

О ВЗАИМОДЕЙСТВИИ АТОМОВ С ПОВЕРХНОСТЬЮ ТВЕРДОГО ТЕЛА

Ю. А. Рыжов, Д. С. Стриженов

(Москва)

Приводятся некоторые результаты исследования на ЭЦВМ процесса взаимодействия атомов с поверхностью твердого тела при энергиях ~ 10 эв. Метод основан на совместном решении системы классических уравнений движения атомов, образующих твердое тело, и бомбардирующей частицы при заданном законе парного взаимодействия. В качестве такого закона в большинстве расчетов использован потенциал 6—12 Леннарда — Джонса.

Получена система безразмерных параметров, характеризующих рассматриваемые процессы, а также продемонстрированы типичные исходы акта взаимодействия: отражение, захват поверхностью (адсорбция), поглощение решеткой налетающей частицы. Рассмотрено взаимодействие атома с поверхностью идеального кристалла, образующего эйнштейновскую решетку, при различных параметрах и типах решетки, и оценено влияние вида и параметров потенциала на статистически осредненные характеристики взаимодействия (коэффициент аккомодации энергии). Описан метод осреднения характеристик взаимодействия, позволяющий моделировать процесс столкновения атомов с атомарно-гладкой поликристаллической поверхностью.

§ 1. Метод. Система определяющих параметров. Экспериментальные трудности получения интенсивных атомарных пучков с энергиями ~ 10 эв, а также сложность идентификации условий на поверхности взаимодействия в различных экспериментальных установках приводит к большим расхождениям в значениях характеристик процесса взаимодействия атомарных пучков с поверхностью твердого тела.

Работы, посвященные теоретическому рассмотрению такого процесса, в основном базируются на упрощении модели решетки, которая заменяется одномерной цепочкой или двумерной сеткой атомов. Кроме того, часто упрощенным принимается и закон парного взаимодействия. Все это позволяет рассматривать результаты таких исследований несомненно скорее качественный характер. Лишь в работах [1,2] делается попытка рассмотреть задачу в более строгой постановке (пространственная решетка, близкий к реальному потенциал взаимодействия), и с минимальным числом упрощающих допущений. Такой подход позволяет получить данные, пригодные для ориентировки в результатах экспериментальных исследований, а также установить степень влияния различных определяющих параметров. Не менее важной является и возможность построения функций распределения отраженных частиц по энергии и направлению.

С этой целью рассмотрен блок атомов твердого тела с правильной кристаллической структурой того или иного типа: простой кубической (ПК), гранецентрированной (ГЦК) и объемцентрированной (ОЦК). Предполагается, что при энергии бомбардирующей частицы ~ 10 эв тепловыми колебаниями атомов решетки можно пренебречь. Для реальных плотностей потока в атомарных пучках очевидным является также допущение, что вероятность попадания в характерную область одновременно двух или более частиц пренебрежимо мала.

Пусть взаимодействие налетающей частицы с каждым из атомов блока определяется потенциалом $V(r)$, а сами атомы образуют эйнштейновский кристалл. Последнее справедливо, лишь если время взаимодействия меньше периода собственных колебаний атомов решетки или, что адекватно, средняя скорость налетающего атома больше скорости распространения упругих колебаний в твердом теле.

После выбора кристаллической решетки и ее ориентации по отношению к свободной поверхности (в настоящих расчетах гранью 100) процесс взаимодействия определяется следующими параметрами: начальной энергией падающей частицы E_0 ; массой падающей частицы m_1 ; массой атома решетки m_2 ; параметрами потенциала 6-12 Леннарда — Джонса ϵ , σ ; шагом кристаллической решетки d ; коэффициентом жесткости пружины κ , при помощи которой атом решетки привязан к собственному положению равновесия; углом с нормалью φ и азимутом ψ направления начальной скорости падающей частицы; прямоугольными координатами точки цели (ТЦ) на поверхности кристалла, $x_{\text{ц}}$, $y_{\text{ц}}$.

Таким образом, коэффициент аккомодации энергии α будет зависеть от восьми безразмерных параметров

$$\mu = \frac{m_1}{m_2}, \quad w = \left(\frac{2E_0}{\mu\sigma^2\kappa} \right)^{1/2}, \quad \varphi, \quad s = \frac{24\epsilon}{\sigma^2\kappa}, \quad a = \frac{d}{\sigma}, \quad \xi = \frac{x_{\text{ц}}}{\sigma}, \quad \zeta = \frac{y_{\text{ц}}}{\sigma}, \quad \psi$$

Практический интерес будут представлять, очевидно, коэффициенты аккомодации, осредненные по трем последним параметрам.

