



Doctoral Thesis

Scattering of atomic beams off adsorbate-covered surfaces

Author(s):

Heuer, Markus

Publication Date:

1984

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-000343258> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

Diss.ETH Nr. 7618

Scattering of Atomic Beams off Adsorbate-Covered Surfaces

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY
ZURICH

for the degree of
Doctor of Natural Sciences

presented by
MARKUS HEUER
dipl. Phys. ETH
born April 5, 1955
citizen of Aegerten (Kt. Bern)

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. T. M. Rice, examiner
Prof. Dr. W. Hunziker, co-examiner

J. M. Rice

ADAG Administration & Druck AG
Zürich 1984

Abstract

The diffuse diffraction pattern for atomic beams scattered off adsorbate-covered surfaces is calculated in the dilute limit.

First, several adatom configurations on a planar surface are considered, using a pure hard-wall potential for the beam-surface interaction. The scattering problem for an isolated spherical adatom is solved exactly and serves as a test for the Kirchhoff approximation. At finite (but small) coverages the effect of adatom correlations is included in a single scattering approximation. A repulsive interaction between the adatoms is found to reduce the specular differential cross-section (d.c.s.); attractive interactions lead to an agglomeration of adsorbates and thus to a d.c.s. enhancement (at specular). If adatoms condense into islands one observes Bragg phenomena which give information on the island size.

In the case of an isolated spherical adatom the influence of long-ranged attractive beam-surface interactions is investigated by means of a two-potential formula. Generalizations of the eikonal and of the Kirchhoff approximation are developed for use in the numerical evaluation. An attractive potential centered on the adatom drastically sharpens the specular peak. An additional potential ascribed to the clean surface distorts the incident wave and thereby modifies the structure of the scattering amplitude. The resulting enhancement of the specular d.c.s. is due to the spatial variation of the clean-surface potential over the adatom dimensions.

In addition to the sharp Bragg reflections of the clean substrate an atom adsorbed on a weakly corrugated surface produces a diffuse scattering distribution which is calculated to lowest order in the Bragg amplitudes. From the ratios between the intensities around different Bragg directions information on the adsorption site can be extracted.

A quantity of importance in catalysis is the energy barrier to diffusion of adatoms on the surface. In the final part of this work the inelastic scattering component associated with adatom diffusion is investigated. The crystalline surface acts as a periodic potential which sets up a well-defined diffusion threshold for a heavy adatom initially

Localized in a potential trough. If the scattering plane lies along a high-symmetry direction of the substrate one accordingly finds a clear-cut transition in the widths of the energy-loss peaks which correspond to the adatom energy bands. This allows for a spectroscopic detection of the diffusion threshold.

Zusammenfassung

In dieser Arbeit berechnen wir differentielle Wirkungsquerschnitte (d.Wq.) für die Streuung von Atomstrahlen an Adsorbaten. Wir interessieren uns für die diffuse Komponente, die bei geringen Bedeckungsgraden beobachtet wird.

Zuerst werden verschiedene Adatom-Konfigurationen auf einer ebenen Oberfläche untersucht, wobei die Strahl-Oberflächen Wechselwirkung durch eine harte Wand beschrieben wird. Das quantenmechanische Streuproblem für ein einzelnes sphärisches Adatom ist exakt lösbar und liefert ein Testbeispiel für die Kirchhoff Näherung. Bei endlichen Bedeckungsgraden berücksichtigen wir Korrelationen zwischen den Adatomen unter Vernachlässigung von Mehrfachstreuung. Eine abstossende Wechselwirkung zwischen den Adsorbaten zeigt sich in einer Verringerung des spekularen d.Wq. Eine anziehende Wechselwirkung bewirkt andererseits eine Zusammenballung von Adatomen zu ausgedehnteren Streuzentren und führt damit zu einer Vergrößerung des d.Wq. in der spekularen Richtung. Die bei Adatom-Inseln beobachtbaren Bragg-Erscheinungen erlauben Rückschlüsse über die Ausdehnung der Inseln.

Am Beispiel des isolierten Adatoms untersuchen wir mittels einer Zwei-Potential Formel den Einfluss von langreichweitigen Strahl-Oberflächen Wechselwirkungen auf das Streubild. Zur numerischen Berechnung der Streuamplitude werden Verallgemeinerungen semiklassischer Näherungen (Eikonal und Kirchhoff Appr.) verwendet. Als Resultat findet man eine drastische Verschmälerung und Erhöhung des spekularen Beugungsmaximums infolge der anziehenden Wechselwirkung zwischen gestreutem und adsorbiertem Atom. Ein durch die Oberfläche zusätzlich erzeugtes anziehendes Potential verändert die Struktur der Streuamplitude und führt zu einer weiteren Erhöhung des spekularen d.Wq. Massgebend ist dabei die räumliche Aenderung des Oberflächenpotentials über die Ausdehnung des Adsorbats.

Eine reine Oberfläche mit periodischem Profil erzeugt scharfe Bragg-Reflexe. Durch die Adsorption eines einzelnen Atoms wird eine diffuse Streuverteilung überlagert, die wir im Grenzfall schwacher Oberflächenmodulation berechnen. Aus den Verhältnissen der Intensitäten in ver-

schiedenen Bragg-Richtungen ergeben sich Rückschlüsse über die Lage des Adatoms in Bezug auf die Atome der reinen Oberfläche.

Durch den einfallenden Atomstrahl kann ein adsorbiertes Atom zur Diffusion auf der Oberfläche angeregt werden (Katalyse!). Ein anfänglich lokalisiertes, genügend schweres Adatom muss dabei eine wohldefinierte Diffusionsschwelle überwinden, welche durch ein der kristallinen Oberfläche entsprechendes periodisches Potential gegeben ist. Im letzten Teil dieser Arbeit berechnen wir die Energieverlust-Funktion für inelastische Streuung entlang einer Symmetrierichtung der Oberfläche. Die Struktur des Energieverlusts als Funktion des Energieübertrags widerspiegelt die Energiebänder der angeregten Zustände des Adatoms (Bloch-Wellen). Der abrupte Uebergang in den Bandbreiten ermöglicht eine spektroskopische Bestimmung der Diffusionsschwelle.