

05;11;12

Влияние многократного электрон-электронного рассеяния на энергетическое распределение электронов коррелированной пары

© О.М. Артамонов, С.Н. Самарин

Научно-исследовательский институт физики Санкт-Петербургского государственного университета, 198906 Санкт-Петербург, Россия

(Поступило в Редакцию 30 мая 2000 г. В окончательной редакции 26 декабря 2000 г.)

Методом корреляционной спектроскопии рассеянных электронов исследован элементарный акт электрон-электронного рассеяния в слоях LiF. Исследовалось энергетическое распределение коррелированных электронов пары при рассеянии свободного электрона с энергией 15–55 eV на валентном электроном LiF. Показано, что при энергии первичного электрона менее 25 eV в основном преобладает механизм однократного электрон-электронного рассеяния и энергетическое распределение электронов пары равномерно. При увеличении энергии первичного электрона наиболее вероятным становится образование коррелированной пары электронов с равной энергией. При дальнейшем увеличении энергии первичного электрона свыше 40 eV в спектре преобладают пары с существенно неравными энергиями электронов. Эта эволюция энергетического распределения электронов пары связана с последовательным вовлечением в электрон-электронное рассеяние вначале одного, а затем обоих электронов коррелированной пары. Рассмотрена феноменологическая модель одно- и двухступенчатого рассеяния первичных электронов в пленках LiF. Полученные результаты показывают, что при электрон-электронном рассеянии интенсивности каналов одно- и двухступенчатого рассеяния становятся сравнимыми при энергии электрона более 25 eV.

Введение

Одним из наиболее многообещающих методов исследования электрон-электронного рассеяния на поверхности и в тонких приповерхностных слоях твердого тела является корреляционная спектроскопия рассеянных электронов или спектроскопия электрон-электронных совпадений. В корреляционной спектроскопии регистрируется пара коррелированных электронов, возникшая в результате единичного акта рассеяния первичного электрона на валентном электроном твердого тела. Впервые вопрос о применении корреляционной спектроскопии вторичных электронов для исследования поверхности был нами поставлен в [1]. Исследование поверхности металлов методом корреляционной спектроскопии низких энергий в геометрии обратного рассеяния было впервые выполнено в наших совместных работах с немецкими коллегами [2–7]. В последние годы появились работы по теоретическому описанию динамики рассеяния медленных электронов на поверхности применительно к методике спектроскопии совпадений [6,8–10].

Одной из основных экспериментально измеряемых характеристик электрон-электронного рассеяния является распределение электронов коррелированной пары по энергии. Энергетическое распределение электронов коррелированной пары в приближении бинарного рассеяния свободных электронов отражает динамику электрон-электронного взаимодействия. Распределение описывается хорошо известной формулой Мотта, являющейся квантово-механическим обобщением формулы Резерфорда (см., например, [11]). Вероятность образования коррелированной пары электронов как функция энергии

одного из электронов пары имеет минимум при равных энергиях электронов (это справедливо в том случае, если измерения проводятся без анализа спина коррелированных электронов, т.е. если оба рассеянных электрона неразличимы). При рассеянии первичного электрона на валентном электроном твердого тела, особенно в области малых энергий первичных электронов, на характер распределения коррелированных электронов по энергии существенным образом влияет ряд других факторов, таких как а) многократное электрон-электронное рассеяние в твердом теле, б) выход коррелированной пары электронов из твердого тела в вакуум, в) неравномерное распределение свободных и заполненных электронных состояний в твердом теле, г) наличие поверхностных электронных состояний, д) дифракция электронов на периодической решетке и другие. Экспериментально показано [2–7], что при рассеянии электронов с энергией 10–50 eV на поверхности металла наблюдаются энергетические распределения электронов коррелированной пары как с минимумом в области равных энергий рассеянных электронов, так и с максимумом.

В настоящей работе показано, как многократные электрон-электронные столкновения влияют на энергетическое распределение коррелированных электронов. С этой целью мы выбрали в качестве образца диэлектрическую пленку LiF. В диэлектриках существует хорошо определенный порог энергии для рассеяния неравновесного электрона на валентном, равный величине энергетической щели E_g . В случае LiF этот порог составляет приблизительно 11.5–13 eV. Таким образом, мы можем легко установить энергетический порог начала межзонных возбуждений валентных электронов [12,13].

