

УДК 532.533

В.И. МАТВЕЕВ, С.А. КОЧКИН

ЭНЕРГИИ КЛАСТЕРОВ ПРИ ИОННОМ РАСПЫЛЕНИИ МЕТАЛЛА¹

Предложена методика расчетов энергетических спектров кластеров с числом атомов $N \geq 5$ при ионном распылении металла. Результаты представлены в виде простых формул. Проведено сравнение с экспериментом рассчитанных в данной работе энергетических распределений кластеров при бомбардировке ниобия и железа атомарными ионами золота и ксенона.

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. В настоящей статье на основе физических представлений, предложенных в работах [12–15], и метода расчета полного выхода кластеров [15], справедливых для кластеров с числом атомов $N \geq 5$, развит метод расчета энергетических спектров кластеров, эмиттированных 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 q_i , где i – номер атома. Тогда, согласно [15], вероятность вылета кластера из N атомов как целого с импульсом k равна

$$W_k = \left| \langle \Phi_k(\mathbf{R}) \left| \exp\left(\frac{i}{\hbar} \sum_{i=1}^N q_i \mathbf{R}\right) \right| \Phi_0(\mathbf{R}) \right|^2 \exp\left(-\frac{1}{n_0} \frac{1}{2\alpha^2 \hbar^2} \sum_{i=1}^N q_i^2\right), \quad (1)$$

где $\alpha^2 = m\omega/\hbar$, m – масса атома, \hbar – постоянная Планка; $n_0 = \Delta/\hbar\omega$; $\Phi_0(\mathbf{R})$ – волновая функция основного состояния центра масс блока из N атомов; $\Phi_k(\mathbf{R})$ – волновая функция центра масс блока в состоянии непрерывного спектра с импульсом 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. Считалось, что центр масс блока движется в сферически-симметричном осцилляторном потенциале, обрезанным на высоте U_N . Такой потенциал будем обозначать $U(\mathbf{R})$, причем $U(\mathbf{R}) = mN\Omega^2 \mathbf{R}^2 / 2$ при $R < R_N$, где R_N такое, что $U(R_N) = U_N$, а при $R > R_N$ потенциал имеет постоянное значение $U(\mathbf{R}) = U_N$. Полная вероятность W_N вылета центра масс блока из N атомов в непрерывный спектр может быть получена интегрированием по всем состояниям непрерывного спектра либо [15] путем суммирования по всем возможным связанным состояниям центра масс блока в яме $U(\mathbf{R})$ с последующим вычитанием из единицы, а именно:

$$W_N = \left[1 - \sum_{n=0}^{k_0} \left| \langle \Phi_n(\mathbf{R}) \left| \exp\left(\frac{i}{\hbar} \sum_{i=1}^N q_i \mathbf{R}\right) \right| \Phi_0(\mathbf{R}) \right|^2 \right] \exp\left(-\frac{1}{n_0} \frac{1}{2\alpha^2 \hbar^2} \sum_{i=1}^N q_i^2\right), \quad (2)$$

¹ Работа поддержана грантом 02-02-97503-р2002север_а.

где суммирование проводится от $n = 0$ до некоторого максимального значения $n = k_0$, соответствующего связанному состоянию с максимальной энергией в потенциальной яме глубиной U_N , т.е. $k_0 = U_N / (\hbar\Omega)$. После вычисления матричных элементов, суммирования по n и усреднения по векторам \mathbf{q}_i получаем (см. [15]) из (2) полную вероятность \overline{W}_N вылета N -атомного кластера, которую нам удобно представить так:

$$\overline{W}_N = \left[1 - \left(1 + \frac{\varepsilon}{k_0 \hbar \Omega} \right)^{-3/2} \right] \exp \left(-N \frac{3 \varepsilon}{2 \Delta} \right), \quad (3)$$

$\varepsilon = (2/3)q^2 / (2m)$. Таким образом, методика работы [15] принципиально не содержала распределение кластеров по энергиям. Для вычисления энергетического спектра вернемся к выражению (1). Запишем волновую функцию для центра масс в состоянии $\Phi_k(\mathbf{R})$ непрерывного спектра с импульсом \mathbf{k} и энергией $E_c + U_N$, где $E_c = \mathbf{k}^2 / (2mN)$, в квазиклассическом виде [16]

$$\Phi_k(\mathbf{R}) = \frac{A}{(2\pi\hbar)^{3/2}} \exp \left(\frac{i}{\hbar} \int \mathbf{k}(\mathbf{R}) d\mathbf{R} \right), \quad (4)$$

