

Тонкая структура спектров сечения неупругого рассеяния электронов и поверхностный параметр Si

© А.С. Паршин^{*†}, А.Ю. Игуменов^{*}, Ю.Л. Михлин⁺, О.П. Пчеляков^{*}, А.И. Никифоров^{*}, В.А. Тимофеев^{*}

^{*} Сибирский государственный аэрокосмический университет им. академика М.Ф. Решетнева, 660014 Красноярск, Россия

⁺ Институт химии и химической технологии Сибирского отделения Российской академии наук, 660036 Красноярск, Россия

^{*} Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия

(Получена 4 августа 2014 г. Принята к печати 25 августа 2014 г.)

Спектры потерь энергии отраженных электронов получены для серии образцов Si, приготовленных при различных технологических условиях, имеющих разную кристаллографическую ориентацию. Из этих экспериментальных спектров вычислены зависимости произведения средней длины неупругого пробега и дифференциального сечения неупругого рассеяния электронов от потерь энергии электронов. Предложен метод анализа спектров сечения неупругого рассеяния электронов посредством моделирования экспериментальных спектров с помощью трехпараметрических универсальных функций сечения Тоугаарда. Результаты моделирования применены для определения природы пиков потерь и расчета поверхностного параметра.

1. Введение

Спектры сечения неупругого рассеяния электронов представляют собой произведение дифференциального сечения неупругого рассеяния электронов K и средней длины неупругого пробега электронов λ ($K\lambda$ -спектры). $K\lambda$ -спектры рассчитываются из экспериментальных спектров потерь энергии отраженных электронов и могут быть использованы для количественного анализа элементного состава в двухкомпонентных композитных структурах. Чувствительность метода определения элементного состава из спектров сечения неупругого рассеяния значительно выше, чем традиционного метода спектроскопии потерь энергии отраженных электронов.

Ранее исследована возможность определения атомных концентраций элементов в системах Fe_xSi_{1-x} [1] и Mn_xSi_{1-x} [2] по градуировочной зависимости максимального значения $K\lambda$ -спектра для эталонных образцов. В работе [3] показана возможность использования спектров сечения неупругого рассеяния гетероструктур Ge_xSi_{1-x} для определения содержания Ge двумя способами: по максимальному значению спектра при высоких (более 1200 эВ) и малых энергиях (200–1200 эВ). Вторым способом связан с аномальным поведением $K\lambda$ -спектра для Ge в низкоэнергетической области.

Компьютерное моделирование спектров сечения неупругого рассеяния в рамках диэлектрической теории может быть использовано для анализа распределения элементов по глубине, формирования различных фаз силицидов в системе Fe/Si [4], а также для определения толщины пленки диоксида кремния на кремниевой подложке [5].

В данной статье нами предложен метод детального анализа спектров сечения неупругого рассеяния элект-

тронов посредством моделирования экспериментальных спектров с помощью универсальных функций сечения неупругого рассеяния электронов Тоугаарда [6]. Данная методика разложения $K\lambda$ -спектров на составляющие может быть использована для определения природы пиков потерь и оценки влияния поверхностных возбуждений на электронные спектры (расчет поверхностного параметра).

2. Методика эксперимента

В настоящей работе были исследованы 3 образца, представляющие собой промышленные монокристаллические подложки Si(100), один образец Si(111) и образец, представляющий собой эпитаксиальный слой Si толщиной 50 нм на промышленной подложке Si (100), полученный методом молекулярно-лучевой эпитаксии при температуре 700°C. Все образцы имели электронный тип проводимости.

Измерения фотоэлектронных спектров и интегральных спектров потерь энергии отраженных электронов проводили на сверхвысоковакуумном фотоэлектронном спектрометре SPECS (Германия), укомплектованном сферическим энергоанализатором PHOIBOS MCD9, рентгеновской трубкой с двойным анодом как источником рентгеновского излучения, электронной пушкой (STAIB Instruments) для возбуждения спектров потерь энергии электронов. Для удаления поверхностного оксидного слоя с образцов использовали травление ионами аргона (ускоряющее напряжение 2.5 кВ, ионный ток 15 мкА) с помощью растровой ионной пушки PU-IQE-12/38 (SPECS); полнота удаления кислорода и загрязнений контролировалась по рентгеновским фотоэлектронным спектрам (РФЭС).

