

02;11;12

©1994

ЭЛЕКТРОННЫЕ КОРРЕЛЯЦИИ ПРИ ОБРАЗОВАНИИ ВТОРИЧНЫХ ИОНОВ

А.Б.Попов, Б.Н.Макаренко, А.П.Шергин

Выяснение закономерностей формирования зарядовых состояний частиц, распыляемых при ионном облучении поверхности, является одной из существенных задач эмиссионной электроники. Теоретическое описание зарядового обмена между частицей и поверхностью базируется на нестационарном гамильтониане Ньюнса-Андерсона [1] и трактует электронный обмен как резонансный туннельный переход между уровнем отлетающей частицы и зоной проводимости металла. Модель электронного туннелирования [1] пренебрегает спиновыми эффектами и внутриатомным кулоновским взаимодействием. Такое приближение справедливо при условии, что только один атомный уровень участвует в обмене (например, нейтрализация положительного иона или образование отрицательного иона по отдельности, но не обоих одновременно). Роль межэлектронного взаимодействия в настоящее время интенсивно изучается теоретически (см., например, [2-7]). Недавние эксперименты по рассеянию частиц от поверхности [8] показали, что корреляционные эффекты могут качественным образом повлиять на вероятность электронного обмена между частицей и поверхностью.

Задачей настоящей работы являлось экспериментальное наблюдение электронных корреляций при формировании зарядовых состояний распыленных частиц. В качестве объектов исследования выбраны Ag и Pt — металлы с положительной энергией сродства к электрону A , поскольку наиболее отчетливо изучаемые эффекты могут проявиться в тех случаях, когда возможно образование ионов обоих знаков. При анализе экспериментальных данных в рассмотрение включены результаты наших предыдущих исследований для Cu и Au [9,10]. Использована методика [11]. Измерены энергетические спектры и выходы распыленных ионов и атомов. Перед анализом нейтральные частицы ионизуются электронным ударом. Угол падения первичных ионов Ag^+ с энергией 5.5 кэВ — 50° , угол вылета анализируемых частиц — 90° по отношению к поверхности.

На рис. 1 показаны степени ионизации P^+ и P^- в зависимости от нормальной составляющей скорости v_\perp распылен-