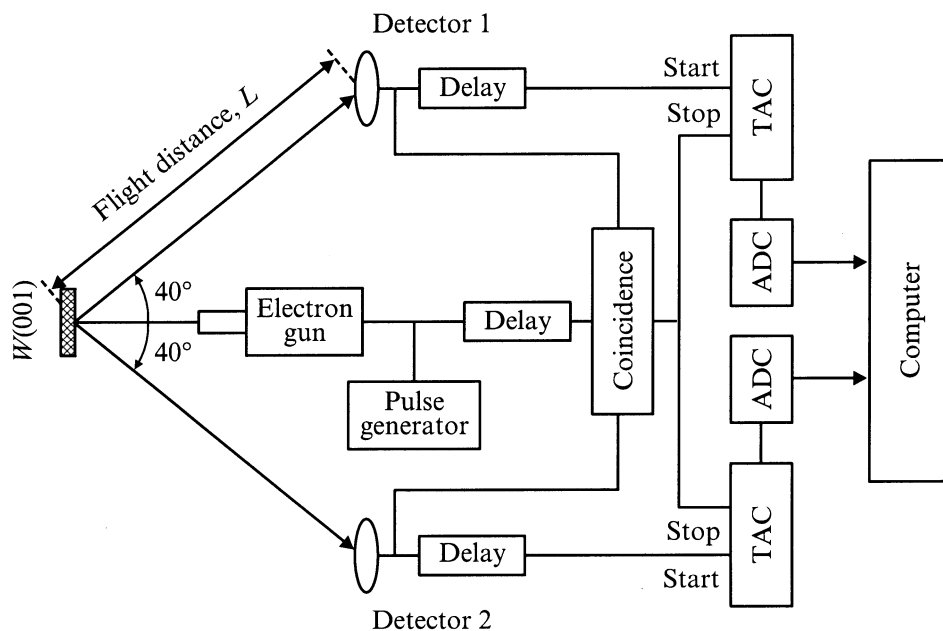


Рис. 1. Схема $e, 2e$ -времяпролетного спектрометра. ADC — аналогово-цифровой конвертер, TAC — время-амплитудный конвертер.

Эксперимент

1. Экспериментальная аппаратура. Эксперименты были проведены с помощью ($e, 2e$) электронного спектрометра с двумя времяпролетными анализаторами энергии (рис. 1) при вакууме порядка 10^{-11} Торр. Подложка W(100) закреплена на вращаемом держателе и для периодической очистки нагревалась электрическим током до 2000°C . Чистота подложки контролировалась с помощью оже-спектроскопии. Пленки LiF наносились на поверхность W(100) термическим напылением из молибденового тигля, нагреваемого электронной бомбардировкой. Толщина нанесенной пленки определялась с помощью кварцевых микровесов. Электронная пушка создавала импульсный поток электронов со средним током порядка 10^{-14} А при диаметре электронного пучка меньше 3 мм. Использовались два детектора на базе микроканальных пластин диаметром 30 мм. Детекторы и электронная пушка располагались в одной плоскости с нормалью к поверхности образца. Угловые координаты детекторов (Θ_1 и Θ_2) можно было изменять от 30 до 80°C по отношению к нормали к поверхности. Измерения выполнены при $\Theta_1 = \Theta_2 = 50^\circ$. Магнитное поле Земли ослаблялось приблизительно в 100 раз с помощью катушки Гельмгольца и экрана из μ -металла, помещавшегося внутри вакуумной камеры.

Энергия рассеянных электронов измерялась по регистрируемому времени пролета электронов от образца до детектора. Пучок падающих электронов модулировался импульсами с частотой $2.5 \cdot 10^6$ импульсов в секунду при длительности импульса не более 5 ns. Модулирующий импульс импульсного генератора использовался в качестве нулевой точки отсчета времяпролетной шкалы и

запускал два время-амплитудных преобразователя (TAC1 и TAC2). Процесс регистрации пары электронов выглядит следующим образом. Падающий электрон рассеивается на валентном, и два рассеянных электрона покидают поверхность, один из них может быть зарегистрирован первым детектором (MCP1) и вызвать импульс, останавливающий TAC1, в то время как импульс от второго детектора (MCP2) останавливает TAC2. Дополнительная схема совпадений (пороговый генератор) отбрасывает все импульсы, не совпадающие по времени в пределах окна длительностью порядка 200 ns. Измеренные времена пролета T1 и T2 оцифровываются с помощью двух ADC и заносятся в память компьютера. Результатом эксперимента является двумерное распределение количества зарегистрированных пар электронов от времени пролета первого и второго электронов пары.

