— ПОВЕРХНОСТЬ, ТОНКИЕ ПЛЕНКИ —

УДК 548.47

КВАНТОВЫЙ РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ ПРИ НОРМАЛЬНОМ ПАДЕНИИ ПУЧКА ЭЛЕКТРОНОВ СРЕДНЕЙ ЭНЕРГИИ НА РАСТУЩУЮ ГЕТЕРОЭПИТАКСИАЛЬНУЮ ПЛЕНКУ

© 2025 г. С. М. Шкорняков^{1,*}

¹Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова Курчатовского комплекса кристаллографии и фотоники, НИЦ "Курчатовский институт", Москва, Россия

> *E-mail: shkornyakov@mail.ru Поступила в редакцию 15.07.2024 г. После доработки 04.09.2024 г. Принята к публикации 24.09.2024 г.

Проведен расчет коэффициента отражения электронов средней энергии (~10 кэВ) при их нормальном падении на тонкую растущую монокристаллическую пленку. Показано, что при этом имеет место квантовый размерный эффект, который проявляется в гармонических осцилляциях интенсивности отраженного пучка. Амплитуда и период колебаний зависят от толщины растущей пленки и энергии падающих электронов. Приведена графическая иллюстрация полученных результатов.

DOI: 10.31857/S0023476125010139, EDN: ISKWYT

введение

Впервые осцилляции интенсивности зеркального и дифрагированного пучков на дифракционной картине, полученной от растущей монокристаллической пленки, наблюдались в [1–3]. Период колебаний равнялся времени напыления одного мономолекулярного слоя Ga + As, равного c/2, где c – период решетки GaAs. В [2] предполагалось, что эти осцилляции связаны с периодическим изменением шероховатости поверхности растущего кристалла, обусловленным формированием на атомарно гладкой поверхности двумерных зародышей, их разрастанием и объединением в сплошной монослой, образованием зародышей следующего слоя и т.д. В последующие годы была опубликована серия работ, в которых данное явление изучалось и использовалось для исследования механизма и кинетики роста эпитаксиальных слоев [4–8].

Однако в [9] показано, что наряду с рассеянием от поверхности пленки в данной экспериментальной ситуации должно происходить отражение электронов и от объема растущей гетероэпитаксиальной пленки, что приводит к модуляции интенсивности коротковолновых осцилляций, обусловленных рассеянием на поверхности, длинноволновыми колебаниями, вызываемыми квантовым размерным эффектом в объеме монокристаллической пленки.

Квантовый размерный эффект электронов в тонких металлических и полупроводниковых пленках хорошо изучен как теоретически, так и экспериментально [10]. Первоначально при моделировании процесса рассеяния частиц электростатический потенциал в пленке выбирался в виде прямоугольной ямы. Так как для экспериментального наблюдения эффекта необходимо, чтобы длина волны электрона была сравнима или больше неоднородностей на поверхности пленки, следовало брать энергию частиц порядка единиц электронвольт и меньше. При этом длина волны электрона получалась порядка единиц ангстрем, что сравнимо с шероховатостью поверхности. При большей энергии неоднородности в пленке значительно превосходят длину волны частиц. Таким образом, модель прямоугольной ямы запрещала экспериментальное наблюдение эффекта при больших энергиях электронов.

Ситуация меняется при анализе рассеяния электронов на монокристаллической пленке, так как в ней формируются блоховские волны, длина которых изменяется от периода кристаллической решетки до толщины пленки в каждой разрешенной зоне одномерного кристалла, что существенно больше неоднородности пленки. Впервые рассеяние волн и частиц на одномерном ограниченном периодическом потенциале монокристаллической пленки было теоретически исследовано в [11–18]. В [19] было получено выражение для одномерного квантового размерного эффекта с учетом среднего внутреннего потенциала решетки монокристаллической пленки. Эта чрезвычайно емкая формула неоднократно использовалась для теоретического рассмотрения различных моделей проявления этого эффекта.

