

01;02;11

©1995 г.

КВАЗИКЛАССИЧЕСКОЕ ОПИСАНИЕ ОДНОФОНОННОГО РАССЕЙЯНИЯ АТОМА ПОВЕРХНОСТЬЮ В ДИФРАКЦИОННОМ РЕЖИМЕ

Н.В.Блинов,¹ Д.В.Кульгинов²

¹ Омский государственный университет,
644077, Омск, Россия

² Институт межфазных взаимодействий,
194291, Санкт-Петербург, Россия
(Поступило в Редакцию 12 сентября 1994 г.
В окончательной редакции 6 февраля 1995 г.)

В рамках обобщенного эйконального приближения рассматриваются процессы неупругого (однофононного) рассеяния атома газа поверхностью твердого тела в дифракционном режиме. Получены простые аналитические представления для амплитуды неупругого рассеяния в виде суперпозиции упругих дифракционных амплитуд. Представлены результаты расчетов интенсивности для рассеяния гелия поверхностями Ag(111) и Cu(110). Показано, что предложенная модель позволяет корректно описать однофононное рассеяние вблизи границы поверхностной зоны Бриллюэна.

Применение низкоэнергетического атомного (молекулярного) пучка в качестве поверхностного зонда позволяет получить информацию о самом верхнем атомном слое кристалла [1]. Молекулярно-пучковая диагностика используется для определения поверхностных фононных спектров [2,3], исследования структуры чистой и покрытой адсорбционным слоем поверхности [4,5] и изучения фазовых переходов на границе раздела газ-твердое тело [6,7]. Информацию о периодической структуре поверхности, потенциале взаимодействия в системе можно получить из экспериментов по упругому рассеянию (дифракция, селективная адсорбция). Дисперсионные соотношения для поверхностных фононных мод удастся восстановить по положению однофононных пиков на времяпролетных спектрах с учетом законов сохранения энергии и тангенциального импульса атома газа. Из сравнения экспериментальных данных с результатами теоретических расчетов неупругих однофононных интенсивностей удастся получить важную информацию о фононных колебательных возбуждениях поверхности кристалла [2]. Расчеты обычно проводят в рамках первого борновского приближения в

методе искаженных волн с использованием поверхностного фононного спектра, полученного в результате численного моделирования кристаллического блока пластиной, состоящей из конечного числа атомных плоскостей [8]. Варьированием силовых констант в окрестности их объемных значений удается объяснить основные закономерности времяпролетных спектров [8]. В качестве “сильного” (невозмущенного) потенциала при таких расчетах выбирается усредненный, зависящий только от расстояния до поверхности, потенциал взаимодействия. В случае учета структуры поверхности резко возрастают вычислительные трудности, связанные с необходимостью принимать во внимание большое количество каналов, соответствующих дифракционному рассеянию. Простейший способ решения возникающих проблем — использование предположения о независимости упругих и неупругих процессов в системе, что приводит к мультипликативным представлениям для вероятности рассеяния [9]. Данное приближение носит ограниченный характер, так как в окрестности упругих пиков нарушается условие применимости однофононного приближения, а на границах поверхностной зоны Бриллюэна становится существенным учет корреляций между дифракционными упругими и неупругими каналами рассеяния.

Существует целый ряд других задач, решение которых в рамках последовательного квантово-механического подхода приводит к проблемам как вычислительного, так и принципиального характера. Это прежде всего непертурбативный учет взаимодействия с фононной подсистемой кристалла, построение аналитических представлений для описания рассеяния в системе атом газа–поверхность твердого тела. Такие представления необходимы для предварительной обработки результатов экспериментов, для решения комплексных задач физики и химии поверхностных процессов, в газодинамических приложениях. Все это стимулирует разработку различных приближенных методов в теории рассеяния газа поверхностью [8–10], среди которых широкое распространение получил квазиклассический подход.

В условиях, когда учет динамики поверхностных атомов и внутренних степеней свободы атома (молекулы) газа приводит к многочастичной задаче (типа взаимодействия частицы с термостатом), наиболее удобным оказывается использование представления для амплитуды или вероятности рассеяния в терминах фейнмановского интеграла по траекториям и последующий переход к квазиклассическому пределу на основе континуального аналога метода стационарной фазы [8,11–13]. При этом фононная часть амплитуды в приближении гармонического кристалла может быть найдена в явном виде, что соответствует полному квантово-механическому описанию динамики поверхности. Учет влияния периодической структуры и поверхностных степеней свободы на траекторию атома газа при переходе к квазиклассическому пределу приводит к нелокальным уравнениям движения [12]. В рамках траекторного приближения таким влиянием вообще пренебрегают и рассматривают движение атома газа по упругой (зеркальной) траектории. Более последовательный подход — обобщенное эйкональное приближение [13] — связан с учетом в выражении для вероятности рассеяния симметрий задачи относительно произвольных временных сдвигов и трансляций на вектор решетки, что позволяет построить теорию

возмущений для классической траектории атома газа, уже в нулевом порядке учитывающей влияние неупругих процессов и дифракции на динамику атома газа. На основе такого подхода получен целый ряд аналитических аппроксимаций для вероятности неупругого рассеяния атомов и полиатомных молекул поверхностью кристалла в различных режимах рассеяния [13–15].

