

ВРЕМЕНА ЖИЗНИ ЭЛЕКТРОННЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ В НЕЗАНЯТЫХ ПОВЕРХНОСТНЫХ СОСТОЯНИЯХ И СОСТОЯНИЯХ ПОТЕНЦИАЛА ИЗОБРАЖЕНИЯ НА Pd(110)

С. С. Циржин^{a,b*}, С. В. Еремеев^{a,c}, Е. В. Чулков^{b,d}

^a Томский государственный университет
634050, Томск, Россия

^b Donostia International Physics Center (DIPC)
20018, San Sebastián/Donostia, Basque Country, Spain

^c Институт физики прочности и материаловедения Сибирского отделения Российской академии наук
634021, Томск, Россия

^d Departamento de Física de Materiales and Centro de Física de Materiales (CFM)–Materials Physics Center (MPC)
20018, San Sebastian/Donostia, Spain

Facultad de Ciencias Químicas, UPV/EHU
20080, San Sebastián/Donostia, Basque Country, Spain

Поступила в редакцию 18 февраля 2012 г.

В рамках метода GW рассчитан вклад неупругого электрон-электронного рассеяния в скорость затухания возбуждений в поверхностных состояниях и двух первых состояниях потенциала изображения в точке \bar{Y} на поверхности Pd(110), а также исследована зависимость соответствующего вклада для поверхностных состояний от квазиимпульса. Изучены механизмы рассеяния электронов в данных состояниях, а также проанализирована температурная зависимость времени жизни возбуждений с учетом ранее рассчитанного вклада электрон-фононного взаимодействия.

1. ВВЕДЕНИЕ

В последние годы многие теоретические и экспериментальные исследования были посвящены динамике электронов и дырок в объемных состояниях [1–6], поверхностных состояниях и состояниях потенциала изображения на чистых металлических поверхностях [7–16], а также возбуждений, возникающих на поверхности при нанесении тонких пленок [16–21], адатомов [22–26], наностроек [27] и нанопирамид [28]. Интерес к этой области вызван важной ролью электронных возбуждений в различных физических явлениях, таких как, на пример, процесс десорбции [29], каталитические реакции [30, 31] и эпитаксиальный рост [32].

Информацию о времени жизни квазичастиц τ часто получают на основе измеренной ширины Γ фотоэмиссионного пика, соответствующего данно-

му состоянию, которая связана с временем жизни соотношением $\Gamma = \hbar/\tau$. Ширина линии состоит из вкладов от рассеяния по трем каналам: неупругое электрон-электронное рассеяние (Γ_{e-e}), электрон-фононное рассеяние (Γ_{e-ph}) и рассеяние на дефектах (Γ_{e-d}). Вклад Γ_{e-e} не зависит от температуры, а термическое уширение линии определяется электрон-фононным рассеянием [35, 39] и рассеянием на термически-активируемых дефектах [36, 37].

Большинство исследований было проведено для плотноупакованных поверхностей [13, 14, 33, 34, 39], и лишь несколько работ касались оценки времен жизни возбуждений на открытых поверхностях [38, 40–42]. Однако более открытые поверхности, такие как поверхности (110) ГЦК-металлов, представляют особый интерес, в частности, благодаря их высокой каталитической активности [43]. Расчеты *ab initio* времени жизни требуют больших вычислительных ресур-

*E-mail: tsirkinn@gmail.com

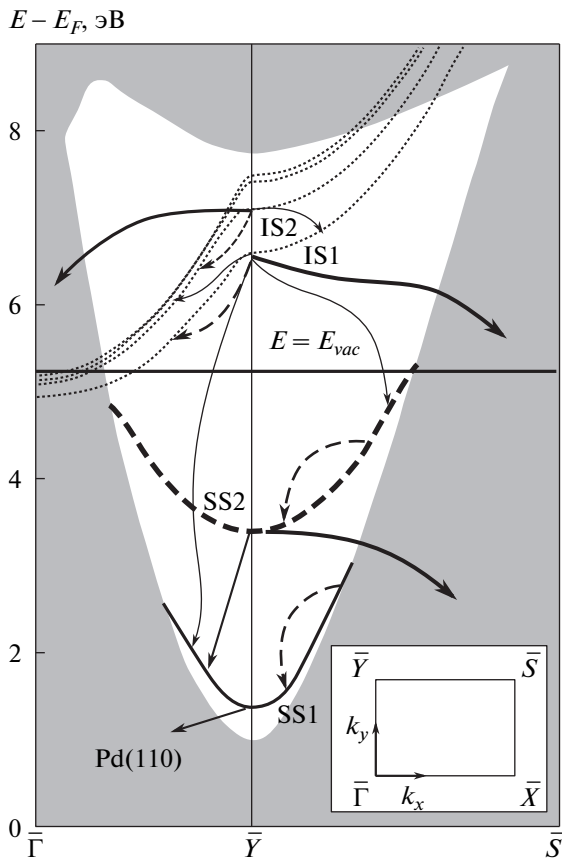


Рис. 1. Электронная структура поверхности Pd(110): серая область соответствует проекции континуума объемных состояний палладия на поверхность (110); белая область — \bar{Y} -щель, содержащая два поверхностных состояния (SS1 и SS2) и состояния потенциала изображения (IS; показаны только первые 4 состояния); E_{vac} — вакуумный уровень. Стрелками показаны возможные переходы электронов. На вставке показана двумерная зона Бриллюэна

сов [33, 34, 38], поэтому для описания динамики поверхностных возбуждений представляется целесообразным использовать упрощенные модели, отражающие ключевые характеристики зонной структуры поверхности. Так, для плотноупакованных поверхностей была предложена модель [44], описывающая зонную структуру поверхности псевдопотенциалом, изменяющимся только в направлении, перпендикулярном поверхности. С помощью этой модели были получены ширины линий поверхностных состояний (ПС) и состояний потенциала изображения в хорошем согласии с экспериментальными данными [33, 34].