В [20] исследован квантовый размерный эффект с учетом неупругого поглощения электронов в пленке и проведено сравнение теории с экспериментом. В [9, 20] описывается экспериментальная ситуация, когда на растущую гетероэпитаксиальную пленку падает пучок электронов под малым углом скольжения и регистрируется интенсивность дифракционной картины.

В отличие от этого в [21] теоретически исследуется ситуация нормального падения электронов на тонкую монокристаллическую пленку. При этом эпитаксиального нарашивания пленки не происходит, а варьируется энергия палающих электронов в небольшом диапазоне вблизи величины ~10 кэВ. Расчеты показывают появление осшилляший интенсивности отраженных электронов, обусловленных квантовым размерным эффектом. Ранее этот эффект при таких больших энергиях теоретически не исследовался и экспериментально не наблюдался. Его проявление с такой большой амплитудой колебаний связано с тем, что исследуется именно монокристаллическая пленка. В ней проходящие электроны распространяются в виде блоховских волн и поэтому на них проявляется квантовый размерный эффект в виде осцилляций интенсивности отраженных электронов большой амплитуды.

В [22] теоретически исследовалась та же модель эффекта, что и в [21], но энергия падающих частиц принималась ~100 кэВ. Было показано, что и при таких высоких энергиях осцилляции интенсивности отраженных электронов имеют значительную амплитуду.

В настоящей работе в отличие от [21, 22] рассматривается нормальное падение пучка электронов средней (~10 кэВ) энергии на растущую гетероэпитаксиальную пленку. Но аргументом в формулах берется не энергия электронов, а толщина растущей пленки. Оказывается, что, как и в случае скользящего падения частиц [9], имеет место значительное проявление квантового размерного эффекта.

ВЫБОР МОДЕЛИ И РАСЧЕТНЫЕ ФОРМУЛЫ

На рис. 1 приведена схема потенциальной энергии, которую приобретает электрон, падающий нормально на монокристаллическую пленку. Аналитически она задается формулой

$$V(x) = -V_0 + \frac{\hbar^2}{2m} cU \sum_{n=1}^{N} \delta(x - c(n-1))$$

для $-\frac{c}{2} \le x \le cN - \frac{c}{2},$
 $V(x) = 0$ для $x < -\frac{c}{2}, x > cN - \frac{c}{2}.$
(1)

Здесь c — период одномерной решетки, N — число периодов в ней, т.е. количество плоскостей в пленке, параллельных ее поверхности, $V_0 > 0$ — высота потенциальной ступеньки на границах пленки, $\delta(x)$ — дельта-функция Дирака, $U = 2\pi y/c^2$ —



Рис. 1. Схема потенциальной энергии электрона в пленке: V_0 – величина средней внутренней энергии, N – число параллельных поверхности монослоев в пленке, c – период одномерной решетки, t – амплитуда прошедшей волны, r – амплитуда отраженной волны.

"мощность" потенциала δ -функции, *y* – безразмерный параметр модели, \hbar – постоянная Планка, *m* – масса электрона, *x* – координата по оси, перпендикулярной поверхности пленки. Решая стационарное уравнение Шредингера с этим потенциалом, получаем следующие выражения для коэффициентов прохождения T и отражения R [19]:

$$T = tt^* = \frac{1}{1 + \frac{1}{4} \left(\frac{\lambda}{k} \operatorname{tg} \frac{kc}{2} \operatorname{ctg} \frac{\mu c}{2} - \frac{k}{\lambda} \operatorname{ctg} \frac{kc}{2} \operatorname{tg} \frac{\mu c}{2}\right)^2 \sin^2 \mu c N},$$
(2)

где модуль блоховского волнового вектора µ определяется из уравнения дисперсии

$$\cos\mu c = \cos kc + \frac{cU}{2k}\sin kc.$$
 (3)

Здесь k — модуль волнового вектора электрона в области с потенциальной энергией $-V_0$, $\lambda = \pi \sqrt{0.0268E_1}$, $k = \pi \sqrt{0.0268(E_1 + V_0)}$, где $E_1 = \left(\sin^2 \left(\frac{\alpha \pi}{180} \right) \right) E$ — нормальная составляющая энергии электронов *E* падающего пучка (задается в эВ), V_0 — величина потенциального скачка на границах пленки, задается также в электронвольтах. Угол скольжения α измеряется в градусах, модули волновых векторов λ и *k* получаются в обратных ангстремах. Коэффициент отражения R = 1 - T.