Детектирование рассеянных электронов в режиме совпадений позволяет выделить из всего потока рассеянных электронов только те пары электронов, которые возникли в результате неупругого рассеяния одного первичного электрона. Выделение коррелированных пар электронов (коррелированных по энергии) проводится на основе анализа экспериментальных распределений. Например, в случае металлической мишени, если выделить только те пары рассеянных электронов, суммарная энергия которых равна энергии первичного электрона минус работа выхода мишени, то ясно, что эти пары электронов возникли при рассеянии первичного на валентных электронах на уровне Ферми.

2. Экспериментальные результаты. Мы преобразовывали экспериментальные двумерные времяпролетные распределения в двумерные энергетические распределения коррелированных электронов.

На рис. 2 в качестве примера приведены три двумерные энергетические распределения коррелированных электронов, возникающих при значении энергии налетающих электронов 23, 35 и 45 eV. По координатным осям отложены энергии электронов пары. Интенсивность почернения на рисунке соответствует количеству зарегистрированных пар. Любая линия, параллельная штриховой, на рис. 2, соответствует парам с постоянной суммой энергий коррелированных электронов $E_{\text{tot}} = E_1 + E_2$ или постоянной энергии связи валентного электрона E_b . На рис. 2 максимумы двумерных распределений расположены на штриховых линиях и соответствуют определенным значениям суммарной энергии коррелированной пары. На рис. 2, *a* максимум расположен при $E_{\text{tot}} = 12$ eV для $E_p = 23$ eV, что соответствует энергии связи валентного электрона $E_b = 11$ eV и возбужденного валентного электрона с верха заполненной зоны. На рис. 2, *b* ($E_{\text{tot}} = 22$ eV при $E_p = 35$ eV) и *c* ($E_{\text{tot}} = 29$ eV при $E_p = 45$ eV) энергия связи валентного электрона увеличивается, что соответствует наиболее вероятному возбуждению пар из середины заполненной зоны LiF.

Сечения двумерного энергетического распределения, параллельные штриховой прямой, на рис. 2 при фиксированных значениях E_{tot} дают распределения энергии электронов внутри коррелированных пар при фиксированных суммарных энергиях пар E_{tot} . На рис. 3 представлены распределения энергии между электронами внутри коррелированной пары при различных значениях энергии первичных электронов E_p и некоторых значениях E_{tot} . Выбранное значение E_{tot} соответствует возбуждению валентного электрона с вершины валентной зоны. Шкала интенсивностей дает относительное число пар коррелированных электронов с энергиями E_1 и $E_2 = E_{\text{tot}} - E_1$. При энергии E_1 , выбранной для первого электрона, энергия второго электрона равняется $E_2 = E_{\text{tot}} - E_1$. Приведенные на рис. 3 распределения энергии электронов внутри коррелированной пары соответствуют различным значениям энергии первичного электрона и одной и той же энергии связи валентного электрона. Энергия первичных электронов E_p и суммарная энергия E_{tot} пары показаны на оси энергии стрелками. Расстояние на оси энергии между E_p и E_{tot} соответствует энергии связи валентного электрона, участвующего в рассеянии, как показано на рис. 3, *c*.

Все энергетические распределения на рис. 3 симметричны относительно средней точки при $E_1 = E_2$, поскольку мы использовали симметричную геометрию эксперимента и два детектора неразличимы для рассеянных электронов. Энергия каждого из электронов пары в общем случае может изменяться от нуля до значения E_{tot} . Область измеренных энергий электронов несколько уже, так как мы регистрировали электроны с энергией выше 1.5–3 eV (это зависит от временного интервала, измеряемого времяпролетными анализаторами). Распределения на рис. 3, *a, b* почти однородны в пределах статистического разброса количества пар,