Выберем прямоугольную систему координат с началом в одном из поверхностных атомов решетки таким образом, что плоскость $z = 0$ совпадет со свободной поверх-

ностью кристалла и ось z направлена в сторону незанятого пространства. Линейным масштабом будем считать σ , масштабом времени $(m_2/\kappa)^{1/2}$. Тогда система уравнений, описывающая движение налетающего атома и атомов кристалла, будет иметь вид

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \mathbf{R}_0}{d\tau^2} &= -\frac{1}{s} \sum_{l,m,n} f(|\mathbf{R}_0 - \mathbf{R}_{lmn}|) \frac{\mathbf{R}_0 - \mathbf{R}_{lmn}}{|\mathbf{R}_0 - \mathbf{R}_{lmn}|} \\ \frac{d^2 \mathbf{R}_{lmn}}{d\tau^2} &= sf(|\mathbf{R}_0 - \mathbf{R}_{lmn}|) \frac{\mathbf{R}_0 - \mathbf{R}_{lmn}}{|\mathbf{R}_0 - \mathbf{R}_{lmn}|} + \mathbf{L}_{lmn} \end{aligned} \quad (1.1)$$

$$f(q) = q^{-7} - 2q^{-13}$$

Здесь \mathbf{R}_0 — радиус-вектор налетающей частицы; \mathbf{R}_{lmn} — радиус-вектор атома решетки с номером l, m, n ; \mathbf{L}_{lmn} — сила, действующая на атом решетки с номером l, m, n со стороны кристалла; τ — время.

Благодаря тому что потенциал взаимодействия быстро стремится к нулю с увеличением расстояния, в процессе взаимодействия принимают участие не все атомы кристалла, а только те, которые находятся в некоторой окрестности прицельного атома. Для эйнштейновского кристалла количество атомов, влияние которых следует учитывать целиком, определяется типом потенциала взаимодействия. Ниже будет

показано, что для потенциала 6-12 Леннарда — Джонса и не слишком больших φ отбрасывание всех атомов, расположенных на расстоянии от прицельного $\geq 3\sigma$, не приводит к сколько-нибудь существенным ошибкам при вычислении коэффициента аккомодации.

Начальные условия (при $\tau = 0$) для решения системы (1.1) задавались следующим образом:

$$\begin{aligned} R_{0x} &= \xi - \eta_0 \operatorname{tg} \varphi \cos \psi \\ R_{0y} &= \zeta - \eta_0 \operatorname{tg} \varphi \sin \psi \\ R_{0z} &= \eta_0 = z_0 / \sigma \\ dR_{0x}/d\tau &= w \sin \varphi \cos \psi \\ dR_{0y}/d\tau &= w \sin \varphi \sin \psi \\ dR_{0z}/d\tau &= -w \cos \varphi \\ d\mathbf{R}_{lmn}/d\tau &= 0 \end{aligned} \quad (1.2)$$

В начальный момент времени значения векторов \mathbf{R}_{lmn} соответствуют положениям равновесия в выбранном типе кристалла.

Основываясь на вышесказанном, положим $\eta_0 = 3$. Контрольные расчеты при увеличенном η_0 доказали справедливость этого предположения.

Интегрирование уравнений (1.1) при начальных условиях (1.2) производилось методом Рунге — Кутты на вычислительной машине БЭСМ-2М с переменным шагом интегрирования. Контроль точности производился по интегралу энергии.

Фиг. 1. Примеры типичных траекторий (● — точка цели, ○ — атомы решетки): а) отражение (ПК, $a = 1, w = 1, s = 0.01, \mu = 0.5, \xi = \zeta = 0.33, \varphi = 0$) б) отражение (ГЦК, $a = 1.7, w = 1, s = 0.01, \mu = 0.5, \varphi = 0, \zeta = 0, \xi = 0.56$ (1), $\xi = 0.79$ (2)) в) захват (ОЦК, $a = 0.8, w = 0.3, s = 0.01, \mu = 0.5, \varphi = 0, \xi = \zeta = 0.095$) г) поглощение (ПК, $a = 1.2, w = 1, s = 0.01, \mu = 0.5, \varphi = 0, \xi = \zeta = 0.40$)

§ 2. Возможные исходы процесса взаимодействия. Процесс взаимодействия может привести к трем принципиально различным результатам, каждый из которых действительно имел место в проведенных расчетах.

