однако время его жизни значительно больше, чем время жизни изолированной валентной связи. Эксимоли могут быть возбуждены в подсистемах одной из рассматриваемых молекул под воздействием периодического поля (1) другой, если частоты воздействующего поля окажутся кратными собственным частотам эксимоля.

В работах [4, 6] получено выражение для вероятности возбуждения одного эксимоля в подсистеме идентичных валентных связей молекулы при ее взаимодействии с периодическим полем, создаваемым упорядоченной структурой зарядов, входящих в состав другой молекулы:

$$P_{01}(v) = \frac{B\omega_{\text{ex}}}{v\sqrt{\nu_s^2 + \omega_{\text{ex}}^2}} \times \left[\exp\left(-\frac{a}{v}\sqrt{\nu_s^2 + \omega_{\text{ex}}^2}\right) \left(\frac{\omega_{\text{ex}}}{\sqrt{\nu_s^2 + \omega_{\text{ex}}^2}} - 1\right) \right]^2, \quad (2)$$

где

$$B = \frac{(2\pi)^2}{3\hbar} \frac{M_{01}^2 D_0^2 Z^2 e^2}{r_0^2 c^3 \varepsilon^{01} b}.$$

Здесь ω_{ex} — частота эксимоля, Z — усредненный заряд атома плоскости, $a_{\text{eff}} = \frac{0,44}{\sqrt[3]{Z}} \cdot 10^{-8}$ — эффективный радиус экранирования, $\nu_s = v/a_{\text{eff}}$ — частота возбуждающего поля, v — относительная скорость движения одной структуры относительно другой, D_0 — дипольный момент возбуждаемой валентной связи, e — заряд электрона, c — скорость света, r_0 — средняя длина диполя, ε^{01} — энергия эксимоля, b определяется отношением $v_z = bv$, v_z — перпендикулярная составляющая скорости молекулы при ее

движении на расстоянии R_z относительно молекул мишени.

Заметим, что время t_{tr} передачи возбуждения от одной валентной связи к другой, определяющееся соотношением $t_{\text{tr}}^{-1} = E_{\text{tr}}/(2\pi\hbar)$, где E_{tr} — энергия, необходимая для передачи возбуждения по цепи, позволяет оценить количество актов возбуждения одного и того же диполя за время взаимодействия молекул, т.е. за время скольжения T_{sl} . Это же соотношение позволяет оценить эффективное число диполей M , принимающих участие в возбуждении эксимоля за время скольжения молекулы: $M = (T_{\text{sl}}/t_{\text{tr}})M_r$. Здесь M_r — реальное число диполей в подструктуре молекулы, в которой рассматривается возбуждение эксимолей. Возбуждение эксимолей в цепи молекулы происходит независимо, в силу чего для расчета вероятности возбуждения нескольких эксимолей может быть применена формула Бернулли. Поскольку количество эксимолей редко превышает 30% от эффективного числа диполей, а само это число, как правило, больше 100, то для расчетов можно воспользоваться экспоненциальным приближением для формулы Бернулли:

$$P_M^K = \frac{1}{\sqrt{2\pi MP_{01}(1-P_{01})}} \exp\left\{-\frac{(K-MP_{01})^2}{2MP_{01}(1-P_{01})}\right\}. \quad (3)$$

Как было показано в [4], величина K определяет накопленную в молекуле энергию: $E(K) = KE_{\text{ex}}$, где E_{ex} — энергия одного эксимоля. Накопленная энергия в цепи может быть передана в связь-ловушку. В работе [4] показано, что связь-ловушка должна быть электрическим диполем, один конец которого является атомом скелетной цепи молекулы. Необходимая для диссоциации молекулы аккумулированная энергия E_k должна быть равна или больше энергии диссоциации E_D одной из валентных связей. Это значит, что в подструктуре скользящей молекулы должно быть возбуждено количество эксимолей, определяющееся соотношением $K_d \geq E_D/E_{\text{ex}}$.

Как показано в [4], общую вероятность фрагментации определенной связи (B) можно представить в виде произведения трех вероятностей:

$$P_F^B(B) = P_M^{K_d(B)} P_t(B) P_D(B).$$

Величина $P_D(B)$ есть вероятность диссоциации связи-ловушки, которая имеет резкий максимум при $E(K) = E_D(B)$ и не зависит от скорости v_{\parallel} скольжения молекулы.