В отличие от плотноупакованных поверхностей, на поверхности (110) ГЦК-металлов в \bar{Y} -щели располагаются сразу два поверхностных состояния с различной пространственной локализацией [45, 46]. В случае палладия оба эти состояния лежат выше уровня Ферми и имеют энергии 1.38 эВ [46] (SS1) и 3.4 эВ [55] (SS2) (см. рис. 1). Для описания зонной структуры поверхности (110) благородных металлов в работах [45–47] была разработана двумерная псевдопотенциальная модель. Эта модель была использована для исследования электрон-фононного [48, 49, 51] и электрон-электронного [47] рассеяния на поверхностях (110) благородных металлов. В частности, было показано, что она дает значения константы электрон-фононного взаимодействия и ширины линии занятого ПС на Cu(110) в хорошем согласии с экспериментом [40].

В работе [47] двумерная псевдопотенциальная модель была применена для расчета вкладов неупругого электрон-электронного рассеяния в занятых и незанятых поверхностных состояниях на поверхностях меди и серебра (110). Однако, в отличие от меди и серебра, на Pd(110) оба ПС являются незанятыми. Кроме того, ряд состояний потенциала изображения (IS) в точке \bar{Y} лежит внутри щели [46, 55], и поэтому они хорошо локализованы в вакууме. В связи с этим можно ожидать иной характер рассеяния электронных возбуждений на данной поверхности. В частности, существенную роль могут играть переходы между различными ПС и состояниями изображения.

В данной работе в рамках двумерной псевдопотенциальной модели [45–47] рассчитаны неупругие вклады в ширины линий поверхностных состояний и двух первых состояний изображения в точке \bar{Y} , а для ПС также исследована зависимость соответствующего вклада от квазиимпульса. Учитывая ранее рассчитанные вклады электрон-фононного взаимодействия сделаны выводы о температурной зависимости времени жизни данных состояний.

В работе использована следующая система координат: ось z направлена вдоль направления [110] (перпендикулярно поверхности), а оси x и y — вдоль направлений соответственно $[1\bar{1}0]$ и $[001]$. Плоскость $z = 0$ соответствует центру пленки, а $y = 0$ соответствует положению атома во внешнем слое. Все уравнения записаны в атомной системе единиц, т. е. $e^2 = \hbar = m_e = 1$.

2. МЕТОД

Используемая в данной работе методика расчета вклада электрон-электронного рассеяния в затухание электронных возбуждений на поверхностях ГЦК-металлов подробно изложена в работах [47, 52], поэтому ниже приведены лишь основные моменты.

2.1. Модель описания электронной структуры поверхности

Для описания электронной структуры поверхности Pd(110) используется двумерная псевдопотенциальная модель, развитая в работах [45–47]. В данной модели одноэлектронные энергии и волновые функции рассчитываются на основе уравнения Шредингера

$$\left(-\frac{\nabla^2}{2} + V_{k_y}(y, z) - E_{n,\mathbf{k}}\right) \Psi_{n,\mathbf{k}} = 0 \quad (1)$$

с потенциалом V , который является гладкой функцией координат y и z и не зависит от x . Данный потенциал содержит пять подгрупповых параметров, зависящих от компоненты волнового вектора k_y . Эти параметры подбираются так, чтобы в каждой точке двумерной зоны Бриллюэна вдоль направления $\Gamma\bar{Y}$ собственные энергии $E_{n\mathbf{k}}$ электронных состояний верхнего и нижнего краев щели, двух поверхностных состояний и первого состояния изображения совпадали с экспериментально наблюдаемыми [54, 55], либо полученными *ab initio* [46].

В рамках данной модели расчет электронной структуры проводится в геометрии тонких пленок, разделенных вакуумными промежутками, с периодом T в направлении z , перпендикулярном поверхности. В такой модели одноэлектронные энергии и волновые функции получаются в виде

$$\Psi_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{L} e^{i(k_x x + k_y y)} u_{n,k_y}(y, z), \quad (2)$$

$$E_{n\mathbf{k}} = E_{nk_y} + \frac{k_x^2}{2m_n^*}. \quad (3)$$

Здесь и далее $\mathbf{r} = (x, y, z)$ обозначает 3-мерный вектор, L — нормировочная длина. Двумерный волновой вектор $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ имеет компоненту k_y в первой зоне Бриллюэна ($-\pi/a < k_y < \pi/a$, где a — параметр решетки), а компонента k_x произвольная. Для блоховских функций $u_{n,k_y}(y, z)$ выбрана следующая нормировка:

$$\frac{1}{a} \int_{-a/2}^{a/2} dy \int_{-T/2}^{T/2} dz |u_{n,k_y}(y, z)|^2 = 1. \quad (4)$$

Из уравнения (1) следует, что эффективные массы m^* , входящие в (3), должны быть равны единице. Однако для более реалистичного описания электронной структуры мы используем эффективные массы, полученные на основе зонной структуры, рассчитанной *ab initio* [46]. Так, эффективные массы электронов в поверхностных состояниях равны $m_{SS1}^* = 0.3$ и $m_{SS2}^* = 0.9$, а массы электронов в состояниях нижнего и верхнего краев щели равны $m_{lower}^* = 0.15$ и $m_{upper}^* = 2.5$. Учитывая слабую связь состояний потенциала изображения с кристаллом, для этих состояний эффективные массы можно выбрать равными массе свободного электрона $m_{IS}^* = 1$. Эффективные массы объемных электронных состояний выше щели выбираются равными m_{upper}^* , а массы объемных состояний ниже щели плавно изменяются от m_{lower}^* на краю щели до $m_0^* = 1.9$ для самой низкой зоны, получаемой в данной модели.

