

УДК 548.47

ДЛИННОВОЛНОВЫЕ ОСЦИЛЛЯЦИИ ИНТЕНСИВНОСТИ ДИФРАКЦИОННЫХ ОТРАЖЕНИЙ ЭЛЕКТРОНОВ ВЫСОКОЙ ЭНЕРГИИ ОТ РАСТУЩЕЙ ГЕТЕРОЭПИТАКСИАЛЬНОЙ ПЛЕНКИ, ОБУСЛОВЛЕННЫЕ КВАНТОВЫМ РАЗМЕРНЫМ ЭФФЕКТОМ, С УЧЕТОМ ПОГЛОЩЕНИЯ

© 2020 г. С. М. Шкорняков*

*Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова
ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН, Москва, 119333 Россия*

**e-mail: shkorniyakov@mail.ru*

Поступила в редакцию 14.09.2019 г.

После доработки 07.11.2019 г.

Принята к публикации 10.11.2019 г.

Предложено аналитическое выражение и приведена графическая иллюстрация квантового размерного эффекта, возникающего при отражении пучка электронов от растущей гетероэпитаксиальной монокристаллической пленки, с учетом поглощения электронов. Рассчитаны кривые интенсивности отраженного пучка при различных значениях параметров. Показано, что коротковолновые осцилляции интенсивности пучка отраженных от поверхности пленки электронов модулируются длинноволновыми колебаниями. Они обусловлены квантовым размерным эффектом в растущей пленке. Суммарная интенсивность экспоненциально затухает по мере роста слоя. Проведено сравнение полученных теоретических кривых с экспериментальными значениями.

Ключевые слова: квантовый размерный эффект, дифракция быстрых электронов, тонкие монокристаллические пленки, эпитаксия, поверхность роста.

DOI: 10.31857/S1028096020050167

ВВЕДЕНИЕ

Впервые периодические осцилляции интенсивности зеркально отраженного пучка электронов от поверхности растущей монокристаллической пленки GaAs наблюдали в [1–3]. Период колебаний был равен времени напыления одного монослоя Ga + As. В дальнейшем эффект был подтвержден и исследован [4–7] как при гомоэпитаксиальном росте пленок, так и при гетероэпитаксии. В [2] авторы предположили, что эффект обусловлен периодическим изменением шероховатости пленки по мере зарастания одного слоя роста до сплошного, затем следующего и так далее.

В [8] предложена модель эффекта, заключающегося в интерференции пучков, отраженных от разных террас, присутствующих на поверхности при слоевом росте пленки. И до сих пор продолжают дискуссии и предлагаются различные механизмы, объясняющие эффект возникновения осцилляций. В [9] была высказана идея и предложены расчетные формулы, показывающие возможность наблюдения квантового размерного

эффекта в тонкой пленке при вариации малого угла скольжения пучка электронов. В таких условиях возникают предпосылки для возникновения размерного квантования блоховских волн в тонкой монокристаллической пленке [10].

В [11] были выведены формулы и проведены по ним расчеты, позволяющие при исследовании этого эффекта учитывать средний внутренний потенциал кристаллической решетки пленки. В [12] предложен способ наблюдения квантового размерного эффекта в тонкой растущей гетероэпитаксиальной пленке. Эффект проявляется в возникновении длинноволновых осцилляций на зависимости коэффициента отражения пучка электронов от времени роста пленки. Причем период колебаний, в отличие от эффекта отражения от поверхности растущей пленки, когда он равен времени напыления одного периода решетки t , принимает значения от t до бесконечности. Там же было установлено, что длинноволновые осцилляции, причиной которых является квантовый размерный эффект, должны модулировать коротковолновые колебания, обусловленные от-

