

01;10;11

©1995

## ФОРМИРОВАНИЕ ЗАРЯДОВЫХ СОСТОЯНИЙ КЛАСТЕРОВ, ОТЛЕТАЮЩИХ ОТ ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛА, БОМБАРДИРУЕМОЙ УСКОРЕННЫМИ ИОНАМИ

*И.А.Войцеховский, М.В.Медведева, В.Х.Ферлегер*

Изучению ионной компоненты ( $Y_n^+$ ) потока кластеров ( $n$  — количество атомов в кластере), эмитируемых с поверхности металла при ее бомбардировке ускоренными ионами, посвящено большое количество экспериментальных работ. Недавно опубликованы первые надежные данные и о масс-спектрах нейтральных кластеров ( $Y_n^0$ ) [1]. Измерения  $Y_n^+$  и  $Y_n^0$  позволили определить степень положительной ионизации кластерных частиц [2]. Оказалось, что при  $n \geq 3$  степень ионизации  $\eta^+(n) \approx \frac{Y_n^+}{Y_n^0 + Y_n^+}$  превышает величину  $\eta^+$  для потока распыленных атомов на несколько порядков величины и с ростом  $n$   $\eta^+(n) \rightarrow 1$ . Такое поведение  $\eta^+(n)$  не может быть объяснено в рамках моделей типа [3], где формирование зарядовых состояний отлетающих частиц происходит за счет их электронного обмена с поверхностью, и  $\eta_{\max}^+ = 0.5$  при  $n \rightarrow \infty$ .

В настоящей работе предлагается механизм ионизации кластерных частиц, связанный с переходом части внутренней колебательной энергии комплекса в его электронную подсистему. Как показали проведенные нами оценки характерных времен, ионизация кластера по этому каналу происходит в основном на отлете, вне области электронного обмена с поверхностью ( $s = 5-10 \text{ \AA}$ ).

Строгое теоретическое описание процесса передачи энергии от ядерной подсистемы к электронной требует расчета поверхностей потенциальной энергии нейтральных и заряженных кластеров. Такой подход в настоящее время удалось реализовать лишь для кластеров с  $n \leq 3$  [4]. В противоположном пределе для кластеров, содержащих большое количество атомов, процесс ионизации может рассматриваться как термоэлектронная эмиссия из микрочастицы, имеющей температуру  $T$ . Выражение для скорости (часто-

ты) такого процесса было получено в [5]:

$$k_{ion}^n (c^{-1}) \approx \frac{2k_B T}{h} \exp\left(-\frac{IP(n)}{k_B T}\right) \cdot \left(2b_n a_0^{-1} + 2(Q_{surf} \frac{\pi}{4})^{1/2} + Q_{surf}\right), \quad (1)$$

где  $Q_{surf} = 8\pi^2 \mu b_n^2 k_B T h^{-2}$ ,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $h$  — постоянная Планка,  $a_0$  — борковский радиус,  $b_n$  — размер частицы (мы предполагаем, что кластер имеет сферическую форму, т.е.  $b_n = r_s n^{1/3}$ ,  $r_s$  — радиус ячейки Вигнера-Зейца),  $\mu$  — масса атома,  $IP(n)$  — энергия ионизации  $n$ -атомного кластера.

Если  $k_B T = E_{int} \cdot l^{-1}$  ( $l = 3n - 6$  — число степеней свободы), то при характерных значениях внутренней энергии кластера  $E_{int} n^{-1} \approx 1$  эВ/атом [6] из (1) следует, что  $k_{ion}^n$  с ростом  $n$  уменьшается от  $k_{ion}^n \approx 10^{13}$  с<sup>-1</sup> при  $n = 4-5$  до  $k_{ion}^n \approx 10^8$  с<sup>-1</sup> при  $n \rightarrow \infty$ . Другим возможным каналом диссипации внутренней энергии кластера является мономолекулярная фрагментация [7]. Так как типичные скорости фрагментации находятся в пределах  $10^{12}-10^6$  с<sup>-1</sup>, то диссипация внутренней энергии по обоим этим каналам происходит со сравнимыми вероятностями. Для описания фрагментации кластера существует подход, развитый в работе [6], где эмиссия кластера происходит за счет двух последовательно происходящих процессов. На первом этапе за счет развития плотного каскада столкновений в приповерхностной области твердого тела происходит одновременно эмиссия некоторого количества атомов, причем внутренняя кинетическая энергия атомов  $E_{int}$  может превышать порог диссоциации кластера. На втором этапе, при отлете от поверхности кластер теряет свою энергию за счет мономолекулярной фрагментации, до тех пор пока она не станет ниже порога диссоциации.