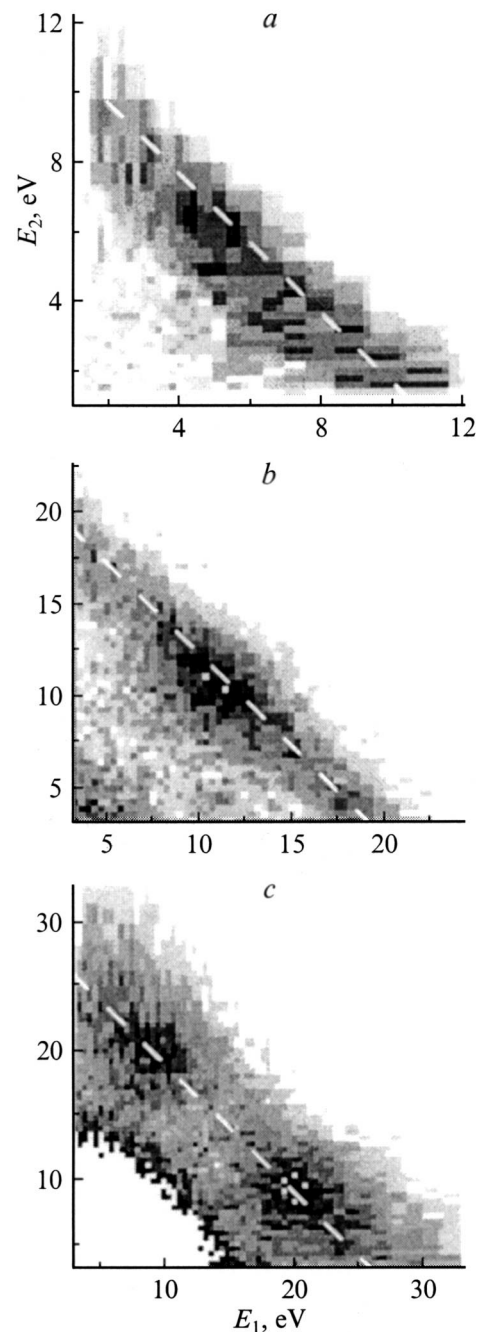


Рис. 2. Двумерное энергетическое распределение коррелированных электронов от слоя LiF на W(100). $\Theta_1 = \Theta_2 = 45^\circ$. Коррелированные пары расположены в окрестностях штриховой линии.

т.е. вероятность регистрации пар с различными комбинациями энергии электронов постоянна в пределах доступного интервала энергий. Распределение на рис. 3, *c* более остро, а на рис. 3, *d* проявляются выраженные ступеньки по обе стороны от центра распределения. Интенсивность этих ступенек составляет приблизительно 0.5 от максимума. Распределения на рис. 3, *e* и *f* имеют посередине минимум, распространяющийся затем

