

НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ ЭЛЕКТРОННАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ПОЛНОГО ТОКА МОЛИБДЕНА

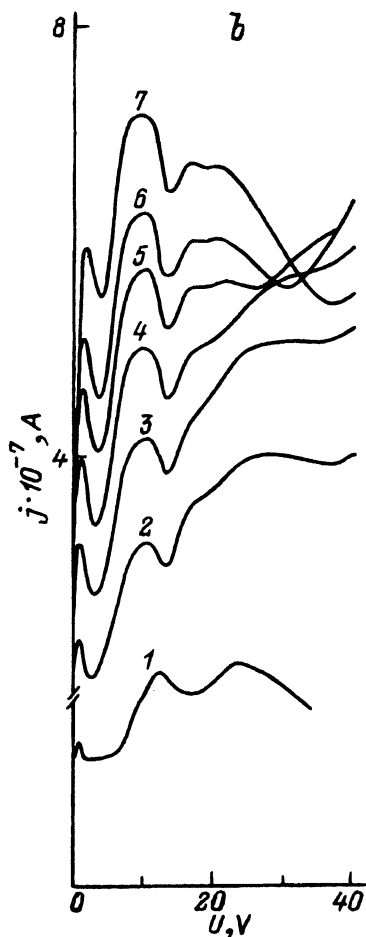
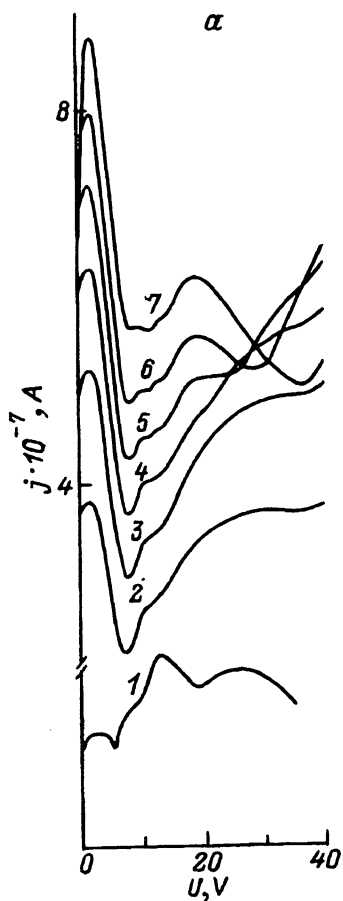
О.Ф.Панченко, Л.К.Панченко, В.М.Шаталов,
В.И.Силантьев, Н.А.Шевченко

Спектроскопия полного тока является эффективным методом исследования энергетической структуры и рассеяния электронов в кристалле [1,2], а также контроля чистоты поверхности в процессе очистки от примесей [3,4]. Она основана на измерении тока в образце при его облучении электронами малых энергий ($E_p \leq 100$ eV). Согласно существующим представлениям [1], наблюдаемая тонкая структура спектров полного тока (СПТ) определяется механизмами электрон-электронного рассеяния с возбуждением межзонных переходов. Наряду с этим в спектрах могут проявляться пороговые характеристики возбуждения твердого тела при электронном воздействии: плазменные колебания, состояния примесных атомов, вакансий и др. Однако основной структурой спектра следует считать особенности, отражающие фундаментальные свойства рассматриваемого материала. В настоящей работе в развитии представлений [5] проведено исследование тонкой структуры СПТ граней (100) и (110) монокристалла Мо.

Принципиальная схема измерения СПТ подробно описана в [6]. Исследования проводились в сверхвысоковакуумной установке в вакууме $6 \cdot 10^{-10} - 1 \cdot 10^{-9}$ Pa. Поток медленных первичных электронов j_p с энергией E_p в тормозящем поле направлялся по нормали к исследуемой поверхности трехэлектродной пушкой, состоящей из катода и двух диафрагм. Напряжение на образце U изменялось от -5 до $+100$ V при постоянном потенциале второй диафрагмы U_d . Измеряемый ток в цепи образца $j(E_p) = j_p - j_s$, где j_s — ток уходящих из образца электронов как упруго-, так и неупругоотраженных. Для очистки от примесей исследуемые монокристаллы Мо отжигались в диапазоне температур 1300–2800 K. После каждого отжига снималась вольтамперная характеристика и определялась работа выхода $e\phi$, измеряемая методом Андерсона при учете изменения отражения электронов.

