

ЭНЕРГИИ, ЗАРЯДЫ И РАЗМЕРЫ КЛАСТЕРОВ ПРИ ИОННОМ РАСПЫЛЕНИИ МЕТАЛЛА

В. И. Матвеев, С. А. Кочжин*

*Поморский государственный университет им. М. В. Ломоносова
163002, Архангельск, Россия*

Поступила в редакцию 11 сентября 2009 г.

Развита теория ионного распыления металла в виде нейтральных и заряженных кластеров с числом атомов $N \geq 5$, основанная на простых физических предположениях и находящаяся в неплохом согласии с экспериментом. Результаты представлены в виде удобных для использования формул. В качестве примера проведены расчеты энергетических спектров кластеров, зарядовых распределений, коэффициентов ионизации и полных выходов нейтральных и заряженных кластеров при различных температурах мишени.

1. ВВЕДЕНИЕ

Распыление твердых тел при ионной бомбардировке играет важную роль во многих направлениях науки и техники. Связано это прежде всего с технологическими применениями в микро- и нанoeлектронике, космической и термоядерной технологиях. Исследованиям явления ионного распыления твердых тел уделяется большое внимание (см., например, обзоры [1–6] и приведенные там ссылки). Продукты распыления состоят из различного количества атомов мишени, однако, как правило, в составе в значительном количестве представлены отдельные нейтральные атомы мишени. Теория распыления в виде одиночных атомов мишени хорошо разработана и в значительной степени базируется на так называемом каскадном механизме распыления. Механизмы же распыления в виде связанных атомов мишени (кластеров) представляют, до настоящего времени, объект дискуссии, поскольку неудовлетворительно описывают образование больших кластеров и существенно отличаются от механизмов образования кластеров в газовых и плазменных средах.

По механизму передачи энергии от бомбардирующего иона атомам мишени различают упругое и неупругое распыление [1, 4] твердых тел. В режиме неупругого распыления, который, как правило, реализуется [5] при взаимодействии быстрых (движущихся со скоростью порядка 10^9 см/с) ионов и многозарядных ионов с поверхностью, потери энергии иона происходят за счет возбуждений электронной подсистемы твердого тела с последующей передачей энергии электронных возбуждений атомам твердого тела. В режиме упругого распыления, реализующегося [1, 4], как правило, при бомбардировке ионами небольших зарядов с энергиями от нескольких единиц до нескольких десятков килоэлектронвольт, передача энергии налетающего иона атомам мишени происходит непосредственно при упругих столкновениях иона с атомами мишени с последующим перераспределением энергии при развитии каскада столкновений.

Мы будем рассматривать явление распыления именно в упругом режиме. Последовательные расчеты и полное теоретическое описание процессов распыления крайне затруднены прежде всего многочастичным характером задачи как на стадии внедрения ионов в твердое тело, так и на стадии формирования продуктов распыления — кластеров [7–9]. Поэтому расчеты процессов распыления обычно проводятся методами молекулярной динамики [1, 3, 10–13], позволяющими путем численного моделирования провести детальное количественное описание на всех стадиях распыления. Сложность подобных расчетов возрастает по мере роста числа атомов, входящих в состав многоатомных продуктов распыления. Помимо этого, необходимо включать в схему молекулярной динамики процессы формиро-

вания ионов в твердое тело, так и на стадии формирования продуктов распыления — кластеров [7–9]. Поэтому расчеты процессов распыления обычно проводятся методами молекулярной динамики [1, 3, 10–13], позволяющими путем численного моделирования провести детальное количественное описание на всех стадиях распыления. Сложность подобных расчетов возрастает по мере роста числа атомов, входящих в состав многоатомных продуктов распыления. Помимо этого, необходимо включать в схему молекулярной динамики процессы формиро-

*E-mail: matveev.victor@pomorsu.ru

вания зарядового состава продуктов распыления и рассчитывать динамику атомов совместно с решением многочастичной квантовой задачи для электронов.

Исследованиям формирования зарядового состава одноатомных распыленных либо рассеянных поверхностью металла частиц посвящено значительное число экспериментальных и теоретических работ (см., например, обзор [6, сс. 137–236]). Механизм же формирования зарядового состава полиатомных частиц значительно менее исследован [14–17] как теоретически, так и экспериментально. Надежные аргументы в пользу того или иного механизма кластерообразования до настоящего времени так и не приведены, в том числе и по той причине, что такой механизм должен объяснять также зарядовый состав, масс-спектры и энергораспределения конечных продуктов. Известно, что экспериментальная регистрация заряженных частиц в техническом смысле существенно проще по сравнению с регистрацией нейтральных частиц, причем часто процессы формирования зарядового состава, т. е. процессы эмиссии заряженных и нейтральных частиц, взаимосвязаны. Поэтому экспериментальные данные для заряженных частиц позволяют косвенным образом восстановить данные для нейтральных частиц и, тем самым, существенно упростить установку и соответствующие измерения.