Отметим, что множитель 0.0268 в выражениях для λ и k, приведенных выше, есть размерный коэффициент, численное значение которого равно 0.0268, а размерность — $[Å^{-2} \cdot \Im B^{-1}]$.

Подробные рекомендации к вычислительному алгоритму в случае, когда правая часть уравнения дисперсии (3) становится больше единицы, даны в [19].

Особенно простой вид формула (2) приобретает, когда не учитывается средний внутренний потенциал, т.е. когда $V_0 = 0$. Тогда

$$T = \frac{1}{1 + \left(\frac{cU}{2k}\right)^2 \frac{\sin^2 \mu cN}{\sin^2 \mu c}}.$$
 (4)

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Рассмотрим зависимости коэффициента отражения R от энергии электронов пучка R(E) для пленки толщиной cN = 200 Å. На них будем выбирать энергию частиц для дальнейшего исследования в процессе роста пленки. На рис. 2 зависимости R(E) приведены для c = 5 Å, y = -1, $V_0 = 10$ эВ. Эти значения выбраны исходя из следующих соображений. Период решетки c = 5 Å соответствует среднему значению межплоскостных расстояний плоскостей с малыми кристаллографическими индексами в большинстве кристаллов. Значение параметра y = -1 приводит к величине запрещенной зоны между валентной и зоной проводимости кристалла порядка единиц электронвольт, что

КРИСТАЛЛОГРАФИЯ том 70 № 1 2025

соответствует реальной ситуации. $V_0 = 10 \ \Im B - \Im T$ ипичное среднее значение внутренней энергии электронов в кристаллах.



Рис. 2. Графики зависимости R(E) в разных масштабах для c = 5 Å, y = -1, $V_0 = 10$ эВ.

На рис. 2а видны резкие интенсивные пики. Они объясняются дифракцией на одномерной решетке и описываются модифицированной формулой Вульфа–Брэгга. Расстояние между пиками есть

$$\Delta E_n \approx \frac{2\sqrt{E_n}}{\sqrt{0.0268c^2}},\tag{5}$$

где E_n — энергия, соответствующая *n*-му пику. Вывод этой формулы приведен в [22]. На рис. 26 в



Рис. 3. График зависимости R(N) при трех значениях энергии пучка: а — значение энергии лежит в запрещенной зоне, б, в — в разрешенной зоне.

увеличенном масштабе видим, что между пиками интенсивность отражения заметно осциллирует. Эти осцилляции являются одним из проявлений квантового размерного эффекта и становятся особенно наглядными при еще большем увеличении масштаба (рис. 2в).

На рис. 2в выбираем значение энергии $E = 10520 \ \text{эB}$, соответствующее положению одного из дифракционных пиков, и подставляем его в формулу (1) в качестве параметра. Затем проводим вычисление R(N) при этом значении энергии. что соответствует в эксперименте регистрации интенсивности отражения в зависимости от толщины растущей гетероэпитаксиальной пленки при данной энергии электронов пучка. На рис. За приведена эта зависимость. Видно, что интенсивность дифракционных пиков равна единице примерно при толщине Nc = 1000 Å. Никаких осцилляций, соответствующих квантовому размерному эффекту, нет. Они появляются, если чуть сдвинемся по энергии (рис. 2в) вправо. Значение огибающей колебаний при энергии E = 10524 эВ на этом рисунке соответствует амплитуде осцилляций на рис. 36, на котором изображена зависимость R(N) при энергии пучка E = 10524 эВ. Видно, что колебания имеют значительную амплитуду и период в 350 Å. То есть это длинноволновые осцилляции, подобные тем, что проявляются при скользящем падении пучка [9]. При еще большем смещении по энергии вправо $E = 10528 \ \text{эВ}$ (рис. 2в) получим колебания с меньшими амплитудой и периодом (рис. 3в).