Основная цель настоящей работы — получение простых аналитических выражений для вероятности однофононного рассеяния атома газа поверхностью твердого тела в дифракционном режиме. Рассмотрение основывается на континуальном представлении для амплитуды неупругого рассеяния, полученном в работе [16]. Переход к квазиклассическому пределу выполнен в рамках обобщенного эйконального приближения [13]. Квазиклассическое приближение используется для описания динамики атома газа, в то время как поверхностные степени свободы трактуются квантово-механически, что позволяет корректно описать в рамках предложенной модели однофононные процессы. Такой подход уже применялся для описания одно- и многофононного рассеяния атома газа поверхностью твердого тела в тепловом режиме [17,18]. В работе найдены выражения для однофононных амплитуд в виде суммы упругих дифракционных амплитуд. Получено обобщение бесселевой аппроксимации для дифракционных интенсивностей [13] на случай неупругого однофононного рассеяния. На основе предложенной модели проведены расчеты интенсивности рассеяния для систем He–Ag(111) (тепловой режим) и He–Cu(110) (дифракция). По результатам расчетов можно сделать вывод, что предлагаемый подход позволяет корректно описать однофононное рассеяние в дифракционном режиме.

В тепловом интервале энергий (до 0.1 эВ), когда процессы энергообмена при взаимодействии атома газа с поверхностью твердого тела определяются прежде всего фононным механизмом (вероятность возбуждения электрон-дырочных пар и внутренних степеней свободы мала), гамильтониан системы можно представить в виде (используются единицы, в которых $\hbar = 1$)

$$H = \frac{\mathbf{p}^2}{2m_p} + V_{st}(\mathbf{r}) + \sum_k \omega_k a_k^* a_k - \sum_k (a_k^* f_k + a_k f_k^*),$$

где $\mathbf{r} = (\mathbf{R}, z)$ — радиус-вектор (ось z направлена по нормали к поверхности, прописные буквы обозначают тангенциальные компоненты векторов), \mathbf{p} — импульс, m_p — масса атома газа, $V_{st}(\mathbf{r}) = V_{int}|_{\{\mathbf{u}_1=0\}}$ — стационарный потенциал, соответствующий “холодной” поверхности (отклонения поверхностных атомов \mathbf{u}_1 из положений равновесия \mathbf{r}_{01} равны нулю).

Переменные a_k соответствуют нормальной моде кристалла k с волновым вектором \mathbf{q} , частотой ω_k и вектором поляризации \mathbf{e}_k ; f_k — сила, действующая на нормальную моду кристалла со стороны атома газа,

$$f_k = -(2\omega_k MN)^{-1/2} \sum_{\mathbf{l}} e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}_{01}} (\mathbf{e}_k \nabla_{\mathbf{u}_1}) V_{int}|_{\{\mathbf{u}_1=0\}}. \quad (1)$$

Здесь M — масса атома кристалла, N — число атомов в кристаллическом блоке. Выражение для силы (1) можно преобразовать к более

удобно для дальнейших приложений виду, если учесть, что динамические эффекты при рассеянии определяются короткодействующей (отталкивательной) частью потенциала взаимодействия, а притяжение на больших расстояниях от поверхности, обусловленное ван-дер-ваальсовским взаимодействием атома газа одновременно со многими поверхностными атомами, с хорошей точностью описывается стационарным потенциалом $V_{st}(\mathbf{r})$ [8,9]. В этих условиях при определении силы f_k можно считать, что для потенциала взаимодействия выполняется условие аддитивности $V_{int}(\mathbf{r}, \{\mathbf{r}_1\}) = \sum_1 v(|\mathbf{r} - \mathbf{r}_1|)$, где v в силу малого радиуса действия отталкивательного потенциала сумма берет ся по атомам верхнего слоя кристалла. Для поверхности металлов это предположение оправдывается тем, что на малых расстояниях от поверхности потенциальная энергия системы пропорциональна сумме электронных плотностей отдельных поверхностных атомов [8,19]. В случае рассеяния на поверхности ионного кристалла $v(|\mathbf{r}|)$ — отталкивательная часть парного потенциала взаимодействия атом газа-атом кристалла [8,9].

Используя свойство аддитивности потенциала взаимодействия, выражение для силы (1) можно представить в блоховской форме

$$f_k = e^{-i\mathbf{Q}\mathbf{R}} \sum_{\mathbf{G}} e^{-i\mathbf{G}\mathbf{R}} f_{k\mathbf{G}}, \quad (2)$$

$$f_{k\mathbf{G}} = (2\omega_k M N)^{-1/2} \mathbf{e}_k \cdot \left(\frac{\partial}{\partial z}, -i(\mathbf{G} + \mathbf{Q}) \right) v_{\mathbf{G}+\mathbf{Q}}^*(z), \quad (3)$$

где

$$v_{\mathbf{Q}}(z) = \int \frac{d\mathbf{R}}{\sigma} \exp(-i\mathbf{Q}\mathbf{R}) v(z, \mathbf{R}) \quad (4)$$

— фурье-образ парного потенциала взаимодействия, \mathbf{Q} — тангенциальная компонента волнового вектора фонона, $\mathbf{G} = (G_{0x}n, G_{0y}m)$ — вектор обратной поверхностной решетки, σ — площадь элементарной ячейки кристалла.