В настоящей статье развита теория распыления металла в виде нейтральных и заряженных кластеров под действием ионной бомбардировки, основанная на простых физических предположениях и находящаяся в согласии с экспериментом. Наше рассмотрение использует физические идеи работ [18–21], однако, на наш взгляд, построено более рационально и удобно в применении. Получены простые выражения для энергетических спектров кластеров, зарядовых распределений, полных выходов нейтральных и заряженных кластеров. Предлагаемый подход принципиально не применим к распылению в виде одиночных атомов или малых кластеров, а из сравнения с экспериментом может быть сделан вывод о применимости подхода, начиная с конкретного числа атомов в кластере ($N \geq 5$). Полное количественное и детальное описание процессов ионного распыления возможно лишь численными методами молекулярной динамики. Предложенную теорию следует применять до проведения таких расчетов с целью предварительной оценки ситуации и описания физических механизмов формирования продуктов ионного распыления в виде нейтральных и заряженных кластеров.

2. РАСЧЕТ ВЕРОЯТНОСТЕЙ

Будем считать, что твердое тело состоит из атомов, каждый из которых находится в осцилляторной яме глубиной Δ и имеет собственную частоту ω . Характерный период колебаний $T = 2\pi/\omega$. Пусть скорость налетающего на тело иона такова, что за время $\tau \ll T$ ион и быстрые атомы отдачи при движении в металле претерпевают большое число столкновений, в результате которых атомы металла получают некоторые импульсы \mathbf{q}_i , где i — номер атома. Выделим блок из N атомов. Неравенство $\tau \ll T$ позволяет считать, что результат пролета иона сквозь систему из N атомов сводится к мгновенной и одновременной передаче атомам импульсов \mathbf{q}_i , ($i = 1, 2, \dots, N$), а центру масс блока — импульса $\sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i$. Экспериментально явление распыления наблюдают при бомбардировке поверхности твердого тела потоком ионов, каждый ион создает свой каскад со своим определенным набором импульсов $\{\mathbf{q}_i\}$. Целью нашего рассмотрения является расчет вероятностей событий, соответствующих отрыву блока атомов как целого в виде стабильного нейтрального или заряженного кластера, поэтому поступим так. Сначала рассчитаем вероятность вылета центра масс блока, затем сформулируем условие стабильности блока относительно его распада и получим соответствующую вероятность и, наконец, найдем вероятность формирования того или иного зарядового состояния. Окончательный ответ будет представлен в виде произведения перечисленных выше вероятностей.

Рассмотрим сначала вероятность передачи центру масс блока из N атомов импульса \mathbf{p} . Сделаем естественное предположение относительно распределения значений \mathbf{q}_i ($i = 1, 2, \dots, N$): считаем все импульсы \mathbf{q}_i независимыми, а все их направления равновероятными. Тогда вероятность обнаружить значение $\sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i = \mathbf{p}$ в элементе объема $d\mathbf{p}$ вокруг \mathbf{p} равна

$$\begin{aligned}
 W_N(\mathbf{p}) d\mathbf{p} &= d\mathbf{p} \iint \dots \int \frac{d\Omega_{\mathbf{q}_1}}{4\pi} \frac{d\Omega_{\mathbf{q}_2}}{4\pi} \dots \frac{d\Omega_{\mathbf{q}_N}}{4\pi} \times \\
 &\quad \times \delta\left(\sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i - \mathbf{p}\right) = \\
 &= d\mathbf{p} \iint \dots \int \frac{d\Omega_{\mathbf{q}_1}}{4\pi} \frac{d\Omega_{\mathbf{q}_2}}{4\pi} \dots \frac{d\Omega_{\mathbf{q}_N}}{4\pi} \frac{1}{(2\pi)^3} \times \\
 &\quad \times \int d\mathbf{r} \exp\left[-i\left(\sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i - \mathbf{p}\right) \cdot \mathbf{r}\right], \quad (1)
 \end{aligned}$$

где $\Omega_{\mathbf{q}_i}$ — углы вектора \mathbf{q}_i в сферической системе координат. Очевидно, что вероятность $W_N(\mathbf{p})$ нормирована: $\int W_N(\mathbf{p}) d\mathbf{p} = 1$. Далее, как и в работах [18–21], для простоты будем считать, что хотя все \mathbf{q}_i направлены совершенно хаотично, но по длине все одинаковы, т.е. $|\mathbf{q}_i| = q$ для всех $i = 1, 2, \dots, N$. Легко найти, что

$$\frac{1}{4\pi} \int d\Omega_{\mathbf{q}_i} \exp(-i\mathbf{q}_i \cdot \mathbf{r}) = \frac{\sin(qr)}{qr}.$$

В результате выражение (1) примет вид

$$W_N(\mathbf{p}) d\mathbf{p} = \frac{d\mathbf{p}}{2\pi^2} \int_0^\infty r^2 dr \frac{1}{pr} \sin(pr) \left(\frac{1}{qr} \sin(qr) \right)^N. \quad (2)$$

Входящий в эту формулу интеграл легко вычисляется, если воспользоваться формулой $(x^{-1} \sin x)^N \approx \exp(-Nx^2/6)$, справедливой при $N \gg 1$ и которую легко получить, если учесть, что функция $f(x) = (x^{-1} \sin x)^N$ удовлетворяет при $N \gg 1$ дифференциальному уравнению $df(x)/dx \approx -Nxf(x)/3$. Действительно,

$$\begin{aligned} \frac{d}{dx} \left(\left(\frac{\sin x}{x} \right)^N \right) &= \\ &= N \left(\frac{\sin x}{x} \right)^{N-1} \left(\frac{\cos x}{x} - \frac{\sin x}{x^2} \right) \approx \\ &\approx N \left(\frac{\sin x}{x} \right)^{N-1} \left(-\frac{x}{3} \right) \approx -N \frac{x}{3} \left(\frac{\sin x}{x} \right)^N. \end{aligned}$$

