

02

Энергетические спектры кластеров при ионном распылении металла

© В.И. Матвеев, С.А. Кочкин

Поморский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
Архангельский государственный технический университет
E-mail: matveev.victor@pomorsu.ru

Поступило в Редакцию 14 мая 2003 г.

Предложена методика расчетов энергетических спектров нейтральных и заряженных кластеров с числом атомов $N \geq 5$ при ионном распылении металла. Результат представлен в виде простой формулы. Проведено сравнение рассчитанных энергетических распределений кластеров, эмитированных при бомбардировке тантала и ниобия атомарными ионами золота, с экспериментальными данными.

Во многих случаях [1–5] экспериментальные исследования процессов ионного распыления твердых тел в виде кластеров направлены на выяснения механизмов, обуславливающих наличие в продуктах распыления многоатомных частиц. Обычно (см., например, [6–11]) проводятся измерения энергетических спектров и распределений нейтральных и однократно заряженных кластеров по размерам в зависимости от типа мишени, состава и тока бомбардирующих частиц, а также зависимостей выхода нейтральных и заряженных кластеров от температуры мишени [8], несущих более подробную информацию о механизмах формирования кластеров. Теоретическое описание процессов эмиссии кластеров при ионном распылении затруднено, прежде всего, существенно многочастичным характером задачи. Расчеты же методами молекулярной динамики [1] сложны в техническом отношении, особенно с ростом числа атомов в кластере, и трудно воспроизводимы другими, кроме авторов расчетов, исследователями. Трудности значительно возрастают при включении в схему расчетов процессов формирования зарядового состава продуктов распыления (см., например, обзор [5]).

В настоящей статье на основе физических представлений, предложенных в работах [12–15], и метода расчета полного выхода кластеров [15] развит метод расчета энергетических спектров больших

нейтральных и заряженных кластеров (с числом атомов $N > 5$), эмитированных при ионной бомбардировке металла.

Будем считать твердое тело образованным из атомов, каждый из которых находится в осцилляторной яме глубиной Δ и имеет собственную частоту ω . Характерный период колебаний $T = 2\pi/\omega$. Пусть скорость падающего иона такова, что за время $\tau \ll T$ ион и быстрые атомы отдачи при движении в металле претерпевают большое число столкновений, в результате которых атомы металла получают некоторые импульсы \mathbf{q}_i , где i — номер атома. Тогда, согласно [15], вероятность вылета кластера из N атомов как целого с импульсом \mathbf{k} равна

$$W_{\mathbf{k}} = |\langle \Phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{R}) | \exp\left(\frac{i}{\hbar} \sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i \mathbf{R}\right) | \Phi_0(\mathbf{R}) \rangle|^2 \exp\left(-\frac{1}{n_0} \frac{1}{2\hbar^2 \alpha^2} \sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i^2\right), \quad (1)$$

где $\alpha^2 = m\omega/\hbar$, m — масса атома, \hbar — постоянная Планка, $n_0 \approx \Delta/\hbar\omega$; $\Phi_0(\mathbf{R})$ — волновая функция основного состояния центра масс блока из N атомов, $\Phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{R})$ — волновая функция центра масс блока в состоянии непрерывного спектра с импульсом \mathbf{k} , \mathbf{R} — координаты центра масс. Считается, что центр масс блока из N атомов совершает гармонические колебания с частотой Ω в потенциальной яме глубиной U_N , имеющей смысл энергии связи кластера с металлом. Такая энергия связи пропорциональна площади поверхности S_N , по которой блок из N атомов соприкасается с остальным металлом. Тогда [12–15] $U_N = \sigma S_N = \delta N^{2/3}$, где δ имеет смысл энергии связи кластера, отнесенной к одному атому в составе кластера (и, вообще говоря, δ отличается от Δ — глубины потенциальной ямы, в которой находится каждый атом твердого тела). Таким образом, мы считаем, что центр масс блока движется в сферически симметричном осцилляторном потенциале, обрезанном на высоте U_N . Такой потенциал будем обозначать $U(\mathbf{R})$, причем $U(\mathbf{R}) = \frac{Nm\Omega^2}{2} \mathbf{R}^2$ при $R < R_N$, где R_N — такое, что $U(\mathbf{R}_N) = U_N$, а при $R > R_N$ потенциал имеет постоянное значение $U(\mathbf{R}) = U_N$. До распыления центр масс блока находился в основном состоянии $\Phi_0(\mathbf{R})$ в потенциале $U(\mathbf{R})$. Далее, запишем волновую функцию для центра масс в состоянии $\Phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{R})$ непрерывного спектра (в потенциале $U(\mathbf{R})$) с импульсом \mathbf{k} и энергией $E_c + U_N$, где $E_c = \mathbf{k}^2/(2mN)$, в квазиклассическом виде

$$\Phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{R}) = \frac{A}{(2\pi\hbar)^{3/2}} \exp\left(\frac{i}{\hbar} \int \mathbf{k}(\mathbf{R}) d\mathbf{R}\right), \quad (2)$$

