

РАДИОФИЗИКА

УДК 537.534.2

ОСОБЕННОСТИ ЭЛЕКТРОННОГО ОБМЕНА ПРИ СКОЛЬЗЯЩЕМ РАССЕЯНИИ ИОНОВ ВОДОРОДА H^- НА ТОНКОЙ ПЛЕНКЕ Al **Е. Ю. Усман, И. К. Гайнуллин, И. Ф. Уразгильдин***(кафедра физической электроники)*

E-mail: uraz@phys.msu.ru

Впервые исследован процесс перезарядки при скользящем рассеянии отрицательного иона водорода H^- на тонкой пленке алюминия Al с помощью метода, не основанного на теории возмущений. Произведен расчет фракции рассеянных отрицательных ионов H^- как функции параллельной поверхности компоненты скорости ионов. Показано, что выход ионов H^- при рассеянии на тонкой пленке более чем на порядок превосходит выход отрицательных ионов при рассеянии на массивном образце.

Введение

Электронный обмен является одним из важнейших процессов, происходящих при взаимодействии атомной частицы с поверхностью твердого тела. Он определяет зарядовое состояние рассеянных или расплывенных с поверхности частиц, которое содержит информацию как о составе и структуре, так и об электронных свойствах поверхности. Кроме того, процесс перезарядки оказывает существенное влияние на многие явления, происходящие на поверхности при вторичной ионной эмиссии, рассеянии, десорбции, катализе, модификации поверхности.

При скользящих углах рассеяния электронный обмен атомной частицы с поверхностью твердого тела существенно зависит от величины параллельной поверхности составляющей скорости частицы $v_{||}$. Это объясняется тем, что в системе отсчета, связанной с частицей, движущейся параллельно поверхности, электронная структура твердого тела изменяется, что отражается на характере и интенсивности перезарядки. Такое влияние параллельной составляющей скорости частицы на ее электронный обмен с поверхностью твердого тела проявилось в экспериментах по нейтрализации щелочных ионов, а также по формированию отрицательных ионов при скользящем рассеянии водорода на поверхности металла [1–3]. Влияние $v_{||}$ на процесс перезарядки при рассеянии на тонких пленках отличается от случая массивного образца и заведомо представляет интерес для исследований.

В настоящей работе рассматривается влияние параллельной поверхности составляющей скорости иона водорода $v_{||}$ при его скользящем рассеянии на тонкой металлической пленке Al на процесс электронного обмена. Исследование проводилось с использованием метода распространения волновых пакетов (Wave-packet propagation approach, WPP) [4–6].

Описание метода и модельные потенциалы

Метод WPP позволяет получить эволюцию волновой функции $\psi(\mathbf{r}, t)$ внешнего электрона иона H^- , которая является решением нестационарного уравнения Шрёдингера

$$i \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = [T + V_{e-H}(\mathbf{r}) + V_{e-Film}(z)] \Psi(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

где V_{e-H} — потенциал взаимодействия электрона с атомным остовом, V_{e-Film} — потенциал взаимодействия электрона с пленкой, T — кинетическая энергия электрона. Начальная электронная волновая функция $\psi(\mathbf{r}, 0)$ равна собственной функции потенциала атомного остова $\psi_a(\mathbf{r})$.

Атомный остов иона H^- нейтрален, поэтому при рассмотрении взаимодействия между электроном и тонкой пленкой не учитываются никаких возмущений, связанных с присутствием атома (например, заряд-изображение). Положение энергетического уровня иона H^- описывается модельным потенциалом, который зависит только от расстояния r между электроном и центром атома водорода [4, 7]:

$$U(r) = - \left(1 + \frac{1}{r} \right) \exp(-2r) - \frac{\alpha}{2r^4} \exp\left(-\frac{\beta}{r^2}\right), \quad (2)$$

где $\alpha = 4.5a_0^3$ — поляризуемость атома водорода, $\beta = 2.547a_0^2$, a_0 — боровский радиус. При этом используется атомная система единиц ($m_e = e = \hbar = 1$; 1 а.е. расстояния = $5.292 \cdot 10^{-11}$ м).

Для описания взаимодействия электрона с тонкой металлической пленкой был использован потенциал

$$V_{e-Film}(z) = V_J(|z| - L/2), \quad (3)$$

где z — расстояние между электроном и центром пленки; L — толщина пленки; $V_J(z)$ — аналитическое выражение, приведенное в работе [8], для потенциала поверхности $Al(111)$, базирующееся на модели свободных электронов.