[†] E-mail: aparshin@sibsau.ru

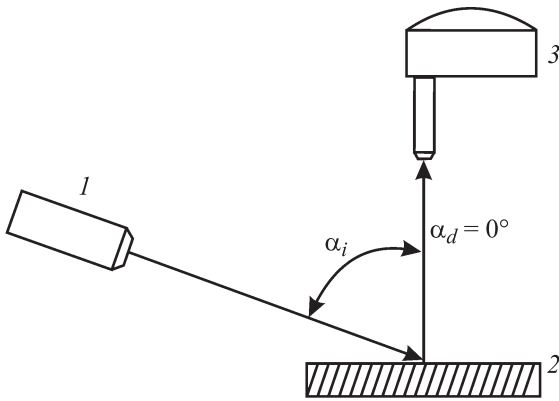


Рис. 1. Геометрия эксперимента: 1 — электронная пушка, 2 — образец, 3 — энергоанализатор.

Спектры потерь энергии отраженных электронов получены в интервале 150 эВ с шагом 0.1 эВ. Энергия потерь T рассчитывалась как разность между энергией первичных электронов E_0 (нулевые потери) и энергией отраженных электронов E , $T = E_0 - E$. Энергии первичных электронов составляли 300, 600, 1200, 1900, 3000 эВ, ширина первичного электронного пучка на полувысоте менее 1 эВ.

Геометрия эксперимента представлена на рис. 1. Углы падения и детектирования электронов составляли соответственно $\alpha_i = 59^\circ$, $\alpha_d = 0^\circ$.

Из экспериментальных спектров потерь энергии отраженных электронов с помощью программного пакета QUASES™ XS REELS (Quantitative Analysis of Surfaces by Electron Spectroscopy cross section determined by REELS) [7], согласно алгоритму, предложенному в [8], получены спектры сечения неупругого рассеяния электронов — произведение средней длины неупругого пробега электронов λ и дифференциального сечения неупругого рассеяния $K(E_0, E_0 - E)$. Здесь E_0 — энергия первичных электронов, а $E_0 - E$ — потери энергии электронов.

3. Экспериментальные результаты

3.1. Спектроскопия сечения неупругого рассеяния электронов

Спектры сечения неупругого рассеяния электронов для Si(111) КЭФ 05 при энергиях первичных электронов 300, 1200, 3000 эВ приведены на рис. 2. Спектры сечения неупругого рассеяния отражают вероятность потери энергии T электроном при однократном рассеянии. Значения максимумов этих спектров определяют вероятности однократных возбуждений поверхностного (энергия потерь 11.5 эВ) и объемного (энергия потерь 16.6 эВ) плазмонов. С увеличением энергии первичных электронов увеличивается вклад пика объемного плазмона и уменьшается вклад поверхностного.

3.2. Моделирование спектров сечения неупругого рассеяния с помощью универсальных функций Тоугаарда

Концепция универсальных классов сечения была предложена Тоугаардом [6] в 1987 г. Спектры сечения неупругого рассеяния электронов для разных классов материалов (полупроводники, металлы, полимеры и т.д.) имеют общие особенности, на основании которых возможно определение типа материала по спектрам сечения неупругого рассеяния. Для описания $K\lambda$ -спектров было предложено аппроксимировать экспериментальные спектры универсальными функциями сечения Тоугаарда. Спектры металлов и их оксидов описываются двухпараметрической формулой Тоугаарда [6]:

$$\lambda K = \frac{BT}{(C + T^2)}, \quad (1)$$

где B и C — подгоночные параметры, определяемые формой экспериментального спектра, T — потери энергии электронов.

Спектры сечения неупругого рассеяния полупроводников и полимеров имеют более узкую форму и лучше описываются трехпараметрической функцией Тоугаарда [6]:

$$\lambda K = \frac{BT}{(C - T^2)^2 + DT^2}. \quad (2)$$

Параметры B, C, D являются подгоночными и для каждого элемента имеют определенные значения [6]. Параметр B определяет интенсивность пика, параметр C — положение, параметр D — ширину и косвенно влияет на положение и интенсивность пика.