Поэтому входящий в уравнение (2) интеграл легко вычисляется, в результате чего оно принимает вид

$$W_N(\mathbf{p}) d\mathbf{p} = \frac{d\mathbf{p}}{8\pi^{3/2}} \frac{1}{(Nq^2/6)^{3/2}} \exp\left(-\frac{p^2}{4(Nq^2/6)}\right). \quad (3)$$

Считаем, что центр масс блока из N атомов находится в потенциальной яме глубиной U_N , которую будем называть энергией связи кластера с металлом. Блок из N атомов может вылететь, если его кинетической энергии движения как целого хватит на преодоление энергии связи U_N . Таким образом, если $\mathbf{p}^2/2mN > U_N$ (m — масса атома), то центр масс блока из N атомов с вероятностью $W_N(\mathbf{p}) d\mathbf{p}$ может вылететь из ямы глубиной U_N и будет двигаться с кинетической энергией $E = \mathbf{p}^2/2mN - U_N$. Для получения энергетического спектра необходимо представить $d\mathbf{p}$ в виде

$$d\mathbf{p} = p^2 dp d\Omega_{\mathbf{p}} = mN \sqrt{2mN(E + U_N)} dE d\Omega_{\mathbf{p}},$$

причем, поскольку в выражении (3) $W_N(\mathbf{p})$ не зависит от направления \mathbf{p} , можно заменить $d\Omega_{\mathbf{p}}$ на Ω — телесный угол вылета центра масс блока с поверхности. В результате энергетический спектр вылетающих в телесный угол Ω кластеров имеет вид

$$\frac{dW_N}{dE} = \Omega \frac{m\sqrt{2m(E + U_N)}}{8\pi^{3/2}(q^2/6)^{3/2}} \times \exp\left(-\frac{3m(E + U_N)}{q^2}\right). \quad (4)$$

Полную вероятность вылета N -атомного кластера в телесный угол Ω получаем, интегрируя спектр (4) по всем кинетическим энергиям:

$$W_N = \int_0^\infty \frac{dW_N}{dE} dE = \frac{\Omega}{2\pi\sqrt{\pi}} \Gamma\left(\frac{3}{2}, \frac{3mU_N}{q^2}\right), \quad (5)$$

где $\Gamma(\nu, x) = \int_x^\infty t^{\nu-1} e^{-t} dt$ — неполная Γ -функция [22].

Нас интересует вылет блока из N атомов как целого без последующего развала, другими словами, — вылет стабильных кластеров, поэтому поступим так. Для расчета вероятности такого рода событий проще воспользоваться аппаратом квантовой механики. Будем придерживаться модели Эйнштейна и заменим блок из N атомов на систему из N независимых одинаковых осцилляторов с собственной частотой ω . Произвольное состояние трехмерного изотропного осциллятора с номером i (i -й атом) будем описывать волновой функцией $|n_{ix}, n_{iy}, n_{iz}\rangle$, характеризуемой тремя квантовыми числами, n_{ix}, n_{iy}, n_{iz} , такими, что энергия этого состояния выражается через главное квантовое число $n_i = n_{ix} + n_{iy} + n_{iz}$ следующим образом: $\varepsilon_{n_i} = \omega(n_i + 3/2)$. Здесь и везде ниже придерживаемся атомной системы единиц. Предполагаем, что до сообщения осциллятору импульса \mathbf{q}_i он находится в основном состоянии $|0, 0, 0\rangle$. Тогда вероятность обнаружить осциллятор с номером i (i -й атом) в любом из состояний с главным квантовым числом n_i равна

$$\begin{aligned} w_{ni} &= \sum_{n_{ix} + n_{iy} + n_{iz} = n_i} |\langle n_{ix}, n_{iy}, n_{iz} | \times \\ &\quad \times \exp[-i(\mathbf{q}_i \cdot \mathbf{r}_i)] |0, 0, 0\rangle|^2 = \\ &= \sum_{n_{ix} + n_{iy} + n_{iz} = n_i} \frac{1}{n_{ix}! n_{iy}! n_{iz}!} \left(\frac{q_{ix}^2}{2\alpha^2} \right)^{n_{ix}} \left(\frac{q_{iy}^2}{2\alpha^2} \right)^{n_{iy}} \times \\ &\quad \times \left(\frac{q_{iz}^2}{2\alpha^2} \right)^{n_{iz}} \exp\left(-\frac{\mathbf{q}_i^2}{2\alpha^2}\right) = \frac{1}{n_i!} \left(\frac{\mathbf{q}_i^2}{2\alpha^2} \right)^{n_i} \times \\ &\quad \times \exp\left(-\frac{\mathbf{q}_i^2}{2\alpha^2}\right), \quad (6) \end{aligned}$$