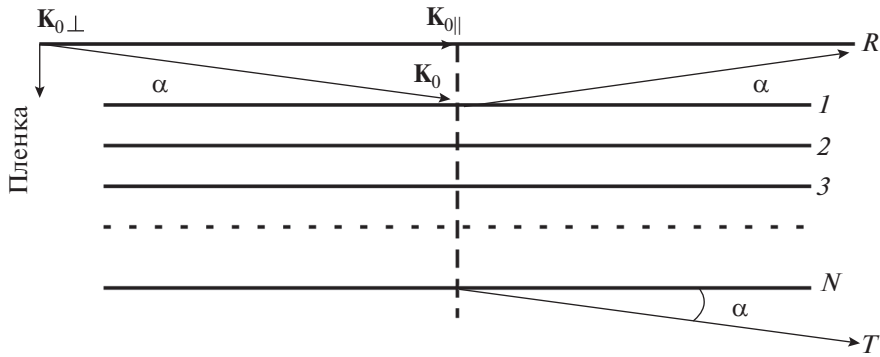


Рис. 1. Разложение волнового вектора падающего электрона \mathbf{K}_0 на составляющие компоненты: $\mathbf{K}_{0\perp}$ – нормальная к поверхности составляющая волнового вектора; $\mathbf{K}_{0\parallel}$ – параллельная составляющая; α – угол скольжения пучка; R – отраженный пучок; T – прошедший пучок.

ражением от поверхности пленки. В настоящей работе получены формулы и проведены по ним расчеты зависимостей коэффициента отражения $R(N)$, где N – среднее число монослоев растущей пленки, когда наблюдаются одновременно и короткие волны, и модулирующие их длинноволновые колебания, с учетом поглощения электронов в пленке.

ОСНОВНЫЕ ФОРМУЛЫ, ОПИСЫВАЮЩИЕ ПРОЦЕСС И РЕЗУЛЬТАТ РАСЧЕТА ПО НИМ

Напомним кратко процесс возникновения длинноволновых осцилляций коэффициента отражения $R(N)$ при гетероэпитаксиальном росте пленок. Схема эксперимента приведена на рис. 1. При малом угле скольжения α нормальная составляющая волнового вектора электронов с энергией 10–100 кэВ имеет малые значения. Углы выбирают так, чтобы энергия частиц, соответствующая этой малой величине вектора, варьировалась от нуля до 10 эВ. Тогда возникает сильное взаимодействие падающих электронов с периодическим потенциалом решетки растущего слоя. В пленке формируются блоховские волны, длина которых в пределах одной разрешенной зоны одномерного кристалла изменяется от c до бесконечности, где c – период решетки пленки в нормальном направлении к поверхности.

Эти блоховские волны испытывают отражение от верхней и нижней поверхностей пленки. За счет отражения при определенных значениях энергии падающих электронов появляются условия возникновения резонанса. Тогда коэффициент прохождения через пленку T равен единице, а коэффициент отражения R , соответственно, равен нулю. В этих условиях на толщине пленки укладывается целое число длин волн блоховских электронов. Это так называемый квантовый раз-

мерный эффект блоховских электронов. Здесь важно то, что их длина волны всегда больше периода одномерной решетки пленки. Это благоприятно для возникновения квантового размерного эффекта, поскольку длина волны больше неоднородностей на границах отражения.

Отметим, что если не задавать периодический потенциал решетки, т.е. если использовать модель прямоугольной потенциальной ямы глубиной V_0 , то при разумных значениях V_0 порядка 10 эВ длина волны падающих электронов будет гораздо меньше периода решетки. На рис. 2 приведена схема потенциальной энергии решетки пленки. Аналитическое выражение для потенциала и вывод формул для $T(N)$ и $R(N)$ можно найти в [11]. Приведем выражение для коэффициента отражения $R(N)$:

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

где T – коэффициент прохождения, $\lambda = \sqrt{\frac{2mE_1}{\hbar^2}}$,

$k = \sqrt{\frac{2m(E_1 + V_0)}{\hbar^2}}$, $E_1 = \left(\frac{\alpha\pi}{180}\right)^2 E$, E – энергия электронов, α – угол скольжения в градусах, V_0 – значение среднего внутреннего потенциала, c – период решетки, μ – блоховский волновой вектор электрона в кристалле, N – число монослоев пленки, параллельных ее поверхности. В качестве аргумента в формуле (1) в [11] выбирали угол скольжения α . В [12] было предложено аргументом считать среднее значение количества монослоев N , т.е. толщину пленки. Таким образом, формулу (1) можно применять для описания процесса отражения электронов от растущей гетеро-