Заселенность состояний тонкой пленки

При приближении иона водорода H^- к поверхности металлической пленки внешний электрон иона может туннелировать в пленку. В цилиндрических координатах (ρ, φ, z) волновую функцию внешнего электрона иона H^- можно представить в виде

$$\Psi(\rho, \varphi, z, t) = \sum_m \Psi_m(\rho, z, t) e^{im\varphi}, \quad (4)$$

где m — проекция электронного углового момента на ось квантования, которая выбрана перпендикулярно поверхности пленки и проходит через центр атома. На больших расстояниях ρ от этой оси, где действием потенциала атома можно пренебречь, волновая функция электрона, перешедшего в пленку, удовлетворяет уравнению Шрёдингера

$$i \frac{\partial \Psi_m(\rho, \varphi, z, t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{2} \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \rho \frac{\partial}{\partial \rho} - \frac{1}{2\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} + V(z) \right] \Psi_m(\rho, \varphi, z, t), \quad (5)$$

где $V(z)$ — потенциал пленки, который представляется выражением (2). В уравнении (5) учтено, что потенциал пленки не зависит от угла φ , и мы имеем набор функций $\Psi_m(\rho, z, t)$, которые эволюционируют независимо.

Решение уравнения (5) имеет вид

$$\Psi_m(\rho, z, t) = \sum_n \int_0^\infty k dk b(n, k) \psi_n(z) J_m(k\rho) e^{-iE(n, k)t}, \quad (6)$$

где

$$E(n, k) = E_n + \frac{k^2}{2}. \quad (7)$$

Здесь $\psi_n(z)$ — собственные функции пленки; E_n — энергии уровней пленки; $b(n, k)$ — коэффициенты, квадрат модуля которых определяет вероятность перехода электрона с волновым вектором k на n -ый уровень пленки; $J_m(k\rho)$ — функции Бесселя, которые выражаются через функции Ханкеля

$$J_m(k\rho) = \frac{1}{2} \left(H_m^{(1)}(k\rho) + H_m^{(2)}(k\rho) \right). \quad (8)$$

Функции $H_m^{(1)}(k\rho)$ соответствуют расходящимся волнам в асимптотической области, и поэтому следует учитывать их вклад в выражение для волновой функции (6).

Метод распространения волновых пакетов (WPP) [4] позволяет получить точное решение уравнения Шрёдингера на пространственно-временной сетке. Таким образом, можно рассчитать волновую функцию внешнего электрона H^- , перешедшего в пленку при нормальном подлете иона к пленке достаточно большого расстояния. Мы рассматривали достаточно медленный подлет иона к пленке $v_{\text{norm}} = 0.01$ а.е. (1 а.е. скорости = $2.2 \cdot 10^6$ м/с),

такой, что ион успевает полностью распасться при подлете. Нас интересует $\Psi(\rho_0, z, t)$ — волновая функция электрона на достаточно большом фиксированном расстоянии ρ_0 , где действием потенциала атома можно пренебречь.

Теперь рассмотрим проекцию функции $\Psi(\rho_0, z, t)$ на собственную функцию пленки $\psi_n(z)$:

$$S_n(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} dz \psi_n(z) \Psi(\rho_0, z, t). \quad (9)$$

Ее Фурье-образ имеет вид

$$S_n(\omega) = \int_0^\infty dt e^{i\omega t} S_n(t). \quad (10)$$

Подставляя (6) в (9) и затем (9) в (10) и используя теорию вычетов, можно получить следующее выражение:

$$|S_n(\omega)|^2 = \pi^2 |b(n, k)|^2 \rho_0 \left| H_m^{(1)}(k\rho_0) \right|^2, \quad (11)$$

где $\frac{k^2}{2} = \omega - E_n$.

Поскольку внешний уровень иона водорода $1s$ обладает сферической симметрией, следует рассматривать только компоненту с $m = 0$. При асимптотическом исследовании функции Ханкеля $H_0^{(1)}(k\rho)$ получается выражение для вероятности перехода электрона на n -й уровень пленки

$$|b(n, k)|^2 = \frac{1}{2\pi} k |S_n(\omega)|^2, \quad (12)$$

где $k = \sqrt{2(\omega - E_n)}$.

Таким образом, была получена вероятность перехода внешнего электрона иона H^- на n -й уровень пленки (12) при подлете иона к пленке по классической траектории из бесконечности со скоростью $v_{\text{norm}} = 0.01$ а.е.

