

02;11

Природа концентрационных порогов выхода атомов европия с поверхности окисленного вольфрама при электронно-стимулированной десорбции

© С.Ю. Давыдов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург
С.-Петербургский государственный электротехнический университет
(ЛЭТИ)

Поступило в Редакцию 10 сентября 2001 г.

Обсуждаются природа электронно-стимулированной десорбции (ЭСД) атомов европия при энергиях облучающих электронов E_e , равных 50 и 80 eV, и особенности зависимости выхода атомов Eu от их концентрации на поверхности окисленного вольфрама. Показано, что ЭСД возникает при переходе электрона с внутренней $5p$ - или $5s$ -оболочки поверхностного атома вольфрама на внешний незаполненный $2p$ -уровень кислорода.

Исследование электронно-стимулированной десорбции (ЭСД) атомов европия с покрытой монослоем кислорода поверхности вольфрама (O/W) [1,2] показало, во-первых, что зависимость выхода q атомов Eu от энергии бомбардирующих электронов E_e имеет ярко выраженный резонансный характер и, во-вторых, зависимость q от степени покрытия поверхности Θ адатомами европия имеет концентрационные пороги Θ^* . Так, например, для пиков $q(E_e)$, отвечающих энергиям $E_e = 50$ и 80 eV (в дальнейшем пик-50 и пик-80), значения Θ^* равны соответственно 0.07 и 0.35, причем выход атомов европия при $\Theta < \Theta^*$ отсутствует. Что же касается пика $q(E_e)$, отвечающего энергии $E_e = 33$ eV (пик-33), то здесь имеются два порога $\Theta_1^* = 0.03$ и $\Theta_2^* = 0.35$, причем $q(\Theta) \neq 0$ лишь в области $\Theta_1^* < \Theta < \Theta_2^*$.

Теоретическому анализу полученных в [1,2] результатов посвящены работы [3–5], где рассматривалось электронное состояние адатомов Eu на поверхности O/W [3] и анализировались различные механизмы

ЭСД [4,5]. Так, например, в [5] была предложена модель, позволяющая понять природу зависимостей $q(E_e)$ и $q(\Theta)$ для пика-33. В настоящей работе мы покажем, что аналогичная модель пригодна и для описания особенностей пиков-50 и 80.

Из анализа экспериментальных результатов известно, что ЭСД атомов европия при $E_e = 50$ и 80 eV связана с созданием вакансий соответственно в $5p$ - и $5s$ -оболочках поверхностного атома вольфрама [1,2,4]. Рассмотрим следующий набор уровней в системе Eu–O/W: 1) возбужденный $2p$ -уровень атома кислорода с энергией $\varepsilon_p(\Theta)$, первоначально (до создания дырки во внутренней оболочке поверхностного атома вольфрама) пустой, а в конечном состоянии (после создания дырки) заполненный одним электроном; 2) одноэлектронный $6s$ -уровень атома европия с "центром тяжести", соответствующим энергии $\varepsilon(\Theta)$, число заполнения которого равно $n(\Theta) < 1$; 3) $5p$ - или $5s$ -уровень W, первоначально заполненный, а в конечном состоянии пустой. Отметим, что предложенный набор уровней аналогичен набору модели [5], с тем, однако, отличием, что вместо внутренних уровней W в [5] рассматривался $5p$ -уровень Eu, а вместо $2p$ -уровня кислорода — пустой $6p$ -уровень атома европия. Энергия такой трехуровневой системы в начальном (безвакансионном) состоянии есть

$$E_0(\Theta) = \varepsilon(\Theta)n(\Theta) + \varepsilon_i, \quad (1)$$

где ε_i — энергия внутреннего уровня ($5p$ или $5s$). Здесь и далее энергия отсчитывается от уровня Ферми системы.

Рассмотрим, как и в [5], два сценария создания вакансии во внутренних оболочках вольфрама. Согласно сценарию-1, выбитый электрон перебрасывается на свободный квазиуровень кислорода, т. е. имеет место *межатомный* переход (в отличие от *внутриатомного*, рассмотренного в [5] для пика-33). При этом потенциальная энергия возбужденной системы E_1 принимает вид:

$$E_1(\Theta) = \varepsilon(\Theta)[1 + n(\Theta)] + Un(\Theta) - G[1 + n(\Theta)]. \quad (2)$$

Здесь U — энергия отталкивания электронов, локализованных на кислороде и европии; G — энергия притяжения выбитого электрона, локализованного на кислороде к дырке, локализованной на вольфраме.

Для простоты мы положили энергии $\varepsilon_p(\Theta)$ и $\varepsilon(\Theta)$ равными друг другу.¹ Согласно сценарию-2, выбитый из оболочки W электрон выбрасывается в вакуум. Потенциальная энергия такого возбужденного состояния E_2 есть

$$E_2(\Theta) = [\varepsilon(\Theta) - G]n(\Theta). \quad (3)$$

Для ионизации по сценарию-1 при том же значении E_e , что и при сценарии-2, необходимо, чтобы избыток энергии уносился плазмонами (см. подробнее в [5]).