2.2. Метод расчета ширины линии в приближении GW

В рамках теории многих тел в приближении GW [53] неупругий вклад электрон-электронного рассеяния в ширину линии $\Gamma = \tau^{-1}$ электронного состояния в зоне i с волновой функцией Ψ_0 , энергией E_0 и волновым вектором \mathbf{k}_0 определяется первым членом разложения по степеням экранированного кулоновского потенциала W :

$$\Gamma_{i,\mathbf{k}_0}^{e-e} = -2 \sum_{n\mathbf{k} \in [E_F, E_0]} \iint [\Psi_0^*(\mathbf{r}) \Psi_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \times \times \text{Im } W(\mathbf{r}, \mathbf{r}', |E_0 - E_{n\mathbf{k}}|) \Psi_{n\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}') \Psi_0(\mathbf{r}')] d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}'. \quad (5)$$

Суммирование проводится по конечным состояниям $n\mathbf{k}$, которые в случае затухания электронных возбуждений в незанятых состояниях лежат в интервале энергий $E_F < E_{n\mathbf{k}} < E_0$. Учитывая вид волновых функций (2), уравнение (5) можно переписать в виде

$$\Gamma_{i,\mathbf{k}_0}^{e-e} = -\frac{2}{a^2(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} dk_x \int_{-\pi/a}^{\pi/a} dk_y \times \times \sum_n^{E_{n\mathbf{k}} \in [E_0, E_F]} \iint_{-a/2}^{a/2} dy dy' \iint_{-T/2}^{T/2} dz dz' \times \times \Phi_{ik_{y_0}, nk_y}(y, z) \Phi_{ik_{y_0}, nk_y}^*(y', z') \times \times \text{Im } \tilde{W}_{\mathbf{k}-\mathbf{k}_0}(y, z; y', z'; |E_0 - E_{n\mathbf{k}}|), \quad (6)$$

где $\Phi_{ik_{y0},nk_y}(y,z) = u_{ik_{y0}}(y,z)u_{nk_y}^*(y,z)$. В приближении хаотических фаз (ПХФ) мнимая часть экранированного взаимодействия $\tilde{W}_{\mathbf{q}}$ равна:

$$\begin{aligned} \text{Im } \tilde{W}_{\mathbf{q}}(y,z; y', z'; \omega) &= \frac{1}{a^2} \sum_{g_{y1}, g_{y2}} e^{i(g_{y1}y - g_{y2}y')} \times \\ &\times \int_{-T/2}^{T/2} dz_1 dz_2 V(q_x, q_y + g_{y1}; z - z_1) \times \\ &\times V(q_x, q_y + g_{y2}; z' - z_2) \int_{-a/2}^{a/2} dy_1 dy_2 \times \\ &\times \text{Im } \tilde{\chi}_{\mathbf{q}}(y_1, z_1; y_2, z_2; \omega) e^{-i(g_{y1}y_1 - g_{y2}y_2)}, \end{aligned} \quad (7)$$

где $V(k_x, k_y; z - z_1)$ — двумерное преобразование Фурье голого кулоновского потенциала:

$$V(k_x, k_y; z - z_1) = \frac{2\pi}{\sqrt{k_x^2 + k_y^2}} e^{-|z - z_1| \sqrt{k_x^2 + k_y^2}}, \quad (8)$$

а $g_{yi} = (2\pi/a)n_i$, где $i = 1, 2$, а n_i — целые числа. Функция отклика $\tilde{\chi}_{\mathbf{q}}$ системы взаимодействующих электронов рассчитывается согласно

$$\begin{aligned} \tilde{\chi}_{\mathbf{q}}(y_1, z_1; y_2, z_2; \omega) &= \tilde{\chi}_{\mathbf{q}}^0(y_1, z_1; y_2, z_2; \omega) + \\ &+ \frac{1}{a^2} \sum_{g_{y1}} \int_{-a/2}^{a/2} dy_3 dy_4 \int_{-T/2}^{T/2} dz_3 dz_4 \times \\ &\times \tilde{\chi}_{\mathbf{q}}^0(y_1, z_1; y_3, z_3; \omega) V(q_x, q_y + g_{y1}; z_3 - z_4) \times \\ &\times e^{i(y_3 - y_4)g_{y1}} \tilde{\chi}_{\mathbf{q}}(y_4, z_4; y_2, z_2; \omega) \end{aligned} \quad (9)$$

с помощью функции отклика системы невзаимодействующих электронов $\tilde{\chi}_{\mathbf{q}}^0$. Для $\tilde{\chi}_{\mathbf{q}}^0$ с учетом закона дисперсии (3) получено следующее выражение:

$$\begin{aligned} \tilde{\chi}_{\mathbf{q}}^0(y_1, z_1; y_2, z_2; \omega) &= 2 \int_{-\pi/a}^{\pi/a} \frac{dk_y}{2\pi} \times \\ &\times \sum_{n_1}^{E_{n_1, k_y} < E_F} \sum_{n_2}^{\infty} \left(h_{n_1, k_y; n_2, k_y + q_y}^+(\mathbf{q}, \omega) + \right. \\ &\left. + h_{n_1, k_y; n_2, k_y + q_y}^-(\mathbf{q}, \omega) \right) \times \\ &\times \Phi_{n_1, k_y; n_2, k_y + q_y}(y_1, z_1) \Phi_{n_1, k_y; n_2, k_y + q_y}^*(y_2, z_2), \end{aligned} \quad (10)$$