где $|\mathbf{k}(\mathbf{R})| = \sqrt{2mN(E_c + U_N - U(\mathbf{R}))}$ и $\mathbf{k}(\mathbf{R}) \rightarrow \mathbf{k}$ при $R \rightarrow \infty$. Далее, считаем [12–15], что 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 $\langle \Phi_k(\mathbf{R}) | \exp(\dots) | \Phi_0(\mathbf{R}) \rangle$ можно считать, что в функции $\Phi_k(\mathbf{R})$ импульс $|\mathbf{k}(\mathbf{R})| = \sqrt{2mN(E_c + U_N)} = |\mathbf{k}(0)|$. В результате

$$W_k = \frac{|A|^2}{(\pi mN \hbar \Omega)^{3/2}} \exp \left(- \left(\sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i - \mathbf{k}(0) \right)^2 / (mN \hbar \Omega) \right) \exp \left(- \frac{1}{n_0} \frac{1}{2\alpha^2 \hbar^2} \sum_{i=1}^N q_i^2 \right). \quad (5)$$

Далее, как и в [15], следует усреднить вероятность (5) по всем возможным значениям \mathbf{q}_i , $i = (1, 2, \dots, N)$. Сделаем естественное предположение о распределениях значений \mathbf{q}_i : считаем все \mathbf{q}_i независимыми, а все направления \mathbf{q}_i – равновероятными и возьмем среднее по углам $\Omega_{\mathbf{q}_i}$ векторов \mathbf{q}_i (причем все \mathbf{q}_i имеют одинаковую длину $|\mathbf{q}_i| = q$ [12–15]). Результат такого усреднения обозначим через \overline{W}_k . Далее, полная вероятность \overline{W}_N обнаружить центр масс в непрерывном спектре может быть получена интегрированием \overline{W}_k по всем \mathbf{k} с условием, что импульс \mathbf{k} направлен наружу, что соответствует телесному углу 2π . Для этого представим $d^3\mathbf{k}$ в виде $d^3\mathbf{k} = 2\pi k^2 dk = 2\pi mN \sqrt{2mN(E_c + U_N)} dE_c$. В результате

$$\overline{W}_N = \int \overline{W}_k d^3\mathbf{k} = \int_0^\infty \left(\frac{d\overline{W}_N}{dE_c} \right) dE_c, \quad (6)$$

где

$$\left(\frac{d\overline{W}_N}{dE_c} \right)_1 = \overline{W}_k 2\pi mN \sqrt{2mN(E_c + U_N)}$$

представляет собой энергетический спектр N -атомных кластеров, который после простых преобразований примет вид

$$\left(\frac{d\overline{W}_N}{dE_c} \right)_1 = \frac{(E_c + U_N)^{1/2}}{\varepsilon^{3/2} \Gamma(3/2, U_N/\varepsilon)} \left[1 - \left(1 + \frac{\varepsilon}{U_N} \right)^{-3/2} \right] \exp \left(- \frac{E_c + U_N}{\varepsilon} - N \frac{3 \varepsilon}{2 \Delta} \right), \quad (7)$$

где $\varepsilon = (2/3)q^2/(2m)$; $U_N = \delta N^{2/3}$; $\Gamma(x, y)$ – неполная Γ -функция и [15] $\hbar\Omega/2 \ll \varepsilon$, а коэффициент $|A|^2$ в формуле (5) был найден из условия совпадения \overline{W}_N из формулы (6) с ранее полученной формулой (3). Выражение (4) для волновой функции $\Phi_k(\mathbf{R})$, строго говоря, соответствует вылету центра масс блока в непрерывный спектр вдали от потолка потенциальной ямы, т.е. с энергией $E_c \gg U_N$ ([16]. С. 297). Поэтому соответствующее выражение для спектра (7) должно быть сшито со спектром кластеров при низких энергиях $0 < E_c \ll U_N$. Низкоэнергетическую часть спектра получим следующим образом. Выражение (3) может быть представлено в виде интеграла от некоторой спектральной функции следующим простым способом. Будем считать k_0 переменной величиной (тогда \overline{W}_N из (3) будет функцией от k_0 , т.е. $\overline{W}_N = \overline{W}_N(k_0)$) и введем зависимость $k_0 = (E_c + U_N)/(\hbar\Omega)$, тогда

$$\overline{W}_N = \int \frac{d\overline{W}_N}{dk_0} dk_0 = \int_0^\infty \left(\frac{d\overline{W}_N}{dE_c} \right)_2 dE_c,$$

