

НАНОТЕХНОЛОГИИ В ОПТИКЕ И ЭЛЕКТРОНИКЕ

УДК 538.971 + 543.428

МОДЕЛИРОВАНИЕ СЕЧЕНИЯ
НЕУПРУГОГО РАССЕЯНИЯ ЭЛЕКТРОНОВ
В СЛОИСТЫХ СТРУКТУРАХ
НА ОСНОВЕ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ФУНКЦИЙ
И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ СПЕКТРОВ
ПЛЁНКИ И ПОДЛОЖКИА. С. Паршин¹, С. А. Куценков¹, О. П. Пчеляков², Ю. Л. Михлин³

¹Сибирский государственный аэрокосмический университет
им. академика М. Ф. Решетнёва,

660014, г. Красноярск, просп. им. газеты «Красноярский рабочий», 31

²Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 13

³Институт химии и химической технологии СО РАН,
660036, г. Красноярск, Академгородок, 50, стр. 24

E-mail: aparshin@sibsau.ru

Представлена методика моделирования сечения неупругого рассеяния электронов в слоистых структурах из экспериментальных спектров сечения неупругого рассеяния отражённых электронов компонентов структур на основе теоретической модели Юберо — Тоугарда сечения неупругого рассеяния в однородной среде и её обобщения на случай слоистых структур. Методика апробирована на примере исследования спектров сечения неупругого рассеяния в двухслойной структуре SiO₂/Si.

Ключевые слова: электронная спектроскопия, сечение неупругого рассеяния отражённых электронов, длина свободного пробега электрона.

Введение. Спектроскопия сечения неупругого рассеяния является перспективным методом исследования свойств поверхности твердотельных структур. Тестирование поверхности электронами с различными энергиями, используемое в спектроскопии сечения неупругого рассеяния, позволяет получать сигнал с разных глубин в зависимости от длины неупругого свободного пробега электронов, которая определяется выбором энергии первичных электронов. В [1, 2] показана возможность применения спектроскопии сечения неупругого рассеяния для исследования двухслойных и трёхслойных материалов, представляющих собой смесь нескольких компонентов. Алгоритм теоретического исследования слоистых структур в этих работах состоит из следующих этапов: нахождение из экспериментальных спектров потерь энергии отражённых электронов сечения неупругого рассеяния электронов; определение из спектров эталонных образцов чистых элементов параметров диэлектрической функции; компьютерное моделирование спектров многокомпонентных структур.

Нахождение параметров диэлектрической функции из экспериментальных сечений сопряжено с трудностями, связанными с несовершенством современных моделей сечения неупругого рассеяния и, как следствие, теоретические сечения не идеально совпадают с экспериментальными.

Целью данной работы является обоснование алгоритма моделирования спектров сечения неупругого рассеяния отражённых электронов структуры плёнка/подложка без промежуточного вычисления параметров диэлектрических функций материалов слоистых структур.

Модель Юберо — Тоугаарда сечения неупругого рассеяния, её расширение для двухслойной структуры. Согласно модели Юберо — Тоугаарда [3] эффективное сечение неупругого рассеяния электрона $K_{\text{eff}}(E, \varepsilon, \omega, x)$, испытавшего потерю энергии ω при движении в однородном материале, зависит от скалярной диэлектрической функции материала ε и первичной энергии электрона E :

$$\begin{aligned}
 K_{\text{eff}}(E, \varepsilon, \omega, x) = & \frac{1}{a_0 \pi E} \int \frac{dk}{k} \text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon} \right] + \\
 & + \frac{-4}{a_0 \pi E x y} \int \frac{y k_{\parallel} dk}{k^3} \{e^{-|k_{\parallel} a|} - 2 \cos(ya)\}^2 \text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon + 1} \right] + \\
 & + \frac{-2}{a_0 \pi E x y} \int \frac{k_{\parallel} dk}{k^3} \{y e^{-|k_{\parallel} a|} (e^{-|k_{\parallel} a|} - 4 \cos(ya)) - \\
 & - k_{\parallel} \sin(2ya) + y(2 \cos(ya)^2 + 1)\} \text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon} \right], \tag{1}
 \end{aligned}$$