Далее вычислим интенсивность отраженного пучка с учетом неупругого поглощения и рассеяния электронов в пленке. Для этого умножим R(N) на эмпирический множитель

$$S = \exp(-\varpi cN),$$

где коэффициент ослабления æ равен 0.01, что характерно для энергии пучка E = 10 кэВ. Коэффициент ослабления представляет собой сумму коэффициента поглощения и коэффициента рассеяния. Получим приближенную эмпирическую формулу

$$I = I_1 R(N) S(N),$$

 I_1 положим равным единице. Отметим, что последняя формула является приближенной и лишь качественно отражает экспериментальную ситуацию. Но, поскольку расчеты модельные, считаем этот выбор оправданным. На рис. 4 приведены результаты. Случай (а) соответствует энергии пучка E = 10524 эВ, а вариант (б) – E = 10528 эВ. Видно, что по сравнению с ситуацией скользящего падения пучка [20] спад интенсивности отражения не такой резкий. Это обусловлено тем, что коэффициент ослабления в случае нормального падения меньше.

До сих пор не учитывалось влияние шероховатости пленки на отражение электронов от ее поверхности. При нормальном падении пучка это

КРИСТАЛЛОГРАФИЯ том 70 № 1 2025



Рис. 4. Зависимость интенсивности отраженного пучка от толщины нарастающей пленки с учетом ослабления, вызванного поглощением и рассеянием электронов, для двух значений энергии.

явление не изучалось ни теоретически, ни экспериментально. Примем, что формула для интенсивности отражения аналогична случаю скользящего падения пучка [20, 23]:

$$I = \frac{1}{2}I_0 + I_1 R(N) S(N) \cos(2\pi N - \varphi).$$
 (6)

Результаты расчета по формуле (6) приведены на рис. 5, где $I_0 = 1$. Видно, что коротковолновые осцилляции, вызванные рассеянием от поверхности, модулируются длинноволновыми колебаниями, причина которых — квантовый размерный эффект в объеме пленки. Наблюдается также спад их интенсивности за счет поглощения и рассеяния электронов. Аналогичное поведение кривая отражения имеет при теоретических расчетах [20] и наблюдается экспериментально [24] в случае скользящего падения пучка.

СООБРАЖЕНИЯ ОБ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОМ НАБЛЮДЕНИИ ЭФФЕКТА

Теоретические расчеты проведены для одномерной модели потенциала. Считаем, что такая модель отражает основные характеристики рассеяния

КРИСТАЛЛОГРАФИЯ том 70 № 1 2025



Рис. 5. Коротковолновые осцилляции, модулированные длинноволновыми колебаниями, с учетом ослабления интенсивности пучка.

электронов растущей пленкой. В трехмерной картине не удается получить аналитическое выражение для описания квантового размерного эффекта. При отражении пучка электронов средней и высокой энергии от монокристалла часто наблюдаются либо дифракционные рефлексы, либо кикучи-полосы, либо и то и другое вместе [25, 26]. Поэтому при настройке энергии пучка, отраженного от монокристаллической подложки, нужно выбирать ее значение, лежащее в пределах разрешенной зоны. В этом случае его интенсивность мала (рис. 2), поэтому фон на кривой отражения также мал. Энергия электронов также должна соответствовать значению, лежащему внутри разрешенной одномерной зоны и растущей монокристаллической пленки, поскольку только тогда можно наблюдать длинноволновые осцилляции, характерные для квантового размерного эффекта. При этом интенсивность отражения мала (рис. 2). Поэтому нет возможности увидеть осцилляции "на глаз". Потребуется оборудование, фиксирующие их.

ОБ ИНТЕНСИВНОСТИ БРЭГГОВСКИХ РЕФЛЕКСОВ

В [27] была выведена формула для интенсивности брэгговских рефлексов, которые появляются при варьировании энергии электронов, падающих нормально на монокристаллическую пленку (рис. 2). Ниже повторим этот вывод более подробно, а также продолжим преобразование полученной ранее формулы до окончательного простого выражения.