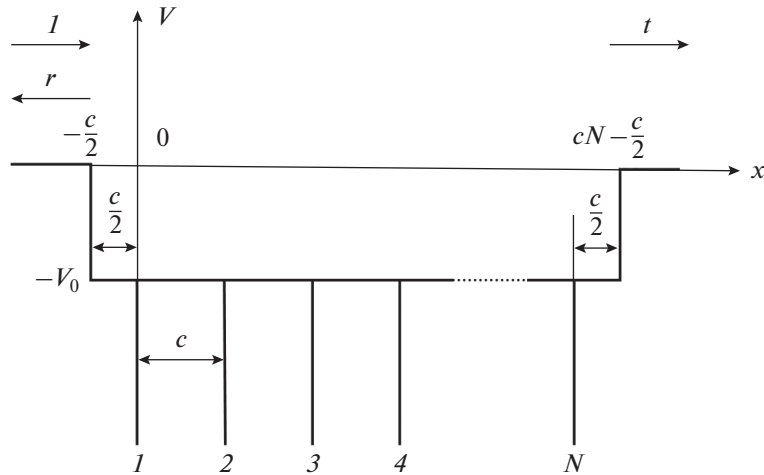


Рис. 2. Потенциальная энергия электрона в монокристаллической пленке толщиной $d = cN$, где c – межплоскостное расстояние, N – количество плоскостей, $-V_0$ – средний внутренний электростатический потенциал в кристалле.

эпитаксиальной пленки. Рассеяние электронов происходит внутри пленки, и длинноволновые осцилляции определяются именно этим процессом. Они модулируют коротковолновые колебания, вызванные рассеянием на поверхности.

Рассмотрим подробнее процесс суперпозиции. Для этого надо взять любую формулу для отражения от поверхности и вставить в определенное место выражение для $R(N)$. Как уже отмечалось, до сих пор нет устоявшегося мнения о механизме возникновения коротковолновых осцилляций. Поэтому выберем простейшую формулу, описывающую процесс рассеяния на террасах, присутствующих на поверхности растущей пленки, предложенную в [13–15]:

$$I = \frac{1}{2}I_0 + I_1 \cos\left(\frac{2\pi}{T}t - \varphi\right),$$

где I_0, I_1 – соответствующие интенсивности электронного пучка, t – время напыления, T – период, φ – фаза. Так как $T = \frac{c}{v}$, $t = \frac{cN}{v}$, где v – скорость роста пленки, cN – средняя толщина пленки, то получаем:

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

Это выражение согласуется по размерности с формулой (1). Поэтому можно второе слагаемое помножить на множитель $R(N)$, описывающий длинноволновые осцилляции. Тогда получим суперпозиционную формулу:

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

Для лучшего понимания приведем рис. 3 из [12]. На нем изображена зависимость $R(\alpha)$ при трех постоянных значениях N . Там же указаны диапазоны изменения угла α , в которых может наблюдаться квантовый размерный эффект. На одном крае каждого диапазона период осцилляций равен c и по мере приближения к другому краю увеличивается до бесконечности. Вышесказанное иллюстрирует рис. 4, на котором приведены результаты расчетов по формуле (2) при следующих значениях параметров: $I_0 = 4$, $I_1 = 4$, $\varphi = \frac{1}{2}$, $\alpha = 2.2^\circ$ (рис. 4а), $\alpha = 2.4^\circ$ (рис. 4б), $\alpha = 2.85^\circ$ (рис. 4в). Наибольшая разница в периодах длинноволновых и коротковолновых колебаний наблюдается на рис. 4а, а на рис. 4в видны биения почти совпадающих по периоду осцилляций.

В (2) не учитывается поглощение электронов в объеме пленки. Сделаем это, введя феноменологический множитель:

$$S = \exp(-\alpha c N), \quad (3)$$

где α – коэффициент поглощения, измеряемый в \AA^{-1} . Его значения выбирают исходя из того экспериментального факта, что глубина проникновения электронного пучка с энергией 10–75 кэВ при скользющем падении на образец равна нескольким монослоям пленки (~ 10 – 20\AA) и зависит от многих факторов. Тогда формула для интенсивности имеет вид:

$$I = \frac{1}{2}I_0 + I_1 R(N) S(N) \cos(2\pi N - \varphi), \quad (4)$$

где $R(N)$ – коэффициент отражения, задается формулой (1), $S(N)$ – коэффициент поглощения, задается формулой (3).