Интегрирование по \mathbf{R} в (4) распространено на всю бесконечную плоскость в силу малости граничных эффектов. Блоховская экспонента в формуле (2) позволяет правильно учесть закон сохранения полного тангенциального импульса системы при выводе выражения для вероятности рассеяния.

Полное описание процессов взаимодействия атома газа с поверхностью кристалла можно получить исходя из выражения для вероятности рассеяния атома газа из состояния с начальным импульсом \mathbf{p}_i в состояние с импульсом \mathbf{p}_f . Предположим, что макроскопическое состояние поверхности характеризуется температурой T_s . Тогда такое выражение должно содержать усреднение по фоновым состояниям кристалла [9]

$$P(\mathbf{p}_f, \mathbf{p}_i) = \frac{2\pi}{S j_z} \sum_{\{n_{kf}\}} \sum_{\{n_{ki}\}} \rho(\{n_{ki}\}) \delta(\Delta E) |T_{fi}|^2, \quad (5)$$

где S — площадь поверхности кристалла, j_z — нормальный поток частиц на поверхность, $\rho(\{n_{ki}\})$ — плотность распределения начальных фоновых состояний кристалла, ΔE — изменение полной энергии системы в процессе взаимодействия.

Континуальное представление для амплитуды рассеяния T_{fi} , являющееся исходным для дальнейшего рассмотрения, получено в [16] и может быть записано в виде суммы неупругих дифракционных амплитуд

$$T_{fi} = \sum_{\mathbf{G}} \delta(\Delta\mathbf{P} - \mathbf{G}) T_{\mathbf{G}}^{in}, \quad (6)$$

$$T_{\mathbf{G}}^{in} = 4\pi^2 i \int \frac{d\mathbf{R}_0}{\sigma} \int D\mathbf{r}(t) D\mathbf{p}(t) \delta(p_z(0)) \dot{p}_z(0) \prod_k G_{fi}^k e^{iS[\mathbf{r}, \mathbf{p}]}. \quad (7)$$

Здесь через $\Delta\mathbf{P}$ обозначено изменение полного (с учетом квазиимпульса фононов) тангенциального импульса системы,

$$S[\mathbf{r}, \mathbf{p}] = - \int_{\mathbf{p}_i}^{\mathbf{p}_f} \left(\mathbf{r} - \frac{\mathbf{p}}{m_p} t \right) d\mathbf{p} - \int_{-\infty}^{+\infty} V_{st}(\mathbf{r}) dt$$

— функционал действия атома газа,

$$G_{fi}^k = \frac{G_{00}^k}{\sqrt{n_{kf}! n_{ki}!}} \sum_{r=0}^{\min(n_{kf}, n_{ki})} \binom{n_{kf}}{r} \binom{n_{ki}}{r} r! (i\beta_k^*)^{n_{kf}-r} (i\beta_k)^{n_{ki}-r}, \quad (8)$$

где

$$G_{00}^k = \exp \left[-\frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} ds dt f_k^*(s) f_k(t) e^{-i\omega_k |t-s|} \right] \quad (9)$$

и

$$\beta_k = \int_{-\infty}^{+\infty} f_k^* e^{-i\omega_k t} dt \quad (10)$$

— фурье-образ силы, действующей на нормальную моду кристалла со стороны атома газа.

Выражения (8)–(10) определяют амплитуду перехода осциллятора, соответствующего нормальной моде k , из состояния, характеризуемого числом заполнения n_{ki} , в состояние с n_{kf} под действием возмущающей силы f_k . Символ $\int D\mathbf{r}(t) D\mathbf{p}(t)$ в (7) означает интеграл по тем траекториям газовой частицы с начальным импульсом \mathbf{p}_i и конечным \mathbf{p}_f , для которых точка поворота определяется тангенциальной координатой \mathbf{R}_0 и принадлежит выделенной элементарной ячейке кристалла. Дополнительные условия в точке поворота связаны с учетом симметрий задачи относительно произвольных временных сдвигов и трансляций на вектор решетки и появляются в результате интегрирования в явном виде по этим симметриям, что приводит к выделению δ -функций сохранения энергии и импульса в выражении для матрицы рассеяния [13,16].

Усреднение по фоновым состояниям кристалла с учетом выражения для амплитуды (8), (9) удается провести в явном виде. Такой подход может быть использован для изучения многофононных процессов при рассеянии атома газа поверхностью кристалла. Если ограничиться рассмотрением однофононных процессов, то проще проделать все необходимые преобразования в выражении для амплитуды рассеяния.

Так как граничные условия в точке поворота снимают вырождение классической вариационной задачи на бесконечных временах, то к квазиклассическому пределу в (7) можно перейти на основе континуального аналога метода стационарной фазы [13]. Будем предполагать, что классическая траектория атома газа определяется варьированием действия отдельно на каждой из ветвей траектории (до и после точки поворота), а фоновые амплитуды можно рассматривать как предэкспоненты (в смысле метода стационарной фазы). Тогда влияние неупругих процессов на классическую траекторию атома газа будет учитываться только через граничные условия, а классическая траектория атома газа определится вариационной задачей $\delta S = 0$ с граничными условиями $\mathbf{p}(t) \xrightarrow{t \rightarrow \pm\infty} \mathbf{p}_{f,i}$, $\mathbf{R}(0) = \mathbf{R}_0$, $p_z(0) = 0$.