Отметим, что появление узких резонансных пиков вовсе не связано с квантовым размерным эффектом, а обусловлено известной формулой Вульфа–Брэгга:

$$2d\sin\alpha = n\lambda. \tag{7}$$

При нормальном падении синус угла скольжения равен единице и параметром в условии резонанса остается длина волны излучения, которая определяется его энергией. Так как в данном случае межплоскостное расстояние d = c, а $\lambda = 2\pi/k$, формула Вульфа—Брэгга записывается в виде

$$kc = \pi n. \tag{8}$$

Из нее в [22] выводится формула (5) для расстояний между пиками.

Итак, продолжим вывод формулы для интенсивности брэгговских пиков. Так как их положение определяется условием (8) и при этом $\mu c = kc + \pi m$, где m — целое число (формула (3)), то, подставляя его в формулу (4) и дважды дифференцируя по правилу Лопиталя числитель и знаменатель дроби в знаменателе правой части уравнения (4), при условии (8) получим

$$T = \frac{1}{1 + \left(\frac{cU}{2k}\right)^2 N^2}.$$
(9)

Отсюда

$$R = 1 - T = \frac{\left(\frac{cU}{2k}\right)^2 N^2}{1 + \left(\frac{cU}{2k}\right)^2 N^2}.$$
 (10)

В [27] был сделан вывод о независимости интенсивности резонансного пика от его номера n. Это неправильный вывод. Дело в том, что в (10) k зависит от энергии E, т.е. от n. Покажем это. Подставим (8) в (10). Тогда, так как

$$U=\frac{2\pi y}{c^2},$$

получим

$$R = \frac{1}{\frac{1}{\left(\frac{c^2 UN\right)^2}{\left(2\pi n\right)^2}} + 1} = \frac{1}{\frac{n^2}{N^2}y^2 + 1}.$$
 (11)

Видно, что интенсивность зависит от N, т.е. от числа отражающих плоскостей в пленке, другими словами — от ее толщины, зависит от y — рассеивающей способности отдельной кристаллографической плоскости, а также от номера резонансного пика n.

Приведем некоторые примеры для значений y = -1, N = 80. Интенсивность первого пика (n = 1) почти равна единице, интенсивность *N*-го пика (n = N = 80) равна $R = \frac{1}{2}$. Дальше по мере увеличения номера *n* интенсивность монотонно уменьшается (11).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показано, что несмотря на то, что энергия электрона относительно высокая (10 кэВ), в растущей монокристаллической пленке при нормальном его падении проявляется квантовый размерный эффект. Он выражается в гармонических осцилляциях интенсивности отраженного пучка в зависимости от толщины растущей монокристаллической пленки. Получена приближенная формула, учитывающая ослабление интенсивности отраженного пучка за счет неупругого поглощения и рассеяния электронов, проведен расчет по ней коэффициента отражения.

Рассчитаны кривые отражения в случае наличия коротковолновых осцилляций, обусловленных отражением от поверхности растущей монокристаллической пленки. Показано, что они модулируются длинноволновыми колебаниями, определяемыми квантовым размерным эффектом.

Кроме того, отмечено, что при вариации энергии пучка на кривой отражения наблюдаются узкие резонансные пики. Выведена формула, определяющая их интенсивность, и указано выражение для интервалов между ними.

Выявлены условия, способствующие экспериментальному наблюдению эффекта.

Работа выполнена в рамках государственного задания НИЦ "Курчатовский институт".

