

01;11

Расчет функции выхода и фотоэмиссии электронов средних энергий из образцов типа „слой на подложке“

© Л.А. Бакалейников,¹ К.Ю. Погребицкий,¹ Е.Ю. Флегонтова,² Yang-Koo Cho,² Hyun-Min Park²

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия

² Korea Research Institute of Standards and Science,
Taejeon, Republic of Korea
e-mail: bakal@ammpp.ioffe.rssi.ru

(Поступило в Редакцию 10 января 2002 г.)

На основе приближенного решения кинетического уравнения для электронов средних энергий (порядка кэВ) получены аналитические выражения для функций выхода и полного выхода рентгеновской фотоэмиссии из образцов типа „слой на подложке“. Сравнение с результатами расчетов методом Монте-Карло показало хорошее совпадение общей формы зависимостей, полученных аналитическим и численным методами, и позволило найти численные значения параметров, входящих в аналитические выражения.

Введение

Развитие современных технологий микроэлектроники, связанных с использованием объектов сверхмалых размеров (порядка атомных кластеров), приводит к необходимости разработки методов диагностики, позволяющих определять параметры исследуемых объектов со сверхвысоким разрешением. В настоящее время существует ряд широко известных методов, применяемых для этой цели. Многие из них основаны на использовании электронов в качестве регистрируемого сигнала ((S)EXAFS [1], рентгеновская фотоэлектронная спектроскопия, оже-спектроскопия [2], спектроскопия электронной эмиссии, возбуждаемая рентгеновским излучением (XIEES) [2]). Адекватная обработка экспериментальных данных, полученных с помощью этих методов, требует корректного описания транспорта электронов в веществе. Между тем количественная теория электронной эмиссии до сих пор находится в стадии разработки, и для описания процесса выхода электронов из вещества обычно используются приближенные феноменологические формулы.

Вероятность выхода электрона из образца определяется полным потоком электронов через его границу, который может быть рассчитан с помощью кинетического уравнения. Это уравнение представляет собой линейное интегродифференциальное уравнение, отыскание аналитического решения которого сопряжено с большими трудностями. В связи с этим для определения дифференциальной плотности потока электронов используются два подхода. Первый подход основан на учете некоторых особенностей транспорта электронов средних энергий, позволяющих упростить кинетическое уравнение и найти приближенное аналитическое решение. Другой подход заключается в прямом численном решении кинетического уравнения.

Аналитический подход был использован в работах [4,5], где для однородных полубесконечных образ-

цов с плоской границей были найдены аналитические выражения для функций выхода медленных электронов и электронов средних энергий.

Выводы, полученные в [4], были проверены с помощью численного моделирования. В работе [6] функция выхода была рассчитана методом Монте-Карло для ряда однородных образцов различного состава. Сравнение выражений, полученных в [4], с результатами расчета позволило определить область применимости аналитических аппроксимаций функции выхода. При этом продемонстрировано хорошее совпадение для выхода с оценками, сделанными на основе анализа дифференциальных сечений упругого и неупругого взаимодействия электронов с веществом.

Численный подход позволяет определять функцию выхода не только в случае однородных образцов, но и для образцов более сложной структуры. Расчеты, проведенные для тонкого (порядка десятков нанометров) слоя на полубесконечной подложке, показали, что наличие слоя может приводить к значительным изменениям зависимости функции выхода от глубины. Форма зависимости в этом случае не описывается аналитическими выражениями, полученными в [4].

Целью настоящей работы является обобщение аналитического подхода, разработанного в [2,5], для случая образцов типа „слой на подложке“. Полученные аналитические выражения для функции выхода и полного выхода сравниваются с результатами расчета методом Монте-Карло.

Кинетическое уравнение и функция выхода в случае однородных образцов

Аналитический подход к решению кинетического уравнения, развитый в [4,5], базируется на учете того факта, что процессы угловой и энергетической релаксации для электронов средних энергий (поряд-

ка килоэлектронвольтов) имеют различный масштаб. В случае полубесконечного образца с плоской границей кинетическое уравнение имеет вид

$$\cos \Theta \frac{\partial \Phi}{\partial z} = R_{\text{col}} \Phi + \frac{1}{4\pi} \delta(z - z_0) \delta(E - E_0). \quad (1)$$