где x — путь, пройденный электроном; $y = \omega/\sqrt{2E}$; $a = x/2$; a_0 — радиус Бора, необходимый для обратного перехода из атомных единиц длины; k_{\parallel} — составляющая переданного импульса $k^2 = k_{\parallel}^2 + y^2$, параллельная поверхности. Пределы интегрирования определяются законами сохранения энергии и импульса:

$$k_{\pm} = \sqrt{2E} \pm \sqrt{2(E - \omega)}.$$

В формуле (1) и далее используются атомные единицы (постоянная Планка, масса и заряд электрона равны единице).

Величина $K_{\text{eff}}(E, \varepsilon, \omega, x)$ является функцией двух слагаемых: не зависящего от позиции электрона и пройденного пути вклада в объёмные возбуждения $V(\omega)$ (первое слагаемое уравнения (1) из [4]) и зависящего от пройденного пути x вклада в поверхностные возбуждения $S(\omega, x)$ (сумма второго и третьего слагаемых уравнения (1)). Исходя из этого, выражение (1) можно представить в виде

$$K_{\text{eff}}(E, \varepsilon, \omega, x) = V(\omega) + S(\omega, x). \tag{2}$$

Так как вклад в сечение однократного рассеяния вносят электроны, прошедшие разный путь x в твёрдом теле, то сечение однократного рассеяния всех электронов является средневзвешенной величиной $K_{\text{eff}}(E, \varepsilon, \omega, x)$ с весовой функцией, задаваемой распределением Пуассона. В этом случае интегральное по средней длине неупругого пробега электронов сечение неупругого однократного рассеяния в чистом материале определяется формулой [3, 5, 6]

$$\lambda K(E, \varepsilon, \omega) = \frac{1}{\lambda} \int_0^{\infty} P(x, \lambda) K_{\text{eff}}(E, \varepsilon, \omega, x) dx, \tag{3}$$

где $P(x, \lambda) = xe^{-x/\lambda}$. Таким образом, максимальный вклад в сечение однократного неупругого рассеяния вносят электроны, прошедшие путь λ .

В работах [1, 2] предложено развитие модели Юберо — Тоугаарда на случай многослойных структур и подтверждена её применимость. В частности, для двухслойной структуры толщины d произведение сечения неупругого рассеяния на λ будет иметь вид [1]

$$\begin{aligned} \lambda K_{2\text{layers}}(E, \varepsilon_s, \varepsilon_f, \omega) = & \frac{1}{\lambda_f} \int_0^{2d} P(x, \lambda_f) K_{\text{eff}}(E, \varepsilon_f, \omega, x) dx + \\ & + \frac{1}{\lambda_s} \int_{2d}^{\infty} P(x, \lambda_s) K_{\text{eff}}(E, \varepsilon_s, \omega, x) dx, \end{aligned} \quad (4)$$

где индексы f и s обозначают плёнку и подложку соответственно.

Диэлектрическая функция обычно задаётся в модели Друде — Линдхарда в виде суммы осцилляторов Лоренца (см., например, [3, 6]), каждый из которых имеет свою силу A_i , частоту ω_i и коэффициент затухания γ_i :

$$\frac{1}{\varepsilon(k, \omega)} = 1 - \sum_i \frac{A_i}{(\omega_i + k^2/2)^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_i}. \quad (5)$$

Индекс i означает номер осциллятора. Дисперсионная зависимость собственной частоты ω_i от k в общем случае неизвестна. В работах [3, 6] показано, что разумной аппроксимацией этой зависимости будет выражение $\omega_i + k^2/2$. В [5] используется немного расширенная дисперсионная зависимость $\omega_i + \alpha k^2/2$, где α — подгоночный параметр.