где

$$\begin{aligned} h_{n_1, k_y; n_2, k_y + q_y}^{\pm}(\mathbf{q}, \omega) &= \frac{m_{n_2}^*}{2\pi} \times \\ &\times I \left(-\frac{m_{n_2}^* - m_{n_1}^*}{m_{n_1}^*} Q_{n_1 k_y}^F + q_x, \right. \\ &\left. \frac{m_{n_2}^* - m_{n_1}^*}{m_{n_1}^*} Q_{n_1 k_y}^F + q_x, -\frac{m_{n_2}^*}{m_{n_1}^*} q_x^2 + \right. \\ &\left. + 2\frac{m_{n_2}^* - m_{n_1}^*}{m_{n_1}^*} m_{n_2}^* (E_{n_1, k_y} - \right. \\ &\left. - E_{n_2, k_y + q_y} \pm \omega) \pm \text{sign}(m_{n_2}^* - m_{n_1}^*) \right). \end{aligned} \quad (11)$$

Здесь $Q_{n_1 k_y}^F = \sqrt{2m_{n_1}(E_F - E_{n_1, k_y})}$, $m_{n_i}^*$ — эффективные массы зон в направлении k_x , и введено обозначение I для интеграла:

$$I(\alpha, \beta, B, \pm) = \lim_{\eta \rightarrow 0+0} \int_{\alpha}^{\beta} \frac{dx}{x^2 + B \pm i\eta}, \quad (12)$$

который легко берется аналитически.

Перед тем, как перейти к обсуждению результатов, отметим, что, как следует из уравнения (5), электрон-электронное рассеяние определяется тремя основными факторами: 1) числом конечных состояний ($n\mathbf{k}$), 2) перекрытием зарядовых плотностей начальных и конечных состояний и 3) величиной мнимой части экранированного кулоновского взаимодействия.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Электронная структура поверхности Pd(110) приведена на рис. 1. Как и на поверхностях (110) меди и серебра [45–47], проекция объемных состояний на двумерную зону Бриллюэна имеет щель в точке \bar{Y} . На поверхности Pd(110) эта щель целиком лежит выше уровня Ферми и содержит два незанятых поверхностных состояния (SS1 и SS2), а также ряд состояний потенциала изображения (IS).

Стрелками на рис. 1 показаны возможные переходы электронов, дающие вклад в ширину линии Γ^{e-e} . Возбуждения в поверхностных состояниях и состояниях потенциала изображения в точке \bar{Y} могут затухать в результате переходов в лежащие ниже объемные состояния (жирные сплошные стрелки), а также переходов между различными ПС и состояниями изображения (тонкие сплошные стрелки). Кроме того, возбуждения в состояниях изображения в точке \bar{Y} могут затухать посредством внутризонных переходов (тонкие штриховые стрелки),

Таблица. Рассчитанные ширины линий ПС и состояний изображения на Pd(110) в сравнении с Pd(111) [12]

Поверхность	Состояние	$E - E_F$, эВ	Γ^{e-e} , мэВ
Pd(110)	SS1	1.38	130
	SS2	3.4	380
	IS1	6.6	250
	IS2	7.0	170
Pd(111)	SS	1.35	37
	IS1	4.90	30

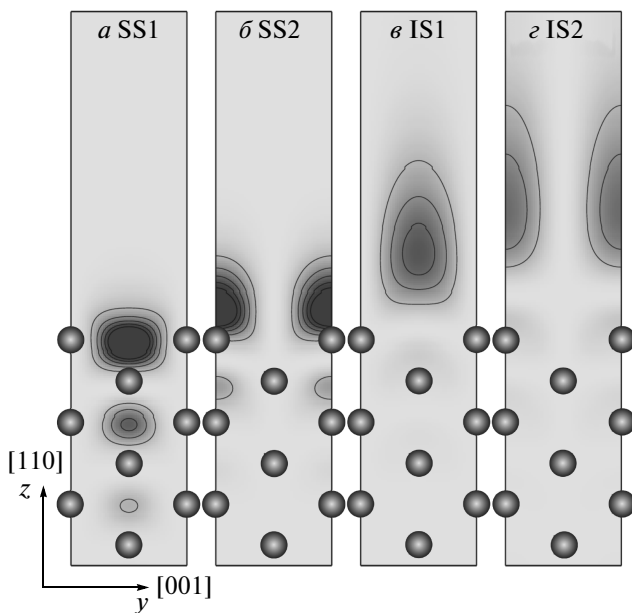


Рис. 2. Распределения в плоскости $[\bar{1}10]$ зарядовой плотности поверхностных состояний (SS1 (a) и SS2 (б)) и двух первых состояний изображения (IS1 (в) и IS2 (г)) в точке $\bar{\Gamma}$. Более темные области соответствуют большей плотности заряда

в то время как внутризонный канал для ПС (толстые штриховые стрелки) открывается только при удалении квазиимпульса состояния от точки $\bar{\Gamma}$.