Дополнительные граничные условия в точке поворота позволяют эффективно использовать теорию возмущений по степени шероховатости поверхности для решения траекторной задачи. В нулевом порядке на каждой из ветвей траектории тангенциальное движение можно рассматривать как свободное $\mathbf{R}(t) = \mathbf{R}_0 + t \mathbf{P}_{f,i}/m_p$ [13].

Переходя к квазиклассическому пределу в (7) и учитывая сделанные предположения, получим для неупругих дифракционных амплитуд следующее выражение (с точностью до несущественного фазового множителя):

$$T_{\mathbf{G}}^{in} = \frac{\sqrt{|p_{iz}|p_{fz}}}{2\pi m_p} \int_{\sigma} \frac{d\mathbf{R}_0}{\sigma} \prod_k G_{fi}^k e^{iS_{\Delta\mathbf{P}}(\mathbf{R}_0)}, \quad (11)$$

где $S_{\Delta\mathbf{P}}(\mathbf{R}_0) = -(\mathbf{P}_f - \mathbf{P}_i)\mathbf{R}_0 - \int V_{st}(\mathbf{r}(t)) dt$ — классическое действие атома газа.

Для учета в явном виде трансляционной симметрии фононных амплитуд, преобразуем, используя (2), выражение для фурье-образа силы β_k к блоховскому виду

$$\beta_k = e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}_0} \sum_{\mathbf{G}} e^{i\mathbf{G}\mathbf{R}_0} \beta_{k\mathbf{G}}, \quad (12)$$

$$\beta_{k\mathbf{G}} = \int_{-\infty}^{\infty} f_{k\mathbf{G}}^* e^{-i\omega_{k\mathbf{G}} t} dt, \quad (13)$$

где $\omega_{k\mathbf{G}} = \omega_k - (\mathbf{Q} + \mathbf{G})\mathbf{P}/m_p$ — эффективная частота фонона (модификация частоты обусловлена эффектом Допплера).

Учитывая, что

$$G_{fi}^k \left(e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}_0} \sum_{\mathbf{G}} e^{i\mathbf{G}\mathbf{R}_0} \beta_{k\mathbf{G}} \right) = e^{-i\mathbf{Q}\mathbf{R}_0(n_{kf} - n_{ki})} G_{fi}^k \left(\sum_{\mathbf{G}} e^{i\mathbf{G}\mathbf{R}_0} \beta_{k\mathbf{G}} \right),$$

и принимая во внимание закон сохранения энергии и полного тангенциального импульса системы, получим, что дифракционные амплитуды $T_{\mathbf{G}}^{in}$ определяются формулой (11), где $S_{\Delta\mathbf{P}}$ следует заменить на $S_{\mathbf{G}}$, и β_k в выражении для $G_{f_i}^k$ определяется формулой (12), но без множителя $e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}}$. Эти дифракционные амплитуды отличаются от упругих амплитуд, полученных в [13], наличием множителя $G_{f_i}^k$, описывающего изменение фоновых состояний кристалла в процессе рассеяния.

В рамках теории возмущений по параметру взаимодействия будем считать отличными от нуля фоновые амплитуды, соответствующие не более чем одноквантовым переходам, для которых, согласно (8), имеем (с точностью до членов порядка $|\beta_k|^3$)

$$G_{nn}^k \approx G_{00}^k(1 - |\beta_k|^2 n), \quad G_{n+1,n}^k \approx i\beta_k^* \sqrt{n+1}, \quad G_{n-1,n}^k \approx i\beta_k \sqrt{n}. \quad (14)$$

Подставляя (11) в (5) и учитывая (14), после усреднения по состояниям поверхности получим следующее выражение для вероятности неупругого дифракционного рассеяния в однофононном приближении:

$$P(\mathbf{p}_f, \mathbf{p}_i) = \frac{p_{fz}}{m_p} \sum_{\mathbf{G}} \left\{ \delta(\Delta E) \delta(\Delta\mathbf{P} - \mathbf{G}) |T_{\mathbf{G}}^{el}|^2 + \right. \\ \left. + \sum_k \left[\delta(\Delta E + \omega_k) \delta(\Delta\mathbf{P} + \mathbf{Q} - \mathbf{G}) (n(\omega_k) + 1) |T_{\mathbf{G}k}^c|^2 + \right. \right. \\ \left. \left. + \delta(\Delta E - \omega_k) \delta(\Delta\mathbf{P} - \mathbf{Q} - \mathbf{G}) n(\omega_k) |T_{\mathbf{G}k}^a|^2 \right] \right\}. \quad (15)$$

Здесь через ΔE и $\Delta\mathbf{P}$ обозначены изменения энергии и тангенциального импульса атома газа, $n(\omega_k)$ — средние числа заполнения фоновых состояний кристалла. Первое слагаемое соответствует упругому рассеянию с учетом дебай-валлеровского ослабления, второе и третье описывают неупругие процессы рождения и уничтожения одного фонона соответственно. В (15) использованы следующие обозначения для однофононных амплитуд:

$$T_{\mathbf{G}}^{el} = \int_{\sigma} \frac{d\mathbf{R}_0}{\sigma} e^{-2W + iS_{\mathbf{G}}(\mathbf{R}_0)}, \\ T_{\mathbf{G}k}^a = \int_{\sigma} \frac{d\mathbf{R}_0}{\sigma} \beta_k e^{iS_{\mathbf{G}}(\mathbf{R}_0)}, \quad T_{\mathbf{G}k}^c = \int_{\sigma} \frac{d\mathbf{R}_0}{\sigma} \beta_k^* e^{iS_{\mathbf{G}}(\mathbf{R}_0)},$$

где $e^{-2W} = \prod_k G_{00}^k (1 - \sum_k |\beta_k|^2 n(\omega_k))$ — фактор Дебая-Валлера.