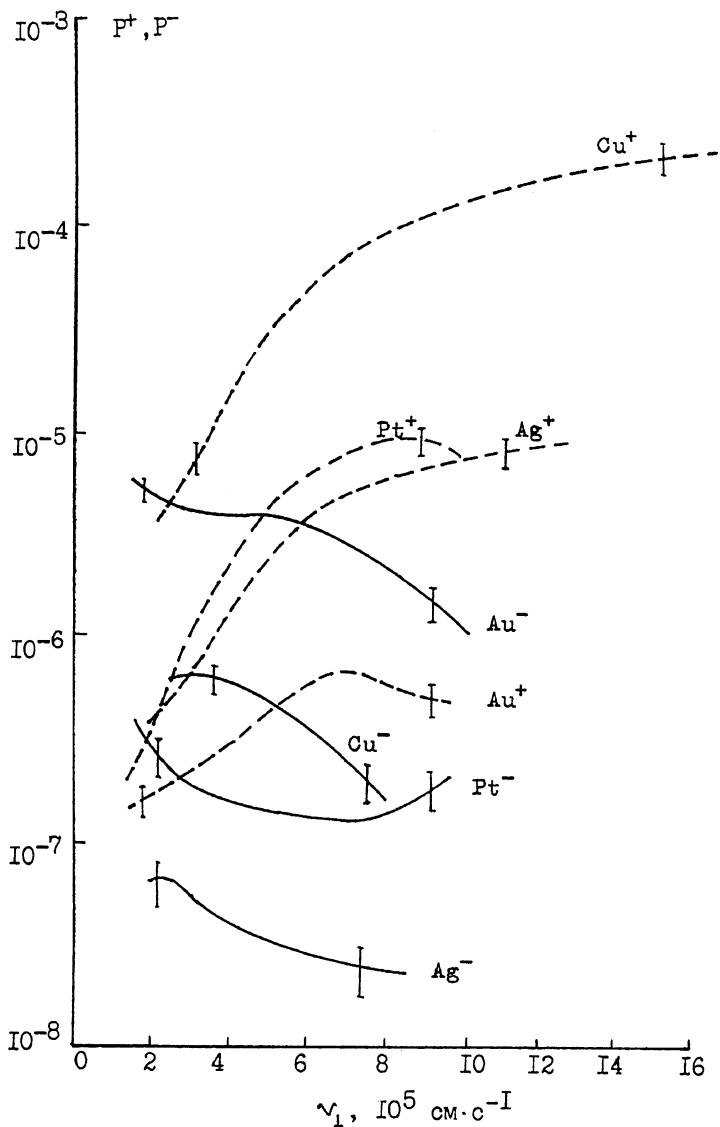


Рис. 1. Степени ионизции P^+ и P^- (доли соответственно положительных и отрицательных ионов в общем потоке распыленных атомов) в зависимости от нормальной составляющей скорости вторичных частиц.

ных частиц, полученные из сопоставления энергетических спектров положительных и отрицательных ионов со спектрами нейтральных атомов. Как видно из рисунка, $P^-(v_{\perp})$ для Cu, Ag, Au в целом являются убывающими функциями

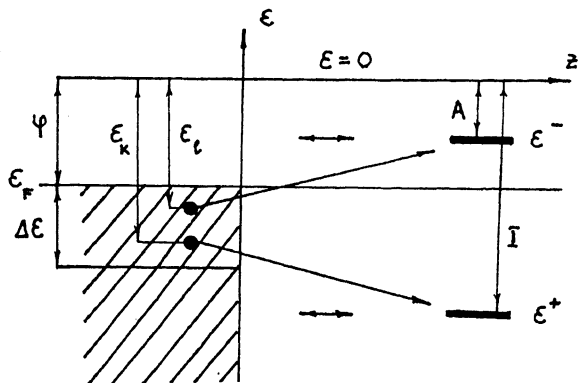


Рис. 2. Схема переходов типа Оже и резонансных переходов в системе "распыленная частица-поверхность".

скорости. Зависимость $P^-(v_{\perp})$ для Pt имеет минимум. Такое поведение $P^-(v_{\perp})$ резко расходится с предсказаниями модели [1], согласно которой степени ионизации как для положительных P^+ , так и отрицательных P^- ионов должны расти с увеличением скорости:

$$P^{\pm} \sim \exp(-v_0^{\pm}/v_{\perp}), \quad P^- \sim \exp(-v_0^-/v_{\perp}), \quad (1)$$

где v_0^+ и v_0^- — характеристические скорости в системе "распыленный ион-поверхность". Как свидетельствуют данные настоящей работы и результаты предыдущих исследований [9-12], в отличие от случая отрицательных ионов, модель [1] неплохо описывает экспериментальную ситуацию с образованием положительных ионов.

Эффект межэлектронного взаимодействия предполагает корреляцию между процессами образования положительных и отрицательных ионов. Одно из проявлений корреляций — существенное по сравнению с одноуровневой моделью перераспределение вероятностей образования различных зарядовых фракций отлетающих частиц в случае одновременного заселения ионизационного уровня ϵ^+ и уровня сродства к электрону ϵ^- вторичной частицы в результате резонансных переходов. Этот эффект будет тем заметнее, чем ближе расположен уровень сродства к электрону к уровню Ферми [3,4,7]. Как следствие, согласно [3,4], $P^-(v_{\perp})$ может оказаться убывающей функцией скорости. Однако при распылении чистых металлических мишеней разность $\Phi - A$ (Φ — работа выхода) как правило велика и механизм резонансных переходов не может объяснить наблюдаемый нами убывающий характер зависимости $P^-(v_{\perp})$.

Электронные корреляции могут проявиться также при образовании отрицательных ионов путем переходов типа Оже. Данный механизм, приводящий к убывающей зависимости $P^-(v_{\perp})$, был предложен недавно [5] при анализе рассеяния ионов H^+ на поверхности W : электрон из зоны проводимости заполняет вакантный ε^+ -уровень, высвободившаяся при этом энергия уносится вторым электроном зоны, который захватывается на ε^- -уровень (рис. 2). При этом $\varepsilon_k + \varepsilon_l = \varepsilon^+(z) + \varepsilon^-(z)$, где ε_k и ε_l — энергии электронов металла, участвующих в Оже-переходе; z — расстояние от поверхности. Очевидно, что число таких переходов в единицу времени растет с уменьшением скорости отлетающей частицы. Таким образом, наблюдаемое при распылении Cu , Ag , Au и Pt уменьшение P^- с ростом v является существенным аргументом в пользу Оже-механизма образования вторичных отрицательных ионов.