где $\alpha^2 = m\omega$, m — масса осциллятора (атома). Соответственно, вероятность возбуждения для N независимых осцилляторов имеет вид

$$w_{n_1} w_{n_2} \dots w_{n_N}.$$

Просуммируем эту вероятность по всем состояниям возбуждения (с условием $n = \sum_{i=1}^N n_i$, где n имеет смысл главного квантового числа системы из N осцилляторов):

$$\begin{aligned} w_n &= \sum_{n_1+n_2+\dots+n_N=n} w_{n_1} w_{n_2} \dots w_{n_N} = \\ &= \sum_{n_1, n_2, \dots, n_N} \frac{1}{n_1! n_2! \dots n_N!} \left(\frac{\mathbf{q}_1^2}{2\alpha^2}\right)^{n_1} \times \\ &\times \left(\frac{\mathbf{q}_2^2}{2\alpha^2}\right)^{n_2} \dots \left(\frac{\mathbf{q}_N^2}{2\alpha^2}\right)^{n_N} \exp\left(-\frac{1}{2\alpha^2} \sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i^2\right) = \\ &= \frac{1}{n!} \left(\frac{1}{2\alpha^2} \sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i^2\right)^n \exp\left(-\frac{1}{2\alpha^2} \sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i^2\right). \end{aligned} \quad (7)$$

Для квадрата матричного элемента в формуле (6) и суммирования нами использованы результаты Ферми [23, статья № 74] (см. также [24]) и обобщенная формула для бинорма Ньютона

$$\begin{aligned} \sum_{n_1+n_2+\dots+n_N=n} n! \frac{x_1^{n_1} x_2^{n_2} \dots x_N^{n_N}}{n_1! n_2! \dots n_N!} &= \\ &= (x_1 + x_2 + \dots + x_N)^n. \end{aligned}$$

Нас интересует вылет стабильных кластеров, поэтому следует просуммировать w_n по всем состояниям колебательного возбуждения n , меньших некоторого n_0 , когда энергии, запасенной в возбужденных осцилляторах, хватит на развал кластера; для этого достаточно считать, что $n_0 \approx \Delta/\omega$, когда энергии колебаний всех осцилляторов хватает на выброс одного атома из ямы глубиной Δ . Таким образом, необходимо вычислить

$$w = \sum_{n=0}^{n_0} w_n,$$

где $n_0 \gg 1$, поэтому сумму вычисляем следующим образом:

$$\begin{aligned} f(x) &= e^{-x} \sum_{n=0}^{n_0} \frac{1}{n!} x^n \approx e^{-x} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} x^n \exp\left(-\frac{n}{n_0}\right) = \\ &= \exp\left\{x \left[\exp\left(-\frac{1}{n_0}\right) - 1\right]\right\} \approx \exp\left(-\frac{x}{n_0}\right). \end{aligned}$$

Поэтому

$$\begin{aligned} w &= \exp\left(-\frac{1}{n_0} \frac{1}{2\alpha^2} \sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i^2\right) = \\ &= \exp\left(-\frac{1}{2m\Delta} \sum_{i=1}^N \mathbf{q}_i^2\right) = \exp\left(-\frac{Nq^2}{2m\Delta}\right). \end{aligned} \quad (8)$$

Таким образом, блок из N атомов вылетит из ямы глубиной U_N , если $\mathbf{p}^2/2mN > U_N$, в виде стабильного кластера с вероятностью

$$W_N w, \quad (9)$$

где W_N выражается формулой (5), а w — формулой (8). Соответствующий энергетический спектр вылетающих в телесный угол Ω стабильных кластеров имеет вид

$$\frac{dW_N}{dE} w, \quad (10)$$

где dW_N/dE выражается формулой (4).

3. ЗАРЯДОВЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ

Таким образом, мы вычислили вероятность отрыва кластера как целого (блока) без перемены мест атомов относительно друг друга. Процесс формирования зарядового состава является составной частью механизма распыления. Наше дальнейшее рассмотрение существенно использует положение, согласно которому большие кластеры вылетают как целое в виде блока атомов. Именно последнее позволяет определить зарядовое состояние блока из N атомов. Для этого, как и при статистическом выводе [25] формулы Саха–Ленгмюра, будем считать, что по мере удаления кластера от поверхности металла до некоторого расстояния ξ (называемого критическим) возможен обмен между электронами зоны проводимости металла и электронами атомов, входящих в состав кластера. При удалении кластера от металла на расстояния, превышающие ξ , электронный обмен неадиабатически прекращается. Везде ниже, говоря об электронах кластера, будем иметь в виду только валентные электроны, а совокупность соответствующих состояний будем называть зоной проводимости кластера и считать, что именно между зонами проводимости металла и кластера возможен обмен. Будем также считать размер кластера достаточно большим и электронные состояния квазинепрерывными. Кластер, имеющий N_e электронов в зоне проводимости, будет электрически нейтральным, если $N_e = \bar{N}_e$, где \bar{N}_e — среднее число электронов в зоне проводимости кластера,

равное числу атомов N в кластере, умноженному на валентность γ (точнее, на число атомных электронов, отдаваемых нейтральным атомом металла в зону проводимости). Таким образом, заряд кластера

$$Qe = e(N_e - N\gamma) = e\Delta N_e,$$

где e — заряд электрона. Средний квадрат отклонений заряда кластера от равновесного значения $eQ_0 = \overline{Qe} = \overline{e(N_e - N\gamma)} = 0$ равен $\overline{(\Delta Q_N)^2} = e^2 \overline{\Delta N_e^2}$. Подставляя сюда известное выражение [26] для среднего квадрата флуктуации числа электронов в объеме V в идеальном ферми-газе при температурах, существенно меньших температуры вырождения, получим

$$\begin{aligned} \overline{(\Delta Q_N)^2} &= e^2 \overline{\Delta N_e^2} = e^2 = \Theta \frac{(2m_e)^{3/2}}{3\pi^2 \hbar^3} \frac{3}{2} \mu^{1/2} = \\ &= e^2 \frac{3^{1/3}}{\pi^{5/3}} \frac{m_e \Theta}{\hbar^2} \left(\frac{\overline{N_e}}{V} \right)^{1/3} V = \\ &= e^2 \frac{3^{1/3}}{\pi^{5/3}} \frac{m_e \Theta}{\hbar^2} \left(\frac{V}{N} \right)^{2/3} \gamma^{1/3} N, \end{aligned} \quad (11)$$