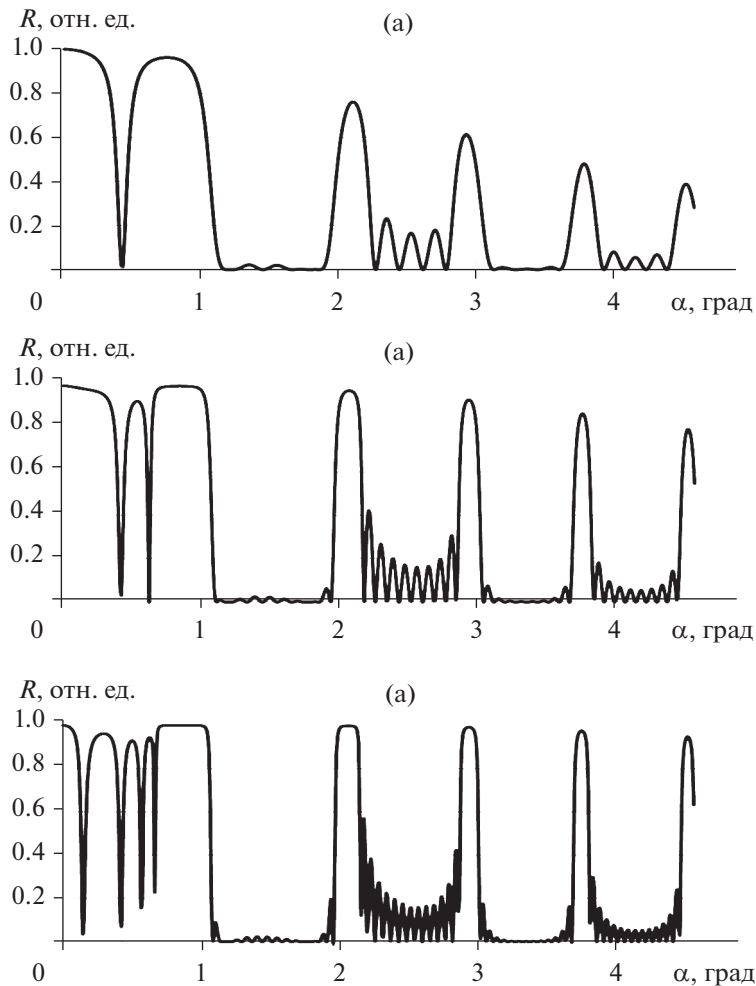


Рис. 3. Коэффициент отражения $R(\alpha)$ при $y = -1$, $E = 10$ кэВ, $V_0 = 10$ эВ и различном количестве плоскостей в пленке N : 5 (а); 10 (б); 15 (в).

На рис. 5 приведены результаты расчета интенсивности отраженного пучка с учетом поглощения в пленке по формуле (4) при трех разных значениях α . Коэффициент отражения $R(N)$ вычисляли для параметров модели: $E = 10$ кэВ, $V_0 = 10$ эВ, $y = -1$, $\alpha = 2.17^\circ$. Видим, что при малом поглощении ($\alpha = 0.03 \text{ \AA}^{-1}$) проявляются три периода колебаний огибающей (рис. 5а). Рис. 5б соответствует большему поглощению ($\alpha = 0.05 \text{ \AA}^{-1}$). Следует отметить, что вид этой теоретической кривой схож с экспериментальной кривой, приведенной на рис. 7 в работе [16], где исследовали процесс роста пленок Ni на подложке W(110). Это говорит о близости выбранной теоретической модели условиям эксперимента. И, наконец, рис. 5в соответствует максимальному поглощению электронов ($\alpha = 0.07 \text{ \AA}^{-1}$). На нем заметно проявляется только один период колебаний огибающей.

На рис. 6 приведены зависимости $R(N)$ при различных углах скольжения пучка α . Угол $\alpha = 2.2^\circ$ лежит в пределах разрешенной зоны одномерной решетки (рис. 6а). Видим, что одновременно присутствуют как модуляция, так и поглощение. Рис. 6б соответствует близкому значению $\alpha = 2.17^\circ$, но период модулирующих колебаний увеличивается. Поглощение S то же, что и на рис. 6а. Как и в предыдущем случае, значение α (а значит и E) лежит в разрешенной зоне. И, наконец, на рис. 6в приведена кривая для угла $\alpha = 2.1^\circ$, соответствующего запрещенной зоне (рис. 3). При этом угле α происходит интенсивное отражение падающего пучка, т.е. эта величина α совпадает с одним из брэгговских углов. Коэффициент поглощения $\alpha = 0$, $I_1 = 1$. Видим, что в этом случае длинноволновые осцилляции, обусловленные квантовым размерным эффектом, отсутствуют, а интенсивность коротковолновых коле-