Модифицированная модель сечения неупругого рассеяния в двухслойной структуре. Согласно формуле (2) сечение неупругого рассеяния в модели Юберо — Тоугаарда является суммой объёмного независимого от x и поверхностного зависящего от x вкладов. Из экспериментальных данных известно только выражение для итогового интегрального сечения неупругого рассеяния. Из формул (2) и (3) получим

$$\lambda K_{\text{exp}}(\omega) = \frac{1}{\lambda} \int_0^{\infty} P(x) [V_{\text{exp}}(\omega) + S_{\text{exp}}(\omega, x)] dx, \quad (6)$$

где $\lambda K_{\text{exp}}(\omega)$ — известная величина интегрального экспериментального сечения неупругого рассеяния; $V_{\text{exp}}(\omega)$ и $S_{\text{exp}}(\omega, x)$ — неизвестные величины составляющих его объёмного и поверхностного вкладов. Решение этого уравнения возможно, если предположить, что отношение экспериментальных вкладов примерно равно отношению смоделированных по известным параметрам диэлектрической функции вкладов (эти вклады обозначены индексом mod):

$$\frac{S_{\text{exp}}(\omega, x)}{V_{\text{exp}}(\omega)} \cong \frac{S_{\text{mod}}(\omega, x)}{V_{\text{mod}}(\omega)}. \quad (7)$$

Подставляя выражение $S_{\text{exp}}(\omega, x)$ из формулы (7) в (6) и проводя аналитическое интегрирование первого слагаемого, получим

$$\lambda K_{\text{exp}}(\omega) = V_{\text{exp}}(\omega) \left[\lambda + \int_0^{\infty} P(x) S_{\text{mod}}(\omega, x) / V_{\text{mod}}(\omega) dx \right]. \quad (8)$$

Теперь, когда известны выражения для $V_{\text{exp}}(\omega)$ и $S_{\text{exp}}(\omega, x)$, можно вычислить вклад отдельного слоя $\lambda K_{\text{exp}}^{\text{layer}}(\omega)$ по формуле

$$\lambda K_{\text{exp}}^{\text{layer}}(\omega) = \frac{\lambda K_{\text{exp}}(\omega)}{\lambda + \int_0^{\infty} P(x) S_{\text{mod}}(\omega, x) / V_{\text{mod}}(\omega) dx} \times \left[\int_{d_1}^{d_2} [P(x) + P(x) S_{\text{mod}}(\omega, x) / V_{\text{mod}}(\omega)] dx \right], \quad (9)$$

где d_1 — удвоенное расстояние от поверхности до начала слоя; d_2 — удвоенное расстояние от поверхности до нижней границы слоя; $d_2 - d_1$ — удвоенная толщина слоя. Удвоение толщины в пределах интегрирования связано с тем, что электрон, рассеянный на глубине a , проходит путь $x = 2a$ (1). Для двухслойной структуры с толщиной верхнего слоя d пределы интегрирования $d_1 = 0$, $d_2 = 2d$ для плёнки и $d_1 = 2d$, $d_2 = \infty$ для подложки.

Моделирование сечения неупругого рассеяния в двухслойной структуре SiO₂/Si. Методика апробирована на моделировании сечения неупругого рассеяния в слоистой структуре SiO₂(d)/Si и сравнении полученных результатов с экспериментальными данными.

По спектрам потерь энергии электронов в Si и SiO₂ были определены соответствующие им сечения неупругого рассеяния (подробнее см. [1]).

Необходимые для моделирования параметры диэлектрической функции можно взять из литературы или получить путём подгонки теоретического сечения к своим экспериментальным данным для чистых элементов. В литературе параметры могут быть как найденные по экспериментальным спектрам, так и полученные из оптических измерений.

На рис. 1 представлены результаты подгонки теоретических и экспериментальных сечений неупругого рассеяния в чистых SiO₂ и Si для энергии 1900 эВ. При подгонке кроме параметров осцилляторов A_i , ω_i и γ_i изменялся также дисперсионный параметр α . Значения варьировались до лучшего совпадения сечений в области главного пика и выполнения правила сумм. Различие отдельных параметров при разных энергиях первичных электронов составляло в среднем около 10 %.