1. *Отражение.* Частица после взаимодействия покидает зону влияния кристалла и продолжает равномерное прямолинейное движение. Интегрирование в этом случае прекращалось, когда частица уходила от тела на расстояние η_0 . Коэффициент аккомодации вычислялся по формуле

$$\alpha = 1 - E_f/E_0$$

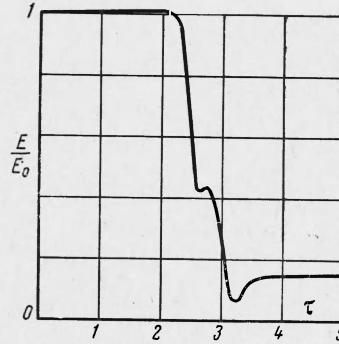
где E_f — энергия частицы после взаимодействия.

2. *Захват.* Наблюдается при малой начальной энергии налетающей частицы. В результате взаимодействия частица теряет нормальную составляющую своей скорости и, оставаясь вне тела, оказывается либо запертой в потенциальной яме одного из атомов, либо продолжает движение вдоль эквипотенциальной поверхности, не удаляясь от кристалла. Коэффициент аккомодации для таких траекторий принимался равным 1.

Теоретические работы, основанные на одномерной модели кристалла, дают зависимость отношения пороговой энергии захвата к глубине потенциальной ямы от μ и типа связи налетающего атома с первым атомом решетки. В принятых здесь обозначениях это отношение равно $12 \mu w^2/s$. Забегая вперед, укажем, что в настоящих расчетах захват наблюдался при энергиях, в двадцать раз превышающих те, которые указываются в этих работах. Это расхождение связано, по видимому, с трехмерностью используемой нами модели.

3. *Поглощение.* Наблюдается при больших расстояниях между атомами в кристалле и больших энергиях налетающего атома. В результате взаимодействия частица проходит внутрь тела и либо застревает в выбранном блоке атомов, либо проходит его весь, сохраняя импульс, направленный внутрь тела. Коэффициент аккомодации в этом случае также принимался равным единице. Примеры типичных траекторий для различных случаев взаимодействия представлены на фиг. 1, *a* — *г*. Следует отметить, что для наглядности изображения показаны только плоские траектории, для которых вектор начальной скорости налетающей частицы лежит в плоскости симметрии кристалла.

На фиг. 2 представлена зависимость энергии E налетающей частицы от времени для траектории, изображенной на фиг. 1, *a*. Как видно из графика, время взаимодействия для этого случая равно приблизительно 2.5 и меньше периода собственных колебаний атома кристалла (2л в наших переменных). Это подтверждает допустимость предположения о несущественности процесса распространения упругих волн в кристалле при расчете коэффициента аккомодации (в нашем диапазоне параметров).



Фиг. 2. Зависимость энергии частицы от времени для траектории, изображенной на фиг. 1, *a*

Таблица 1

Влияние размера блока на величину вычисляемого коэффициента аккомодации

Число атомов в блоке	α ($\xi = \zeta = 0$)			$\langle \alpha \rangle$
	ОЦК	ПК	ГЦК	
34			0.8876	
39	0.9016	0.8971		
50			0.8903	
51	0.9019	0.8972		0.7970
59	0.9022	0.8973	0.8909	0.7975

Осреднение коэффициента аккомодации по точкам цели и ψ проводилось по квадратным формулам Гаусса. При различных углах падения частиц характер зависимости α от точки цели и азимута меняется — при отвесных падениях отсутствует зависимость от азимута и наиболее сильна зависимость от точки цели, и, наоборот, при больших углах падения зависимость от точки цели сглаживается, а зависимость от азимута приобретает очень сложный характер. Поэтому выбор способов осреднения по точкам цели и оценка ошибок, вызываемых этим осреднением, проводились при $\varphi = 0$. Сравнение результатов расчета среднего коэффициента аккомодации по 6 ($\langle \alpha \rangle_6$) и по 10 ($\langle \alpha \rangle_{10}$) траекториям, проведенное для всех типов кристаллических решеток, показало, что $\langle \alpha \rangle_6 > \langle \alpha \rangle_{10}$. Это различие для разных вариантов составляет 0.3 — 1.5% и зависит в основном от типа и пага кристаллической решетки. Ошибки $\geq 1\%$ имели место только для ПК, где зависимость α от точки цели проявляется наиболее сильно. Основываясь на этом, осреднение по точкам цели велось, как правило, по шести траекториям.

