

# STICKING DE ATOMOS DE SUPERFICIES

J. Gervasoni, V. H. Ponce

Centro Atómico Bariloche, Comisión Nacional de Energía Atómica  
CC439, 8400 San Carlos de Bariloche.

Se presenta un modelo clásico, el de reflexión especular, para el sticking (atrapamiento) de átomos en la superficie. Se compara con el tratamiento cuántico del movimiento del átomo para energías arbitrariamente bajas.

## 1. INTRODUCCION

Cuando un átomo se acerca a la superficie de un sólido, el acoplamiento entre ambos no puede ser perfectamente adiabático, por lo que el átomo pierde inelásticamente parte de su energía cinética inicial. Si la pérdida es relativamente pequeña, el átomo rebota en la superficie y se separa indefinidamente con una energía cinética inferior a la inicial (scattering inelástico, propiamente). Eventualmente, la pérdida inelástica de energía puede ser mayor que la energía cinética inicial y el átomo queda entonces atrapado en la superficie. Una cuestión fundamental es cómo pierden energía los átomos, es decir, qué tipo de excitaciones tiene lugar y cuál es la naturaleza de la interacción que las induce. En algunos sistemas se sabe con bastante certeza cuál es el mecanismo dominante. Así, por ejemplo, la disipación electrónica es muy importante en el scattering inelástico de átomos químicamente activos por superficies metálicas. Tales átomos se caracterizan por tener algún nivel electrónico cercano a la energía de Fermi. La transferencia de carga es entonces importante y los modos electrónicos determinan fuertemente la inelasticidad del proceso<sup>1,2</sup>.

Los átomos de gases nobles, sin embargo, tienen sus niveles lejos de la energía de Fermi del metal, por lo que es razonable pensar que los procesos inelásticos están dominados por la excitación de fonones. Tal parece ser el caso en el sticking de átomos nobles pesados como el Kr y el Xe, para los que existe un acuerdo aceptable entre los experimentos y la teoría<sup>3</sup>.

La situación más problemática se da en el sticking de He y Ne en metales a bajas energías<sup>3,4</sup>, donde los datos experimentales difieren notablemente de los modelos teóricos para el coeficiente de acomodación. Este coeficiente se define como  $\alpha(E) = E_f - E / (E_s - E)$ , donde  $E$  es la energía inicial,  $E_f$  es la energía media de la partícula emergente y  $E_s = k_b * T_s$ , siendo  $T_s$  la temp. del sustrato y  $k_b$  la cte. de Boltzmann. Si el scattering es completamente elástico,  $E_f = E$ , por lo que  $\alpha = 0$ .

Si, por el contrario, todos los átomos son absorbidos y eventualmente desorbidos térmicamente,  $E_f = E_s$  y  $\alpha = 1$ . El coeficiente de acomodación es, por lo tanto, una medida de la termalización que sufre el haz dispersado en su contacto con la superficie. El coeficiente de sticking,  $s(E)$ , está relacionado con el coeficiente de acomodación, y en general se los considera indistintamente ya que suelen tener una dependencia en  $E$  cualitativamente parecida.

Las teorías cuánticas que consideran la excitación de fonones predicen que  $\alpha(E)$  y  $s(E)$  son funciones crecientes de la energía  $E$  cuando ésta es pequeña ( $\approx$  meV), con ambos  $\alpha(0)$  y  $s(0)$  del orden de algunas centésimas para el sistema He sobre Tungsteno (W). Sin embargo, los resultados experimentales obtenidos en diferentes sistemas<sup>5</sup> indican que  $\alpha(E)$  y  $s(E)$  son funciones decrecientes para  $E$  pequeña, presentando  $\alpha(E)$  un mínimo pronunciado en un valor de  $E$  que es del orden de la energía de adsorción átomo-sólido. Para átomos masivos como el Kr y el Xe los experimentos dan a entender claramente que  $\alpha(0) = s(0) = 1$ .

Hasta hace poco, no había medidas para el He a energías suficientemente bajas. Recientemente, Sinvani, Cole y Goodstein<sup>6</sup> han medido  $2/3 < s(e) < 1$  para  $E \approx 1$  meV, obteniendo esencialmente el mismo resultado cuando la superficie estaba recubierta por una submonocapa de He preadsorbido. Estos mismos autores han observado posteriormente que la probabilidad de sticking se acerca a la unidad cuando el ángulo de incidencia se aproxima a la normal a la superficie, y que los átomos que no son atrapados se dispersan especular y elásticamente.

