

Трёхмерное моделирование электронного обмена атомной частицы с поверхностью, покрытой адсорбатами

1 Слайд

Добрый день, я Мелкозёрова Юлия Алексеевна, студент 4 курса, и моя работа «Трёхмерное моделирование электронного обмена атомной частицы с поверхностью, покрытой адсорбатами»

2 Слайд

Представление плана

3 Слайд

Исследование электронного транспорта при взаимодействии атомных частиц с поверхностями твердых тел имеет фундаментальное и практическое значение в нескольких областях физики и химии. Для фундаментальной науки электронный обмен представляет интерес из-за таких явлений, как рассеяние, распыление, адсорбция и молекулярная диссоциация. Также, с помощью анализа спектров, рассеянных или распыленных ионов, производится диагностика поверхности. Таким образом возможно определить ее химический состав, кристаллографическую структуру, наличие адсорбатов и т. д. Поскольку большая часть экспериментального оборудования регистрирует преимущественно заряженные частицы (атомы или ионы), процессы нейтрализации или ионизации будут существенно влиять на зарегистрированные спектры, и поэтому расчеты электронного обмена особенно важны.

Экспериментальные исследования выявили значительное влияние присутствия адсорбатов на электронный обмен между атомной частицей и поверхностью твердого тела. Это влияние описывают с помощью двух различных подходов: (i) нелокальный эффект, связанный с изменением работы

выхода поверхности твердого тела, вызванным адсорбатами; он изменяет относительное энергетическое положение атомного и поверхностного электронных уровней, доступных для электронного обмена; (ii) локальный эффект, возникающий из-за локального изменения электронных потенциалов вокруг адсорбата, которое непосредственно влияет на электронные волновые функции.

Нелокальный эффект значительно легче наблюдать экспериментально, т.к. он связан непосредственно с изменением работы выхода. Локальный эффект существенно сложнее изучать из-за необходимости рассматривать квантовые эффекты.

Резонансный электронный обмен между атомом и металлом сильно изменяется в окрестности адсорбата. Он имеет характер трехчастичного процесса. В случае адсорбированных щелочей диапазон действия таких адсорбатов достаточно велик. Трехчастичный аспект приводит к существованию нескольких квазистационарных состояний, которые участвуют в процессе электронного обмена и которые связаны неадиабатическими связями. Этому аспекту до сих пор уделялось очень мало внимания.

4 Слайд

Проведение экспериментов для изучения процесса резонансного электронного обмена затруднено. Во-первых, для них требуются поверхности, приближенные к кристаллографически идеальным, т.к. малейшие дефекты будут сказываться на зарядовом обмене. Во-вторых, в рамках эксперимента невозможно наблюдать такие зависимости, например, как $E(z)$ и $\Gamma(z)$ (ось z направлена перпендикулярно изучаемой поверхности), из-за постоянного движения частиц и квантовых эффектов. Таким образом, именно моделирование позволяет изучить и объяснить процессы, происходящие во время электронного транспорта.

Компьютерное моделирование процесса резонансного электронного обмена между атомной частицей и металлической поверхностью основано на численном решении нестационарного уравнения Шредингера в большой пространственной области (около 10^3 – 10^4 нм³).

Относительно строгое квантово-механическое описание резонансного электронного обмена основывается на решении уравнения Шредингера с гамильтонианом Андерсона—Ньюнса. Однако данная модель использует существенное допущение – адиабатическое приближение. В рамках адиабатического приближения эффективность электронного перехода считается независимой от скорости и текущей заселенности уровня иона/атома. Изменение заселенности уровня иона/атома и вероятность электронного перехода в рамках данного приближения формально можно получить путем интегрирования полуклассического кинетического уравнения.

Несмотря на успешное объяснение многих закономерностей электронного обмена с помощью адиабатического приближения, имеется ряд трудностей. В случае металлических поверхностей, частично покрытых адсорбатами, возможность электронных переходов между атомом, адсорбатом и подложкой сильно влияет на электронный обмен, приводя к поведению, существенно отличающимся от предсказанного адиабатическим приближением.

5 Слайд

В данной работе используется метод распространения волновых пакетов, который не опирается на адиабатическое приближение, что позволяет моделировать более сложные системы, в частности, системы с присутствием адсорбата. Суть метода распространения волновых пакетов заключается в нахождении эволюции волнового пакета туннелирующего электрона путем численного решения нестационарного трехмерного уравнения Шредингера.

Движущаяся атомная частица и неподвижная металлическая поверхность описываются независимыми псевдопотенциалами (V_{atom} и V_{surface}

соответственно). С помощью теории функционала плотности были рассчитаны псевдопотенциалы для двух типов объемных металлических поверхностей: металл со свободными электронами (модель «желе») и металлы с спроектированной шириной запрещенной зоны.

Для удобства в данной работе была использована атомная система единиц ($m_e = \hbar = e = 1$).

Численное решение уравнения Шредингера дает зависимость волновой функции туннелирующего электрона от координат и времени. Проецируя волновую функцию на основное состояние электрона в атоме, получаем автокорреляционную функцию системы.

Квадрат ее модуля дает вероятность нахождения на ионе/атоме электрона в основном состоянии (заселенность иона/атома).

Кроме того, важными характеристиками электронного обмена являются: энергетический уровень (E) и ширина уровня (Γ) иона или атома. Энергетический уровень представляет собой потенциальную энергию электрона, находящегося на ионе/атоме в основном состоянии. Ширина уровня характеризует эффективность перехода электрона с иона или атома на поверхность, т. е. скорость распада основного состояния, и она обратно пропорциональна времени жизни электрона в основном состоянии.

Перечисленные выше величины находятся из приближения:

Указано на слайде

Из данного выражения можно сделать вывод, что энергетический уровень представляет собой частоту осцилляций автокорреляционной функции, а ширина уровня есть показатель затухания ее модуля.

6, 7 Слайд

В результате проведенных модельных расчетов была получена зависимость эффективности электронного обмена иона H^- с поверхностью $Ag(110)$ от

расстояния до атома адсорбата Li по оси z . Координата Z представляет собой расстояние частицы до поверхности в атомной системе единиц, считая, что адсорбат расположен в центре декартовой системы координат.

8 Слайд

Из первой зависимости (рис. 1) можно сделать вывод, что в присутствии адсорбата энергетический уровень смещается. Поверхностные адсорбаты вызывают сильные локальные возмущения в электронной структуре, а также изменение потенциала в их окружении.

Из второй зависимости (рис. 2) видно увеличение ширины уровня в присутствии адсорбата. Также, с увеличением расстояния влияние адсорбата ослабевает и, начиная с некоторого значения z , зависимости совпадают.