Различие для Si в области потерь энергии больше 18 эВ объясняется невозможностью воспроизвести моделью Юберо уход сечения неупругого рассеяния в отрицательную область. В табл. 1 приведены усреднённые параметры диэлектрической функции для Si и SiO₂.

С использованием полученных параметров диэлектрической функции найдено отношение поверхностного вклада к объёмному и с помощью уравнения (7) рассчитано сечение

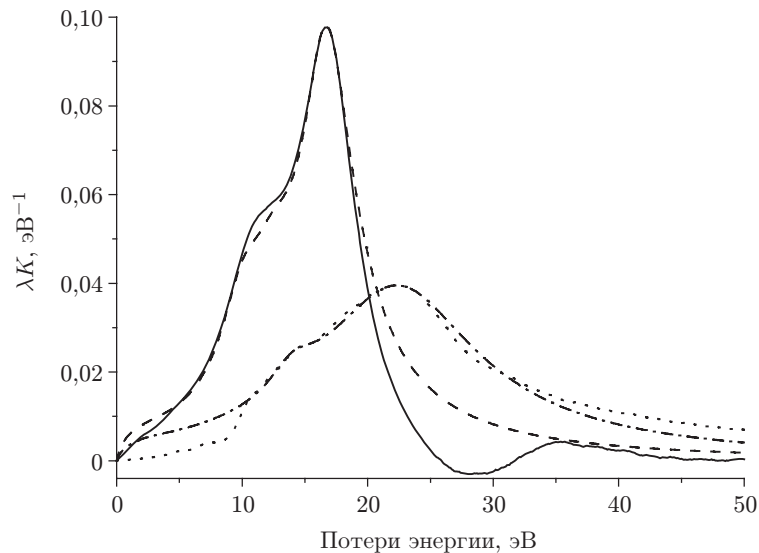


Рис. 1. Сечения неупругого рассеяния Si и SiO₂ при энергии 1900 эВ (сплошная кривая — эксперимент Si, штриховая — теория Si, точечная — эксперимент SiO₂, штрихпунктирная — теория SiO₂)

неупругого рассеяния в слоистой структуре SiO₂(*d*)/Si для различных толщин слоя диоксида *d*. На рис. 2 показаны зависимости максимумов спектров сечения неупругого рассеяния в структуре SiO₂/Si от толщины плёнки.

С помощью моделирования сечений неупругого рассеяния с усреднёнными по всем энергиям первичных электронов параметрами диэлектрической функции (включая дисперсионный параметр α) определены для четырёх энергий первичных электронов толщины плёнки SiO₂ (табл. 2). Экспериментальное значение толщины по данным эллипсометрических измерений составляло 1,8 нм [1], поэтому результаты для энергии первичных электронов 300 эВ из дальнейшего анализа исключались, поскольку имеет место большая неопределённость в результатах определения толщины (см. рис. 2). Толщина была измерена также с использованием литературных параметров диэлектрической функции [6]. Для сравнения приведены результаты, полученные для этой же структуры в работе [1] с помощью спектров эталонных образцов Si и SiO₂, но без варьирования дисперсионного параметра α .

Различия толщин, определённых по упрощённой методике с учётом литературных параметров диэлектрических функций и по стандартной методике с использованием эталонных спектров чистых компонентов слоистой структуры, составили порядка 5 %, что свидетельствует о возможности применения предложенной методики для моделирования сечений неупругого рассеяния в структурах, для которых неизвестны экспериментальные спектры компонентов, но известны их литературные данные для параметров диэлектрических функций (в настоящее время эти параметры известны для широкого класса элементов).