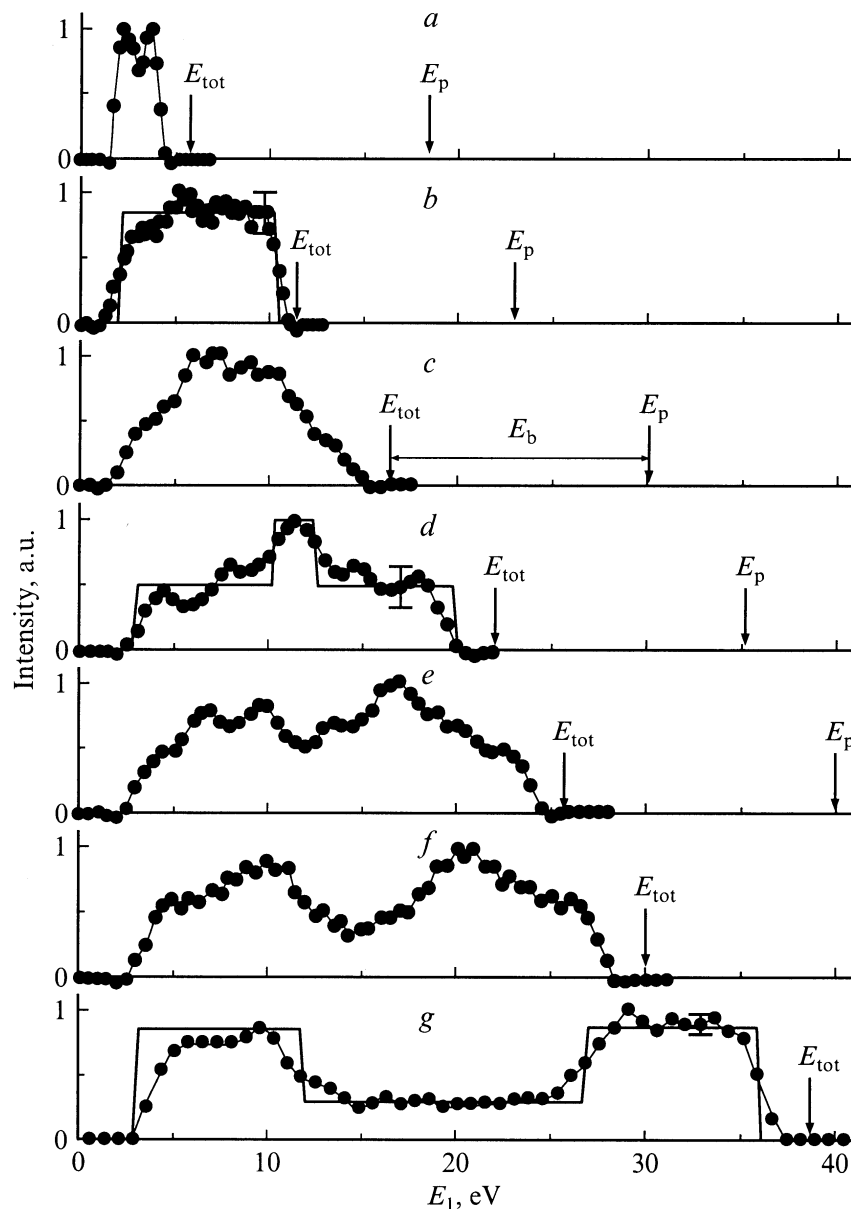


Рис. 3. Энергетическое распределение коррелированных электронов с полной энергией пары E_{tot} для различных энергий первичных электронов E_p . Энергия первичных электронов и полная энергия пары отмечены стрелками и составляют: $E_p = 18$ (a), 23 (b), 30 (c), 35 (d), 40 (e), 45 (f), 55 eV (g); $E_{tot} = 6$ (a), 12 (b), 16 (c), 22 (d), 26 (e), 30 (f), 39 eV (g). Сплошная линия в b, d и g результат модельного расчета.

на всю центральную часть кривой. Интенсивность в этом минимуме составляет приблизительно 0.3. Как будет показано далее, появление ступенек на краях распределения и минимума в центральной части кривой может быть связано с двухступенчатым расстоянием.

Обсуждение результатов

1. Модель электрон-электронного рассеяния на поверхности. Упругое рассеяние первичного электрона на ионной решетке играет важную

роль в кинематике процесса рассеяния и разворачивает суммарный момент коррелированной пары электронов в сторону вакуума. Мы включим упругое рассеяние в рассматриваемую модель рассеяния. Будем для определенности полагать, что упругое рассеяние предшествует неупругому электрон-электронному взаимодействию (рис. 4, a, левая часть), хотя более реалистичным кажется предположение о том, что взаимодействие первичного электрона с решеткой и с валентным электроном происходит одновременно. Энергетическая диаграмма на рис. 4, a (правая часть) показывает энергетический баланс для однократного электрон-электронного рас-

сеяния. Минимальная энергия первичного электрона, необходимая для возбуждения коррелированной пары в вакуум E'_{th} , может быть оценена на основе сохранения полной энергии. Если электронное сродство вещества близко к нулю, т.е. дно зоны проводимости примерно соответствует энергетическому положению уровня вакуума, то $E'_{th} \cong E_g$, где E_g — ширина запрещенной зоны диэлектрика. При этом в акте рассеяния первичный и валентный электроны переходят на дно зоны проводимости и оказываются в вакууме с нулевой энергией. При наличии потенциального барьера на поверхности значение E'_{th} увеличивается. Значение E'_{th} также увеличивается по сравнению с оценкой, сделанной на основе баланса энергий также за счет корреляции электронов по импульсу.

Добавочное электрон-электронное рассеяние может произойти, если энергия хотя бы одного из двух коррелированных электронов превышает E'_{th} . Это возможно, если $E_p > E''_{th}$, где энергетический порог начала двухступенчатого рассеяния $E''_{th} \cong 2E'_{th}$. При такой энергии налетающих электронов хотя бы один из электронов пары обладает энергией, достаточной для возбуждения электрона из валентной зоны. В результате такого электрон-электронного рассеяния исходная коррелированная пара разбивается. Можно ожидать, что именно это приводит к появлению симметричных ступенек по сторонам главного максимума на рис. 3, *d* при энергии первичных электронов 35 eV.