На рисунке, a, b (кривые 2–7) показаны полученные СПТ $j(U)$ атомно-чистых поверхностей Мо (100) и Мо (110) (после отжига при 2800 K и обезуглероживания в атмосфере кислорода) при различных значениях U_D . В спектрах наблюдается тонкая структура, которую можно объяснить, как и в [7–10], на основе модели рассеяния электронов с заданным импульсом на кристалле в приближении, когда вероятность рассеяния пропорциональна числу конечных состояний на данном уровне энергии $E = U$ с заданным направлением квазиимпульса Ω . При этом ток через образец имеет вид

$$j(E, \Omega) \sim \frac{1}{V} \sum_{nk} [1 - f_F(E_{nk})] \left| \frac{1}{\hbar} \nabla_{\mathbf{k}} E_{nk} \right| \delta(E - E_{nk}) \delta(\Omega - \Omega_{nk}), \quad (1)$$



СПТ $J(U)$ грани Мо (100) (а) и Мо (110) (б).

1 — теория (в отн. ед.); 2-7 — эксперимент при U_d , равных +10, +15, +20, +30 и +40 В соответственно. Значения U приведены с учетом контактной разности потенциалов между катодом измерительной пушки и образцом без учета энергетического разброса электронов в пучке $f(E_p)$.

где E_{nk} — закон дисперсии электронов; Ω_{nk} — единичный вектор вдоль направления $\nabla_k E_{nk}$; $f_F(E_{nk})$ — равновесная функция заполнения Ферми-Дирака, которая при $E > E_F + e\varphi$ равна нулю; $E_F = 7.5$ eV — уровень Ферми; V — объем кристалла. Переходя от суммирования по k к интегрированию по поверхности постоянной энергии $E_{nk} = E$, получаем

$$j(E, \Omega) \sim \frac{1}{(2\pi\hbar)^3} \int \frac{dE'}{\pi} N(E', \Omega) \frac{\hbar\Gamma(E')/2}{(E - E')^2 + \hbar^2\Gamma^2(E')/4}, \quad (2)$$

где $N(E, \Omega)$ — число энергетических зон вдоль направления Ω , для которых выполняется равенство $E = E_{nk}$. Здесь учтена конечная ширина $\hbar\Gamma(E) = \hbar/\tau(E)$ электронных уровней путем замены δ -функции по энергии в (1) на соответствующий лоренциан. При этом время жизни

возбужденного состояния $\tau(E)$ вблизи Ферми-поверхности определялось из [11]

$$\hbar/\tau(E) = \pi^2 3^{1/2} E_{pl}(E/E_F - 1)^2/128,$$

где E_{pl} — параметр экранирования, зависящий от концентрации s - и d -электронов в электронной оболочке атома. Расчет из общей теории металлов для Мо дает $E_{pl} \approx 4.6$ eV. Выражение (2) справедливо, когда Ω совпадает с осью симметрии кристалла (при нормальном падении потока электронов на образец). Для построения ступенчатой функции $N(E, \Omega)$ аналогично [12] мы воспользовались расчетом зонной структуры E_{Nk} Мо, полученной методом релятивистских линейных muffin-tin орбиталей (РЛМТО) [13].

Результаты расчета СПТ по формуле (2) представлены на рисунке (кривые 1) для граней Мо (100) (а) и Мо (110) (б). С одной стороны, различия в положении особенностей на теоретических и экспериментальных кривых связаны с приближенным характером зонных расчетов для высоколежащих уровней. С другой стороны, имеются экспериментальные погрешности, связанные с формированием коллимированного пучка электронов в области низких энергий, осуществлением полного сбора вторичных электронов и др. Кроме того, метод СПТ в области малых E_p обладает высокой поверхностной чувствительностью, определяемой не только малой глубиной анализируемой области, но и сильной зависимостью от физико-химических поверхностных процессов [3,4,6]. Так, интенсивность первого пика в СПТ грани Мо (100) значительно превышает теоретическое значение (см. рисунок, а) полученное без учета упругого рассеяния, что, возможно, связано с наличием на поверхности чужеродных атомов и дефектов [4]. Наличие адсорбата приводит к упругому рассеянию на большие углы, тем самым открываются новые каналы проникновения электронов в кристалл.

На экспериментальных зависимостях $j(U)$ тонкая структура в области 10–40 eV проявляется более ярко при увеличении U_D . Это связано с тем, что при $U \leq U_D$ истинно-вторичные электроны могут по условиям эксперимента уйти из образца, тем самым уменьшая ток через образец.