Для дальнейшего анализа необходимо рассмотреть величину, представляющую собой разность энергий возбужденных состояний 1 и 2:

$$\Delta W \equiv E_1 - E_2 = Un(\Theta) + \varepsilon(\Theta) - G. \quad (4)$$

Если $\Delta W < 0$, то энергетически предпочтителен сценарий-1, в противоположном случае — сценарий-2. Исходя из резонансного характера пиков-50 и 80, а также их порогов [1,2], следует предположить, что за ЭСД атомов европия ответствен именно сценарий-1, так как при больших значениях энергии бомбардирующих электронов E_e выход атомов Eu отсутствует, хотя ионизация по сценарию-2 должна иметь место. Отметим также, что условие $\Delta W < 0$ в пределе нулевой ширины квазиуровня кислорода соответствует его заполнению одним электроном, что согласуется со сценарием-1. Отметим также, что условие $\Delta W = 0$ может означать как начало, так и прекращение процесса ЭСД (см. рис. 4 работы [5]).

Из выражения (4) и знака ΔW следует (см. Приложение), что при выполнении условия

$$\frac{\partial n(\Theta)}{\partial \Theta} < \frac{3}{2} \sqrt{\Theta} \frac{\xi[1 - n(\Theta)]}{U + \xi\Theta^{3/2}} \quad (5)$$

имеет начало ЭСД процесса (переход от $\Delta W > 0$ к $\Delta W < 0$), тогда как при обратном знаке неравенства — срыв ЭСД. Таким образом, выраже-

¹ Строго говоря, мы имеем поверхностную зону 1, сформированную состояниями вольфрама и кислорода, ширина которой порядка 4–5 eV [3]. При малых концентрациях Θ квазиуровни атомов европия перекрываются с этой зоной, а при больших Θ формируется квазидвумерная зона 2, встроенная в полосу 1. Поэтому допустимо положить $\varepsilon_p(\Theta) = \varepsilon(\Theta)$. Такое упрощение не является принципиальным, так как в противном случае в задаче просто появляется дополнительный параметр.

ние (5) (совместно с условием $\Delta W = 0$) определяет концентрационный порог Θ_1^* , тогда как обратное по отношению к (5) неравенство дает порог Θ_2^* . При выводе (5) было учтено, что (см. подробнее в [5])

$$\varepsilon(\Theta) = \varepsilon_0 - \xi \Theta^{3/2} [1 - n(\Theta)], \quad \xi = 2e^2 \lambda^2 N_{ML}^{3/2} A. \quad (6)$$

Здесь ξ — константа диполь-дипольного взаимодействия адатомов европия, N_{ML} — концентрация адатомов европия в монослое, 2λ — плечо поверхностного диполя, $A \approx 10$ — коэффициент, слабо зависящий от геометрии адслоя, ε_0 — энергия $6s$ -квазиуровня адатома Eu при нулевом покрытии. Так как (см. [5])

$$n(\Theta) = \pi^{-1} \operatorname{arccctg} [\varepsilon(\Theta)/\Gamma], \quad (7)$$

где Γ — полуширина квазиуровня европия, получим вместо (5) простое условие возникновения ЭСД

$$\rho(\Theta)U < 1, \quad \rho(\Theta) = \pi^{-1} \frac{\Gamma}{\varepsilon(\Theta)^2 + \Gamma^2}, \quad (8)$$

где $\rho(\Theta)$ — плотность состояний на уровне Ферми адатома Eu. Неравенство $\rho(\Theta)U > 1$ отвечает срыву ЭСД.

Сделаем численные оценки, воспользовавшись результатами расчетов [5]. Принимая $\varepsilon_0 = 1 \text{ eV}$, $\xi = 24.89 \text{ eV}$, $\Gamma = 0.25 \text{ eV}$ для покрытий $\Theta^* = 0.07$ (пик-50) и 0.35 (пик-80), получим соответственно следующие значения чисел заполнения и энергий квазиуровня адатома европия: $n = 0.14$, $\varepsilon = 0.63 \text{ eV}$; $n = 0.76$, $\varepsilon = -0.26 \text{ eV}$. Для монослойного покрытия $\Theta = 1$ имеем $n = 0.92$, $\varepsilon = -0.99 \text{ eV}$. Так как параметр межатомного отталкивания электронов U идентичен рассмотренному в [4] матричному элементу V и, следовательно, равен 0.74 eV , из условия $\Delta W = 0$ найдем соответственно для пиков-50 и 80 значения $G = 0.73$ и 0.40 eV . Величина $\rho(\Theta^*)U$ равна 0.13 и 0.45 соответственно для пиков-50 и 80, т.е. в соответствии с данными эксперимента значения $\Theta^* = 0.07$ и 0.35 отвечают возникновению ЭСД. При монослойном покрытии $\Delta W = -1.04$ и -0.71 eV для пиков-50 и 80, т.е. срыв ЭСД в пределах монослоя отсутствует, что также подтверждается экспериментом [1,2].