При дальнейшем увеличении энергии первичного электрона возникают пары, в которых уже оба электрона пары имеют энергию, превышающую $2E'_{th}$, и эти электроны могут принять участие в добавочном электрон-электронном рассеянии. Энергетический порог начала двухступенчатого рассеяния для обоих электронов пары $E'''_{th} \cong 3E'_{th}$. Этот процесс приводит к дальнейшему уменьшению количества пар с $(E_1, E_2) > E'_{th}$. Вначале при $E_p \cong E''_{th}$ уменьшение количества пар будет соответствовать центральной точке энергетического распределения, а при дальнейшем увеличении энергии первичного электрона этот процесс будет захватывать все большую центральную часть энергетического распределения (рис. 3, *g*).

2. Влияние двухступенчатого рассеяния на энергетическое распределение коррелированных пар электронов. Чтобы оценить влияние многократного электрон-электронного рассеяния на энергетическое распределение коррелированных электронов, следует сделать предположение о характере энергетического распределения без влияния многократного рассеяния. Распределения на рис. 3, *a, b* соответствуют однократному электрон-электронному рассеянию, поскольку энергия электронов пары не превышает E'_{th} . В пределе статистического разброса точек эти распределения можно аппроксимировать постоянным значением интенсивности в измеряемом интервале энергий. Измеряемый интервал энергий меньше, чем

величина E_p , поскольку диапазон регистрируемой энергии электрона ограничен снизу величиной 1.5–3 eV в зависимости от энергии первичного электрона. В рамках этих допущений можно представить функцию, характеризующую распределение энергии между электронами пары как постоянную величину с резкими краями при $E_1 = 3\text{ eV}$ и $E_1 = E_{tot} - 3\text{ eV}$ (рис. 3, *b*), и экстраполировать такое распределение для всего диапазона энергий первичного электрона. В действительности форма краев энергетического распределения не имеет существенного значения для дальнейших рассуждений.

Рассмотрим влияние неупругого электрон-электронного рассеяния на распределение энергии электронов внутри коррелированной пары. Рассмотрим пару коррелированных электронов внутри твердого тела сразу после ее образования. Мы полагаем, что электрон пары может либо выйти в вакуум и быть зарегистрированным как один из электронов пары, либо принять участие в добавочном электрон-электронном рассеянии, что приведет к уничтожению коррелированной пары. Можно принять, что энергетическая зависимость вероятности неупругого рассеяния электронов ($\omega_{ee}(E_1)$) в грубом приближении может быть выражена ступенчатой функцией с порогом при E_g

$$\omega_{ee}(E_1 > E_g) = \omega_{ee}, \quad \omega_{ee}(E_1 \leq E_g) = 0. \quad (1)$$

Функция (1) характеризует вероятность потери энергии электроном пары. Соответственно, если один из электронов пары теряет энергию, коррелированная пара электронов исчезает.

Вероятность регистрации пары электронов $P_0(E_1, E_2)$ есть произведение вероятностей регистрации электронов этой пары $P_1(E_1)$ и $P_2(E_2)$

$$P_0 = P_1(E_1)P_2(E_2) = P_1(E_1)P_2(E_{tot} - E_1). \quad (2)$$

С другой стороны

$$P_1(E_1) = A[1 - \omega_{ee}(E_1)],$$

$$P_2(E_{tot} - E_1) = A[1 - \omega_{ee}(E_{tot} - E_1)], \quad (3)$$

где A — константа, выбранная для данной модели.

В результате

$$P_0(E_1, E_{tot}) = A^2[1 - \omega_{ee}(E_1)][1 - \omega_{ee}(E_{tot} - E_1)]. \quad (4)$$

Выражение (4) есть вероятность регистрации коррелированной пары электронов, в которой один электрон имеет энергию E_1 , а второй электрон — энергию $E_{tot} - E_1$. Если первоначальное энергетическое распределение электронов пары принять постоянным, то функция (4) описывает энергетическое распределение электронов пары после того, как часть коррелированных электронных пар исчезла в результате неупругого электрон-электронного рассеяния.

3. Сравнение модельного расчета с экспериментальными данными. Для сравнения экспериментальных энергетических распределений