Универсальные функции сечения неупругого рассеяния электронов помимо определения типа материала используются для количественного анализа и вычитания фона в оже-электронной спектроскопии (ОЭС), рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС), спек-

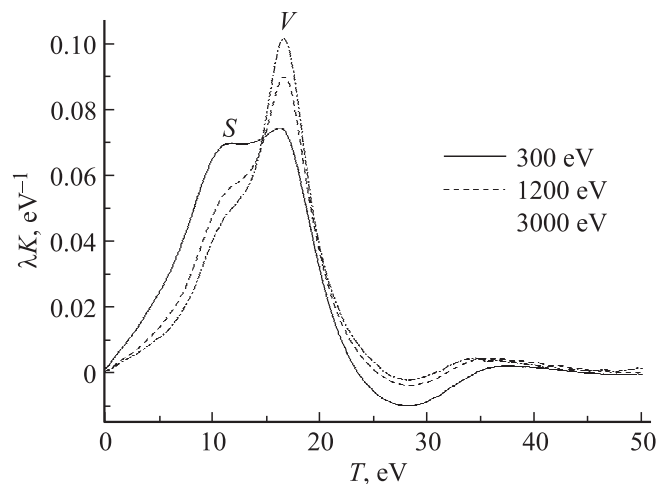


Рис. 2. Спектры сечения неупругого рассеяния электронов для Si(111).

троскопии характеристических потерь энергии электронами (СХПЭЭ) [6,8,9], а также для определения поверхностного параметра [10,11].

В рамках данной работы исследована возможность моделирования спектров сечения неупругого рассеяния электронов с помощью трехпараметрических функций Тоугарда — формула (2) [6].

Спектр сечения неупругого рассеяния для Si при энергии потерь, равной сумме энергий поверхностного (11.5 эВ) и объемного (16.6 эВ) плазмонов, уходит в отрицательную область λK (рис. 2), при этом доля спектра в отрицательной области λK уменьшается с увеличением энергии первичных электронов. Отрицательная область $K\lambda$ -спектра объясняется различием теоретической модели, используемой для вычисления произведения λK , и эксперимента [8].

Наличие отрицательных значений λK вызывает расхождение подгоночного спектра с экспериментальным со стороны высоких потерь энергии. Диапазон аппроксимации выбирался до значения потерь, при котором экспериментальный и подгоночный спектры совпадают со стороны больших потерь.

Количество подгоночных пиков выбиралось из двух критериев: наилучшее совпадение подгоночного и экспериментального спектров и наиболее близкие потери энергии подгоночных пиков к энергиям экспериментальных пиков, наблюдаемых в СХПЭЭ, приведенным в [12].

Спектры сечения неупругого рассеяния для разных образцов Si близки между собой, среднеквадратичное отклонение не превышает $6.5 \cdot 10^{-4}$. На рис. 3 показан результат моделирования спектра сечения неупругого рассеяния для Si(111) при энергиях первичных электронов 300 и 1900 эВ. Обозначения подгоночных пиков соответствуют общепринятым [12]: S_1, S_3, S — поверхностные возбуждения, E_2, V — объемные.

Параметры функции Тоугарда B, C, D варьировались до достижения наилучшего совпадения подгоночного спектра с экспериментальным. В силу малой интенсивности пиков S_1, E_2 и S_3 значение параметра D , определяющего ширину пика, для пика S_1 устанавливалось близким к параметру D пика E_2 . Аналогичным образом ширина пика S_3 устанавливалась близкой к ширине пика V .

Описанная выше процедура проведена для всех образцов Si. Подгоночные пики в спектрах сечения неупругого рассеяния близки по интенсивности, положению и ширине для спектров разных образцов Si (включая образцы с разной кристаллографической ориентацией и образец с эпитаксиальным верхним слоем Si).