где m_e — масса электрона зоны проводимости, V — объем кластера, Θ — температура мишени. В атомной системе единиц $\hbar = m_e = e = 1$, однако, для дальнейших ссылок, эта формула записана в системе СГС.

Вероятности $P_N(Q)$ N -атомному кластеру иметь после вылета заряд Qe будем определять исходя из стандартной формулы для вероятности флуктуаций,

$$\begin{aligned} P_N(Q) &= \frac{1}{D_N} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \frac{Q^2}{(\Delta Q_N)^2} \right\}, \\ D_N &= \sum_Q \exp \left\{ -\frac{1}{2} \frac{Q^2}{(\Delta Q_N)^2} \right\}, \end{aligned} \quad (12)$$

где нормирующий множитель D_N определяется путем суммирования по всем возможным значениям $Q = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$

Таким образом, для получения вероятности вылета кластера с числом атомов N и зарядом Qe необходимо умножить вероятность $W_N w$ из выражения (10) на $P_N(Q)$. В результате получаем окончательное выражение для вероятности W_N^Q отрыва стабильного кластера, состоящего из N атомов и имеющего заряд Qe :

$$W_N^Q = W_N w P_N(Q). \quad (13)$$

Соответствующий энергетический спектр имеет вид

$$\frac{dW_N^Q}{dE} = \frac{dW_N}{dE} w P_N(Q). \quad (14)$$

Для удобства еще раз запишем входящие в формулы (13) и (14) сомножители, вводя обозначение для средней переданной энергии $\varepsilon = q^2/2m$:

$$\begin{aligned} \frac{dW_N}{dE} &= \Omega \frac{\sqrt{2(E + U_N)}}{8\pi^{3/2}(\varepsilon/3)^{3/2}} \exp \left(-\frac{3(E + U_N)}{2\varepsilon} \right), \\ W_N &= \frac{\Omega}{2\pi^{3/2}} \Gamma \left(\frac{3}{2}, \frac{3U_N}{2\varepsilon} \right), \\ w &= \exp \left(-\frac{N\varepsilon}{\Delta} \right). \end{aligned} \quad (15)$$

Как видно из приведенных выражений, из-за соображений размерности такая форма записи справедлива в произвольной (не только в атомной) системе единиц. Вероятность вылета (13) (как и энергетический спектр (14)) в телесный угол Ω не зависит от направления вылета и представляет собой произведение трех сомножителей: 1) W_N — вероятности вылета блока (dW_N/dE для спектра), зависящей только от энергии связи кластера, среднего импульса q и числа атомов в нем; 2) w — вероятности того, что кластер не распадается, зависящей только от энергии связи атома в металле, среднего импульса и числа атомов в кластере; 3) $P_N(Q)$ — вероятности N -атомному кластеру иметь определенный заряд Q . Первый сомножитель W_N (либо dW_N/dE) получен методами классической механики, а для вычисления второго сомножителя w оказалось проще воспользоваться методами квантовой механики с последующим переходом к пределу бесконечно малого расстояния между уровнями, тем самым было получено классическое выражение для w . В явной форме это видно из выражений (15), которые при переходе к системе СГС, очевидно, не содержат постоянной Планка. Принципиально квантовый характер имеет лишь третий сомножитель $P_N(Q)$, соответствующий вероятностям флуктуаций в вырожденном ферми-газе и содержащий, согласно выражениям (11), (12), постоянную Планка.

Остановимся подробнее на величине U_N — энергии связи кластера с металлом. Такая энергия связи пропорциональна площади поверхности S , по которой блок из N атомов соприкасается с остальным металлом. Пусть V — объем блока, тогда его характерный размер $R = V^{1/3}$, число атомов $N = dV = dR^3$, где d — число атомов в единице объема. Характерный размер кластера связан с числом атомов в нем: $R = (N/d)^{1/3}$.

Пусть блок погружен в металл на глубину H . Будем предполагать, что в процессе эмиссии кластеров участвуют лишь приповерхностные атомы, такие что $0 < H < R$, при $H = 0$ кластер до распы-

ления лежит на поверхности металла, при $H = R$ кластер до распыления полностью погружен в металл. Тогда поверхность S , по которой кластер из N атомов, погруженный до распыления на глубину H , соприкасается с остальным металлом, пропорциональна произведению HR :

$$S = aHR = a(H/R)R^2 = ahR^2,$$

здесь a — коэффициент пропорциональности и введена безразмерная величина $h = H/R$, меняющаяся в пределах $0 < h < 1$ и имеющая смысл относительной (к характерному размеру кластера) глубины погружения. Поэтому энергия связи кластера, пропорциональная S , равна

$$U_N = \sigma S = \sigma aR^2h = \sigma a(N/d)^{2/3}h = \delta N^{2/3}h, \quad (16)$$

где δ не зависит от N и, очевидно, имеет смысл энергии связи на один атом в кластере, полностью погруженном в металл, т. е. при $h = 1$. Таким образом, мы различаем Δ — глубину потенциальной ямы, в которой находится каждый атом твердого тела, и δ — долю энергии связи кластера с остальным металлом, отнесенную к одному атому в составе кластера. Везде ниже будем считать, что энергии U_N , Δ и δ не зависят от температуры мишени, т. е. будем ограничиваться температурами, меньшими температуры плавления. В таких случаях из всех множителей, входящих в формулы (13) и (14), от температуры мишени зависят только зарядовые характеристики, описываемые множителем $P_N(Q)$.