Результаты расчетов вклада электрон-электронного рассеяния в ширины линий поверхностных состояний и состояний изображения приведены в таблице. Основной вклад в рассеяние обоих ПС вносят переходы в объемные состояния. Вероятность переходов между двумя поверхностными состояниями мала в силу различной пространственной локализации двух поверхностных состояний (см. рис. 2), при

которой интеграл перекрытия их зарядовой плотности практически равен нулю. Поэтому переходы из SS2 в SS1 дают вклад в ширину линии верхнего ПС ~ 5 мэВ.

Энергия нижнего поверхностного состояния SS1 на Pd(110) в точке $\bar{\Gamma}$ близка к энергии поверхностного состояния в точке $\bar{\Gamma}$ на поверхности Pd(111). Однако ширина линии данного состояния на Pd(110) в несколько раз больше, чем у ПС на Pd(111). Этот результат отличается от случая меди и серебра, для которых ширины линий занятых состояний на поверхностях (110) и (111) были сравнимы [34, 47]. Данное различие вызвано тем, что, в отличие от поверхностей Cu и Ag, состояние SS1 на Pd(110) является незанятым, а потому может затухать только путем межзонных переходов в объемные состояния. Как было показано в работах [45, 46], p_y -симметричное состояние SS1 на поверхности (110) ГЦК-металлов глубже проникает в глубь кристалла, чем $s-p_z$ -симметричное ПС на поверхности (111), а следовательно, интенсивность межзонного рассеяния в объемные состояния на поверхности (110) значительно выше, чем на (111). И действительно, вклады межзонных переходов в ширины линий занятых поверхностных состояний на поверхностях (110) меди и серебра равны соответственно 10 и 0.8 мэВ, в то время как соответствующие вклады для поверхностей (111) тех же металлов составляют всего 4 и 0.4 мэВ.

Исследования зависимости ширин линий поверхностных состояний от квазиимпульса показывают (рис. 3a), что при малых значениях кинетической энергии электрона $E_{\parallel} = E_{\mathbf{k}} - E_{\bar{\Gamma}}$ зависимость ширины линии ПС почти линейна и имеет наклон $d\Gamma^{e-e}/dE$, равный 0.23 и 0.30 соответственно для нижнего и верхнего ПС. Линейный вид данной зависимости характерен для электронных возбуждений в незанятых состояниях с достаточно большой энергией. Например, аналогичная зависимость ранее была получена для возбуждений в объемных металлах [4, 5, 56], а также в состояниях потенциала изображения вблизи точки $\bar{\Gamma}$ на поверхностях Cu(111) и Ag(111) [50]. Рост ширины линии с увеличением E_{\parallel} обусловлен увеличением числа конечных состояний, а также увеличением энергии переходов $|E_0 - E_{n\mathbf{k}}|$, в связи с чем увеличивается мнимая часть экранированного кулоновского потенциала $|\text{Im} W|$ [47]. Кроме того, при удалении от точки $\bar{\Gamma}$ энергии обоих ПС приближаются к нижнему краю щели, в силу чего их волновые функции глубже проникают в кристалл и сильнее перекрываются с объемными состояниями (рис. 4). При энергиях $E_{\parallel} \gtrsim 0.4$ эВ зависи-

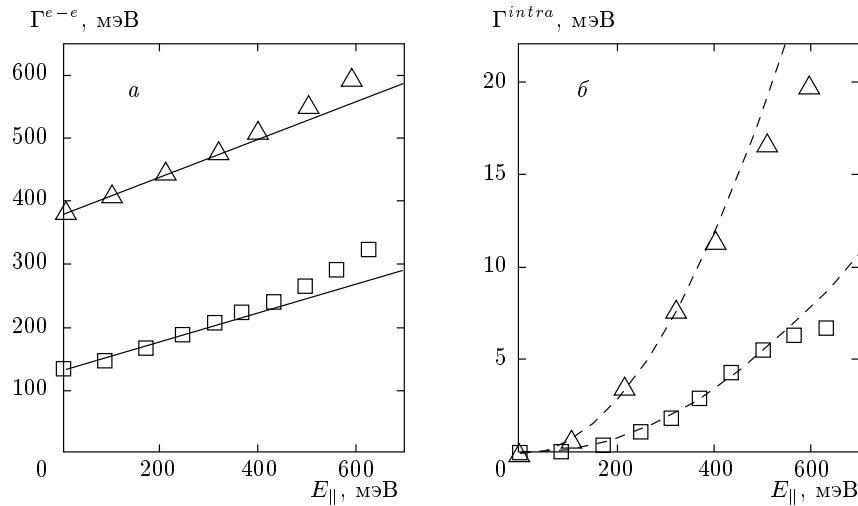


Рис. 3. Зависимости полного электрон-электронного вклада Γ^{e-e} (а) и вклада внутризонного рассеяния Γ^{intra} (б) в ширину линии ПС от кинетической энергии $E_{||} = E_k - E_{\bar{\gamma}}$. Квадраты соответствуют SS1, треугольники — SS2. Сплошные (штриховые) линии — линейная (квадратичная) аппроксимация полученных данных при малых значениях $E_{||}$

мость $\Gamma^{e-e}(E_{||})$ отклоняется от линейной зависимости в сторону большей ширины линии, что вызвано, по-видимому, более резким усилением проникновения волновых функций в глубь кристалла.