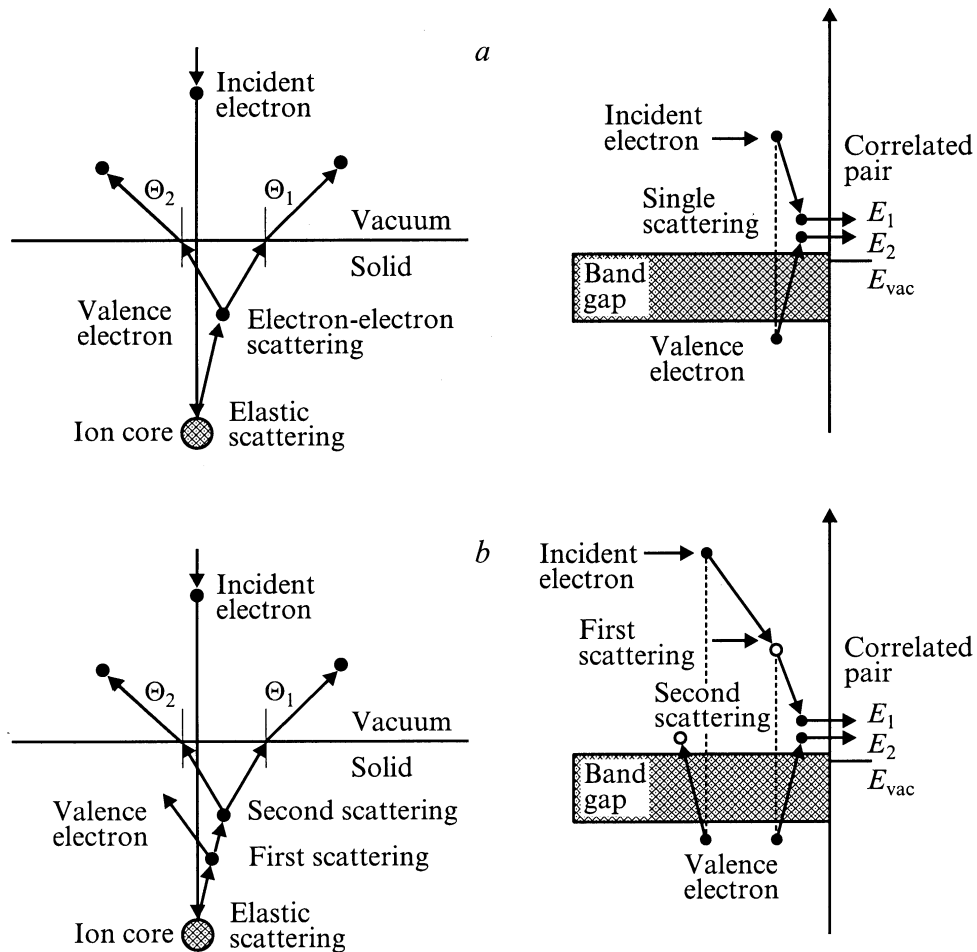


Рис. 4. Модель электронного рассеяния: *a* — одноступенчатое рассеяние, *b* — двухступенчатое рассеяние. Слева — геометрия рассеяния, справа — энергетическая диаграмма.

с расчетными мы нормировали эти распределения на их максимумы. В качестве подгоночных параметров использовались E_g (величина энергетической щели меняет положение ступеньки на расчетных кривых) и ω_{ee} (вероятность электрон-электронного рассеяния меняет относительную высоту ступеньки). Наилучшее согласие было получено при $E_g = 12.5 \text{ eV}$ (для $E_p = 35 \text{ eV}$) и $E_g = 12 \text{ eV}$ (для $E_p = 55 \text{ eV}$) и для $\omega_{ee} = 0.5$ и 0.65 соответственно (рис. 3, *d* и 3, *g*, сплошные линии). Следует отметить, что значения E_g здесь близки к известным литературным данным [12,13].

Результаты подгонки рассматриваемой модели под экспериментальные данные находятся в хорошем согласии с рассмотренной выше качественной интерпретацией изменений, происходящих в $(e, 2e)$ спектре с увеличением E_p . Когда энергия падающих электронов увеличивается, увеличивается также и суммарная энергия пар на гребне двумерного распределения. При заданном значении E_{tot} энергия E_1 одного из электронов принимает самое высокое значение, если энергия E_2 другого электрона имеет самое низкое значение, так

как $E_2 = E_{\text{tot}} - E_1$, и наоборот. Пары с такими комбинациями энергий электронов располагаются на обоих концах функции распределения энергии между электронами. Эти пары исчезают, как только энергия одного из электронов превышает порог энергии возбуждения валентного электрона, при этом возникают ступеньки на концах функции распределения (рис. 3, *d*). Когда энергии обоих электронов пары (E_1 и $E_2 = E_{\text{tot}} - E_1$) превышают E_g , в центральной части распределения появляется минимум (рис. 3, *g*). Возникновение минимума связано с тем, что оба электрона пары имеют энергию, достаточную для возбуждения валентного электрона через запрещенную зону. Вероятность исчезновения такой пары из распределения может возрасти в два раза по сравнению со случаем, когда только один электрон из пары имеет достаточно большую энергию. Следует отметить, что функции распределения энергии между электронами пары имеют некоторую тонкую структуру, которая особенно заметна на рис. 3, *d*. Эта структура может быть обусловлена более сложным по сравнению с использованной при расчете единичной ступенчатой

функцией видом зависимости $\omega_{ee}(E)$ или может отражать динамику рассеяния первичного электрона на валентном.

