

УДК 539.14

© 1991

О ВЛИЯНИИ ПЛАЗМОНОВ НА ЗАРЯДОВОЕ СОСТОЯНИЕ АТОМОВ, РАССЕЯННЫХ ПОВЕРХНОСТЬЮ МЕТАЛЛА

С. Ю. Давыдов

В рамках гамильтониана Андерсона с включением поверхностных плазмонов исследована перезарядка атомных частиц, рассеянных (распыленных) металлической поверхностью. Плазменная подсистема рассматривалась как в адиабатическом, так и в обратном адиабатическом приближениях. В модели не зависящего от расстояния положения квазиуровня атома показано, что в области монотонной зависимости числа заполнения от скорости частицы $n_a(v)$ учет плазмонов приводит к увеличению вероятности перезарядки. Обнаружена область аномальной зависимости $n_a(v)$.

Современный подход к изучению электронных процессов, происходящих при рассеянии атомов или ионов поверхностью металла или при распылении последнего, основан на использовании гамильтониана Андерсона с зависящими от времени параметрами [1, 2]. При этом изменение зарядового состояния частицы связывается с туннелированием электронов сквозь потенциальный барьер, разделяющий атомный (или ионный) квазиуровень и зону проводимости металла (резонансная перезарядка). С увеличением расстояния между частицей и металлом барьер расширяется и квазиуровень сужается. При этом квазиуровень смещается, что связано главным образом с изменением потенциала изображения. Для учета такого смещения обычно прибегают к искусственным приемам [3]. Известно, однако, что потенциал изображения можно получить, если учесть взаимодействие заряженной частицы с поверхностными плазмонами [4, 5]. Поэтому представляет интерес исследовать влияние плазмонных эффектов на процессы ионной нейтрализации. Автору известна лишь одна публикация по данной проблеме, где рассмотрен захват электрона ионом, рассеянным металлической поверхностью, с последующим возбуждением плазмона [6]. В настоящей работе исследуется роль плазмонной подсистемы в резонансной перезарядке.

1. Г а м и л ь т о н и а н

Взаимодействие движущегося атома с поверхностью металла может быть описано обобщенным гамильтонианом Андерсона вида [1, 5]

$$H = \sum_{k\sigma} \varepsilon_k C_{k\sigma}^+ C_{k\sigma} + E(t) \sum_{\sigma} a_{\sigma}^+ a_{\sigma} + U a_{\uparrow}^+ a_{\uparrow} a_{\downarrow}^+ a_{\downarrow} + \sum_{k\sigma} [V_k(t) a_{\sigma}^+ C_{k\sigma} + \text{э. с.}] + \\ + \omega_0 b^+ b + \sqrt{\varphi\omega_0} \left(\sum_{\sigma} a_{\sigma}^+ a_{\sigma} - 1 \right) (b + b^+). \quad (1)$$

Здесь $C_{k\sigma}^+$ и a_{σ}^+ — операторы рождения электрона со спином σ в металлическом состоянии k и на атомном уровне E ; $\varphi \simeq 1/4 (z + z^{-1})$ — потенциал изображения в длинноволновом пределе (z — расстояние от атома до металла, x — волновой вектор Томаса—Ферми); b^+ — оператор рождения

бездисперсионного плазмона с частотой ω_0 . Использована атомная система единиц.

Роль внутриаомного кулоновского отталкивания электронов изучалась в работах [7, 8] и здесь рассматриваться не будет, в силу чего опустим третий член в гамильтониане (1).

В адиабатическом приближении, когда плазменная подсистема является более медленной, чем электронная, гамильтониан (1) может быть преобразован к виду [5]

$$H = \sum_{k\sigma} \epsilon_k C_{k\sigma}^+ C_{k\sigma} + \tilde{E}(t) \sum_{\sigma} a_{\sigma}^+ a_{\sigma} + \sum_{k\sigma} [V_k(t) a_{\sigma}^+ C_{k\sigma} + \text{э. с.}] - \varphi (1 - n_a^2), \quad (2)$$

где $\tilde{E}(t) = E(t) + 2\varphi(1 - n_a)$, $n_a = \sum_{\sigma} \langle a_{\sigma}^+ a_{\sigma} \rangle$. Отметим, что величина $Z = 1 - n_a$ есть заряд частицы.