Полученное соответствие между основными особенностями теоретических и экспериментальных СПТ свидетельствует о преобладающей роли эффектов объемной зонной структуры в формировании спектров. Подтверждена зависимость тонкой структуры СПТ от геометрической структуры и степени упорядоченности исследуемых кристаллов. Развиваемый метод позволяет отделить объемные эффекты в СПТ от поверхностных.

Список литературы

- [1] Комолов С.А. Интегральная вторично-электронная спектроскопия поверхности. Л.: Изд-во ЛГУ, 1986. 180 с.
- [2] Schäfer I., Schlüter M., Skibowski M. // Phys. Rev. B. 1987. V. 35. N 14. P. 7663–7670.
- [3] Силантьев В.И., Шевченко Н.А., Меламед Б.Я. // УФЖ. 1979. Т. 24. № 8. С. 1227–1229.
- [4] Силантьев В.И., Шевченко Н.А. // Высокочистые вещества. 1988. № 4. С. 197–203.
- [5] Шаталов В.М., Панченко О.Ф., Перлов А.Я., Силантьев В.И., Шевченко Н.А. // Металлофизика. 1992. Т. 14. № 1. С. 88–93.

- [6] Дехтяр И.Я., Меламед Б.Я., Силантьев В.И., Шевченко Н.А. // Поверхность. 1982. № 8. С. 55-62.
- [7] Комолов С.А., Панченко О.Ф., Шаталов В.М. // ФТТ. 1992. Т. 34. № 4. С. 1259-1262.
- [8] Комолов С.А., Панченко О.Ф., Шаталов В.М. // ФТТ. 1992. Т. 34. № 11. С. 3489-3492.
- [9] Комолов С.А., Панченко О.Ф., Панченко Л.К., Шаталов В.М. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. № 3. С. 17-22.
- [10] Панченко О.Ф., Шаталов В.М. // ЖТФ. 1993. Т. 63. № 10. С. 144-150.
- [11] Пайнс Д., Нозьер Ф. Теория квантовых жидкостей. М.: Мир, 1967. 382 с.
- [12] Shatalov V.M., Panchenko O.F., Artamonov O.M., Vinogradov A.G., Terekhov A.N. // Sol. St. Comm. 1988. V. 68. N 8. P. 719-722.
- [13] Nemoshkalenko V.V., Krasovskii A.E., Antonov V.N., Antonov V.I., Fleck U., Wonn H., Ziesche P. // Phys. Stat. Sol. B. 1983. V. 120. N 1. P. 283-296.

Донецкий физико-технический институт АН Украины
Институт металлофизики АН Украины
Киев

Поступило в Редакцию
4 января 1994 г.

УДК 539.196.3:538.9

© Физика твердого тела, том 36, № 6, 1994
Solid State Physics, vol. 36, N 6, 1994

ИНТЕГРАЛЫ ПЕРЕНОСА ТРИПЛЕТНОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ В ЛИНЕЙНЫХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ КРИСТАЛЛАХ

А.Н.Петренко

Спектроскопическая информация, получаемая в современных оптических или магнитно-резонансных исследованиях возбужденных триплетных состояний чистых, а также изотопически или химически замещенных примесных органических молекулярных кристаллов [1,2], вместе с тем требует специальной теоретической интерпретации, в частности включения в рассмотрение расчетных значений межмолекулярных интегралов переноса триплетного возбуждения J . Квантовохимические расчеты J впервые проводились в связи с анализом зонной структуры и давидовских расщеплений возбужденных триплетных состояний органических молекулярных кристаллов [3,4]. Применявшиеся подходы, основанные на формуле Декстера, требовали расчета большого количества двухэлектронных интегралов, что существенно усложняло расчеты и затрудняло интерпретацию полученных результатов. Значительно проще, с вычислительной точки зрения, формула [5]

$$J = (-1/2)S_{AB}I_{ab}, \quad (1)$$

где $S_{AB} = \int \varphi_a^*(1)\varphi_b^*(1)dr_1$ — интеграл перекрытия граничных молекулярных орбиталей (МО) индивидуальных молекул, находящихся в возбужденном триплетном состоянии (φ_a^* , φ_b^*),

$$I_{ab} = \int \left(\varphi_a(2) \frac{d\varphi_b(2)}{dz_2} - \varphi_b(2) \frac{d\varphi_a(2)}{dz_2} \right) \Big|_{z_2=0} dx_2 dy_2 \quad (2)$$