Для сравнения рассмотрим характеристики пика-33: при $\Theta_1^* = 0.03$ имеем $n = 0.9$, $\varepsilon = 0.88 \text{ eV}$. Параметры U и G определим из условия

$\Delta W = 0$ при покрытиях Θ_1^* и Θ_2^* , что дает $U = 1.72$ eV и $G = 1.04$ eV. Тогда получим $\rho(\Theta_1^*)U = 0.16$ и $\rho(\Theta_2^*)U = 1.04$. То, что в случае пика-33 получены более высокие значения кулоновских параметров, представляется вполне естественным, так как здесь мы имеем дело с внутриатомным, а не межатомным взаимодействием.

Итак, в настоящей работе на основании анализа концентрационных порогов ЭСД мы показали, что выход атомов европия, отвечающий пикам-50 и 80, связан с межатомным переходом электрона с внутренней оболочки поверхностного атома вольфрама на первоначально незаполненный внешний p -уровень кислорода, тогда как процесс ЭСД, отвечающий пику-33, связан с внутриатомным переходом электрона с внутренней оболочки атома европия на его внешний уровень.

В заключение кратко остановимся на различии концентрационных зависимостей $q(\Theta)$ для пика-33 с одной стороны и пиков-50 и 80 с другой [2].

По нашему мнению, характер зависимости $q(\Theta)$ для пика-33 определяется вероятностью *первой* стадии процесса ЭСД — переходом электрона с $5p$ -уровня европия на его $6p$ -уровень. Действительно, на том основании, что теоретическая кривая $\Delta W(\Theta)$ (рис. 4, случай 1b [5]) напоминает экспериментальную зависимость $q(\Theta)$ (рис. 2, случай 1 [2]), можно предположить, что $q(\Theta) \propto |\Delta W|^\alpha$, где α — показатель степени. С другой стороны, $q(\Theta)$ для пиков-50 и 80 очень хорошо описывается в [4] на основании теории перезарядки [6,7]. Последнее означает, что за концентрационную зависимость выхода атомов Eu при $E_e = 50$ и 80 eV ответственна *последняя* стадия процесса ЭСД — обмен электронами между слетающей частицей и подложкой.

Автор благодарен В.Н. Агееву, Ю.А. Кузнецову и Н.Д. Потехиной за стимулирующую дискуссию.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 99-02-17972) в рамках Российской федеральной программы "Поверхностные атомные структуры" (проект № 4.5.99).

Приложение

Так как число заполнения адатома $n(\Theta)$ определяется выражениями (6) и (7) (см., например, [5]), легко показать, что

$$\frac{\partial n(\Theta)}{\partial \Theta} = \frac{3}{2} \sqrt{\Theta} \frac{\rho(\Theta)\xi[1-n(\Theta)]}{1+\Theta^{3/2}\rho(\Theta)\xi}, \quad (\text{П.1})$$

$$\frac{\partial \varepsilon(\Theta)}{\partial \Theta} = -\frac{3}{2} \sqrt{\Theta} [1-n(\Theta)] + \Theta^{3/2} \xi \frac{\partial n(\Theta)}{\partial \Theta},$$

где плотность состояний адатома на уровне Ферми $\rho(\Theta)$ определяется выражением (8). С другой стороны, исходя из выражения (4) и условия появления ЭСД ($\Delta W < 0$) получим

$$U \frac{\partial n(\Theta)}{\partial \Theta} < -\frac{\partial \varepsilon(\Theta)}{\partial \Theta}. \quad (\text{П.2})$$

Подставляя в (П.2) выражения (П.1), получим соотношение (5).

Список литературы

- [1] Агеев В.Н., Кузнецов Ю.А. // Письма в ЖТФ. 2000. Т. 26. В. 13. С. 86.
- [2] Агеев В.Н., Кузнецов Ю.А., Потехина Н.Д. // ФГТ. 2001. Т. 43. В. 10. С. 1890.
- [3] Давыдов С.Ю. // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. В. 7. С. 68.
- [4] Давыдов С.Ю. // ФГТ. 2001. Т. 43. В. 9. С. 1710.
- [5] Давыдов С.Ю. // ФГТ. 2002. Т. 44. В. 2. С. 375.
- [6] Davydov S.Y. // Surf. Sci. 1998. V. 407. N 1–3. P. L652.
- [7] Davydov S.Y. // Surf. Sci. 1998. V. 411. N 1–3. P. L878.