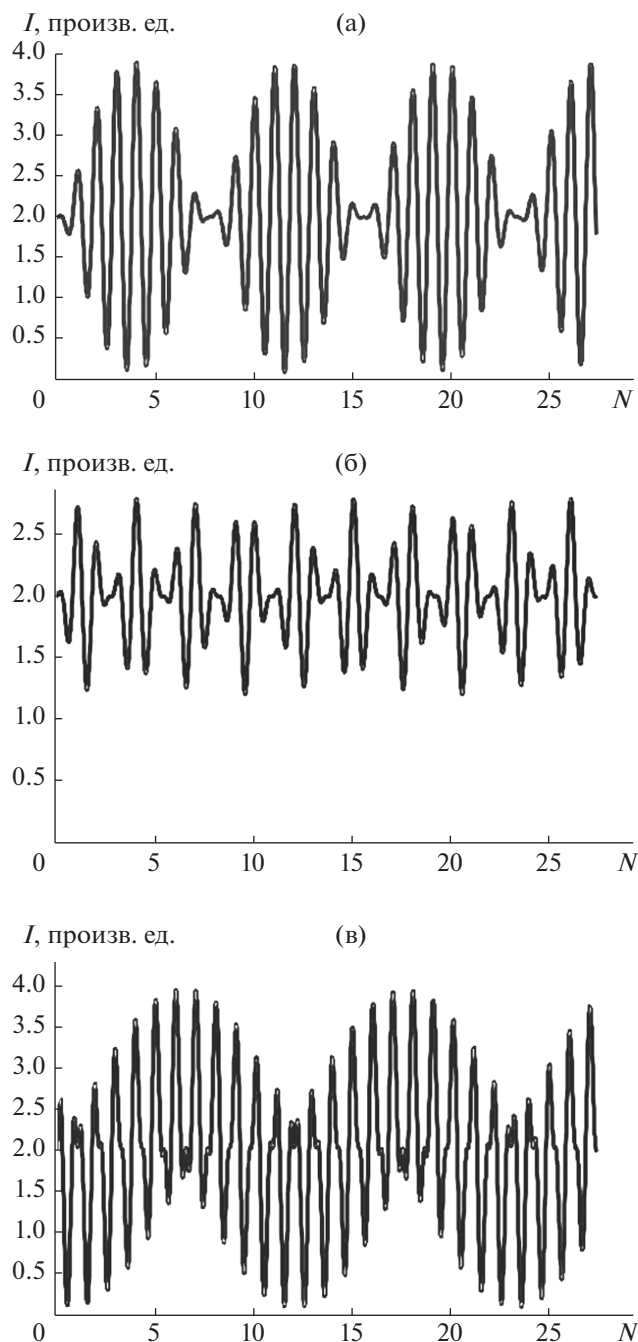


Рис. 4. Зависимость интенсивности отраженного пучка от количества плоскостей N при угле скольжения α : 2.2° (а); 2.4° (б); 2.85° (в).

баний быстро возрастает и достигает насыщения. Тот факт, что при малых толщинах интенсивность отраженного пучка падает до нуля, обусловлен недостатками выбранной модели, в которой отсутствует потенциал подложки. При его наличии амплитуда коротковолновых осцилляций будет почти постоянна, что и наблюдается в эксперименте.