Учитывая разложение (12), выражения для однофононных амплитуд можно записать в следующем виде:

$$T_{\mathbf{G}k}^a = \sum_{\mathbf{G}'} \beta_{k\mathbf{G}'} T_{\mathbf{G}-\mathbf{G}'}, \quad T_{\mathbf{G}k}^c = \sum_{\mathbf{G}'} \beta_{k\mathbf{G}'}^* T_{\mathbf{G}+\mathbf{G}'},$$

где

$$T_{\mathbf{G}} = \int_{\sigma} \frac{d\mathbf{R}_0}{\sigma} e^{iS_{\mathbf{G}}(\mathbf{R}_0)} \quad (16)$$

— амплитуда упругого дифракционного рассеяния [13].

Таким образом, в рассматриваемом приближении неупругие амплитуды удается представить в виде суммы упругих амплитуд, для которых известны различные аналитические аппроксимации [13], что позволяет получить простые представления для вероятности неупругого (однофононного) рассеяния.

В практически важном случае, когда в разложении стационарного потенциала взаимодействия в ряд Фурье $V_{st}(\mathbf{r}) = V_0(z) + \sum_{\mathbf{G} \neq 0} V_{\mathbf{G}}(z) e^{i\mathbf{G}\mathbf{R}}$ можно ограничиться членами, соответствующими наименьшим векторам обратной решетки, интеграл по \mathbf{R}_0 в (16) выражается через функции Бесселя [13]. В этом приближении для неупругой дифракционной амплитуды, соответствующей, например, рассеянию с рождением фонона, имеем (с точностью до фазового множителя)

$$T_{\mathbf{G}\mathbf{k}}^c = \sum_{\mathbf{G}'} \beta_{\mathbf{k}\mathbf{G}'}^* \exp \{in'\varphi_x + im'\varphi_y\} J_{n+n'}(2|c_x|) J_{m+m'}(2|c_y|), \quad (17)$$

где целые числа m' , n' и m , n определяют вектора обратной решетки \mathbf{G}' и \mathbf{G} соответственно; $c_x = \int V_{G_{0x}} \exp(iG_{0x}P_x t/m_p) dt$, $\varphi_x = \text{Im } c_x / |c_x| + (\pi/2)$; c_y , φ_y определяются аналогичным образом.

В рамках рассмотренной выше модели взаимодействия можно считать, что дифрагирующие потенциалы $V_{\mathbf{G}}$ совпадают с фурье-образами короткодействующей части "парного" потенциала $v_{\mathbf{G}}(z)$.

Для описания рассеяния в конкретных условиях в (17) достаточно учесть первые неисчезающие члены. При этом необходимо иметь в виду, что фоновые амплитуды $\beta_{\mathbf{k}\mathbf{G}'}$ достаточно быстро убывают с ростом \mathbf{G}' . Кроме того, в большинстве практически важных случаев $|c_{x,y}| < 1$, что позволяет ограничиться рассмотрением слагаемых с $n + n' = 0, \pm 1$; $m + m' = 0, \pm 1$.

Применим полученные результаты для описания рассеяния атомов гелия поверхностью металла. В данном случае в широком диапазоне энергий (5–40 мэВ [20]) хорошим приближением для потенциала взаимодействия является следующая аналитическая модель [8,20]

$$V_{int}(\mathbf{r}, \{\mathbf{r}_1\}) = U_0 \sum_{\mathbf{R}_1} \exp \left(-\beta z - \frac{Q_c^2 |\mathbf{R} - \mathbf{R}_1|^2}{2} \right) - \frac{C_3 f_3(k_c(z - z_0))}{(z - z_0)^3}, \quad (18)$$

где функция $f_3(x) = 1 - [2x(1+x) + 1]e^{-2x}$ используется для устранения расходимости в последнем члене при $z = z_0$.

Параметры потенциала (18) можно определить путем сопоставления с результатами расчетов в рамках модели эффективной среды и экспериментальными данными по селективной адсорбции [8].