4. СРАВНЕНИЕ С ЭКСПЕРИМЕНТОМ

В экспериментах по измерению кинетической энергии E кластеров обычно измеряют нормированный на нулевую энергию кластера спектр, равный согласно (14),

$$I_N^Q = \frac{dW_N^Q/dE}{(dW_N^Q/dE)_{E=0}} = \sqrt{\frac{E + U_N}{U_N}} \exp\left(-\frac{3E}{2\varepsilon}\right). \quad (17)$$

Нормированный таким образом спектр не зависит от заряда кластера, температуры мишени и слабо зависит от числа атомов в кластере (поскольку, согласно выражению (17), зависимость от N входит лишь в предэкспоненциальный множитель).

При проведении расчетов, с целью ограничения числа подгоночных параметров, принималось, что

величины δ и Δ равны, а их общее значение выбиралось равным энергии сублимации [27], так что единственными варьируемыми параметрами в формуле (15) являются импульс q и содержащийся в выражении (16) для энергии связи множитель h , характеризующий степень погружения кластера в металл до распыления, другими словами, множитель, характеризующий степень «изрытости» поверхности металла в данном эксперименте. Значения среднего импульса q могут быть найдены лишь при проведении численных расчетов эволюции каскадов столкновений и не могут быть получены из общих соображений. Можно лишь привести интервал значений q , при которых возможен вылет многоатомных связанных комплексов. Действительно, если каждый атом, находящийся до распыления в потенциальной яме глубиной Δ , получает импульс q , то при $q > \sqrt{2m\Delta}$ с подавляющей вероятностью происходит распыление в виде отдельных атомов. Таким образом, можно ожидать, что возможен вылет многоатомных связанных комплексов, если значения q лежат в интервале $0 < q \leq \sqrt{2m\Delta}$. Во всех случаях хорошее согласие с экспериментом наблюдается при $q \sim \sqrt{2m\Delta}$. Отметим, что примерно такие же значения q соответствуют максимальному значению

$$W_N w = \sum_Q W_N w P_N(Q)$$

— вероятности (см. формулы (9) и (13)) вылета стабильного кластера. Действительно, если воспользоваться асимптотикой [22] неполной Γ -функции $\Gamma(a, z) = z^{a-1}e^{-z}$, справедливой при больших z , то максимум произведения $W_N w$ достигается при

$$q^2 = 2m\Delta\sqrt{3\delta/2\Delta}/N^{1/6} \sim 2m\Delta,$$

при $\delta \sim \Delta$ и не слишком больших N . Таким образом, малые отклонения q^2 в любую сторону от этого значения приводят к небольшому (относительно максимального значения вероятности и пропорциональному квадрату отклонения) уменьшению вероятности распыления.

На рис. 1 приведены наши расчеты и экспериментальные данные [28] для энергетического спектра однозарядных кластеров ниобия Nb_7^{+1} с числом атомов $N = 7$ при бомбардировке мишени из ниобия однозарядными ионами Au^{-1} с энергией 6 кэВ. Для ниобия $\delta = \Delta = 7.47$ эВ (энергия сублимации [27] ниобия), значение варьируемого параметра $q = 270$ ат. ед., значение $h = 0.3$.

На рис. 2 приведены наши расчеты и экспериментальные данные [29] для энергетических спектров

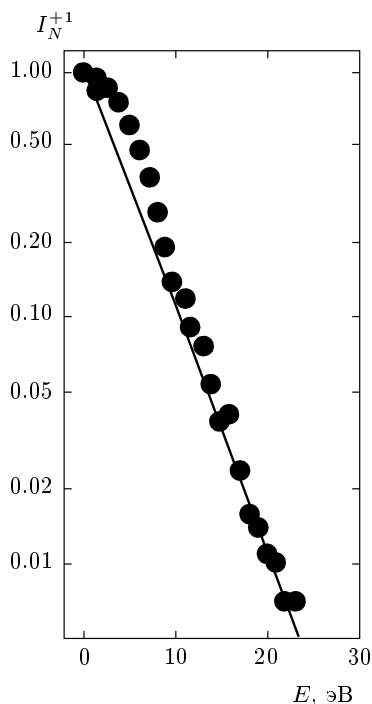


Рис. 1. Относительный энергетический спектр (нормированная интенсивность) I_N^{+1} однозарядных кластеров Nb_7^{+1} с числом атомов $N = 7$ при бомбардировке мишени из ниобия однозарядными ионами Au^{-1} с энергией 6 кэВ: сплошная линия — расчет при значении варьируемого параметра $q = 270$ ат. ед., $h = 0.3$; точки — эксперимент [28]

I_N^{+1} однозарядных кластеров железа Fe_N с числом атомов $N = 6-9$ при бомбардировке мишени из железа однозарядными ионами Xe^{+1} с энергией 8.5 кэВ. Для железа $\delta = \Delta = 4.29$ эВ (энергия сублимации [27] железа), значение варьируемого параметра $q = 210$ ат. ед., значение $h = 1.0$. Рисунок 2 иллюстрирует слабую зависимость относительных энергетических спектров от числа атомов в кластере.