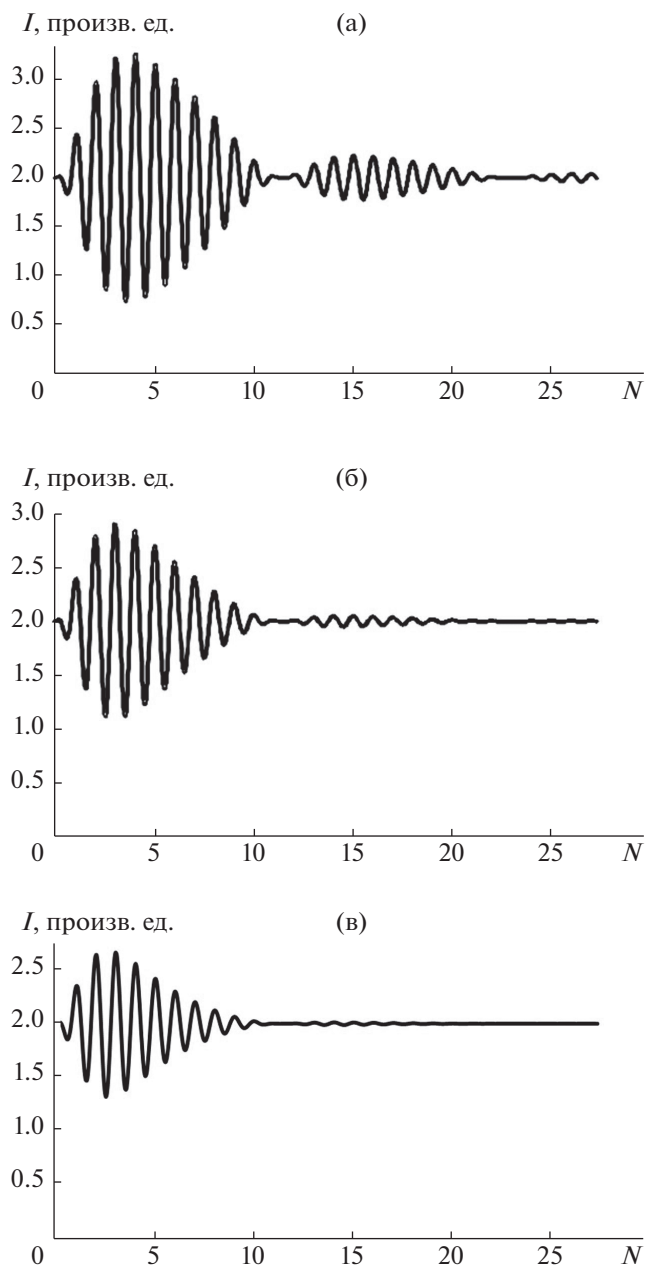


Рис. 5. Зависимость интенсивности отраженного пучка от количества плоскостей N при $\alpha = 2.17^\circ$, $y = -1$, $eV_0 = 10$ эВ, $E = 10$ кэВ и коэффициенте поглощения a : 0.03 (а); 0.05 (б); 0.07 \AA^{-1} (в).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе предложена формула, описывающая квантовый размерный эффект при отражении пучка электронов в условиях гетероэпитаксиального роста тонкой монокристаллической пленки с учетом поглощения в ней электронов. Наблюдается экспоненциальное затухание амплитуды, модулирующей осцилляции