Для фоновых амплитуд, согласно (3), (13), имеем:

$$\beta_{\mathbf{k}\mathbf{G}} = \frac{1}{\sqrt{2\omega_k MN}} \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{e}_k \cdot \left(i(\mathbf{G} + \mathbf{Q}), \frac{\partial}{\partial z} \right) v_{\mathbf{G}+\mathbf{Q}} e^{-i\omega_k \mathbf{G} t} dt.$$

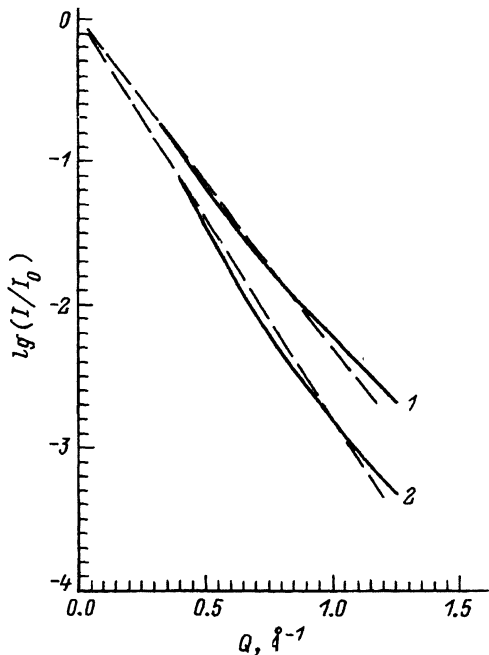


Рис. 1. Логарифм относительной рэлеевской интенсивности как функция волнового вектора фонона в случае уничтожения (1) и рождения (2) одного фонона при рассеянии гелия поверхностью на Ag(111).

Энергия атомов гелия в начальном пучке $E_i = 17.5$ эВ. Угол между источником и детектором 90° . Сплошная линия — квазиклассическое приближение, штриховая — борновское приближение [8].

В рамках модели взаимодействия (18) легко получить выражение для фурье-образа короткодействующей (отталкивательной) части потенциала, определяющей динамические эффекты при рассеянии [8,20]

$$v_{G+Q}(z) = \frac{2\pi U_0}{Q_c^2 \sigma} \exp \left[-\beta z - \frac{(G+Q)^2}{2Q_c^2} \right]. \quad (19)$$

Как видно из (18), гауссов фактор в последнем выражении появляется в результате учета взаимодействия атома газа более чем с одним поверхностным атомом (эффект Арманда [8]). Как и в случае квантово-механических расчетов, наличие обрезывающего множителя приводит к значительному уменьшению однофононных интенсивностей при больших изменениях тангенциального импульса. Для иллюстрации на рис. 1 представлены результаты расчетов интенсивности однофононного рассеяния, обусловленного уничтожением (кривые 1) и рождением (кривые 2) рэлеевского фонона, для рассеяния гелия поверхностью Ag(111) вдоль направления $[12\bar{2}]$ в окрестности зеркального пика. Эта поверхность характеризуется слабой шероховатостью, поэтому дифракционными процессами в данном случае можно пренебречь. В этом приближении стационарный потенциал зависит только от нормальной координаты и, согласно (18), имеет следующий вид: $V_0(z) = U_0 e^{-\beta z} - C_3 f_3(k_c(z - z_0))/(z - z_0)^3$. В расчетах использовались значения параметров потенциала из работы [21] $U_0 = 296$ эВ, $C_3 = 0.44$ эВ Å^3 , $z_0 = 1.38$ Å , $k_c = 1.1$ Å^{-1} , $\beta = 2.14$ Å^{-1} , $Q_c = 0.73$ Å^{-1} . Закон дисперсии для рэлеевской моды задавался в виде [22] $\omega = \omega_{\max} \sin(q\pi/2q_{\max})$, где, согласно результатам численных расчетов фононного спектра и экспериментальным данным по рассеянию He

поверхности Ag(111) вдоль направления [112], $\omega_{\max} = 8 \text{ мэВ}$ [8]. Для сравнения на рис. 1 также приведены результаты расчетов интенсивности в рамках борновского приближения [8], воспроизводящие экспериментальные данные по неупругому рассеянию. Полученное согласие между борновским приближением (экспериментальными данными) и обобщенным эйкональным приближением объясняется прежде всего тем, что в обоих случаях используется квантово-механическое описание поверхности, что играет решающую роль при описании одноквантовых процессов [23].

В дифракционном режиме рассеяния информация об интенсивности упругих пиков может быть использована для определения параметров потенциала. В рамках модели взаимодействия (18) с учетом выражения для фурье-образа (19) дифрагирующие потенциалы можно записать в виде $V_{G_{0x}}(z) = b_{G_{0x}} U_0 e^{-\beta z}$, где

$$b_{G_{0x}} = \frac{2\pi}{Q_c^2 \sigma} e^{-G_{0x}^2 / 2Q_c^2}$$

— “дифракционные напряженности”, которые необходимо подобрать таким образом, чтобы правильно воспроизвести экспериментальные значения интенсивности упругих дифракционных пиков. Тем самым определяются параметр Q_c и значение обрезающего фактора в выражении для однофононных амплитуд. Как показано ниже, такое согласование существенно для корректного описания процессов неупругого рассеяния вблизи границы поверхностной зоны Бриллюэна.

Рассмотрим рассеяние атомов гелия поверхностью Cu(110) вдоль направления [001]. Для данной системы можно использовать потенциал Морзе в качестве усредненного стационарного потенциала [24] $V_0(z) = D(e^{-2\alpha z} - 2e^{-\alpha z})$ с параметрами $D = 6.35 \text{ мэВ}$, $\alpha = 1.05 \text{ \AA}^{-1}$.