В эксперименте обычно измеряют относительные вероятности Y_N^Q выхода кластеров с различным числом атомов. Поэтому для сравнения с экспериментом вероятность (13) следует сначала поделить на вероятность отрыва кластера с $N = 5$ (точнее, можно выбрать любое $N \geq 5$, но нам удобнее $N = 5$); аналогично нормируются и экспериментальные данные. Далее, при необходимости, можно перейти к любым удобным произвольным единицам. Таким образом, по определению, $Y_N^Q = W_N^Q / W_{N=5}^Q$. Необходимо отметить, что, согласно формулам (12)–(15), масс-спектры нейтральных кластеров не зависят от температуры мишени, то-

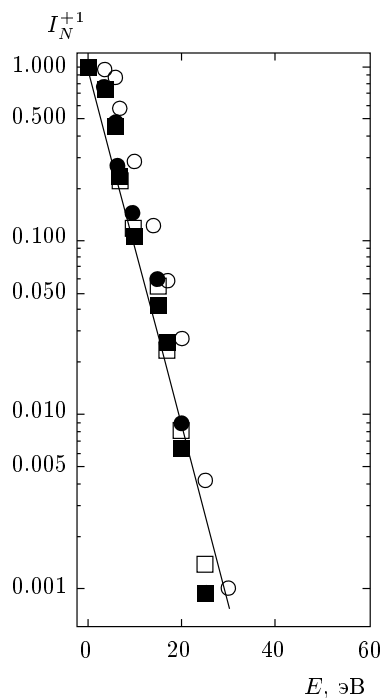


Рис. 2. Относительные энергетические спектры I_N^{+1} однозарядных кластеров Fe_N^{+1} с числом атомов в их составе $N = 6-9$ при бомбардировке мишени из железа однозарядными ионами Xe^{+1} с энергией 8.5 кэВ: сплошная линия — результат слияния в логарифмическом масштабе четырех линий, соответствующих расчетным значениям четырех величин I_N^{+1} для $N = 6-9$, при значении варьируемого параметра $q = 210$ ат. ед.; символы — эксперимент [29] (○ соответствуют кластерам Fe_6^{+1} , ● — Fe_7^{+1} , □ — Fe_8^{+1} , ■ — Fe_9^{+1})

гда как масс-спектры однозарядных кластеров существенно зависят от температуры мишени (см. также эксперимент [17]), однако с ростом температуры они приближаются к масс-спектрам нейтральных кластеров. На рис. 3 приведены относительные выходы однозарядных (Y_N^{+1}) и нейтральных (Y_N^0) кластеров Nb_N в зависимости от числа атомов N при бомбардировке мишени из ниобия однозарядными ионами Au^{-1} с энергией 6 кэВ и ионами Ag^{+1} с энергией 5 кэВ при температуре мишени соответственно $\Theta = 2073$ К и $\Theta = 300$ К. Линии — результаты наших расчетов (значения варьируемых параметров: для заряженных кластеров $q = 270$ ат. ед., $h = 0.3$; для нейтральных кластеров $q = 340$ ат. ед., $h = 0.3$), символы — экспериментальные данные для заряженных [30] и нейтральных [7] кластеров.

В качестве характеристики зарядового состава обычно используют вероятность ионизации, равную

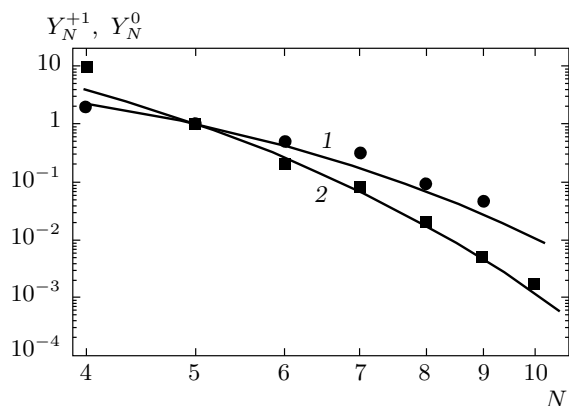


Рис. 3. Относительные выходы однозарядных и нейтральных кластеров Nb_N в зависимости от числа атомов N : 1 — результат нашего расчета относительного выхода $Y_N^{+1}(N)$ однозарядных кластеров при бомбардировке мишени из ниобия однозарядными ионами Au^{-1} с энергией 6 кэВ, при температуре мишени $\Theta = 2073$ К; \bullet — эксперимент [30]; 2 — относительный выход $Y_N^0(N)$ нейтральных кластеров при бомбардировке мишени из ниобия однозарядными ионами Ag^{+1} с энергией 5 кэВ, при температуре мишени $\Theta = 300$ К; \blacksquare — эксперимент [7]