Таблица 1

Значения параметров диэлектрических функций для Si и SiO₂

Номер осциллятора <i>i</i>	Si ($\alpha = 0,2$)			SiO ₂ ($\alpha = 0,6$)		
	A_i , эВ ²	γ_i , эВ	ω_i , эВ	A_i , эВ ²	γ_i , эВ	ω_i , эВ
1	36	4,20	12,50	9	3,82	13,98
2	210	5,39	16,67	320	13,08	22,28

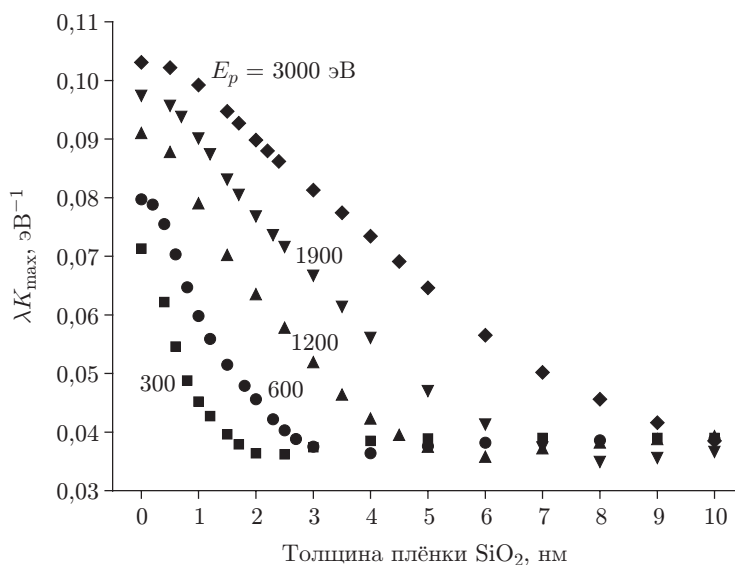


Рис. 2. Зависимости максимумов λK в системе $\text{SiO}_2(d)/\text{Si}$ от толщины плёнки SiO_2 для разных энергий первичных электронов E_p

Таблица 2

Значения толщины плёнки диоксида кремния, определённые тремя методами

Энергия, эВ	Значение λK_{max} , эВ ⁻¹	Толщина плёнки SiO_2 , нм		
		Параметры, определённые из эталонных спектров	Литературные параметры [6]	Результаты работы [1]
600	0,0482	1,77	1,80	1,80
1200	0,0635	1,97	2,09	2,00
1900	0,0744	2,24	2,37	2,25
3000	0,0862	2,36	2,51	2,35

Заключение. В представленной работе модифицирована методика моделирования сечения неупругого рассеяния электронов в слоистых структурах плёнка/подложка с использованием литературных значений параметров диэлектрических функций материалов плёнки и подложки. По этой методике была определена толщина плёнки диоксида кремния в двухслойной структуре $\text{SiO}_2(d)/\text{Si}$ для нескольких энергий первичных электронов. Проведено сравнение предложенной методики со стандартной, учитывающей параметры диэлектрической функции, полученные из экспериментальных эталонных спектров материалов плёнки и подложки. Предложенная методика значительно упрощает процесс моделирования, не снижая при этом точности полученных результатов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Паршин А. С., Кущенко С. А., Пчеляков О. П. и др. Спектроскопия сечения неупругого рассеяния электронов в слоистых системах $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ // Автометрия. 2012. 48, № 4. С. 88–92.

2. **Куценков С. А., Паршин А. С., Александрова Г. А., Ходенков С. А.** Компьютерное моделирование сечения неупругого рассеяния в трёхслойных структурах типа «пленка—интерфейс—подложка» // Вестн. СибГАУ. 2009. Вып. 4(25). С. 129–134.
3. **Yubero F., Tougaard S.** Model for quantitative analysis of reflection-electron-energy-loss spectra // Phys. Rev. B. 1992. **4**, N 4. P. 2486–2497.
4. **Ritchie R. H.** Plasma losses by fast electrons in thin films // Phys. Rev. 1957. **106**, N 5. P. 874–881.
5. **Yubero F., Fujita D., Ramskov B., Tougaard S.** Experimental test of model for angular and energy dependence of reflection-electron-energy-loss spectra // Phys. Rev. B. 1996. **53**, N 15. P. 9728–9732.
6. **Yubero F., Tougaard S., Elizalde E., Sanz J. M.** Dielectric loss function of Si and SiO₂ from quantitative analysis of REELS spectra // Surf. Interface Anal. 1993. **20**, N 8. P. 719–726.

Поступила в редакцию 15 сентября 2014 г.