В обратном адиабатическом приближении, когда плазменная подсистема является более быстрой, чем электронная, имеем в приближении Хартри—Фока

$$H = \sum_{k\sigma} \epsilon_k C_{k\sigma}^+ C_{k\sigma} + \sum_{\sigma} \tilde{E}_{\sigma}(t) a_{\sigma}^+ a_{\sigma} + \sum_{k\sigma} (\tilde{V}_k(t) a_{\sigma}^+ C_{k\sigma} + \text{э. с.}) - \varphi (1 - n_a), \quad (3)$$

где $\tilde{E}_{\sigma}(t) = E(t) + \varphi(1 - 2n_{-\sigma})$, $\tilde{V}_k(t) = V_k(t) \exp(-\varphi/2\omega_0)$. В дальнейшем будем рассматривать немагнитные решения ($n_{a\uparrow} = n_{a\downarrow} = n_a/2$) и опустим спиновый индекс.

2. Общее решение

Для нахождения зависимости чисел заполнения от времени воспользуемся уравнениями движения вида

$$\begin{aligned} \partial a(t)/\partial t &= i[H, a(t)], \\ \partial C_k(t)/\partial t &= i[H, C_k(t)], \end{aligned} \quad (4)$$

где операторы записаны в гейзенберговском представлении. Тогда, следуя работе [1], получим

$$\begin{aligned} n_a(t) &= n_a(-\infty) \exp\left(-2 \int_{-\infty}^t \Delta(t') dt'\right) + \pi^{-1} d\omega f(\omega, T) \times \\ &\times \left| \int_{-\infty}^t [\Delta(t')]^{1/2} \exp\left[-i\omega t' - \int_{t'}^t [i\tilde{E}(t'') + \Delta(t'')] dt''\right] dt' \right|^2. \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь полуширина уровня $\Delta(t) = \pi V^2(t) \rho$ (ρ — плотность состояний подложки, которая в приближении бесконечно широкой зоны не зависит от энергии ω). Под $V(t)$ понимаются усредненные по k значения \tilde{V}_k в адиабатическом случае и \tilde{V}_k — в обратном адиабатическом; f — функция распределения Ферми—Дирака. В дальнейшем полагаем $T=0$.

Заметим, что выражение (5) записано для случая рассеяния, когда в момент времени $t=-\infty$ частица начала движение к металлу. При распылении в (5) нужно опустить первый член, а в интеграле по времени заменить $-\infty$ на 0 [2].

Выражение (5) представляет собой интегральное уравнение, так как величина $\tilde{E}(t)$ содержит $n_a(t)$.

3. Адиабатическое приближение

Для анализа выражения (5) воспользуемся приближением классической траектории, положив $z=vt+\text{const}$ (v — скорость частицы, которую

считаем величиной постоянной для всего процесса) и тем самым переведем временные интегралы в интегралы по расстоянию. Будем считать, что

$$\Delta = \Delta_0 \exp(-2\gamma z). \quad (6)$$

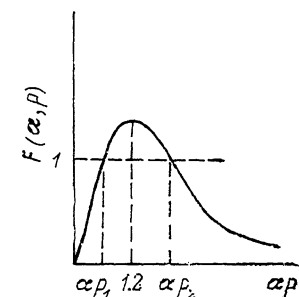
Не прибегая к численным расчетам, сделаем качественные оценки влияния плазмонов на зарядовое состояние атома.