На рис. 4 приведена зависимость площади подгоночных пиков, определяющей интенсивность возбуждений, от энергии первичных электронов. Монотонно убывающие зависимости площадей пиков S_3, S подтверждают их поверхностную природу, противоположная зависимость площади пика V — объемную. Для пиков S_1 и E_2 в силу их малой интенсивности ошибка при определении

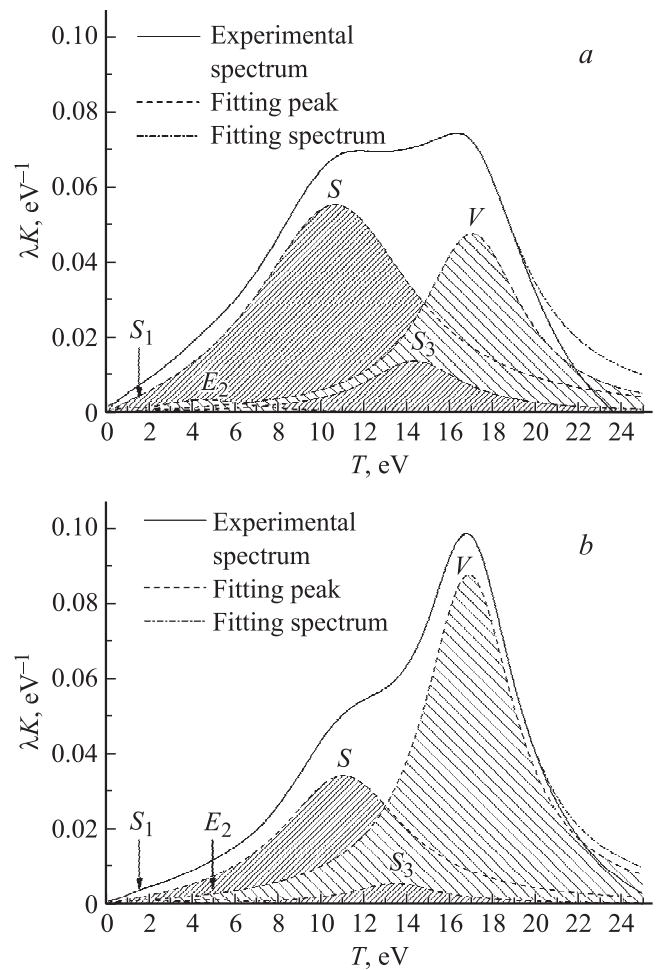


Рис. 3. Спектры сечения неупругого рассеяния электронов для Si(111) при энергиях первичных электронов 300 (a) и 1900 (b) эВ, аппроксимированные универсальными функциями Тоугарда.

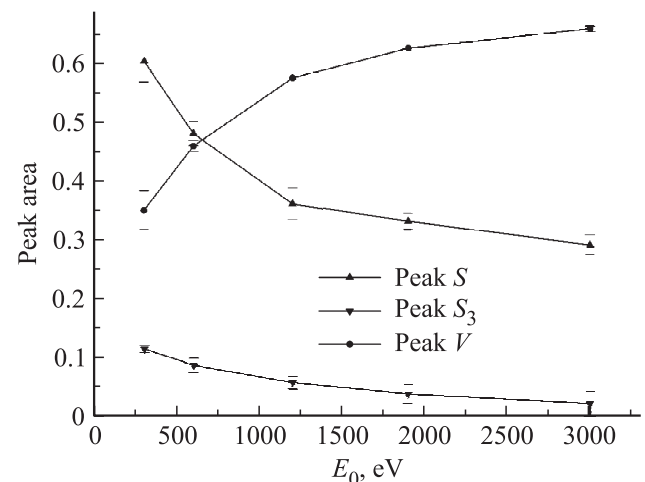


Рис. 4. Зависимость площадей подгоночных пиков от энергии первичных электронов для пиков S, S_3, V .

Энергии подгоночных пиков

Пик	Энергия подгоночного пика, эВ	Энергия пика по данным [12], эВ
S_1	1.7 ± 0.4	1.5–2.5
E_2	4.9 ± 0.3	4.5–5.5
S	11.0 ± 0.2	10.5–12
S_3	14.2 ± 0.4	14.5–15
V	16.9 ± 0.1	16.5–17.5

площади сравнима с величиной площади, поэтому однозначно определить природу этих пиков не удастся.

Средние энергии потерь подгоночных пиков и среднеквадратичные отклонения приведены в таблице. Энергии потерь подгоночных пиков близки к энергиям пиков, наблюдаемым в СХПЭЭ [12].