где $|\mathbf{k}(\mathbf{R})| = \sqrt{2mN(E_c + U_N - U(\mathbf{R}))}$ и $\mathbf{k}(\mathbf{R}) \rightarrow \mathbf{k}$ при $\mathbf{R} \rightarrow \infty$. Далее, как и в [15], будем считать, что в нашем случае яма $U(\mathbf{R})$ достаточно глубокая и выполнены следующие условия: $\hbar\Omega \ll U_N$, так что на размерах основного состояния $\Phi_0(\mathbf{R})$ можно считать, что $U(\mathbf{R}) \ll U_N$. Тогда в формуле (1) при вычислении матричного элемента $\langle \Phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{R}) | \exp(i \sum \mathbf{q}_i \mathbf{R} / \hbar) | \Phi_0(\mathbf{R}) \rangle$ можно считать, что в функции $\Phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{R})$ импульс $|\mathbf{k}(\mathbf{R})| = \sqrt{2mN(E_c + U_N)} = |\mathbf{k}(0)|$. В результате

$$W_{\mathbf{k}} = |A^2| \frac{1}{(2\pi\eta\hbar^2)^{3/2}} \exp\left(-\frac{\left(\sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i - \mathbf{k}(0)\right)^2}{2\eta\hbar^2}\right) \exp\left(-\frac{1}{n_0} \frac{1}{2\hbar^2\alpha^2} \sum_{i=1}^N (\mathbf{q}_i)^2\right), \quad (3)$$

где $\eta = mN\Omega/(2\hbar)$. Далее следует усреднить вероятность (3) по всем возможным значениям \mathbf{q}_i , $i = (1, 2, \dots, N)$. Сделаем естественное предположение относительно распределения значений \mathbf{q}_i : считаем все \mathbf{q}_i независимыми, а все направления \mathbf{q}_i — равновероятными и возьмем как в [15] среднее по углам Ω_{q_i} векторов \mathbf{q}_i . Дальнейшие выкладки значительно упрощаются, если считать, что все \mathbf{q}_i имеют одинаковую длину $|\mathbf{q}_i| = q$, т.е. в среднем все \mathbf{q}_i одинаковы по величине, но направлены хаотично. В результате при $N \gg 1$ после усреднения вероятность примет вид (ср. [15])

$$\overline{W}_{\mathbf{k}} = A^2 \frac{1}{2^3\pi^{3/2}} \frac{1}{(\eta\hbar^2/2 + Nq^2/6)^{3/2}} \times \exp\left(\frac{\mathbf{k}^2(0)}{4(\eta\hbar^2/2 + Nq^2/6)}\right) \exp\left(-\frac{1}{n_0} \frac{Nq^2}{2\hbar^2\alpha^2}\right), \quad (4)$$

где q имеет смысл среднего переданного импульса и является единственным варьируемым параметром теории [15]. Далее, полная вероятность \overline{W}_N обнаружить центр масс в непрерывном спектре может быть получена интегрированием $\overline{W}_{\mathbf{k}}$ по всем \mathbf{k} , для этого представим элемент интегрирования d^3k в виде $d^3k = 4\pi k^2 dk = 4\pi mN \sqrt{2mN(E_c + U_N)} dE_c$. В результате

$$\overline{W}_N = \int \overline{W}_{\mathbf{k}} d^3k = \int_0^\infty \frac{d\overline{W}_N}{dE_c} dE_c, \quad (5)$$

где $\frac{d\bar{W}_N}{dE_c}$ представляет собой энергетический спектр кластеров, состоящих из N атомов и

$$\frac{d\bar{W}_N}{dE_c} = |A|^2 \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{(E_c + U_N)^{1/2}}{\varepsilon^{3/2}} \exp\left(-N \frac{3\varepsilon}{2\Delta} - \frac{E_c + U_N}{\varepsilon}\right), \quad (6)$$

где $\varepsilon = \frac{2}{3} \frac{q^2}{2m}$; $U_N = \delta N^{2/3}$. Требуя совпадения \bar{W}_N с ранее полученной в [15] (путем суммирования по всем связанным состояниям $\Phi_n(\mathbf{R})$ центра масс с последующим вычитанием из единицы) формулой

$$\bar{W}_N = \left[1 - \left(1 + \frac{\varepsilon}{U_N}\right)^{-3/2}\right] \exp\left(-N \frac{3\varepsilon}{2\Delta}\right), \quad (7)$$

находим значение $|A|^2$:

$$|A|^2 = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \left[1 - \left(1 + \frac{\varepsilon}{U_N}\right)^{-3/2}\right] \Gamma^{-1}\left(\frac{3}{2}, \frac{U_N}{\varepsilon}\right), \quad (8)$$

где $\Gamma^{-1}(x, y) = 1/\Gamma(x, y)$, $\Gamma(x, y)$ — неполная Γ -функция. Такая процедура определения $|A|^2$, строго говоря, является последовательной при $U_N/\varepsilon \rightarrow 0$ и в нашем случае может быть оправдана также совпадением величины \bar{W}_N , вычисленной нами путем интегрирования по состояниям непрерывного спектра, с результатом суммирования (7).

