Письма в ЖЭТФ, том 60, вып.9, стр.655 - 658 © 1994г. 10 ноября

О ФОРМИРОВАНИИ КОНЕЧНОГО ЗАРЯДОВОГО СОСТОЯНИЯ ЧАСТИЦ, РАСПЫЛЕННЫХ ИОННЫМ ПУЧКОМ С ПОВЕРХНОСТИ ТВЕРДОГО ТЕЛА В СЛУЧАЕ РЕЗОНАНСНЫХ ПЕРЕХОДОВ

И.А.Бандос, Ю.В.Слюсаренко, А.Ю.Соболев, А.Г.Коваль

Харьковский государственный университет

310077 Харьков, Украина

Поступила в редакцию 12 октября 1994 г.

Рассматривается вероятность ионизации распыленного атома при отлете его от поверхности в случае резонансных электронных переходов атом–твердое тело. Показано, что в этом случае можно получить явные решения для реалистичной (а не только для модельной, как при нерезонансных переходах) функции энергетической плотности электронных состояний. Приведены выражения для вероятности ионизации в двух модельных случаях и показано, что ее зависимость от скорости отлетающего атома иная, чем при нерезонансных переходах.

Одним из наиболее информативных методов при изучении взаимодействия ионного пучка с поверхностью твердого тела является метод ВИМС (вторичной ионной масс-спектрометрии), позволяющий с высокой точностью определять массовый, угловой и энергетический спектры распыляемых с поверхности мишени вторичных заряженных частиц. Для успешного использования данных ВИМС для изучения поверхности необходимо построение моделей, способных объяснять наблюдаемые характеристики распыленных частиц, связывая их со свойствами изучаемой поверхности. Важную роль при этом играет изучение процессов формирования конечного зарядового состояния распыленных вторичных частиц.

Большинство моделей, описывающих формирование конечного зарядового состояния при отлете распыленного атома от поверхности [1-5], основываются на гамильтониане Андерсена, имеющем следующий вид:

$$H = \sum_k \epsilon_k c_k^+ c_k + \epsilon_\alpha(t) c_\alpha^+ c_\alpha + \sum_k (V_{k\alpha} c_k^+ c_\alpha + V_{k\alpha}^* c_\alpha^+ c_k). \qquad (1)$$

Здесь $c_\alpha^+(c_\alpha)$ и $c_k^+(c_k)$ – операторы рождения и уничтожения электрона на валентной орбитали отлетающего атома[1)] и в зоне проводимости твердого тела в состоянии [2)], соответственно, $\epsilon_\alpha(t)$ и ϵ_k – энергии этих состояний; $V_{k\alpha}(t)$ представляет собой обменный интеграл, описывающий электронные переходы из атома в твердое тело и обратно. Энергия $\epsilon_\alpha(t)$ электрона в атоме зависит от расстояния атома от поверхности и меняется от значения ϵ_α^0 при $t = 0$, соответствующего одному из разрешенных уровней для электронов твердого тела, до значения ϵ_α^∞ при $t \to \infty$ – энергии электрона на валентном уровне изолированного атома.

Ранее [4,5] авторы уже рассматривали модель электронного обмена атома с поверхностью, основанную на гамильтониане типа (1). При этом, в отличие от более ранних работ [1-3], было уделено больше внимания корректному

[1)]Атом рассматривается как одноуровневая система.

[2)]Индекс "k" нумерует состояния твердотельных электронов. В общем случае этот индекс соответствует набору квантовых чисел (квазиимпульс, проекция спина, номер зоны).

построению основного состояния и фоковского пространства системы при конечных температурах, а также было учтено (вне рамок теории возмущений) нетепловое возбуждение электронной подсистемы, обусловленное (в конечном счете) влиянием первичного пучка.

В работе [5] (как и в более ранних работах [1-3]) предполагалось, что обменный интеграл $V_{k\alpha}(t)$ не зависит от k, то есть амплитуды вероятности перехода электрона из атома в твердое тело одинаковы для любых состояний k (предельно нерезонансный обмен). Такая модель дает вполне удовлетворительные результаты для ряда металлов (см. [5]), однако в общем случае предположение о независимости $V_{k\alpha}$ от k является довольно сильным ограничением и может в ряде случаев оказаться неадекватным.

Данная работа посвящена обобщению модели, представленной в [5], для случая, соответствующего существенно более слабому предположению: мы считаем, что $V_{k\alpha}$ может зависеть от разности энергий атомного уровня и соответствующего уровня твердого тела:

$$V_{k\alpha}(t) = W(\epsilon_k - \epsilon_\alpha(t))u(t), \tag{2}$$

где множитель $u(t)$ описывает уменьшение амплитуды переходов при удалении атома от поверхности.

Опуская все подробности, связанные с описанием системы при конечных температурах и с выводом уравнений, описывающих динамику системы (см. в этой связи [5]), приведем лишь наиболее важные результаты.