Влияние v_{\parallel} на формирование ионов H^-

Теперь рассмотрим скользящее рассеяние иона водорода H^- на алюминиевой пленке с перпендикулярной поверхности составляющей скорости v_{norm} и параллельной составляющей скорости v_{\parallel} . Зная вероятность перехода электрона $|b(n, k)|^2$ с внешнего уровня иона H^- на n -й уровень пленки при подлете иона к пленке по классической траектории и используя теорему об обращении времени, можно получить выражение для фракции отрицательных ионов H^- как функцию v_{\parallel} :

$$P^- = \frac{1}{2} \sum_n \int_0^{2\pi} \int_0^\infty d\varphi dk \frac{|b(n, k)|^2}{2\pi} \times \left(E_f - \left(E_n + \frac{k^2}{2} + \frac{v_{\parallel}^2}{2} + kv_{\parallel} \cos \varphi \right) \right). \quad (13)$$

Здесь F — функция распределения Ферми, E_f — энергия Ферми пленки, ϕ — угол между векторами \mathbf{k} и \mathbf{v}_{\parallel} .

Энергия Ферми пленки E_f отличается от энергии Ферми полубесконечного металла и зависит от толщины пленки. Она может быть рассчитана исходя из условия, что в объеме $L \times L \times L$ пленки и полубесконечного металла находится одинаковое количество электронов [9]:

$$E_F = \frac{1}{n_{\max}} \left\{ \frac{L}{\pi} \frac{k_F^3}{3} + \sum_{n=1}^{n_{\max}} E_n \right\}, \quad (14)$$

где $E_n < E_F$, ($n = 1, \dots, n_{\max}$), k_F — вектор Ферми для полубесконечного металла.

Таким образом, была получена зависимость вероятности формирования ионов H^- от величины параллельной поверхности составляющей скорости иона v_{\parallel} при скользящем рассеянии ионов водорода на пленке Al. Зависимость, рассчитанная для пленки толщиной 3 ML (три монослоя), приведена на рис. 1. Здесь же показана экспериментальная зависимость, приведенная в работе [3] для зависимости фракции ионов H^- от v_{\parallel} при скользящем рассеянии на массивном образце Al, умноженная на 20, которая хорошо согласуется с нашими расчетами для этого случая.

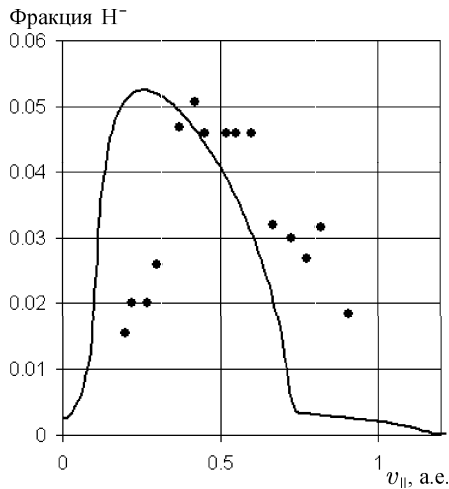


Рис. 1. Зависимость вероятности формирования ионов H^- от v_{\parallel} при скользящем рассеянии на пленке толщиной 3 ML (сплошная линия — расчет) и на массивном образце Al (точки — эксперимент $\times 20$; 1 а.е. скорости = $2.2 \cdot 10^6$ м/с)

Такое существенное расхождение в зависимостях, приведенных на рис. 1, связано с различием электронных структур тонкой пленки и полубесконечного металла. Потенциал пленки представляет собой потенциальную яму, поэтому электроны в пленке могут находиться только на двумерных уровнях, соответствующих собственным значениям энергии потенциальной ямы, в отличие от массивного металлического образца, где плотность электронных состояний непрерывно распределена от дна зоны до уровня Ферми. При этом вероятность резонансного электронного перехода с двумерного

уровня пленки на внешний уровень иона водорода существенно больше вероятности резонансного перехода из трехмерной зоны металла. Это проявляется в зависимости, представленной на рис. 1. Видно, что вероятность образования отрицательных ионов при скользящем рассеянии на пленке более чем на порядок превосходит вероятность образования отрицательных ионов при скользящем рассеянии на полубесконечном металле.

В пространстве волновых векторов сфера Ферми металла в случае пленки вырождается в систему дисков, каждый из которых соответствует одному из двумерных уровней пленки, расположенных ниже уровня Ферми. Эти диски лежат в параллельных плоскостях и вписаны в воображаемую сферу с радиусом, соответствующим энергии Ферми пленки. Вероятность выхода ионов H^- при скользящем рассеянии определяется степенью перекрытия системы дисков Ферми и сферы, соответствующей внешнему уровню иона водорода в пространстве волновых векторов. На рис. 1 видно, что с увеличением v_{\parallel} вероятность формирования H^- растет. Это связано с тем, что вследствие относительного движения атома и пленки (металла) происходит смещение системы дисков Ферми (сферы Ферми в случае полубесконечного металла). При этом появляются возможности резонансного захвата электрона с уровней, которые не являются резонансными в стационарном состоянии. При больших скоростях v_{\parallel} вероятность формирования H^- уменьшается, что связано с уменьшением степени перекрытия.