Дополнительное свидетельство в пользу данного механизма следует из анализа абсолютных величин вероятностей P^+ и P^- . Скорость протекания Оже-переходов принято характеризовать шириной Γ_A . Как следует из рис. 2, условие $\varepsilon_k + \varepsilon_l = \varepsilon^+(z) + \varepsilon^-(z)$ при $\varepsilon^+(z) = I$ (I — потенциал ионизации) и $\varepsilon^-(z) = A$ приводит к выражению $\Delta\varepsilon = I + A - 2\Phi$ для энергетического интервала $\Delta\varepsilon$ зоны проводимости металла, из которого возможны переходы типа Оже. Чем шире интервал $\Delta\varepsilon$, тем большее число электронов металла может участвовать в переходах и, как следствие, тем больше величины Γ_A . Ширины Γ_A при одновременном протекании резонансных и Оже-переходов для частицы, движущейся со скоростью $v_{\perp} = z/t$, могут быть оценены в квазиклассическом приближении из системы уравнений для вероятностей n^+ и n^- нахождения электрона на уровнях ε^+ и ε^- соответственно:

$$dn^+/dt = (1 - n^+) (1 - n^-) \Gamma_A + (1 - n^+) \Gamma^+, \quad (2)$$

$$dn^-/dt = (1 - n^+) (1 - n^-) \Gamma_A - n^- \Gamma^-, \quad (3)$$

где $\Gamma_A = \Delta_A \exp(-\gamma_A z)$, $\Gamma^{\pm} = \Delta^{\pm} \exp(-\gamma^{\pm} z)$ — ширины уровней, относящиеся к Оже- и одноэлектронным переходам соответственно, а γ — обратная величина характерной длины соответствующего взаимодействия. Наиболее просто система решается при условиях $n^+(0) = n^-(0) = 0$, $\gamma_A = \gamma^{\pm} = \gamma$, которые представляются реальными. Кроме того, поскольку при распылении металлических мишеней выходы отрицательных ионов малы, множитель $(1 - n^-)$ можно положить равным единице. В этом случае для n^+ и

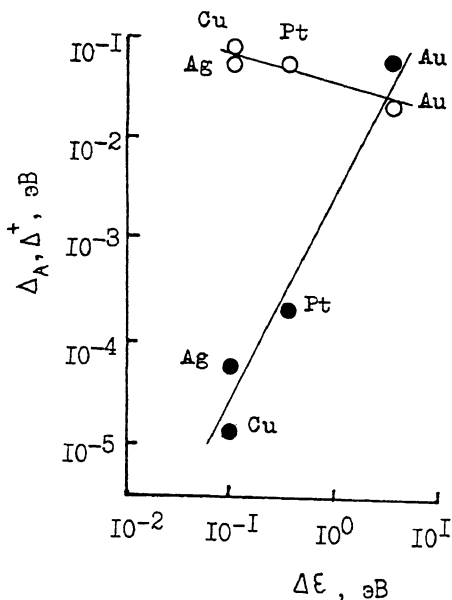


Рис. 3. Зависимость ширины Δ_A (1) и Δ^+ (2) от энергетического интервала $\Delta\epsilon$.

n^- имеем:

$$n^+(\infty) = 1 - \exp\left(-\frac{\Delta^+ + \Delta_A}{h\gamma v_\perp}\right), \quad (4)$$

$$n^-(\infty) = \frac{\Delta_A}{\Delta^+ + \Delta_A - \Delta^-} \exp\left(-\frac{\Delta^+ + \Delta_A}{h\gamma v_\perp}\right) \times \left[\exp\left(\frac{\Delta^+ + \Delta_A - \Delta^-}{h\gamma v_\perp}\right) - 1 \right]. \quad (5)$$

Поскольку $1 - n^+(\infty)$ и $n^-(\infty) \ll 1$, то $P^+ \approx 1 - n^+(\infty)$ и $P^- \approx n^-(\infty)$. В результате для $P^+(v_\perp)$ мы приходим к выражению, аналогичному выражению (1), в то время как $P^-(v_\perp)$ оказывается более сложной функцией. Из (4) и (5) следует, что величины Δ_A могут быть получены из условия наилучшего согласия экспериментальных и расчетных отношений $P^-(v_\perp)/P^+(v_\perp)$. Найденные таким образом ширины Δ_A показаны на рис. 3 в зависимости от $\Delta\epsilon$. Как мы и предполагали, для всех изученных элементов существует отчетливая корреляция между величинами Δ_A и $\Delta\epsilon$.