Среднеквадратичное отклонение параметров подгоночных пиков, полученных для разных образцов при одинаковых энергиях первичных электронов, для поверхностного и объемного плазмонов не превышает 12%.

3.3. Расчет поверхностного параметра

Поверхностным параметром P_{se} называется вероятность генерации электроном поверхностных возбуждений при единичном акте взаимодействия с поверхностью [13,14]. Поверхностный параметр играет важную роль при количественном анализе в РФЭС, ОЭС и СХПЭЭ.

В работе Гергели с соавт. [15] был предложен метод экспериментального определения поверхностного параметра как площади под частью спектра сечения неупругого рассеяния, соответствующей поверхностным возбуждениям. Метод строился на пренебрежении при высоких энергиях первичных электронов (5 кэВ) поверхностным вкладом в $K\lambda$ -спектр. Спектры, полученные

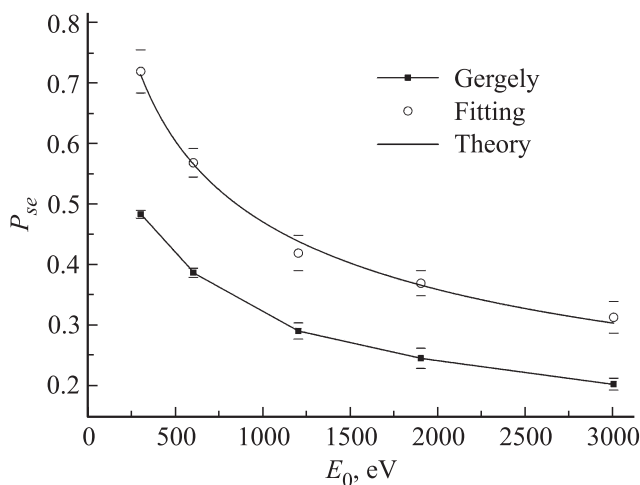


Рис. 5. Зависимость поверхностного параметра, рассчитанного по методике Гергели [10,11] и из разложения спектров сечения неупругого рассеяния электронов на составляющие.

при меньших энергиях, нормировались в точке, имеющей максимальную интенсивность спектра, полученного при максимальной энергии. Далее путем вычитания из нормированных спектров объемного вклада (спектр при максимальной энергии) и обратной нормировки выделялась поверхностная составляющая спектра сечения неупругого рассеяния.

Описанная в [15] методика была модифицирована Гергели [10,11] и позволила учесть поверхностный вклад при максимальной энергии первичных электронов. Усовершенствованная методика Гергели предполагает аппроксимацию спектра, полученного при максимальной энергии первичных электронов, в области объемного пика трехпараметрической функцией Тоугаарда при условии совпадения подгоночной функции и экспериментального спектра в точке с максимальной интенсивностью. Модифицированная методика также включает в себя шаг с прямой и обратной нормировкой, после которого из экспериментальных спектров вычитается пик Тоугаарда и производится интегрирование выделенной таким образом поверхностной составляющей.

Предложенный нами метод разложения $K\lambda$ -спектров на пики потерь позволяет оценить вклад поверхностных возбуждений более детально — вплоть до расчета поверхностного параметра отдельных возбуждений.

На рис. 5 представлены зависимости поверхностного параметра, рассчитанного по методике Гергели [10,11], и поверхностного параметра как суммы площадей поверхностного пика и пика S_3 .

Из рисунка видно, что поверхностный параметр, вычисленный из разложения, превышает параметр, рассчитанный по методике Гергели. Данный результат объяснен следующим образом: во-первых, объемный пик имеет меньшую интенсивность, поскольку в отличие от методики Гергели при данном подходе на нее влияют поверхностные пики; во-вторых, интегрирование поверхностных пиков потерь производится по всему диапазону потерь энергии, в методике Гергели диапазон интегрирования уменьшен до энергии объемного плазмона.

Полученная экспериментально зависимость поверхностного параметра от энергии первичных электронов хорошо описывается теоретической формулой [13,14]:

$$P_{se} = \frac{1}{0.171a\sqrt{E_0} \cos \alpha_i + 1} + \frac{1}{0.171a\sqrt{E_0} \cos \alpha_d + 1}, \quad (3)$$

где $\alpha_i = 59^\circ$, $\alpha_d = 0^\circ$ — соответственно углы падения и детектирования электронов (рис. 1).