Для получения энергетических спектров кластеров с учетом их зарядового состояния воспользуемся физическими представлениями [12–15], согласно которым процесс формирования зарядового состава является составной частью механизма распыления. Тогда, согласно [15], $P_N(Q)$ вероятность N -атомному кластеру иметь после вылета заряд Qe (e — заряд электрона) определяется исходя из стандартной формулы для вероятности флуктуаций

$$P_N(Q) = \frac{1}{D_N} \exp\left\{-\frac{1}{2} \frac{Q^2}{(\Delta Q_N)^2}\right\}, \quad (\Delta Q_N)^2 = \frac{3^{1/2}}{\pi^{4/3}} \frac{m_e \vartheta}{\hbar^2} \left(\frac{V}{N}\right)^{2/3} \gamma^{1/3} N, \quad (9)$$

где нормирующий множитель D_N определяется путем суммирования по всем возможным значениям $Q = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$, а $(\Delta Q_N)^2$ — средний квадрат отклонений заряда кластера от равновесного значения, m_e — масса электрона зоны проводимости, V — объем кластера, ϑ — температура мишени, γ — валентность атомов металла. Таким образом, для получения энергетического спектра (dW_N^Q/dE_c) кластеров с числом

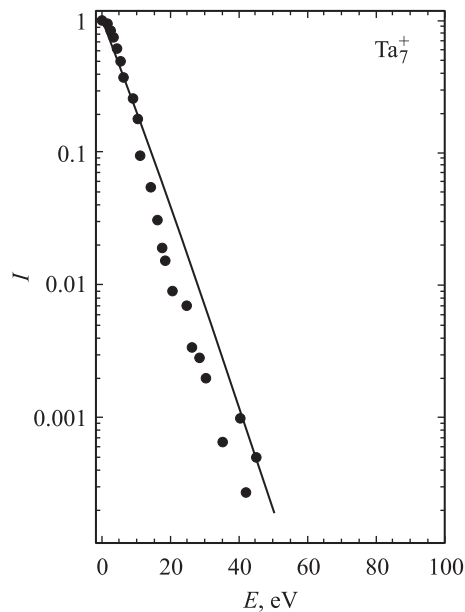


Рис. 1. Энергетический спектр I_7^1 однозарядных кластеров Ta_7^+ с числом атомов в их составе $N = 7$ при бомбардировке мишени из тантала однозарядными ионами Au^{-1} , энергии 6 keV, значении варьируемого параметра $q = 450$ а.е. (атомные единицы: $\hbar = m_e = e = 1$), \bullet — эксперимент [16].

атомов N и зарядом Qe необходимо умножить спектр $(d\bar{W}_N/dE_c)$ из (5) на $P_N(Q)$. В результате получаем окончательное выражение для энергетического спектра кластеров из N атомов и имеющих заряд Qe

$$\frac{dW_N^Q}{dE_c} = \frac{(E_c + U_N)^{1/2}}{\varepsilon^{3/2} \Gamma\left(\frac{3}{2}, \frac{U_N}{\varepsilon}\right)} \left[1 - \left(1 + \frac{\varepsilon}{U_N}\right)^{-3/2} \right] \times \exp\left(-N \frac{3\varepsilon}{2\Delta} - \frac{E_c + U_N}{\varepsilon}\right) \frac{1}{D_N} \exp\left\{-\frac{1}{2} \frac{Q^2}{(\Delta Q_N)^2}\right\}. \quad (10)$$

Необходимо отметить, что энергетические спектры (10) (как полные вероятности W_N^Q , см. [15] и эксперимент [8]) нейтральных кластеров не зависят от температуры мишени, тогда как спектры заряженных