Вероятность того, что на валентном уровне распыленного атома при $t = \infty$ не будет электрона (вероятность ионизации), дается выражением

$$R_\alpha(\infty) = [1 - f(\epsilon_\alpha^0)]|\lambda_\alpha(\infty)|^2 + \int d\epsilon\rho(\epsilon)[1 - f(\epsilon)]|\lambda_s(\infty, \epsilon)|^2, \tag{3}$$

где $f(\epsilon) \equiv \left\{1 - \exp\left(\frac{\epsilon-\epsilon_F}{kT}\right)\right\}^{-1}$ – фермиевская функция распределения (T – температура, а ϵ_F – энергия Ферми мишени), $\rho(\epsilon)$ – энергетическая плотность состояний электронных уровней твердого тела, а $\lambda_\alpha(t)$ и $\lambda_s(t, \epsilon)$ – коэффициентные функции в выражении

$$\tilde{c}_\alpha^+(t) = \lambda_\alpha(t)\tilde{c}_\alpha^+(0) + \sum_k \lambda_s(t, \epsilon_k)\tilde{c}_k^+(0), \tag{4}$$

являющемся решением интегро-дифференциального уравнения, описывающего динамику изучаемой системы:

$$i\hbar\frac{d\tilde{c}_\alpha^+(t)}{dt} = \sum_k W(\epsilon_k - \epsilon_\alpha(t))u(t)\exp\left(-\frac{i}{\hbar}\epsilon_k t\right)\exp\left(\frac{i}{\hbar}\int_0^t d\tau\epsilon_\alpha(\tau)\right)\tilde{c}_k^+(0) -$$

$$-\frac{i}{\hbar}\int_0^t d\tau\exp\left(\frac{i}{\hbar}\int_\tau^t d\eta\epsilon_\alpha(\eta)\right)Q(t,\tau)u(\tau)u^*(\tau)\tilde{c}_\alpha^+(\tau). \tag{5}$$

Здесь

$$\tilde{c}_\alpha^+(t) = \exp\left(\frac{i}{\hbar}\int_0^t d\tau\epsilon_\alpha(\tau)\right)c_\alpha^+(t), \tag{6a}$$

$$\bar{c}_k^+(t) = \exp\left(\frac{i}{\hbar}\epsilon_k t\right) c_k^+(t), \tag{6b}$$

а

$$Q(t,\tau) \equiv \int d\epsilon \rho(\epsilon) \exp\left\{-\frac{i}{\hbar}\epsilon(t-\tau)\right\} W(\epsilon - \epsilon_\alpha(t)) W^*(\epsilon - \epsilon_\alpha(\tau)). \tag{7}$$

Уравнение (5) получается из уравнений движения (определяемых гамильтонианом (1)) после исключения из них операторов $c_k^+(t)$.

В общем случае уравнения (5) можно решать только численно. Однако есть два важных предельных случая, допускающих решение в аналитическом виде. Первый из них – случай предельно нерезонансных обменов $W(\epsilon_k - \epsilon_\alpha(t)) =$ const, рассматривавшийся ранее в [4,5] и допускающий аналитическое решение при некоторых видах функции $\rho(\epsilon)$ (например, для бесконечной однородной зоны $\rho(\epsilon) =$ const).

Здесь мы рассмотрим другой случай – резонансный обмен, когда

$$W(\epsilon_k - \epsilon_\alpha(t)) = V(\epsilon_k)\delta(\epsilon_k - \epsilon_\alpha(t)). \tag{8}$$

Выражения (2), (8) означают, что переходы возможны только с сохранением энергии электрона; при этом зависимость $V(\epsilon_k)$ означает, что амплитуда перехода может быть различна для разных состояний k.

Уравнение (5) становится теперь дифференциальным и допускает явное решение. Это решение имеет вид (4), где

$$\lambda_\alpha(t) = \exp\left\{-\frac{1}{2\hbar^2}\int_0^t d\tau \frac{\rho(\epsilon_\alpha(\tau))}{|\epsilon_k'(\tau)|}|V(\epsilon_\alpha(\tau))u(\tau)|^2\right\}, \tag{9a}$$

$$\lambda_s(t,\epsilon) = -\frac{i}{\hbar}\int_0^t d\tau W(\epsilon - \epsilon_\alpha(\tau))u(\tau)\exp\left(-\frac{i}{\hbar}\epsilon\tau\right)\exp\left\{\frac{i}{\hbar}\int_0^\tau d\eta\epsilon_\alpha(\eta)\right\} \times$$
$$\times \exp\left\{-\frac{1}{2\hbar^2}\int_\tau^t d\eta \frac{\rho(\epsilon_\alpha(\eta))}{|\epsilon_k'(\eta)|}|V(\epsilon_\alpha(\eta))u(\eta)|^2\right\}. \tag{9b}$$

Подстановка этих выражений в (3) дает значение вероятности ионизации $R_\alpha(\infty)$. Важной особенностью резонансного случая является то, что выражение для $R_\alpha(\infty)$ удается получить, не накладывая никаких ограничений на функцию энергетической плотности состояний $\rho(\epsilon)$, что позволяет изучать ионизацию атома при отлете его от мишеней с различной зонной структурой, используя не только модельные (как при нерезонансных переходах), но и реалистичные функции $\rho(\epsilon)$.