Захват электрона атомом водорода при скользящем рассеянии на тонкой пленке возможен только с пяти уровней пленки, расположенных ниже уровня Ферми. Использованный метод расчета фракции отрицательных ионов при скользящем рассеянии на тонкой пленке позволяет оценить вклад каждого из 2D-уровней пленки в формирование отрицательных ионов (рис. 2). При некотором значении v_{\parallel} , при котором атомная сфера перестает пересекать диск,

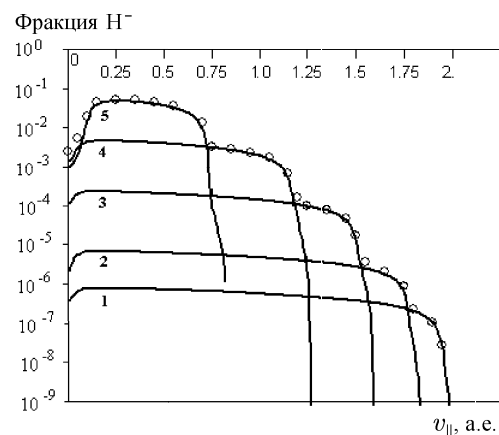


Рис. 2. Вклад различных уровней пленки толщиной 3 ML в формирование отрицательных ионов водорода. Сплошные линии соответствуют вероятностям захвата электрона атомом с соответствующего уровня пленки, кружки — полная вероятность формирования H^- , приведенная на рис. 1

соответствующий 5-му уровню пленки, захват электрона с этого уровня становится невозможен (ступенька в зависимости на рис. 2). При дальнейшем увеличении $v_{||}$ прекращается вклад 4-го уровня пленки в формирование ионов H^- и т. д. Действительно, зависимость для полной вероятности формирования H^- на рис. 2, которая представляет собой зависимость с рис. 1, построенную в логарифмическом масштабе, имеет пять ступенек, которые демонстрируют роль различных уровней пленки толщиной 3 МЛ в формировании ионов H^- при скользящем рассеянии.

Выводы

Впервые для расчета перезарядки при скользящем рассеянии ионов водорода H^- на тонкой пленке Al был использован метод, не основанный на теории возмущений. Полученная зависимость фракции отрицательных ионов от параллельной составляющей скорости ионов $v_{||}$ при рассеянии на пленке имеет качественное отличие от зависимости, наблюдаемой в случае рассеяния на массивном образце. Максимальный выход отрицательных ионов в случае пленки примерно в 20 раз превосходит выход H^- при рассеянии на массивном образце. Это объясняется особенностью электронной структуры металлической пленки, где трехмерная плотность электронных состояний металла вырождается в набор двумерных уровней, перезарядка с которыми происходит значительно интенсивнее. Кроме того, максимум зависимости, рассчитанной для пленки,

смещен в сторону меньших значений $v_{||}$ относительно максимума зависимости для массивного образца, что связано с различием в значениях энергии Ферми пленки и полубесконечного металла. Использованный метод позволил рассчитать вклад каждого из двумерных уровней тонкой пленки Al в формирование отрицательных ионов водорода.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты 02-02-17918, 03-02-17718) и Royal Society, UK.

Литература

1. Brako R., Newns D.M. // Rep. Prog. Phys. 1989. **B52**. P. 655.
2. Zimny R., Nienhaus H., Winter H. // Rad. Eff. Def. Solids. 1989. **B109**. P. 9.
3. Wyputta F., Zimny P., Winter H. // Nucl. Instr. Meth. B. 1991. **58**. P. 379.
4. Ermoshin V.A., Kazansky A.K. // Phys. Rev. A. 1996. **B218**. P. 99.
5. Borisov A.G., Kazansky A.K., Gauyacq J.P. // Phys. Rev. B. 1999. **59** P. 10935.
6. Usman E.Yu., Urazgildin I.F., Borisov A.G., Gauyacq J.P. // Phys. Rev. B. 2001. **B64**. P. 205405.
7. Cohen S., Fiorentini G. // Phys. Rev. A. 1986. **B33**. P. 1590.
8. Jennings J.P., Jones P.O., Weinert M. // Phys. Rev. B. 1988. **B37**. P. 3113.
9. Borisov A.G., Winter H. // Nucl. Instr. Meth. B. 1996. **115**. P. 142.

Поступила в редакцию
02.04.04