При удалении от точки $\bar{\gamma}$ открывается внутризонный канал рассеяния поверхностных состояний (рис. 3б). При малых значениях $E_{||}$ соответствующий вклад в ширину линии Γ^{intra} растет по квадратичному закону $\Gamma^{intra} \propto E_{||}^2$, однако при $E_{||} \gtrsim 0.5$ эВ зависимость $\Gamma^{intra}(E_{||})$ отклоняется от квадратичной зависимости в сторону меньшей ширины линии. Происходит это также в силу изменения пространственной локализации ПС с изменением волнового вектора, в результате чего уменьшается интеграл перекрытия начального состояния с конечными. Отметим, что внутризонный вклад для SS2 существенно больше, чем для SS1, при равных значениях $E_{||}$. Это вызвано тем, что у верхнего ПС эффективная масса значительно больше, чем у нижнего, а следовательно, больше и объем фазового пространства конечных состояний при внутризонном рассеянии. Однако внутризонный вклад не превышает 4% полной ширины линии для рассматриваемого диапазона энергий поверхностных состояний, поэтому изменение ширины их линии с ростом квазиимпульса определяется межзонным вкладом. Это отличается от случая поверхностных состояний на Cu(111), Ag(111) и Au(111), где зависимость Γ^{e-e} от квазиимпульса определяется в основном изменением вклада внутризонных переходов [9, 50].

С учетом полученного ранее вклада электрон-фононного взаимодействия (ЭФВ) [49], была рассчитана температурная зависимость времени жизни поверхностных состояний в точке $\bar{\gamma}$ (рис. 5). Вклад ЭФВ в рассеяние нижнего поверхностного состояния при комнатной температуре сравним с электрон-электронным вкладом, поэтому с ростом температуры время жизни этого состояния заметно уменьшается. Интенсивность ЭФВ в верхнем поверхностном состоянии значительно слабее, чем в нижнем, в то время как электрон-электронное рассеяние более сильное. В связи с этим электрон-фононный вклад пренебрежимо мал по сравнению с электрон-электронным, а следовательно, время жизни данного состояния практически не зависит от температуры.

Рассчитанные ширины линий двух первых состояний потенциала изображения в точке $\bar{\gamma}$ сравнимы с ширинами линий поверхностных состояний (см. таблицу). Состояния изображения в основном локализованы в вакууме (рис. 2в,г) и слабо связаны с кристаллом. Однако это компенсируется большим объемом фазового пространства объемных состояний, в результате чего около 60% ширины линии обусловлено рассеянием в объемные состояния. Существенный вклад в рассеяние первого состояния изображения дают переходы в поверхностные состояния SS1 (25 мэВ) и SS2 (65 мэВ). Поскольку второе состояние изображения слабо перекрывается с нижним поверхностным состоянием (см. рис. 2а,г), вклад от

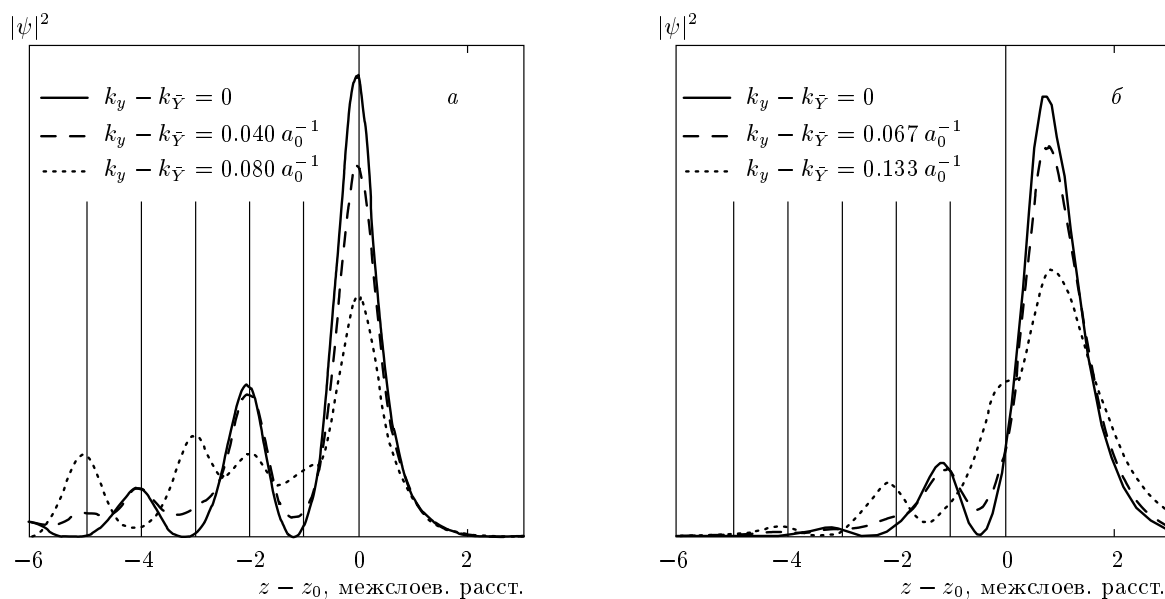


Рис. 4. Зарядовая плотность поверхностных состояний SS1 (а) и SS2 (б), усредненная в плоскости (110), при разных значениях волнового вектора вдоль направления $\bar{Y}\bar{\Gamma}$; $k_{\bar{\Gamma}} = \pi/a$ — волновой вектор, соответствующий точке \bar{Y} , a_0 — борковский радиус, z_0 соответствует внешнему атомному слою. Вертикальные линии соответствуют положениям атомных слоев