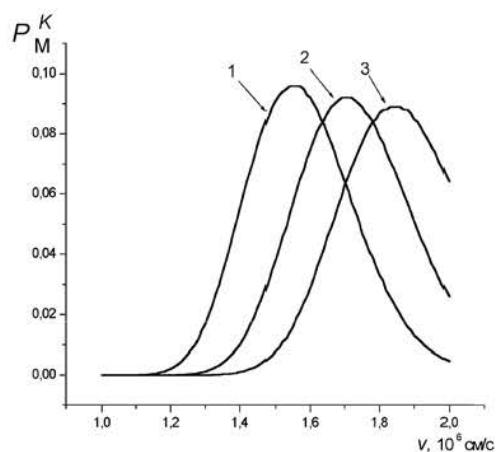
Вероятность $P_t(B)$ — это вероятность передачи энергии $E_D(B)$ в связь-ловушку за счет ее диполь-дипольного взаимодействия с другими диполями цепи. Необходимо отметить, что $P_t(B)$ не зависит от скорости скольжения молекулы. Отсюда следует, что зависимость функции $P_F^B(B)$ от скорости скольжения определяется величиной $P_M^{K_d(B)}$.

Такой анализ функции $P_F^B(B)$ должен быть проведен для возможных связей-ловушек первичной

молекулы и фрагментов диссоциации полиатомной молекулы, входящей в мишень.

Как пример, была рассчитана вероятность $P_M^K(v)$ возбуждения $K = 30$ эксимолей как функция скорости в подструктуре молекулы, содержащей диполи вида C—H, для $M = 70, 80, 90$. Интервал скоростей движения полиатомной молекулы был выбран равным $v = (1-2) \cdot 10^6$ см/с. Предполагалось, что молекула скользит на расстоянии около 1 Å вдоль поверхности, представляющей собой пленку, формируемую молекулами перфлюорина. Результаты расчета приведены на рисунке.

Выбор $K = 30$ эксимолей соответствует разрыву одной связи-ловушки в цепи молекулы при



Функция вероятности P_M^K возбуждения $K = 30$ эксимолей в цепи молекулы, содержащей диполи вида C—H для $M = 70$ (1), 80 (2) и 90 (3)

$E_d = 2.5$ эВ. Как видно из рисунка, вероятность разрыва такой связи является резонансной функцией скорости относительного движения молекул.

Кроме того, проведенный анализ показал, что значение скорости скольжения $v_{||}$, при которой происходит разрыв определенной связи-ловушки с максимальной вероятностью, зависит от числа диполей M в подструктуре молекулы. Это означает, что существует зависимость вероятности фрагментации полиатомных молекул от числа эквивалентных степеней свободы при их низкоэнергетичном рассеянии.

Литература

1. Schmidt L., Popova A.M., Komarov V.V., Jungclas H. // Z. Naturforsch. 1996. **A51**. P. 1144.
2. Wu Q., Hanley L. // J. Phys. Chem. 1993. **97**. P. 2677.
3. Pradeep T., Ast T., Cooks R.G., Feng B. // J. Phys. Chem. 1994. **98**. P. 9301.
4. Jungclas H., Wieghaus A., Schmidt L., Popova A.M., Komarov V.V. // J. Am. Soc. Mass Spectrom. 1999. **10**. P. 471.
5. Jungclas H., Komarov V.V., Popova A.M., Schmidt L. // Eur. Phys. J. 1998. **D1**. P. 193.
6. Комаров В.В., Попова А.М., Юнгклас Х. и др. // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 1998. №3. С. 3 (Moscow University Phys. Bull. 1998. No. 3. P. 1).
7. Fritsch H.W., Jungclas H., Komarov V.V., Schmidt L. // J. Phys. II France. 1994. **4**. P. 567.

Поступила в редакцию
19.09.01

УДК 539.2:535.3

ВЛИЯНИЕ ШЕРОХОВАТОСТЕЙ РАЗЛИЧНЫХ МАСШТАБОВ НА КОЭФФИЦИЕНТ ОТРАЖЕНИЯ ОТ ГРАНИЦЫ РАЗДЕЛА ДВУХ СРЕД

А.Н. Боголюбов, А.А. Тихонравов

(кафедра математики)

E-mail: atikhonravov@rbcmail.ru

Проведено качественное исследование вопроса о влиянии шероховатостей различных масштабов на спектральные свойства коэффициентов отражения и пропускания для шероховатой границы раздела двух сред. Рассмотрены предельные случаи крупномасштабных и мелкомасштабных шероховатостей.

Введение

Создание многослойных оптических покрытий [1–3] является важным элементом современных оптоэлектронных технологий. В последнее время возрастает интерес к оптическим покрытиям, предназначенным для работы в дальней ультрафиолетовой области (длина волны более 120–150 нм). Это связано, в частности, с потребностями полупро-

водниковой литографии, а именно со стремлением достигнуть пространственного разрешения существенно лучшего, чем 100 нм. Для этой цели могут использоваться эксимерные лазеры с длиной волны 157 и 193 нм. Эффективность применения подобных лазеров непосредственно зависит от качества многослойных диэлектрических покрытий, являющихся компонентами лазеров. Для создания таких компонентов используются наиболее совершенные