Во-первых, на основании работ [7-10] можно без большой ошибки заменить $n_a(t)$ в выражении для \dot{E} на его предельное значение n_a (масштаб времени, на котором устанавливается предельное значение заполнения, имеет порядок $(\gamma v)^{-1}$, что при $\gamma = 1 \text{ \AA}^{-1}$ и $v = 10^5 \text{ см/с}$ дает 10^{-14} с). Во-вторых, так как $\varphi(z)$ меняется с расстоянием значительно медленнее, чем $\Delta(z)$, заменим зависящий от расстояния потенциал изображения его усредненным значением $\bar{\varphi}$. В дальнейшем будем обозначать модифицированное таким образом значение E через ε_a .

В случае не зависящего от расстояния значения ε_a и Δ , задаваемого соотношением (6), уравнение (5) имеет точное решение [1, 2]

$$n_a \equiv n_a(\infty) = \frac{1}{\pi} \operatorname{arctg} \operatorname{sh} \left(\frac{\pi \varepsilon_a}{2\gamma v} \right), \quad \varepsilon_F \equiv 0, \quad (7)$$

где $\varepsilon_a = E + 2\bar{\varphi}(1 - n_a)$. Изменение числа заполнения в функции от обратной скорости имеет вид



Вид функции $F(\alpha, p)$. $\alpha < 0.66$.

$$\frac{\partial n_a}{\partial (1/v)} = -\frac{\varepsilon_a}{2\gamma} \frac{\operatorname{sch}(\alpha p)}{1 - p \operatorname{sch}(\alpha p)}, \quad (8)$$

где $p = \bar{\varphi}/\gamma v$, $\alpha = \pi \varepsilon_a / 2\bar{\varphi}$.

Легко показать, что функция $F(\alpha, p) = p \operatorname{sch}(\alpha p)$ имеет максимум при значении $\alpha p = \pm 1.2$ (это корень уравнения $y \operatorname{th} y = 1$), причем $F_{\max} = 0.66/|\alpha|$. При $|\alpha| < 0.66$, т. е. $|\varepsilon_a|/\bar{\varphi} < 0.42$, существует область значений αp , в которой $\partial n_a / \partial (1/v)$ изменяет знак (см. рисунок). Таким образом, имеется возможность немонотонного изменения $n_a(1/v)$. Оценка для типичного значения параметров ($\bar{\varphi} \approx 5 \text{ эВ}$, $\gamma = 1 \text{ \AA}^{-1}$, $\pi |\varepsilon_a|/\bar{\varphi} = 1$) дает значение $v^* \approx 3 \cdot 10^5 \text{ м/с}$. При $|\alpha| > 0.66$ возможна только монотонная зависимость.

При скоростях, много меньших v^* , с которыми, как правило, и имеют дело при распылении твердых тел [1, 11, 12], учет плазмонов, как следует из выражения (8), приводит к усилению зависимости $n_a(1/v)$. Действительно, при $\varepsilon_a > 0$ с ростом $1/v$ число заполнения n_a уменьшается, что вызывает в свою очередь сдвиг квазиуровня вверх и дополнительное уменьшение n_a .

В заключение данного раздела отметим, что немонотонность зависимости n_a от параметров задачи (в определенной области их значений) отмечалась в статическом случае для гамильтониана Андерсона с бозонным полем [13-15]. Разрывы производной в точках p_1 и p_2 (см. рисунок), следующие из выражения (8), возникают, по-видимому, из-за приближенного характера последнего.

4. Обратное адиабатическое приближение

Из выражения (3) следует, что в данном случае имеет место как смещение квазиуровня атома (в 2 раза меньшее, чем в адиабатическом режиме), так и его сужение. Это последнее — плазменный аналог хорошо известного в литературе поляронного сужения.

Для исследования плазмонного сужения квазиуровня прибегнем к аппроксимации: представим $\exp[-1/4(z + \kappa^{-1})\omega_0]$ в виде $a \exp(bz)$. Коэффициенты a и b определим из условия сшивания двух функций в точ-

ках $z=0$ и $z=\gamma^{-1}$. Получим $a=\exp(-x/4\omega_0)$, $b=\gamma x^2/4\omega_0(\gamma+x)$. Тогда, воспользовавшись представлением (6), можно записать

$$\tilde{\Delta} = \tilde{\Delta}_0 \exp(-2\tilde{\gamma}z), \quad (9)$$

где

$$\tilde{\Delta}_0 = \Delta_0 \exp(-x/4\omega_0) \equiv \Delta_0 p_0,$$

$$\tilde{\gamma} = \gamma \left[1 - \frac{x^2}{8\omega_0(x+\gamma)} \right] \equiv \gamma(1-q_0).$$

Значения p_0 и q_0 для ряда металлов приведены в таблице.