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Harris J.J., Joyce B.A., Dobson P.J. // Surf. Sci. 1981.
 V. 103. P. L90.
- 2. Dobson P.J., Norton N.G., Neave J.H., Joyce B.A. // Vacuum. 1983. № 10–12. P. 593.
- Neave J.H., Dobson P.J., Joyce B.A., Zhang J. // Appl. Phys. Lett. 1985. V. 47 (2). P. 100.
- 4. *Joyce B.A., Dobson P.J., Neave J.H. et al.* // Surf. Sci. 1986. V. 168. P. 423.
- 5. *Dobson P.J., Joyce B.A., Neave J.H., Zhang J.* // J. Cryst. Growth. 1987. V. 81. P. 1.
- 6. *Aarts J., Gerits W.M., Larsen P.K.* // Appl. Phys. Lett. 1986. V. 48. № 14. P. 981.
- 7. Sakamoto T., Kawamura T., Nago S. et al. // J. Cryst. Growth. 1987. V. 81. № 1/4. P. 59.
- Peng L.-M., Whelan M.J. // Surf. Sci. Lett. 1990. V. 238. P. L446.
- 9. Шкорняков С.М. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2019. № 2. С. 74. https://doi.org/10.1134/S0207352819020124
- 10. Кульбачинский В.А. Физика наносистем. М.: Физматлит, 2023. 768 с.
- 11. Шкорняков С.М., Сальников М.Л., Семилетов С.А. // ФТТ. 1977. Т. 19. Вып. 3. С. 687.
- 12. Пшеничнов Е.А. // ФТТ. 1962. Т. 4. Вып. 5. С. 1113.
- 13. Schnupp P. // Phys. Status Solidi. 1967. V. 21. P. 567.

КРИСТАЛЛОГРАФИЯ том 70 № 1 2025

- 14. Schnupp P. // Solid-State Electron. 1967. V. 10. P. 785.
- Lopez C.E., Helman J.S. // Phys. Rev. B. 1974. V. 6. № 4. P. 1751.
- *Fumio S.* // Technical Report of ISSP. Ser. A. 1973. № 616. P. 1.
- Игнатович В.К. Рассеяние волн и частиц на одномерных периодических потенциалах. Препринт Р4-10778. Дубна: ОИЯИ, 1977. 17 с.
- 18. *Игнатович В.К.* Рассеяние нейтронов на несимметричном одномерном периодическом потенциале. Препринт Р4-11135. Дубна: ОИЯИ, 1978. 23 с.
- 19. Шкорняков С.М. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2017. № 6. С. 83. https://doi.org/10.7868/S020735281706018X
- 20. Шкорняков С.М. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2020. № 5. С. 82. https://doi.org/10.31857/S1028096020050167
- 21. Шкорняков С.М. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2022. № 2. С. 104. https://doi.org/10.31857/S1028096022020121

- 22. Шкорняков С.М. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2022. № 8. С. 102. https://doi.org/10.31857/S1028096022080143
- 23. *Peng L.-M., Dudarev S.L., Whelan M.J.* High-Energy Electron Diffraction and Microscopy. Oxford Science Publications, 2004. 535 p.
- 24. *Lilienkamp G., Koziol C., Bauer E.* // RHEED and Reflection Electron Imaging of Surfaces / Eds. Larsen P.K., Dobson P.J. New York: Plenum, 1988. P. 489.
- 25. *Жукова Л.А., Гуревич М.А.* Электронография поверхностных слоев и пленок полупроводниковых материалов. М.: Металлургия, 1971. 176 с.
- Метод дифракции отраженных электронов в материаловедении. Сборник статей / Под ред. Шварца А. и др. Перевод с англ. М.: Техносфера, 2014. 560 с.
- 27. Шкорняков С.М. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2024. № 2. С. 108. https://doi.org/10.31857/S1028096024020166

QUANTUM SIZE EFFECT DURING NORMAL INCIDENCE OF A BEAM OF MEDIUM ENERGY ELECTRONS ON A GROWING HETEROEPITAXIAL FILM

S. M. Shkornyakov*

Shubnikov Institute of Crystallography of Kurchatov Complex of Crystallography and Photonics of NRC "Kurchatov Institute", Moscow, Russia *E-mail: shkornvakov@mail.ru

Abstract. The reflection coefficient of medium-energy electrons (about 10 KeV) was calculated for their normal incidence on a thin growing single-crystal film. It is shown that in this case a quantum size effect occurs, which manifests itself in harmonic oscillations of the intensity of the reflected beam. The amplitude and period of oscillations depend on the thickness of the growing film and the energy of the incident electrons. A graphic illustration of the results obtained is provided.