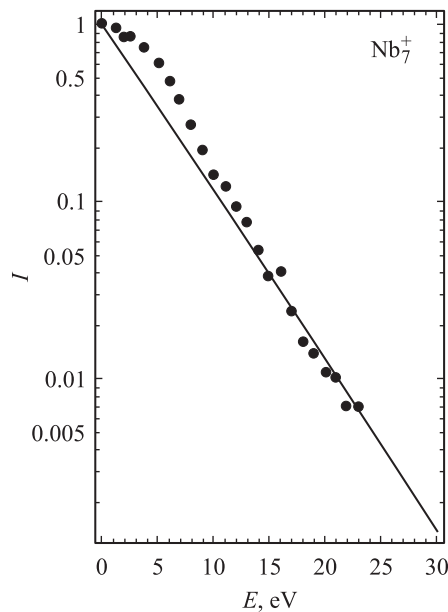


Рис. 2. Энергетический спектр I_7^1 однозарядных кластеров Nb_7^+ с числом атомов в их составе $N = 7$ при бомбардировке мишени из ниобия однозарядными ионами Au^{-1} , энергии 6 keV, значения варьируемого параметра $q = 285$ а.е. (атомные единицы: $\hbar = m_e = e = 1$), \bullet — эксперимент [7].

кластеров существенно зависят от температуры мишени, однако с ростом температуры они приближаются к масс-спектрам нейтральных кластеров.

На эксперименте обычно измеряют относительные энергетические спектры кластеров с различным числом атомов. Поэтому для сравнения с экспериментом спектр (10) следует сначала нормировать согласно нормировке экспериментальных данных. Далее при необходимости можно перейти к любым удобным произвольным единицам. На рис. 1 и 2 приведены нормированные на единицу при $E_c = 0$ энергетические спектры $I_N^Q = (dW_N^Q/dE_c)/(dW_N^Q/dE_c)|_{E_c=0}$ однозарядных I_N кластеров Ta_N и Nb_N с числом атомов в их составе $N = 7$, при бомбардировке мишеней из тантала и ниобия однозарядными ионами Au^{-1} при энергии 6 keV. Отметим, что такая нормировка, удобная при проведении экспе-

риментов, несколько „обедняет“ получаемую информацию, в частности зависимость от температуры мишени, согласно (10), исчезает. Для сравнения на рисунках приведены также экспериментальные данные [16,7]. При расчетах, с целью ограничения числа подгоночных параметров, считалось, что $\Delta = \delta = 8.1 \text{ eV}$ (энергия сублимации [17] тантала) и $\Delta = \delta = 7.47 \text{ eV}$ (энергия сублимации [17] ниобия).

Авторы благодарны Российскому фонду фундаментальных исследований и Администрации Архангельской области за финансовую поддержку работы (грант 02–02–97503–р2002север_а).

Список литературы

- [1] *Фундаментальные и прикладные аспекты распыления твердых тел* / Сб. статей. Пер. с англ. Составитель Е.С. Машкова. М.: Мир, 1989. 399 с.
- [2] *Andersen H.H., Dan K.* // Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 1993. V. 43. P. 127.
- [3] *Urbassek H.M., Hofer W.O., Dan K.* // Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 1993. V. 43. P. 97.
- [4] *Баранов И.А., Мартыненко Ю.В., Целевич С.О., Явлинский Ю.Н.* // УФН. 1988. Т. 156. С. 478.
- [5] *Распыление под действием бомбардировки частицами* / Под ред. Р. Бериша, К. Виттмака. Вып. 3. М.: Мир, 1998. 551 с.
- [6] *Colla Th.J., Urbassek H.M., Wucher A.* et al. // Nucl. Instrum. Meth. 1998. V. B143. P. 284.
- [7] *Belykh S.F., Habets B., Rasulev U.Kh.* et al. // Nucl. Instrum. Meth. 2000. V. B164–165. P. 809.
- [8] *Staudt C., Heinrich R., Mazarov P.* et al. // Nucl. Instrum. Meth. 2000. V. B164–165. P. 715.
- [9] *Kissel R., Urbassek H.M.* // Nucl. Instrum. Meth. 2001. V. B180. P. 293.
- [10] *Belykh S.F., Palitsin V.V., Veryovkin I.V.* et al. // Nucl. Instrum. Meth. 2003. V. B203. P. 164.
- [11] *Morozov S.N., Rasulev U.Kh.* // Nucl. Instrum. Meth. 2003. V. B203. P. 192.
- [12] *Матвеев В.И., Хабибуллаев П.К.* // ДАН. 1998. Т. 362. С. 191.
- [13] *Belykh S.F., Matveev V.I., Veryovkin I.V.* et al. // Nucl. Instrum. Meth. 1999. V. B155. P. 409.
- [14] *Матвеев В.И.* // ЖТФ. 2000. Т. 70. В. 8. С. 108.
- [15] *Матвеев В.И.* // ЖТФ. 2002. Т. 72. В. 6. С. 116.
- [16] *Belykh S.F., Rasulev U.Kh., Samartsev A.V., Veryovkin I.V.* // Nucl. Instrum. Meth. 1998. V. 136–138. P. 773.
- [17] *Куммель Ч.* Введение в физику твердого тела. М.: Наука, 1978. 792 с.