Предлагаемая модель формирования зарядовых состояний кластеров является, по существу, обобщением представлений [6] за счет включения дополнительного (ионизационного) канала диссипации. Конкретный расчет конечных массовых и зарядовых распределений кластеров, а также их степеней ионизации проводился методом статистических испытаний по следующей схеме.

Начальное распределение эмитированных с поверхности кластеров по числу атомов в них выбиралось в виде [6]:

$$Y_n \sim \frac{1}{n^\alpha}, \quad (2)$$

где  $\alpha$  — константа,  $2 \leq n \leq n_{max}$ ,  $n_{max} = 100$ . Для кластера с данным номером  $n$  начальная внутренняя энергия опреде-

лялась выражением [6]

$$E_{int}(n) = an - b \quad (\text{эВ}), \quad (3)$$

где  $a$  и  $b$  — константы. Далее учитывалось, что энергия с течением времени может уменьшаться как за счет процессов фрагментации

$$M_n \xrightarrow{k^{n,m}} M_m + M_{n-m}, \quad (4)$$

так и процессов ионизации:

$$M_n \xrightarrow{k_{ion}^n} M_n^+ + e, \quad (5)$$

если только  $E_{int}$  больше порогов  $E_{th}^{n,m}$  и  $IP(n)$  процессов (4) и (5) соответственно.

Если кластер становится ионом, то он может только фрагментировать.

Скорость процесса мономолекулярной фрагментации рассчитывалась по формуле [8]:

$$k^{n,m} \text{ (с}^{-1}\text{)} = 3 \cdot 10^{13} n^{2/3} \exp(6n^{-1/3}) \cdot \exp\left(-\frac{E_{th}^{n,m}}{k_B T}\right). \quad (6)$$

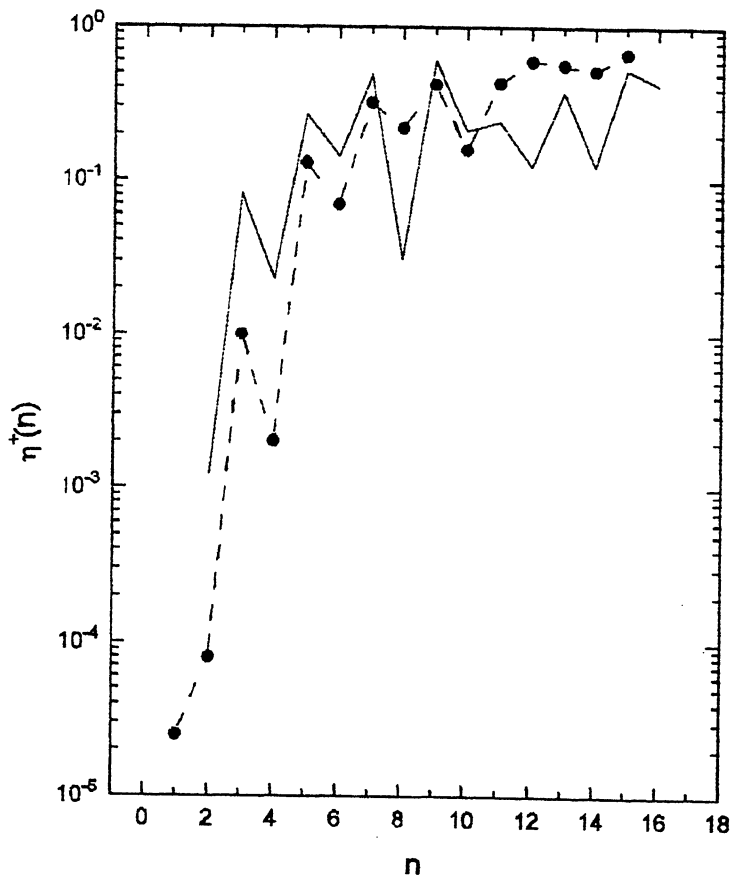
Конкретный расчет величины  $\eta^+(n)$  проводился для распыленных кластеров  $Ag_n$  при бомбардировке серебра ионами  $Ag^+$  ( $E_0 = 5$  кэВ). При значениях констант, полученных в работе [6],  $\alpha = 2.9$ ,  $a = 1.54$  эВ,  $b = 1.65$  эВ.