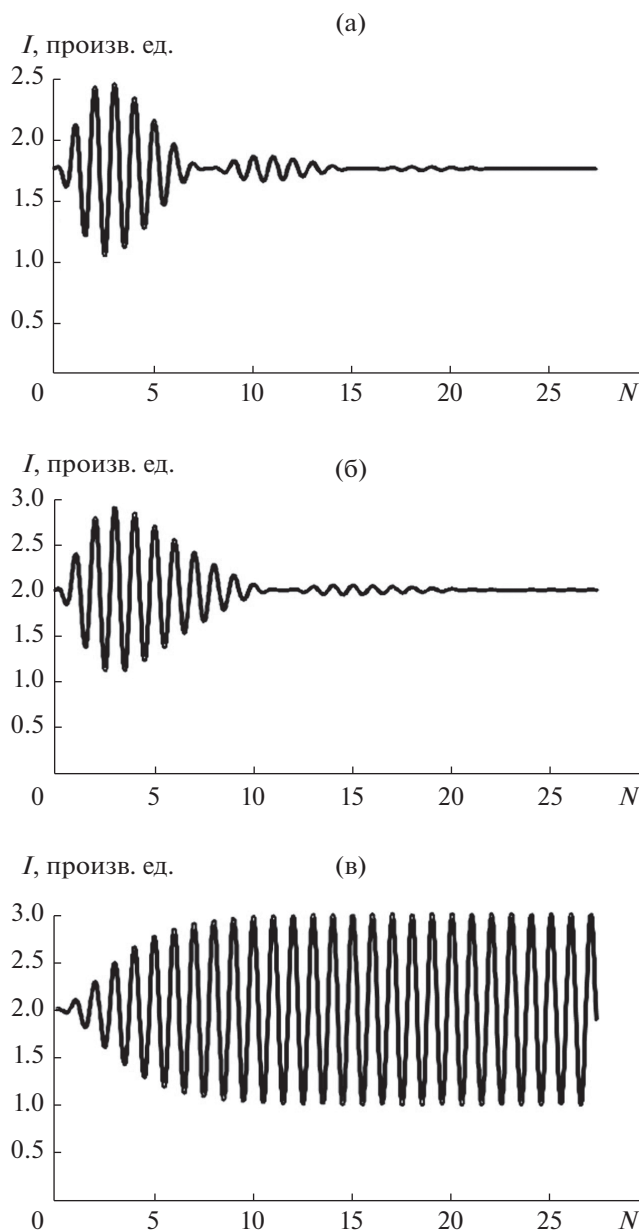


Рис. 6. Зависимость интенсивности отраженного пучка от количества плоскостей N при угле скольжения α и коэффициенте поглощения ε : $\alpha = 2.2^\circ$, $\varepsilon = 0.05$ (а); $\alpha = 2.17^\circ$, $\varepsilon = 0.05$ (б); $\alpha = 2.1^\circ$, $S(N) = 1$, $I_1 = 1$ (в).

интенсивности отраженного пучка электронов, с увеличением толщины растущей пленки и качественное совпадение полученной теоретической кривой с экспериментальной зависимостью $R(N)$ [16]. Кривые интенсивности в большинстве экспериментов не выявляют квантовый размерный эффект. То есть наблюдаются только коротковолновые осцилляции, обусловленные, по-видимому, интерференцией электронов, отраженных от террас растущей пленки. Возможно также возникновение таких осцилляций по механизму, предложенному в

[2]. Для наблюдения квантового размерного эффекта необходимо выбирать угол скольжения α пучка так, чтобы он лежал в разрешенной зоне одномерной решетки потенциала пленки. Подробнее обсуждение условий эксперимента, благоприятных для наблюдения модулирующих длинноволновых колебаний, приведено в [12].

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования в рамках Государственного задания ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *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.
3. *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.
8. *Cohen P.J., Petrich G.S., Pukite P.R. et al.* // Surf. Sci. 1989. V. 216. P. 222.
9. *Шкорняков С.М.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2013. № 2. С. 99. <https://doi.org/10.7868/S020735281211011X>
10. *Шкорняков С.М.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2002. № 9. С. 6.
11. *Шкорняков С.М.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2017. № 6. С. 83. <https://doi.org/10.7868/S020735281706018X>
12. *Шкорняков С.М.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2019. № 2. С. 74. <https://doi.org/10.1134/S0207352819020124>
13. *Mitura Z., Dudarev S.L., Whelan M.J.* // Phys. Rev. B. 1998. V. 57. № 11. P. 6309.
14. *Mitura Z., Dudarev S.L., L.-M. Peng L.-M. et al.* // J. Cryst. Growth. 2002. V. 235. P. 79.
15. *Peng L.-M., Dudarev S.L., Whelan M.J.* High-Energy Electron Diffraction and Microscopy. Oxford Science Publications, 2004. 535 p.
16. *Lilienkamp G., Kozjol C., Bauer E.* // RHEED and Reflection Electron Imaging of Surfaces / Ed. Larsen P.K., Dobson P.J. N.Y.: Plenum, 1988. P. 489.

Long-Wave Oscillations of the Intensity of Reflections of High-Energy Electrons from a Growing Heteroepitaxial Film, Caused by a Quantum Size Effect, Taking into Account the Absorption

S. M. Shkorniyakov*

Shubnikov Institute of Crystallography of Federal Scientific Research Centre "Crystallography and Photonics" of Russian Academy of Sciences, Moscow, 119333 Russia

**e-mail: shkorniyakov@mail.ru*

An analytical expression is proposed and a graphic illustration is given for the quantum size effect arising from the reflection of an electron beam from a growing heteroepitaxial single-crystal film taking into account the absorption of electrons. The intensity curves of the reflected beam are calculated for various values of parameters. Short-wave oscillations of the intensity of the beam of electrons reflected from the film surface are shown to be modulated by long-wave vibrations. They are due to quantum size effect in the growing film. The total intensity decays exponentially as the layer grows. The obtained theoretical curves are compared with experimental values.

Keywords: quantum size effect, reflection high-energy electron diffraction, thin single-crystal films, epitaxy, growth surface.