Расчеты вероятностей однофононного дифракционного рассеяния проводились в два этапа. Прежде всего, в рамках бесселевой аппроксимации для упругих дифракционных амплитуд [13] определялись зна-

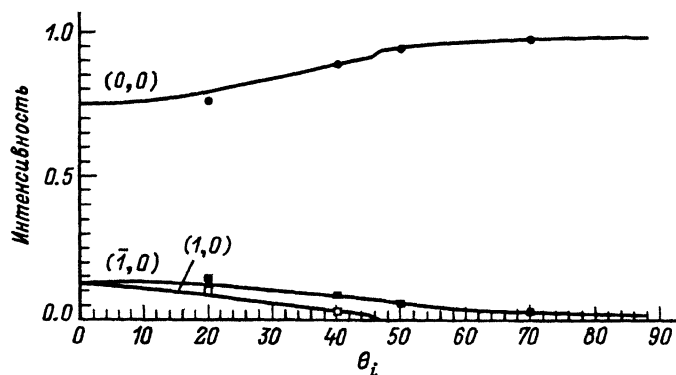


Рис. 2. Зависимость дифракционных интенсивностей от угла падения для рассеяния гелия поверхностью Cu(110).

Суммарная интенсивность нормирована на единицу. Энергия атомов гелия в начальном пучке $E_i = 21 \text{ мэВ}$. Сплошные линии — результаты расчетов в рамках бесселевой аппроксимации, ●, ■, □ — экспериментальные данные [5]; цифры в скобках — дифракционные направления.

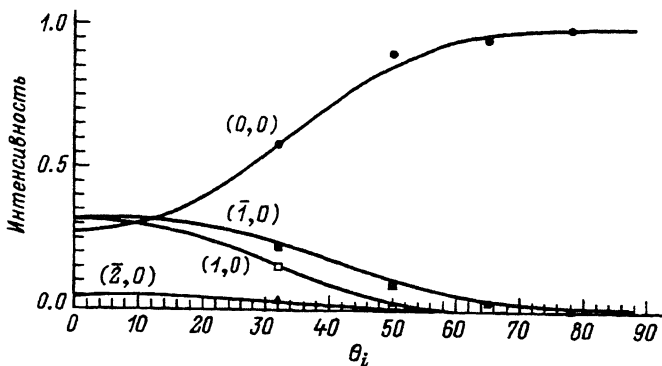


Рис. 3. То же, что и на рис. 2, для начальной энергии $E_i = 63$ МэВ. Сплошные линии — результаты расчетов, \bullet , \blacksquare , \square , \blacktriangle — экспериментальные данные [5].

чения коэффициентов b_G . Наилучшее согласие с экспериментальными данными и расчетами в рамках метода сильной связи [5] получено для значений $b_G = 0.045$ ($Q_c \approx 0.651 \text{ \AA}^{-1}$) и $b_G = 0.03$ ($Q_c \approx 0.606 \text{ \AA}^{-1}$) для энергий в начальном пучке $E_i = 63$ и 21 МэВ соответственно. Результаты расчетов и экспериментальные данные [5] приведены на рис. 2 и 3. Так как для $E_i = 63$ МэВ условия применимости однофононного приближения нарушаются, далее рассматривается случай $E_i = 21$ МэВ.

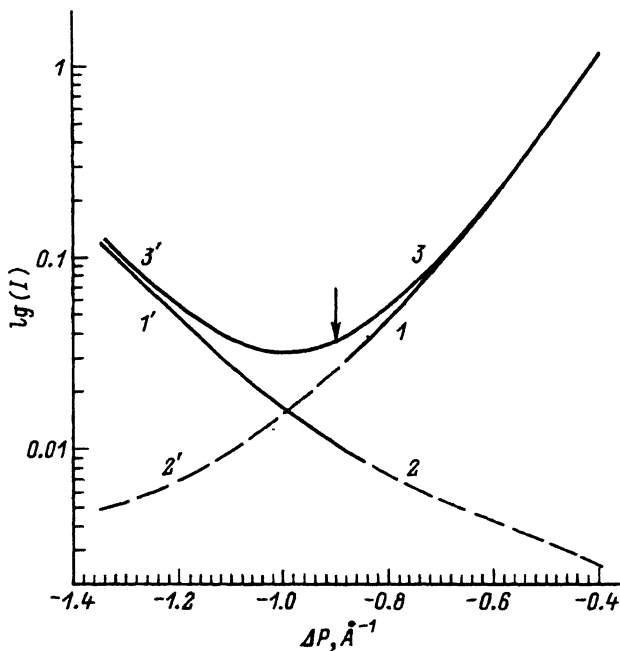


Рис. 4. Зависимость логарифма интенсивности неупругого рассеяния гелия поверхностью Cu(110).

Начальная энергия атомов He $E_i = 21$ мэВ. Угол между источником и детектором 90° . Стрелкой указана граница поверхностной зоны Бриллюэна.