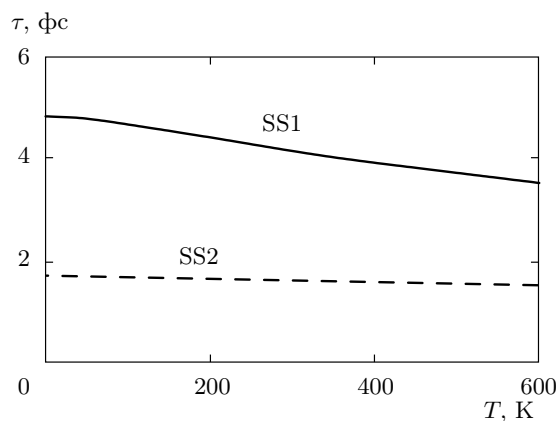


Рис. 5. Зависимость времен жизни $\tau = 1/(\Gamma_{e-e} + \Gamma_{e-ph})$ поверхностных состояний в точке \bar{Y} от температуры

переходов из IS2 в SS1 составляет всего 4 мэВ, однако вклад переходов в SS2 достаточно существенный: 30 мэВ. Отметим также, что в отличие от состояний изображения в точке $\bar{\Gamma}$ на поверхности Pd(111), точка \bar{Y} для состояний изображения на поверхности Pd(110) является не точкой минимума, а седловой точкой. Поэтому можно ожидать, что эти состояния

могут затухать в результате внутризонных переходов, а также переходов в состояния изображения с более высокими номерами (см. рис. 1). Действительно, для первого состояния изображения внутризонный вклад составляет 15 мэВ. Однако для второго состояния изображения внутризонный вклад составляет всего 1 мэВ, а суммарный вклад от переходов в состояния изображения с более высокими номерами не превышает 2 мэВ как для IS1, так и для IS2. Это вызвано тем, что мнимая часть экранированного кулоновского потенциала $\text{Im} W$, входящая в выражение (5), обусловлена в основном экранировкой объемными состояниями и быстро убывает при удалении от поверхности в вакуум [47, 57], в то время как состояния потенциала изображения с высокими номерами локализованы в основном в вакууме вдали от поверхности. Отметим, что ширины линий состояний изображения в точке \bar{Y} на Pd(110) существенно больше ширины линии первого состояния изображения в точке $\bar{\Gamma}$ на Pd(111) (см. таблицу). Это вызвано в основном более высокой энергией возбуждения состояний изображения в точке \bar{Y} на Pd(110) и более глубоким проникновением их волновых функций в кристалл [46]. Кроме того, значительную роль играет большее разнообразие каналов рассеяния электронов в данных состояниях, которое обсуждалось выше.

Как было показано ранее [51], вклад фононов в рассеяние состояний изображения не превышает 1 мэВ вплоть до температуры 600 К, поэтому времена жизни данных состояний не зависят от температуры и составляют соответственно $\tau_{IS1} = 2.6$ фс и $\tau_{IS2} = 3.9$ фс.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе было проведено исследование вкладов электрон-электронного рассеяния в затухание возбуждений в незанятых поверхностных состояниях и состояниях потенциала изображения на поверхности Pd(110). Было обнаружено, что скорость затухания электронных возбуждений на данной поверхности значительно выше, чем на Pd(111). Интенсивность рассеяния электронов в поверхностных состояниях усиливается с ростом квазимпульса за счет увеличения фазового объема конечных состояний и более глубокого проникновения волновых функций ПС в кристалл. С учетом ранее рассчитанного вклада электрон-фононного рассеяния получено, что с ростом температуры время жизни нижнего поверхностного состояния заметно уменьшается, в то время как времена жизни верхнего ПС и состояний потенциала изображения практически не зависят от температуры.

Численные расчеты выполнены на суперкомпьютере SKIF-Cyberia в Томском государственном университете.

ЛИТЕРАТУРА

1. E. Knoesel, A. Hotzel, and M. Wolf, *Phys. Rev. B* **57**, 12812 (1998).
2. M. Aeschlimann, M. Bauer, S. Pawlik et al., *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5158 (1997).
3. H. Petek, H. Nagano, and S. Ogawa, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 832 (1999).
4. I. Campillo, V. M. Silkin, J. M. Pitarke et al., *Phys. Rev. B* **61**, 13484 (2000).
5. V. P. Zhukov, F. Aryasetiawan, E. V. Chulkov, and P. M. Echenique, *Phys. Rev. B* **65**, 115116 (2002).
6. V. P. Zhukov, E. V. Chulkov, and P. M. Echenique, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 096401 (2004).
7. U. Höfer, I. L. Shumay, Ch. Reuss et al., *Science* **277**, 1480 (1997).
8. M. Wolf, E. Knoesel, and T. Hertel, *Phys. Rev. B* **54**, 5295(R) (1996).
9. E. V. Chulkov, V. M. Silkin, and M. Machado, *Surf. Sci.* **482-485**, 693 (2001).
10. S. Link, H. A. Dürr, G. Bihlmayer et al., *Phys. Rev. B* **63**, 115420 (2001).
11. H. Petek and S. Ogawa, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **53**, 507 (2002).
12. A. Schäfer, I. L. Shumay, M. Wiets et al., *Phys. Rev. B* **61**, 13159 (2000).
13. M. Weinelt, *J. Phys.: Condens. Matter* **14**, R1099 (2002).
14. U. Bovensiepen, *Progr. Surf. Sci.* **78**, 87 (2005).
15. A. B. Schmidt, M. Pickel, M. Donath et al., *Phys. Rev. Lett.* **105**, 197401 (2010).
16. R. Díez Muiño, D. Sánchez-Portal, V. M. Silkin, E. V. Chulkov, and P. M. Echenique, *PNAS* **108**, 971 (2011).
17. E. V. Chulkov, J. Kliever, R. Berndt et al., *Phys. Rev. B* **68**, 195422 (2003).
18. C. Corriol, V. M. Silkin, D. Sánchez-Portal et al., *Phys. Rev. Lett.* **95**, 176802 (2005).
19. C. H. Schwalb, S. Sachs, M. Marks et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 146801 (2008).
20. P. S. Kirchmann, L. Rettig, X. Zubizarreta et al., *Nature Phys.* **6**, 782 (2010).
21. S. Mathias, A. Ruffing, F. Deicke et al., *Phys. Rev. B* **81**, 155429 (2010).
22. M. Bauer, S. Pawlik, and M. Aeschlimann, *Phys. Rev. B* **60**, 5016 (1999).
23. S. Ogawa, H. Nagano, and H. Petek, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1931 (1999).
24. A. G. Borisov, J. P. Gauyacq, E. V. Chulkov, V. M. Silkin, and P. M. Echenique, *Phys. Rev. B* **65**, 235434 (2002).
25. A. G. Borisov, V. Sametoglu, A. Winkelmann et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 266801 (2008).
26. S. Achilli, M. I. Trioni, E. V. Chulkov et al., *Phys. Rev. B* **80**, 245419 (2009).
27. A. G. Borisov, T. Hakala, M. J. Puska et al., *Phys. Rev. B* **76**, 121402(R) (2007).
28. C. Tournier-Colletta, B. Kierren, Y. Fagot-Revurat, and D. Malterre, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 016802 (2010).