La discrepancia cuantitativa y cualitativa entre la teoría cuántica y los datos experimentales es algo desconcertante. Goodman<sup>4</sup> sugiere la posibilidad de que el sticking sea debido a procesos multifonónicos, dominando éstos sobre los de un fonón por razones que no se entienden todavía. Llega incluso a poner en duda la validez de las condiciones experimentales por posible contaminación e irregularidades de las superficies. Esta objeción es de

más dudosa justificación después de los experimentos de Sinvali, Cole y Goodstein.

## 2. CALCULO DEL COEFICIENTE DE STICKING: USANDO EL MODELO SEMI-CLASICO DE REFLEXION ESPECULAR.

Teniendo en cuenta que las limitaciones del modelo son muchas, desde el punto de vista que ya no se puede hablar de una trayectoria de la partícula bien definida, en especial para bajas velocidades, intentaremos, no obstante, definir un coeficiente de sticking que surja de las posibilidades del modelo. Una cantidad central para el cálculo de la probabilidad de sticking es la variación de energía que la partícula sufre al atravesar la superficie del material. Para hallar el potencial y la energía perdida por la partícula, aplicamos el modelo de reflexión especular<sup>5</sup>, en el que el sólido es aproximado por un jellium, donde el efecto de los núcleos iónicos de la red es simulado por un fondo uniforme de carga positiva (que garantiza la neutralidad de carga). En este modelo, el sistema físico real (barrera superficial infinita y jellium para el sólido), es reemplazado por dos pseudomedio extendidos, con las condiciones de contorno adecuadas.

Cuando la partícula incide desde el exterior al material, se tiene:

a) para el vacío: una densidad superficial de carga, la partícula y su imagen acercándose a la superficie.

b) para el medio: densidad superficial de carga de signo opuesto a la del vacío (debido a la continuidad del vector desplazamiento eléctrico  $\vec{D}(r,t)$ ) y la partícula atrapada. (Ver figura 1).

En  $t=0$ , la partícula queda atrapada en las cercanías de la superficie. Tomamos como definición para el coeficiente de sticking.

$$s(E) = \frac{E_f - E}{E_s - E} \quad (1)$$

con  $E_f, E$  y  $E_s$  definidas de la misma forma que en

el apartado anterior, al definir el coeficiente de acomodación y donde el estado final se alcanza en  $z=z_1$ , a  $t=0$ ; siendo  $z_1$  el punto donde se frena la partícula.

Usamos la constante dieléctrica de la hidrodinámica, que depende sólo de la frecuencia:

$\epsilon(\omega) = 1 - (\omega_p/\omega)^2$ , donde  $\omega_p$  es la frecuencia de oscilación del plasma, y obtenemos la energía perdida en cada pseudomedio

a) para el vacío

$$E = Q^2 \omega_s \operatorname{arctg}(\omega/\omega_s) \quad (2)$$

donde:  $Q$  es la carga de la partícula,  $\omega_s = \omega_p/\sqrt{2}$  es la frecuencia del plasma superficial y  $u = (2E/m)^{1/2}$  es la velocidad clásica de la partícula, perpendicular a la superficie, siendo  $m$  su masa.

b) para el medio

$$E_f = Q^2 (z_1/2\omega_s)^{1/2} [H_{1/2}(\omega_s \times z_1) - N_{1/2}(\omega_s \times z_1)] \quad (3)$$

donde:  $H$  son las funciones de Struve y  $N$  las funciones de Neumann

Es importante saber cuál mecanismo opera en el proceso de sticking. Se podría pensar que en fisiorción actúan mecanismos que involucran fonones y en quimisorción los pares electrón-hueco. Sólo en el caso en que el sólido sea infinito, el sticking es permanente. En nuestro modelo, el sólido es infinito (lo simulamos como un continuo de excitaciones), pero en la práctica puede considerarse infinito a un sólido si el tiempo de observación  $t_{ob}$  satisface  $t_{ob} \ll h/\Delta E$ , donde  $\Delta E$  mide el espaciado de las excitaciones internas relevantes del sistema. Para un sólido a temperatura finita ( $T \neq 0^\circ K$ ), el comportamiento a grandes tiempos es que el átomo se desabsorbe, sea o no infinito el sólido.