где $(d\overline{W}_N/dE_c)_2$ имеет смысл энергетического спектра кластеров из N атомов, причем

$$\left(\frac{d\overline{W}_N}{dE_c} \right)_2 = \frac{d\overline{W}_N(k_0)}{dk_0} \frac{dk_0}{dE_c}.$$

После дифференцирования и простых преобразований получаем энергетический спектр кластеров, состоящих из N атомов, в виде

$$\left(\frac{d\overline{W}_N}{dE_c} \right)_2 = \frac{3}{2} \left[1 + \frac{E_c + U_N}{\varepsilon} \right]^{-5/2} \frac{(E_c + U_N)^{1/2}}{\varepsilon^{3/2}} \exp\left(-N \frac{3\varepsilon}{2\Delta}\right). \quad (8)$$

Как следует из способа получения этого выражения, формула (8) может быть интерпретирована как спектр кластеров лишь в непосредственной близости к границе между непрерывными и дискретными состояниями, т.е. при $E_c \ll U_N$. Для получения спектра во всем диапазоне изменения E_c необходимо «сшить» низкоэнергетическую (8) и высокоэнергетическую (7) части спектра.

Представим искомый результат сшивки $d\overline{W}_N/dE_c$ в следующем виде:

$$\frac{d\overline{W}_N}{dE_c} = f(E_c)|C|^2 \left(\frac{d\overline{W}_N}{dE_c} \right)_2 + [1 - f(E_c)] \left(\frac{d\overline{W}_N}{dE_c} \right)_1, \quad (9)$$

где функция $f(E_c)$ должна быть такой, что $f(E_c) \rightarrow 1$ при $E_c \ll U_N$ (т.е. при $E_c \rightarrow 0$) и $f(E_c) \rightarrow 0$ при $E_c \gg U_N$ (т.е. при $E_c \rightarrow \infty$). Тогда при изменении E_c от 0 до ∞ полный спектр $d\overline{W}_N/dE_c$ плавно переходит от $(d\overline{W}_N/dE_c)_2$ в спектр $(d\overline{W}_N/dE_c)_1$. Мы выбрали следующую, удовлетворяющую указанным условиям функцию $f(E_c)$: $f(E_c) = \exp[-E_c^2/\varepsilon^2]$. Проведение такой процедуры, очевидно, нарушает условие нормировки, поэтому в (9) введена нормировочная константа C так, что полный спектр $d\overline{W}_N/dE_c$ нормирован на вероятность \overline{W}_N вылета кластера

из N атомов, т.е. $\overline{W}_N = \int_0^\infty (d\overline{W}_N/dE_c) dE_c$, тогда получим выражение для численного расчета $|C|^2$:

$$|C|^2 = \left(\int_0^\infty f(E_c) (d\overline{W}_N/dE_c)_1 dE_c \right) / \left(\int_0^\infty f(E_c) (d\overline{W}_N/dE_c)_2 dE_c \right).$$

Таким образом, если проинтегрировать полный спектр (9) по всем возможным значениям энергии кластера E_c , то результатом будет полная вероятность \overline{W}_N вылета кластера с числом атомов N . В этом смысле значения $d\overline{W}_N/dE_c$ в формуле (9) соответствуют абсолютным значениям

спектра. Экспериментально обычно проще измерять относительные энергетические спектры I_N кластеров с различным числом атомов. Как правило (см., напр., [7, 18, 19]), выбирают нормированные на единицу при $E_c = 0$ относительные энергетические спектры $I_N = (d\overline{W}_N/dE_c) / (d\overline{W}_N/dE_c)|_{E_c=0}$. На рис. 1 приведен энергетический спектр I_7 кластеров Nb_N с числом атомов в их составе $N = 7$ при бомбардировке мишени из ниобия ионами золота Au^{-1} с энергией 6 кэВ. На рис. 2 приведены относительные энергетические спектры I_N кластеров Fe_N с числом атомов в их составе $N = 7, 8, 9$ при бомбардировке мишени из железа ионами Xe^{+1} с энергией 8,5 кэВ. При расчетах, с целью ограничения числа подгоночных параметров, считалось, что $\Delta = \delta$,