В качестве примера приведем выражение для вероятности ионизации в двух важных случаях. Случай бесконечно широкой однородной зоны моделирует металлическую мишень (этот же случай рассматривался в [5] для нерезонансных обменов). Пусть

$$\rho(\epsilon) = \rho_0 = \text{const} \tag{10}$$

и

$$V(\epsilon) = V = \text{const}, \qquad u(t) = \exp(-\gamma v t), \tag{11}$$

$$\epsilon_\alpha(t) = \epsilon_\alpha^\infty + (\epsilon_\alpha^0 - \epsilon_\alpha^\infty)\exp(-\kappa v t),$$

где v – скорость отлетающего по нормали к поверхности атома. Решение уравнения (5) в этом случае существует при $\kappa < 2\gamma$. Тогда вероятность ионизации при $T = 0$ имеет вид

$$R_\alpha(\infty) = \begin{cases} 0, & \epsilon_\alpha^0 < \epsilon_\alpha^\infty < \epsilon_F \\ \exp\left\{-\left(\frac{\epsilon_F - \epsilon_\alpha^\infty}{\epsilon_\alpha^0 - \epsilon_\alpha^\infty}\right)^{\frac{2\gamma}{\kappa}-1} \frac{v_0^2}{v^2}\right\}, & \epsilon_\alpha^0 < \epsilon_F < \epsilon_\alpha^\infty \\ 1, & \epsilon_F < \epsilon_\alpha^0 < \epsilon_\alpha^\infty \end{cases}, \tag{12}$$

где

$$v_0^2 \equiv \frac{\rho_0 |V|^2}{\kappa(2\gamma - \kappa)\hbar^2(\epsilon_\alpha^0 - \epsilon_\alpha^\infty)}. \tag{13}$$

Второй случай описывается функцией $\rho(\epsilon)$ с запрещенной зоной:

$$\rho(\epsilon) = \begin{cases} \rho_0, & \epsilon < \epsilon_g^{(l)} \\ 0, & \epsilon_g^{(l)} < \epsilon < \epsilon_g^{(h)} \\ \rho_0, & \epsilon > \epsilon_g^{(h)} \end{cases} \tag{14}$$

и моделирует полупроводниковую или диэлектрическую мишень (при этом $\epsilon_g^{(l)} < \epsilon_F < \epsilon_g^{(h)}$, а ϵ_α^0 не может лежать в области запрещенной зоны). Для этого случая вероятность ионизации имеет вид

$$R_\alpha(\infty) = \begin{cases} 0, & \epsilon_\alpha^\infty < \epsilon_g^{(l)} \\ \exp\left\{-\left(\frac{\epsilon_g^{(l)} - \epsilon_\alpha^\infty}{\epsilon_\alpha^0 - \epsilon_\alpha^\infty}\right)^{\frac{2\gamma}{\kappa}-1} \frac{v_0^2}{v^2}\right\}, & \epsilon_\alpha^\infty < \epsilon_g^{(l)}, \\ & \epsilon_\alpha^0 > \epsilon_g^{(h)} \\ 1, & \epsilon_\alpha^\infty > \epsilon_g^{(l)} \end{cases} \tag{15}$$

Выражения для вероятности ионизации при ненулевых температурах не сложно получить (следуя, например, [5], Appendix D), однако они имеют достаточно громоздкий вид и поэтому здесь не приводятся.

Отметим, что в отличие от случая нерезонансного обмена, когда $R_\alpha(\infty)$ представляет собой суперпозицию двух экспонент от обратной скорости (см. [5]), при резонансном обмене выражения для коэффициента ионизации (12), (15) дают экспоненциальную зависимость от квадрата обратной скорости[3)]. Эту особенность можно использовать при анализе экспериментальных данных для определения типа электронного обмена, который реализуется в данном эксперименте.

1. A.Blandin, A.Nourtier, and D.W.Hone, J. Phys. **37**, 369 (1976) [in France].
2. G.Blaise and A.Nourtier, Surf. Sci. **90**, 495 (1979).
3. Z.Sroubek, Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys. **53**, 289 (1983).
4. I.A.Bandos, Yu.V.Slusarenko, A.Yu.Sobolev, and A.G.Koval, SIMS VIII Abstract Book. 8 Int. Conf. (Amsterdam), Sept. 15-20, 1991, p.16.
5. I.A.Bandos, A.G.Koval, Yu.V.Slusarenko and A.Yu.Sobolev, Surf. Sci. **296**, 97 (1993).

[3)] Можно показать, что это справедливо при любом $\rho(\epsilon)$.