Поскольку Оже-процесс по своей природе двухэлектронный, его вероятность должна быть меньше вероятности одноэлектронных переходов на ϵ^+ -уровень при выполнении

условия резонанса (когда уровень частицы ε^+ расположен напротив заполненной зоны проводимости).

На рис. 3 показаны ширины $\Delta^+ = v_0^+ h \gamma$, ответственные за образование вторичных положительных ионов. Параметр v_0^+ экспериментально определяется из наклона зависимости $\ln P^+(v_{\perp}^{-1})$ [10-12]. При расчете Δ^+ использовалось усредненное значение $\gamma = 1 \text{ \AA}^{-1}$ [13]. Как и следовало ожидать, $\Delta_A \ll \Delta^+$ для всех металлов (за исключением Au, для которого Δ_A оказалось сравнимым с Δ^+), а Δ^+ практически не зависят от $\Delta\varepsilon$, что указывает на доминирующий вклад резонансных переходов в процесс формирования вторичных положительных ионов и на отсутствие заметного влияния переходов типа Оже. В то же время небольшой спад Δ^+ с ростом $\Delta\varepsilon$, по-видимому, можно интерпретировать как следствие перераспределения вероятностей в пользу увеличения выхода отрицательных ионов.

Наличие минимума на зависимости $P^-(v_{\perp})$ для Pt, по-видимому, является следствием конкуренции переходов типа Оже и неадиабатических переходов, описываемых в рамках одноуровневой модели. При малых v доминируют переходы типа Оже. При больших v нарастает вклад квазирезонансных переходов, и степень ионизации P^- начинает расти с увеличением v .

Список литературы

- [1] Yu. M.L., Lang N.D. // Nucl. Instr. and Meth. 1986. V. B14. P. 403.
- [2] Kasai H., Okiji A. // Surf. Sci. 1987. V. 183. P. 147.
- [3] Sulston K.W., Amos A.T., Davison S.G. // Phys. Rev. 1988. V. B37. P. 9121.
- [4] Nakanishi H., Kasai H., Okiji A. // Surf. Sci. 1988. V. 197. P. 515.
- [5] Nakanishi H., Kasai H., Okiji A. // Surf. Sci. 1991. V. 242. P. 410.
- [6] Langreth D.C., Nordlander P. // Phys. Rev. 1991. V. B43. P. 2541.
- [7] Hellsing B., Zhdanov V.P. // Surf. Sci. 1992. V. 274. P. 411.
- [8] Behringer E.R., Andersson D.R., Goodstein D.M., Kasemo B., Cooper B.H., Marston J.B. // Nucl. Instr. and Meth. 1993. V. B78. P. 3.
- [9] Макаренко Б.Н., Попов А.Б., Шергин А.П. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1990. Т. 54. С. 1331.
- [10] Попов А.Б., Каблукоев С.Б., Макаренко Б.Н., Шергин А.П. // Изв. РАН. Сер. физ. 1992. Т. 56. В. 6. С. 110; Попов А.Б., Каблукоев С.Б., Makarenko B.N., Shergin A.P. // Vacuum. 1993. V. 44. P. 903.

- [11] Макаренко Б.Н., Попов А.Б., Шапоренко А.А., Шергин А.П. // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. С. 609; Makarenko B.N., Popov A.B., Shaporenko A.A., Shergin A.P. // Rad. Effects and Defects in Solids. 1990. V. 113. P. 263.
- [12] Wucher A., Oechsner H. // Surf. Sci. 1988. V. 199. P. 567.
- [13] Brako R., Newns D.M. // Rep. Progr. Phys. 1988. V. 52. P. 655.

Физико-технический институт
им. А.Ф.Иоффе
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию
7 февраля 1994 г.