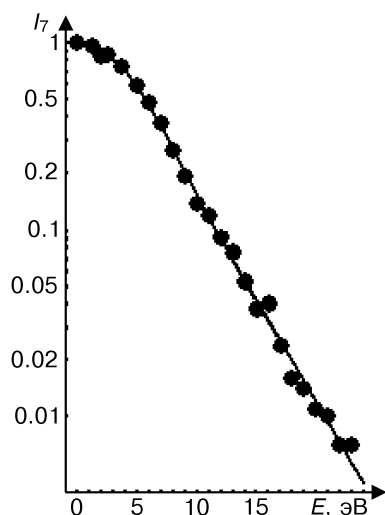


Рис. 1. Относительный энергетический спектр (нормированная интенсивность) I_7 кластеров Nb_7 с числом атомов в их составе $N = 7$ при бомбардировке мишени из ниобия ионами Au^{-1} при $E = 6$ кэВ: линия – расчет; ● – эксперимент [7]

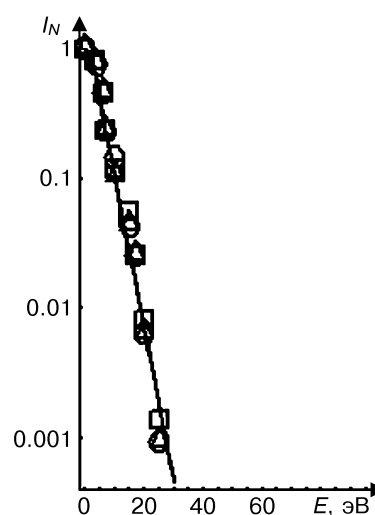


Рис. 2. Относительные энергетические спектры I_N кластеров железа Fe_N с числом атомов в их составе $N = 7-9$ при бомбардировке мишени из железа ионами Xe^{+1} при $E = 8,5$ кэВ: линия – результат слияния в логарифмическом масштабе трех линий, соответствующих расчетным значениям трех величин I_N для $N = 7, 8, 9$; ○ (Fe_7), □ (Fe_8), △ (Fe_9) – эксперимент [19]

и их общее значение, следуя [15], выбиралось равным энергии сублимации. Таким образом, для ниобия $\Delta = \delta = 7,47$ эВ (энергия сублимации [17] ниобия) значение варьируемого параметра $q = 270$ ат. ед. (атомные единицы: $\hbar = m_e = e = 1$), для железа $\Delta = \delta = 4,29$ эВ (энергия сублимации [17] железа), $q = 200$ ат. ед. Для сравнения на рис. 1 и 2 приведены также экспериментальные данные [7] и [19] соответственно. Рис. 2 приведен в подтверждение следующей из (9) слабой зависимости относительных энергетических спектров I_N от числа атомов в кластере.

Авторы благодарны Российскому фонду фундаментальных исследований и Администрации Архангельской области за финансовую поддержку работы.

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. K. Dan. // Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd.– 1993.– V. 43.– P. 127.
3. Urbassek H.M. and Hofer W.O., Dan K. // Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd.– 1993.– V. 43.– P. 97.
4. Баранов И.А., Мартыненко Ю.В., Цепелевич С.О., Явлинский Ю.Н. // УФН.– 1988.– Т. 156.– Т. 478.
5. Распыление под действием бомбардировки частицами / Под ред. Р. Бериша и К. Витмака.– М.: Мир, 1998.– Вып. 3.– 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., Urbussek 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.– С. 108.
15. Матвеев В.И. // ЖТФ.–2002.– Т. 72.– С. 116.
16. Гольдбергер М., Ватсон К. // Теория столкновений.– М.: Мир, 1967.– 823 с.
17. Киттель Ч. Введение в физику твердого тела.– М.: Наука, 1978.– 792 с.
18. Belykh S.F., Rasulev U.Kh., Samartsev A.V., Veryovkin I.V. // Nucl. Instrum. Meth.–1998.– V. B136–138.– P. 773.
19. Bekkerman A.D., Dzhemilev N.Kh., Verkhoturov S.V., et al. // Microchim. Acta.–1998.– V. 15.– P. 371.

Поморский госуниверситет
им. М.В. Ломоносова
E-mail: matveev.victor@pomorsu.ru

Поступила в редакцию 09.06.03.