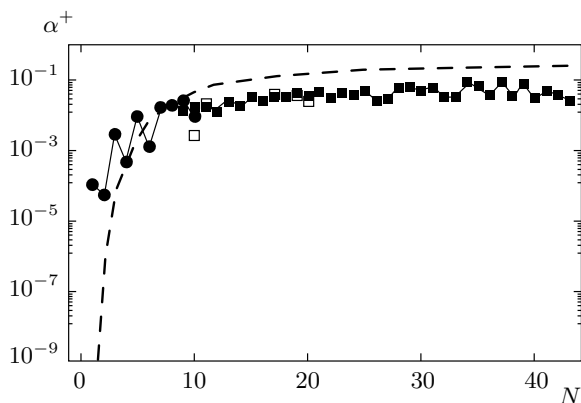


Рис. 4. Зависимость коэффициента однократной ионизации α^+ от числа атомов в кластерах Ag : штриховая кривая — расчет при температуре мишени $\Theta = 700$ К, соединенные ломаной линией символы (точки и квадраты) — экспериментальные данные [9]

отношению числа кластеров, имеющих заряд Q , к общему числу кластеров (при заданном размере кластера N). Согласно выражениям (13) и (15), вероятность ионизации равна

$$\frac{W_N^Q}{\sum_Q W_N^Q} = P_N(Q), \tag{18}$$

где $P_N(Q)$ определено формулой (12). На рис. 4 показана зависимость вероятности однократной ионизации $\alpha^+ = P_N(+1)$ кластеров серебра от размера кластера N , полученная нами при температуре мишени $\Theta = 700$ К, а также экспериментальные данные из работы [9]. Важной особенностью поведения является тенденция к насыщению с ростом размера кластеров, так что дальнейшие изменения с ростом N незначительны. Качественно такое поведение отмечается в экспериментах [8, 13].

Авторы благодарят РФФИ (грант №08-02-98801-р-север-а) и Администрацию Архангельской области за финансовую поддержку работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Фундаментальные и прикладные аспекты распыления твердых тел*, Мир, Москва (1989).
2. K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 52 (2006), *Special Issue on Ion Beam Science: Solved and Unsolved Problems*, ed. by P. Sigmund.
3. *Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies*, ed. by R. Behrisch and W. Eckstein, Springer, Berlin (2007).
4. A. Wucher, Appl. Surf. Sci. **252**, 6482 (2006).
5. И. А. Баранов, Ю. В. Мартыненко, С. О. Цепелевич, Ю. Н. Явлинский, УФН **156**, 478 (1998).
6. *Распыление под действием бомбардировки частицами*, вып. 3, под ред. Р. Берisha и К. Витмака, Мир, Москва (1998).
7. A. Wucher and W. Wahl, Nucl. Instr. Meth. B **115**, 581 (1996).
8. A. Wucher, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. **52**, 405 (2007).
9. C. Staudt, R. Heinrich, and A. Wucher, Nucl. Instr. Meth. B **164–165**, 677 (2000).
10. A. Wucher and B. Y. Garrison, J. Chem. Phys. **105**, 5999 (1996).
11. A. Brunelle, S. Della-Negra, C. Deprun et al., Int. J. Mass. Spectr. and Ion. Proc. **164**, 193 (1997).

12. Th. J. Colla, H. M. Urbassek, A. Wucher et al., Nucl. Instr. Meth. B **143**, 284 (1998).
13. R. Kissel and H. M. Urbassek, Nucl. Instr. Meth. B **180**, 293 (2001).
14. W. Wahl and A. Wucher, Nucl. Instr. Meth. B **94**, 36 (1994).
15. V. Kh. Ferleger, M. B. Medvedeva, and I. A. Wojciechowski, Nucl. Instr. Meth. B **125**, 214 (1997).
16. I. A. Wojciechowski, P. Bertrand, M. V. Medvedeva, and V. Kh. Ferleger, Nucl. Instr. Meth. B **179**, 32 (2001).
17. C. Staudt, R. Heinrich, P. Mazarov et al., Nucl. Instr. Meth. B **164–165**, 715 (2000).
18. В. И. Матвеев, П. К. Хабибуллаев, ДАН **362**, 191 (1998).
19. В. И. Матвеев, С. Ф. Белых, И. В. Веревкин, ЖТФ **69**, 64 (1999).
20. S. F. Belykh, V. I. Matveev, I. V. Veryovkin et al., Nucl. Instr. Meth. B **155**, 409 (1999).
21. В. И. Матвеев, ЖТФ **70**, 108 (2000).
22. М. Абрамовиц, И. Стиган, *Справочник по специальным функциям*, Наука, Москва (1979).
23. Э. Ферми, *Научные труды*, т. 1. Наука, Москва (1971).
24. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика*, Наука, Москва (1989).
25. Л. Н. Добрецов, М. В. Гомоюнова, *Эмиссионная электроника*, Наука, Москва (1966).
26. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, ч. 1, Наука, Москва (1964).
27. Ч. Киттель, *Введение в физику твердого тела*, Наука, Москва (1978).
28. S. F. Belykh, V. Habets, U. Kh. Rasulev et al., Nucl. Instr. Meth. B **164–165**, 809 (2000).
29. A. D. Bekkerman, N. Kh. Dzhemilev, S. V. Verkhoturov et al., Microchim. Acta. **15**, 371 (1998).
30. S. F. Belykh, U. Kh. Rasulev, A. V. Samartsev et al., Nucl. Instr. Meth. B **136–138**, 773 (1998).