29. M. Bonn, S. Funk, Ch. Hess et al., *Science* **285**, 1042 (1999).
30. H. Nienhaus, *Surf. Sci. Rep.* **45**, 1 (2002).
31. C. D. Lindstrom and X.-Y. Zhu, *Chem. Rev.* **106**, 4281 (2006).
32. N. Memmel and E. Bertel, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 485 (1995).
33. P. M. Echenique, R. Berndt, E. V. Chulkov et al., *Surf. Sci. Rep.* **52**, 219 (2004).
34. E. V. Chulkov, A. G. Borisov, J. P. Gauyacq et al., *Chem. Rev.* **106**, 4160 (2006).
35. A. Eiguren, B. Hellsing, E. V. Chulkov, and P. M. Echenique, *Phys. Rev. B* **67**, 235423 (2003).
36. M. Fuglsang Jensen, T. K. Kim, S. Bengiό et al., *Phys. Rev. B* **75**, 153404 (2007).
37. С. В. Еремеев, Е. М. Чулков, *ФТТ* **51**, 808 (2009).
38. R. Keiling, W.-D. Schόne, and W. Ekardt, *Chem. Phys. Lett.* **354**, 376 (2002).
39. Ph. Hofmann, I. Yu. Sklyadneva, E. D. L. Rienks, and E. V. Chulkov, *New J. Phys.* **11**, 125005 (2009).
40. P. Straube, F. Pforte, T. Michalke et al., *Phys. Rev. B* **61**, 14072 (2000).
41. A. Mugarza, A. Mascaraque, V. Repain et al., *Phys. Rev. B* **66**, 245419 (2002).
42. S. M. Dounce, M. Yang, and H.-L. Dai, *Phys. Rev. B* **67**, 205410 (2003).
43. G. A. Somorjai, in: *Elementary Reaction Step in Heterogeneous Catalysis*, ed. by R. W. Joyner and R. A. Van Santen, Kluwer, Dordrecht (1993), p. 3.
44. E. V. Chulkov, V. M. Silkin, and P. M. Echenique, *Surf. Sci.* **391**, L1217 (1997); *Surf. Sci.* **437**, 330 (1999).
45. С. С. Циркин, С. В. Еремеев, Е. В. Чулков, *ФТТ* **52**, 175 (2010).
46. S. S. Tsirkin, S. V. Eremeev, and E. V. Chulkov, *Surf. Sci.* **604**, 804 (2010).
47. S. S. Tsirkin, S. V. Eremeev, and E. V. Chulkov, *Phys. Rev. B* **84**, 115451 (2011).
48. С. В. Еремеев, С. С. Циркин, Е. В. Чулков, *ЖЭТФ* **137**, 901 (2010).
49. S. V. Eremeev, S. S. Tsirkin, and E. V. Chulkov, *Phys. Rev. B* **82**, 035424 (2010).
50. С. В. Еремеев, С. С. Циркин, Е. В. Чулков, *ФТТ* **52**, 1644 (2010).
51. С. С. Циркин, С. В. Еремеев, *Изв. ВУЗов, Физика* **54**, № 1, 83 (2011).
52. С. С. Циркин, С. В. Еремеев, *Изв. ВУЗов, Физика* **54**, № 11, 20 (2011).
53. L. Hedin, *Phys. Rev.* **139**, A796 (1965).
54. F. J. Himpsel and D. E. Eastman, *Phys. Rev. B* **18**, 5236 (1978).
55. N. V. Smith, C. T. Chen, J. M. Tranquada, and P. D. Johnson, *Phys. Rev. B* **38**, 12259 (1988).
56. P. M. Echenique, J. M. Pitarke, E. V. Chulkov, and A. Rubio, *Chem. Phys.* **251**, 1 (2000).
57. A. Garcia-Lekue, J. M. Pitarke, E. V. Chulkov, A. Liebsch, and P. M. Echenique, *Phys. Rev. B* **68**, 045103 (2003).
58. J. J. Quinn and R. A. Ferrell, *Phys. Rev.* **112**, 812 (1958).