Выводы

Было показано, что при энергии налетающих электронов ниже приблизительно 26 eV коррелированные пары в пленке LiF возбуждаются с наибольшей вероятностью в одноступенчатых электрон-электронных столкновениях таким образом, что вклад многоступенчатых процессов пренебрежимо мал. Для одноступенчатого процесса мы можем оценить энергию связи валентного электрона, участвующего в столкновении, что позволило показать, что возбуждение валентных электронов происходит в основном с верхней части валентной зоны. В интервале энергий 26–40 eV один из электронов пары обладает энергией, достаточной для возбуждения валентного электрона, а при энергии налетающего электрона выше 40 eV оба электрона пары могут иметь энергию, достаточную, чтобы возбудить валентный электрон. Из-за дополнительного рассеяния коррелированных электронов число электронных пар, создаваемых в актах однократного рассеяния, уменьшается. Сравнение экспериментальных данных и результатов модельных расчетов показывает, что вероятность вылета коррелированной пары из твердого тела и вероятность участия электронов пары в дальнейшем процессе рассеяния могут быть равны. Участие коррелированных электронов в дальнейшем электрон-электронном рассеянии может менять вид функции распределения энергии между электронами пары. В таком случае вид функции отражает результат как первичного рассеяния первичного электрона на валентном, так и результат последующего рассеяния коррелированных электронов пары.

Метод $(e, 2e)$ спектроскопии оказывается эффективным средством изучения рассеяния низкоэнергетических электронов на диэлектрических поверхностях. Можно думать, что двухступенчатое (или многоступенчатое) рассеяние налетающих электронов также существенно для полупроводников и металлов. Это подчеркивает важность роли многоступенчатых процессов для $(e, 2e)$ спектроскопии поверхности твердого тела.

Настоящая работа была поддержана государственной программой "Интеграция" (проект № А 0151(0326.37)) и РФФИ (проект № 99-02-16769).

Авторы благодарны за разрешение опубликовать экспериментальные результаты, полученные в институте Макса Планка (Галле).

Список литературы

- [1] Артамонов О.М. // ЖТФ. 1985. Т. 55. Вып. 6. С. 1190–1192.
- [2] Kirschner J., Artamonov O.M., Samarin S.N. // Phys. Rev. Lett. 1995. Vol. 75. P. 2424–2427.
- [3] Artamonov O.M., Samarin S.N., Kirschner J. // Phys. Rev. 1995. Vol. B 51. P. 2491–2500.
- [4] Artamonov O.M., Samarin S.N., Kirschner J. // Appl. Phys. 1997. Vol. A 65. P. 535–541.
- [5] Samarin S., Herrmann G., Schwabe H., Artamonov O. // J. Electron Spectr. and Rel. Phen. 1998. Vol. 96. P. 61–67.
- [6] Feder R., Gollisch H., Meinert D. et al. // Phys. Rev. 1998. B 58. P. 16 418–16 431.
- [7] Samarin S., Berakdar J., Herrmann R. et al. // J. Phys. IV France. 1999. Vol. 9. N Pr6. P. 137–143.
- [8] Gollisch H., Meinert D., Xiao Yi., Feder R. // Sol. St. Commun. 1997. Vol. 102. P. 317–321.
- [9] Berakdar J., Das M.P. // Phys. Rev. 1997. Vol. A 56. P. 1403–1413.
- [10] Berakdar J., Samarin S., Herrmann H., Kirschner J. // Phys. Rev. Lett. 1998. Vol. 81. P. 3535–3538.
- [11] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Квантовая механика. М.: ФМЛ, 1963. 702 с.
- [12] Erwin S.C., Chin C. // J. Phys. 1988. C. 21. P. 4285–4309.
- [13] Pong W., Pondyal D., Brandt D. // J. Electr. Spectr. and Related Phenom. 1980. Vol. 21. N 3. P. 261–270.