§ 3. *Точность.* Для оценки ошибки, связанной с конечностью выбранного блока атомов, были проведены расчеты коэффициента аккомодации для блоков различных размеров. Влияние размера блока на результаты расчетов индивидуальной траектории и на осредненные параметры (об осреднении см. ниже) исследовалось на следующем варианте: $w = 1$, $\mu = 0.5$, $\varphi = 0$, $s = 0.01$, $a = 1$. Результаты представлены в табл. 1.

Во всех дальнейших расчетах использовался блок, содержащий 59 атомов. Ошибка в величине α , вносимая отбрасыванием остальной части кристалла, как видно из табл. 1, всегда имеет знак минус (т. е. приводит к занижению значения α) и составляет $\sim 5 \cdot 10^{-4}$. Такой выбор блока приводит к решению системы 360 дифференциальных уравнений первого порядка.

При расчете наклонных траекторий ($\varphi \neq 0$) для каждой точки цели велось осреднение коэффициента аккомодации по азимуту. Точность этого осреднения зависит от точки цели и угла φ и составляет в среднем $\sim 1.5\%$ для $\varphi = 45^\circ$.

Таким образом, выбранный метод расчета позволяет получать значения параметров индивидуальных траекторий с точностью $\sim 0.1\%$, а значения осредненных параметров с точностью 1.5–2.0%.

§ 4. Некоторые результаты. Методом, изложенным выше, была получена зависимость осредненного коэффициента аккомодации от энергии падающей частицы для ОЦК: $\varphi = 0$, $\mu = 0.5$, $s = 0.01$, $a = 0.8$.

Результаты представлены на фиг. 3. При малых w коэффициент аккомодации α должен быть равным 1 (адсорбция). Точно определить пороговую энергию захвата w_* из численных экспериментов затруднительно. Для этого варианта при $w = 0.3$ уже большинство траекторий оказались «захваченными» (одна из них представлена на фиг. 1).

Таблица 2

Влияние типа кристалла и шага решетки

α	Потенциал 6-12 Леннарда — Джонса			Потенциал Морзе $a\sigma=7.4$
	ПК	ГЦК	ОЦК	ОЦК
0.65	0.7147			
0.8	0.7554	0.6692	0.7576	0.7450
1.0	0.8009	0.7422	0.7975	0.7844
1.2	0.7954	0.7706	0.8266	0.8170
1.5		0.8099*	0.8841	

Таким образом, если положить $w_* = 0.3$, то получим критерий захвата $12\mu w_*^2/s = 54$, что во много раз превосходит величину, предсказанную из одномерных расчетов. По одномерным расчетам w_* для нашего варианта составляет ~ 0.06 . Тем же методом исследована зависимость α от типа кристалла и шага решетки для варианта

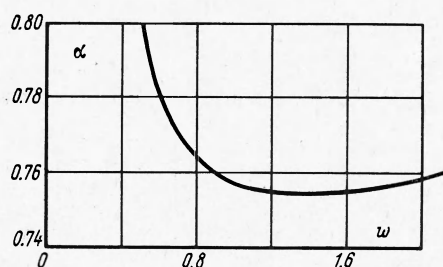
$$w = 1, \quad \mu = 0.5, \quad s = 0.01, \quad \varphi = 0.$$

* Результаты представлены в табл. 2. Для варианта, отмеченного в таблице звездочкой, осреднение проводилось по десяти траекториям, а в остальных случаях — по шести. При обстреле ПК решетки с $a = 1.2$ три из шести траекторий, расположенные вблизи центра грани, оказались «поглощенными» — частицы прошли насквозь весь блок атомов. Одна из этих траекторий представлена на фиг. 1, г. На

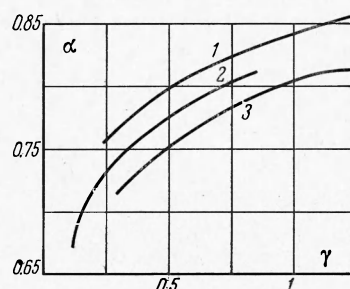
фиг. 4, для сравнения решеток между собой, результаты представлены в зависимости от одного параметра — удельного объема решетки γ , т. е. объема, приходящегося на один атом кристалла. Эта величина равна, как известно,

$$a^3 \text{ — для ПК, } \frac{1}{2} a^3 \text{ — для ОЦК и } \frac{1}{4} a^3 \text{ — для ГЦК.}$$

Проведена серия расчетов для определения влияния типа потенциала взаимодействия и его параметров на получаемый коэффициент аккомодации.