Подгоночный параметр a составил 0.86, что близко к параметрам, полученным в [10,14].

4. Заключение

Предложен новый метод анализа спектров сечения неупругого рассеяния электронов посредством моделирования экспериментальных спектров с помощью трехпараметрических функций Тоугаарда. Этот метод

апробирован на серии образцов Si, полученных при разных технологических условиях, имеющих различную кристаллографическую ориентацию: показано хорошее согласие между результатами моделирования спектров разных образцов. Данный метод может быть использован для детального анализа спектров сечения неупругого рассеяния электронов, определения природы пиков потерь, расчета поверхностного параметра.

Список литературы

- [1] А.С. Паршин, Г.А. Александрова, А.Е. Долбак, О.П. Пчеляков, Б.З. Ольшанецкий, С.Г. Овчинников, С.А. Куценков. Письма ЖТФ, **34**, 41 (2008).
- [2] А.С. Паршин, О.П. Пчеляков, А.Е. Долбак, Б.З. Ольшанецкий. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, **6**, 5 (2013).
- [3] А.С. Паршин, Е.П. Пьяновская, О.П. Пчеляков, Ю.Л. Михлин, А.И. Никифоров, В.А. Тимофеев, М.Ю. Есин. ФТП, **48**, 41 (2014).
- [4] А.С. Паршин, С.А. Куценков, Г.А. Александрова, С.Г. Овчинников. ЖТФ, **81**, 69 (2011).
- [5] А.С. Паршин, С.А. Куценков, О.П. Пчеляков, Ю.Л. Михлин, Т. Хасанов. Автометрия, **48**, 88 (2012).
- [6] S. Tougaard. Surf. Interface Analysis, **25**, 137 (1997).
- [7] S. Tougaard. [http:// www.quases.com](http://www.quases.com).
- [8] S. Tougaard, I. Chorkendorff. Phys. Rev. B, **35**, 6570 (1987).
- [9] S. Tougaard. Surf. Interface Analysis, **11**, 453 (1988).
- [10] G. Gergely. Progr. in Surf. Sci., **71**, 31 (2002).
- [11] G.T. Orosz, G. Gergely, S. Gurban, M. Menyhard, J. Toth, D. Varga, S. Tougaard. Vacuum, **71**, 147 (2003).
- [12] В.Г. Лифшиц, Ю.В. Луняков. *Спектры ХПЭЭ поверхностных фаз на кремнии* (Владивосток, Дальнаука, 2004) с. 36.
- [13] W.S.M. Werner, H. Tratnik, J. Brenner, H. Stori. Surf. Sci., **495**, 107 (2001).
- [14] W.S.M. Werner, L.Kover, S.Egri, J. Toth, D. Varga. Surf. Sci., **585**, 85 (2005).
- [15] G. Gergely, M. Menyhard, S. Gurban, A. Sulyok, J. Toth, D. Varga, S. Tougaard. Sol. St. Ionics, **141–142**, 47 (2001).

Редактор Т.А. Полянская

Fine structure of inelastic electron scattering cross sections and surface excitation parameter for Si

A.S. Parshin*, A.Yu. Igumenov*, Yu.L. Mikhlin⁺, O.P. Pchelyakov[•], A.I. Nikiforov[•], V.A. Timofeev[•]

* Siberian State Aerospace University,
660014 Krasnoyarsk, Russia

⁺ Institute of Chemistry and Chemical Technologies,
Siberian Branch of Russian Academy of Sciences,
660036 Krasnoyarsk, Russia

[•] Rzhanov Institute of Semiconductor Physics,
Siberian Branch of Russian Academy of Sciences,
630090 Novosibirsk, Russia

Abstract Energy loss spectra of reflected electrons were obtained for the series of samples of Si. Samples were obtained with different technical conditions and some of them have different crystallographic orientation. Energy loss dependence of inelastic mean free path and differential inelastic electron scattering cross-section were calculated. We have suggested a method of separation of inelastic scattering cross-sections spectra to Tougaard's Three-parameter Universal cross-section. The results of modeling have been applied to determination the kind of the loss peaks and calculation of surface excitation parameter.