Плазменное сужение квазиуровня атома

	Be	Cu	Ag	W	Pb	Sn
$\gamma, \text{Å}^{-1}$	1.01	1.07	1.06	1.09	1.02	1.07
$x, \text{Å}^{-1}$	1.94	1.36	1.20	1.55	1.82	1.63
$\omega_{os}, \text{эВ}$	13.44	14.14	16.26	14.85	9.19	10.75
p	0.59	0.71	0.77	0.69	0.49	0.58
q	0.17	0.10	0.07	0.11	0.23	0.16

Обращаясь вновь к модели с неизменным положением уровня, рассмотренной в предыдущем разделе, видим, что уменьшение параметра γ , вызванное поверхностными плазмонами, ведет к более резкой зависимости $n_a(1/\nu)$.

В настоящей работе рассмотрено влияние поверхностных плазмонов на зарядовое состояние рассеянных или расплывших частиц в рамках простейшей модели не зависящего от расстояния положения квазиуровня. В области монотонного изменения $n_a(1/\nu)$ плазмоны всегда приводят к увеличению вероятности перезарядки. Обнаружена также возможность немонотонной зависимости $n_a(1/\nu)$. В дальнейшем автор планирует более подробное исследование роли плазмонов.

Список литературы

- [1] Brako R., Newns D. M. // Rep. Prog. Phys. 1989. V. 52. N 3. P. 655—697.
- [2] Nourtier A. // J. Phys. (France). 1989. V. 50. N 2. P. 311—359.
- [3] Newns D. M., Makoshi K., Brako R., van Wunnik J. M. N. // Physica Scripta. 1983. V. 6. P. 5—14.
- [4] Браун О. М., Ильченко Л. Г., Пашицкий Э. А. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 6. С. 1649—1655.
- [5] Браун О. М., Волокитин А. И. // ФТТ. 1981. Т. 23. № 12. С. 3530—3534.
- [6] Almulhem A. A., Girardeau M. D. // Surf. Sci. 1989. V. 210. N 1/2. P. 138—162.
- [7] Nakanishi K., Kasai H., Okiji A. // Surf. Sci. 1988. V. 197. N 3. P. 515—527.
- [8] Kawai H., Makoshi K., Yoshimori A. // Surf. Sci. 1988. V. 206. N 3. P. 525—532.
- [9] Makoshi K., Kawai H., Yoshimori A. // J. Phys. Soc. (Japan). 1984. V. 53. N 8. P. 2441—2444.
- [10] Kawai H., Makoshi K., Yoshimori A. // J. Phys. Soc. (Japan). 1986. V. 55. N 6. P. 2002—2007.
- [11] Makarenko B. N., Popov A. B., Shaporenko A. A., Shergin A. P. // Rad. Eff. and Defects in Solids. 1989. V. 113. N 4. P. 263—268.
- [12] Буханов В. М., Миннебаев К. Ф., Уразгильдин И. Ф., Черныш В. С. // ЖЭТФ. 1989. Т. 96. № 4(10). С. 1505—1512.
- [13] Haldane F. D. M. // Phys. Rev. B. 1977. V. 15. N 1. P. 281—289.
- [14] Кравцов В. Е., Мальшунов А. Г. // ЖЭТФ. 1978. Т. 15. № 2(8). С. 691—704.
- [15] Давыдов С. Ю. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 8. С. 2283—2291.

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

Поступило в Редакцию
15 ноября 1990 г.
В окончательной редакции
5 февраля 1991 г.