Фиг. 3. Зависимость коэффициента аккомодации от энергии частицы



Фиг. 4. 1 — ОЦК, 2 — ГЦК, 3 — ПК

Было проведено сравнение двух наиболее часто употребляемых потенциалов: 6-12 Леннарда — Джонса

$$V(r) = 4\epsilon [r^{-12} - r^{-6}]$$

и Морзе

$$V(r) = 4\epsilon [e^{-2a\sigma(r-1)} - e^{-a\sigma(r-1)}]$$

Для обоих потенциалов глубина потенциальной ямы принималась равной s . Выбор параметра $a\sigma$ требует дополнительного условия.

Обычно для этого параметра предлагается значение $55/12$, что обеспечивает одинаковость

$$\int_1^{\infty} V(r) dr$$

для обоих потенциалов. Это требование не имеет физического смысла, однако приводит к хорошим совпадениям результатов при малых энергиях частиц, когда основную роль играет область $r > 1$. В настоящих расчетах энергия налетающей частицы была в 50—1000 раз больше глубины потенциальной ямы, и совпадения результатов, полученных с использованием того и другого потенциала при $a\sigma = 55/12$, не наблюдалось. Для столь больших (сравнительно с ϵ) энергий более важным будет совмещение отталкивательной части потенциала ($r < 1$), что достигается, если потребовать одинаковости расстояния максимального сближения частиц с энергией E_0 . При этом

$$a\sigma = \left(\ln \frac{1 + \sqrt{1 + E_0/\epsilon}}{2} \right) \left[1 - \left(\frac{2}{1 + \sqrt{1 + E_0/\epsilon}} \right)^{1/6} - 1 \right]$$

Зависимость $a\sigma$ от E_0/ϵ слабая:

$$a\sigma = 6 \quad \text{при } E_0/\epsilon = 0, \quad a\sigma = 7.4 \quad \text{при } E_0/\epsilon = 600$$

(как отмечалось, величина $E_0/\epsilon = 12 \mu w^2 / s$).

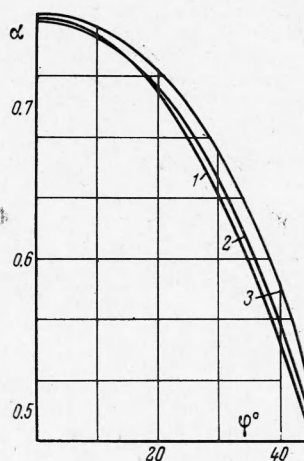
Результаты расчета α при таком выборе $a\sigma$ приведены в последней колонке табл. 2 (значения безразмерных параметров те же, что и для остальной таблицы). Рассчитанные величины коэффициента аккомодации близки к соответствующим значениям, полученным с использованием потенциала 6-12 Леннарда — Джонса. Таким образом, в нашем диапазоне параметров при соответствующем выборе величины $a\sigma$ оба потенциала следует признать эквивалентными. Во всех остальных расчетах был использован потенциал Леннарда — Джонса.

Влияние глубины потенциальной ямы на коэффициент аккомодации было обследовано для варианта: ОЦК, $w = 1$, $\mu = 0.5$, $\phi = 0$, $a = 0.8$. Получены следующие результаты:

$$\begin{array}{ccc} s = 0.01 & 0.02 & 0.04 \\ \langle \alpha \rangle = 0.7576 & 0.7733 & 0.8077 \end{array}$$

Увеличение глубины потенциальной ямы приводит к некоторому увеличению α .

Все приведенные выше результаты относились к падению атома на поверхность кристалла по нормали ($\phi = 0$). На фиг. 5 приведены результаты расчета коэффициента аккомодации (осредненного по азимуту и точкам цели) как функции угла ϕ и энергии налетающей частицы для варианта ОЦК, $\mu = 0.5$, $s = 0.01$. При увеличении угла ϕ минимум на кривой $\alpha(w)$ сдвигается в сторону меньших энергий, отражение приближается к зеркальному и сглаживается зависимость α от точки цели.



Фиг. 5. Зависимость коэффициента аккомодации от угла падения:
1 — $w = 1.0$, 2 — $w = 1.4$,
3 — $w = 2.0$

Поступила 1 XII 1966

ЛИТЕРАТУРА

1. Oman R. A., Bogan A., Weiser C. H., Li C. H. Interactions of Gas Molecules with an Ideal Crystal Surface. Amer. Inst. Aeronaut. and Astron. J. vol. 2, No. 10, 1964, p. 1722.
2. Рыжов Ю. А., Стриженов Д. С. Энергообмен при взаимодействии атомов с поверхностью идеального кристалла. Докл. АН СССР, 1967, т. 172, № 6, стр. 1309.