Величина энергии ионизации  $IP(n)$ ,  $n \leq 36$ , определялась по результатам расчетов [9]. При  $n > 36$  зависимость  $IP(n)$  аппроксимировалась выражением  $IP(n) = e\varphi + \frac{\gamma}{r, n^{1/3}}$ , где  $e\varphi$  — работа выхода металла,  $\gamma$  — константа.

На рис. 1 показано сравнение рассчитанных величин  $\eta^+(n)$  кластеров  $Ag_n$  и измеренных в [2]. Видно, что с ростом  $n$   $\eta^+(n)$  стремится к единице, в согласии с экспериментом.

Таким образом, рассмотренный в работе механизм положительной ионизации распыленных кластеров металлов позволяет понять физическую причину их аномально высокой степени ионизации и даже получить неплохое количественное согласие с экспериментом без использования подгоночных параметров.

Интересно отметить, что в недавней работе [10], где распыление и фрагментация кластеров моделировались методом молекулярной динамики, было установлено, что процесс превращения нейтральных нестабильных кластеров,



Зависимости степени ионизации распыленных кластеров  $Ag_n$  от числа атомов в кластере. Штриховая линия — эксперимент [2], сплошная линия — расчет.

только что покинувших поверхность, в стабильные фрагменты происходит за времена в несколько пс. В то же время в экспериментах [7], где изучалось распыление положительных кластерных ионов, максимальные времена жизни кластеров после их отрыва от поверхности превышали  $10^{-7}$  с. Кажущееся противоречие между расчетами и экспериментом легко устраняется, если принять во внимание, что ионизация кластера за счет его внутренней энергии сопровождается уменьшением последней на величину энергии ионизации. Как видно из формулы (6), это уменьшение может существенно увеличить время жизни кластера по отношению к фрагментации.

Для более полной экспериментальной проверки справедливости данного механизма представляет интерес изучение зависимости степени ионизации распыленных кластеров от состояния поверхности (ее работы выхода). Чем слабее выражена эта зависимость, тем больше вклад в зарядообразование рассмотренного механизма по сравнению с электронно-обменным.

### Список литературы

- [1] *Wucher A., Wahl M., Oechsner H.* // Nucl. Inst. and Meth. B. 1993. V. 82. P. 337-346.
- [2] *Wucher A., Wahl M., Oechsner H.* // Nucl. Inst. and Meth. B. 1993. V. 83. P. 73-78.
- [3] *Yu M.L.* // Sputtering by particle bombardment III / Ed. Behrich and Wittmaact. Berlin: Springer. P. 91.
- [4] *Bitensky I.S., Parilis E.S., Wojciechowski I.A.* // Nucl. Inst. and Meth. B. 1992. V. 67. P. 595-599.
- [5] *Klots C.E.* // Chem. Phys. Lett. 1991. V. 186. P. 73-76.
- [6] *Wucher A.* // Nucl. Inst. and Meth. B. 1993. V. 83. P. 79-86.
- [7] *Джемилев Н.Х., Веротунов С.В.* // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1985. Т. 49. С. 1831-1834.
- [8] *Klots C.E.* // Z. Phys. D. 1991. V. 20. P. 105-109.
- [9] *Jackschath C., Rabin I., Schulze W.* // Z. Phys. D. 1992. V. 22. P. 517.
- [10] *Wucher A., Garrison B.J.* // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. P. 4855-4864.

Институт электроники АН РУз  
Ташкент

Поступило в Редакцию  
7 апреля 1995 г.