Aplicación al He sobre Tungsteno:

Con (1), (2) y (3), se tienen los elementos necesarios para un cálculo del sticking del He en W. Los resultados se muestran en la figura 2.  $S(E)$  tiene un máximo en  $E = 3$  meV y se aproxima a un valor finito

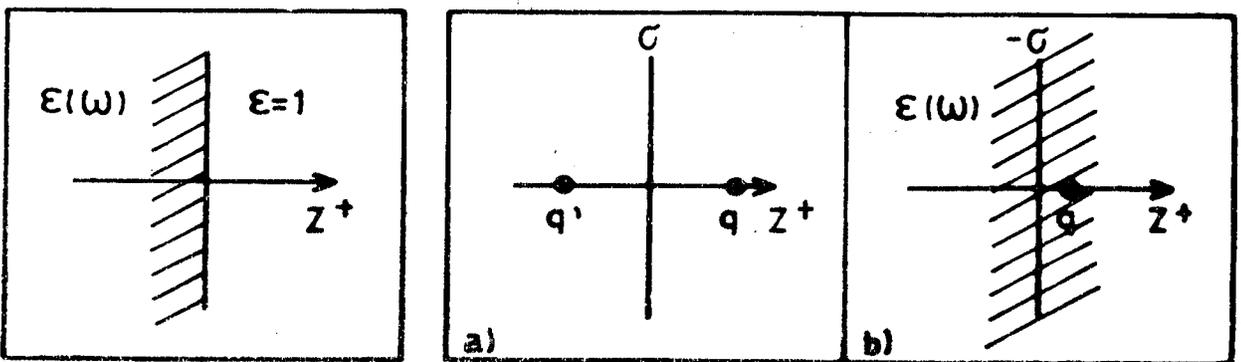


Figura 1: a) vacío extendido - b) jellium infinito

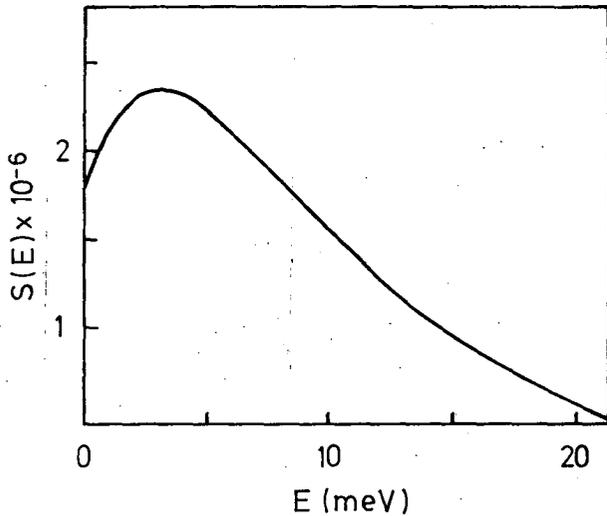


Figura 2: Coeficiente de sticking para He sobre Tungsteno, en función de la energía inicial.

cuando  $E$  tiende a cero. Para bajas energías nuestros cálculos dan:  $S(E) = 1.6 \times 10^{-6}$ , un resultado que está en buen acuerdo con los cálculos de Gunnarsson y Schonhammer<sup>6</sup> y Crljen y Gumhalter<sup>7</sup>, pero que está varios órdenes de magnitud por debajo de los valores necesarios para explicar los datos experimentales. Es interesante señalar que el resul-

tado obtenido clásicamente, y el obtenido con el formalismo cuántico (1, 2) presentan un acuerdo razonable, ya que la estimación cuántica da  $S(E) = 2.10^{-6}$ .

En conclusión nuestros cálculos confirman que los pares electrón-hueco no pueden jugar un papel importante en el scattering inelástico de He por superficies metálicas. Esta conclusión está de acuerdo con la reciente información experimental de Sinvani et al., pues ellos no observaron grandes diferencias entre el sticking del He en metales y el sticking en sólidos dieléctricos.

#### REFERENCIAS

1. Brivio y Grimley, *Surface Sci.*, 131, 475 (1983)
2. Schonhammer y Gunnarsson, *Phys. Rev. B*, 22, 1629 (1980)
3. Sinvani, Cole y Goodstein, *Phys. Rev. B*, 29, 3905, (1984)
4. F. Goodman, *Surface sci*, 111, 279 (1981)
5. F. García - Moliner y F. Flores. *Introduction to the theory of solid surfaces* (Cambridge, Univ. Press, 1979)
6. Gunnarsson y Schonhammer, *Phys. Rev. B* 25, 2514 (1982)
7. Gumhalter y Crljen, *Surface Sci*, 117, 116 (1982)