Из-за отсутствия детальной информации о поверхностном фононном спектре вдоль направления рассеяния расчеты проводились с той же синусоидальной дисперсионной кривой с $\omega_{\max} = 12$ МэВ (варьирование этого параметра приводит лишь к перенормировке интенсивности рассеяния). На рис. 4 приведены результаты расчетов неупругой дифракционной интенсивности как функции изменения тангенциального импульса атома газа для рассеяния с рождением фонона. Значениям ΔP из поверхностной зоны Бриллюэна ($|\Delta P| < Q_{\max} \approx 0.87 \text{ \AA}^{-1}$) на рис. 4 соответствует рассеяние в окрестности зеркального пика, остальным значениям — дифракционное рассеяние в окрестности пика $(-1, 0)$. Обычно для описания неупругого рассеяния в дифракционном режиме используется предположение о независимости различных каналов рассеяния, что позволяет получить выражение для вероятности в виде произведения упругого и неупругого профилей [9]. В рамках рассматриваемого подхода такое приближение соответствует учету единственного члена с $\mathbf{G}' = 0$ в выражении для амплитуды (17). Как видно из рис. 4, в этом случае интенсивность терпит разрыв при пересечении границы ПЗБ (кривые 1 и 1' на рис. 4). Это объясняется нарушением рассматриваемого приближения вблизи границы зоны Бриллюэна. Действительно, из-за наличия обрезывающего фактора при $|\Delta P| \approx Q_{\max}$ в выражении для амплитуды рассеяния необходимо учитывать слагаемое с $\mathbf{G}' = -\mathbf{G}_0$ в случае рассеяния в окрестности пика $(-1, 0)$ и с $\mathbf{G}' = \mathbf{G}_0$ для рассеяния в окрестности зеркального пика (кривые 2 и 2' на рис. 4). Учет соответствующих членов в выражении для амплитуды приводит, во-первых, к устранению разрыва на границе зоны Бриллюэна и, во-вторых, проявляется в немонотонном поведении неупругой дифракционной интенсивности (кривые 3 и 3' на рис. 4).

Таким образом, в рамках рассматриваемого подхода удается описать однофононное рассеяние атома газа поверхностью кристалла с учетом процессов дифракции.

Список литературы

- [1] Вудраф Д., Делчар Т. Современные методы исследования поверхности. М.: Мир, 1989. 564 с.
- [2] Toennies J.P., Vollmer R. // Phys. Rev. B. 1989. Vol. 40. N 5. P. 3495–3498.
- [3] Tatarek R., Bracco G., Tommasini F. et al. // Surf. Sci. 1989. Vol. 211/212. P. 314–322.
- [4] Liu G.Y., Rowntree P., Scoles G., Xu J. // Surf. Sci. 1989. Vol. 224. P. 43–59.
- [5] Annett J.F. // Phys. Rev. B. 1987. Vol. 35. N 12. P. 7826–7834.
- [6] Frenken J.W.M., Hinch B.J., Toennies J.P. // Surf. Sci. 1989. Vol. 211/212. P. 21–30.
- [7] Ernst H.J., Hulpke E. // J. Vac. Sci. Technol. 1987. Vol. A5(4). P. 460–461.
- [8] Bortolani V., Levi A.C. // Riv. Nuovo Cim. 1986. Vol. 9. N 11. P. 1–77.
- [9] Гудман Ф., Вахман Г. Динамика рассеяния газа поверхностью. М.: Мир, 1980. 424 с.
- [10] Gerber R.B. // Chem. Rev. 1987. Vol. 87. P. 29–79.
- [11] News D.M. // Surf. Sci. 1985. Vol. 154. P. 658–694.
- [12] Nourtier A. // J. Physique. 1985. Vol. 46. P. 55–76.
- [13] Богданов А.В. // Квазиклассические представления в задаче взаимодействия газов с поверхностями. Дополнение к книге Гудман Ф., Вахман Г. Динамика рассеяния газа поверхностью. М.: Мир, 1980. С. 375–405.
- [14] Богданов А.В., Горбачев Ю.Е. Препринт ФТИ им. А.Ф. Иоффе АН СССР. № 713. Л., 1981. 29 с.
- [15] Дубровский Г.В., Богданов А.В., Горбачев Ю.В., Головнев И.В. Квазиклассическая теория столкновений в газах. Новосибирск: Наука, 1989. 202 с.

- [16] Блинов Н.В., Горбачев Ю.Е., Кульгинов Д.В. Препринт ФТИ им. А.Ф. Иоффе АН СССР. № 1404. Л., 1989. 41 с.
- [17] Блинов Н.В., Кульгинов Д.В. // Поверхность. 1991. № 11. С. 5–9.
- [18] Блинов Н.В., Кульгинов Д.В., Юрков А.С. // Тр. X Всесоюз. конф. по динамике разреженных газов. М., 1991. М., 1991. Т. 3. С. 14–19.
- [19] Bortolani V., Franchini A., Garcia N. et al. // Phys. Rev. B. 1983. Vol. 28. P. 7358–7361.
- [20] Bortolani V., Celli V., Franchini A. et al. // Surf. Sci. 1989. Vol. 208. P. 1–12.
- [21] Idioli J., Bortolani V., Franchini A., Santoro G. // Phys. Rev. B. 1987. Vol. 35. N 12. P. 6029–6033.
- [22] Eichenauer D., Harten U., Toennies J.P., Celli V. // J. Chem. Phys. 1987. Vol. 86. P. 3693–3710.
- [23] Andersson S., Wilzén L., Persson M., Harris J. // Phys. Rev. B. 1989. Vol. 40. N 12. P. 8146–8168.
- [24] Armand G., Manson G.R., Jayanthi C.S. // Phys. Rev. B. 1986. Vol. 34. N 10. P. 6627–6639.
-