Здесь $\Phi(z, \Theta, E)$ — дифференциальная плотность потока электронов с энергией E , движущихся на глубине z под углом Θ к оси z ; $R_{\text{col}} \Phi$ — интеграл столкновений, описывающий взаимодействие электронов с веществом. Второй член в правой части соответствует наличию источника электронов с энергией E_0 на глубине z_0 . Уравнение (1) должно быть дополнено граничными условиями

$$\Phi(0, \Theta, E)|_{\cos \Theta > 0} = 0, \quad \Phi(z, \Theta, E)|_{z \rightarrow \infty} \rightarrow 0,$$

означающими отсутствие потока электронов извне и отсутствие электронов на больших глубинах. Вероятность выхода из образца электрона, генерированного на глубине z_0 с энергией E_0 (функция выхода), определяется полным потоком электронов через поверхность $z = 0$

$$q(E_0, z_0) = \int_0^{E_0} \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \cos \Theta \Phi(0, \Theta, E) \sin \Theta d\Theta d\varphi dE. \quad (2)$$

Характерными длинами процесса распространения электронов в веществе служат длины свободного пробега по упругим

$$l_{\text{el}}(E) = (N\sigma_{\text{el}})^{-1} = \left(N \cdot 2\pi \int_0^\pi \frac{d\sigma_{\text{el}}(E, \Theta)}{d\Theta} \sin \Theta d\Theta \right)^{-1}$$

и неупругим

$$l_{\text{in}}(E) = (l_{\text{in}}^{-1}(E))^{-1} = \left(\int_0^{Q_{\text{max}}} \frac{dl_{\text{in}}^{-1}}{d\hbar\omega} d\hbar\omega \right)^{-1}$$

столкновениям, где

$$\frac{d\sigma_{\text{el}}(E, \Theta)}{d\Theta}$$

— дифференциальное сечение упругого рассеяния, N — концентрация рассеивателей, $dl_{\text{in}}^{-1}/d\hbar\omega$ — дифференциальный обратный свободный пробег (вероятность того, что электрон с энергией E потеряет энергию $\hbar\omega$ на единице пути), Q_{max} — максимальная возможная потеря энергии.

Вследствие малости потерь энергии и изменения угла в каждом акте взаимодействия электрона со средой процесс релаксации в целом характеризуется не длинами $l_{\text{el}}(E)$, $l_{\text{in}}(E)$, а транспортной длиной и полным пробегом электрона в среде. В качестве масштаба этих

длин могут быть выбраны величины $\lambda(E)$ и $S(E)$, определяемые средующим образом:

$$\lambda(E) = 2 \left(2\pi N \int_0^\pi \frac{d\sigma_{\text{el}}(E, \Theta)}{d\Theta} \Theta^2 \sin \Theta d\Theta \right)^{-1},$$

$$S(E) = E/\beta(E),$$

где $\beta(E)$ — средние потери энергии на единице длины, вычисляемые по формуле

$$\beta(E) = \int_0^E \hbar\omega (dl_{\text{in}}^{-1}/d\hbar\omega) d\hbar\omega.$$

Угловое перераспределение при взаимодействии электрона с веществом определяется в основном упругим рассеянием, что дает возможность представить интеграл столкновений $R_{\text{col}} \Phi$ в виде суммы упругой ($R_{\text{el}} \Phi$) и неупругой ($R_{\text{in}} \Phi$) частей

$$R_{\text{el}} \Phi = N \int_{4\pi} \frac{d\sigma_{\text{el}}(E, \Omega', \Omega)}{d\Omega} \Phi(z, \Omega', E) d\Omega' - N \Phi(z, \Omega, E) \int_{4\pi} \frac{d\sigma_{\text{el}}(E, \Omega, \Omega')}{d\Omega} d\Omega',$$

$$R_{\text{in}} \Phi = \int_0^{E_0} \frac{dl_{\text{in}}^{-1}(E + \hbar\omega, \hbar\omega)}{d(\hbar\omega)} \Phi(z, \Omega, E + \hbar\omega) - \Phi(z, \Omega, E) l_{\text{in}}^{-1}(E).$$

Здесь Ω и Ω' — направление движения электрона до и после рассеяния. Как показано в [7], для электронов средних энергий, распространяющихся в тяжелых мишенях (с атомными номерами Z более 50), справедливо соотношение

$$\lambda(E) \ll S(E). \quad (3)$$

Это означает, что процессы угловой и энергетической релаксации могут быть разделены и распространение электронов в веществе (в большом масштабе) представляет собой диффузию изотропно распределенных электронов сопровождающуюся потерей энергии. Как показано в [5], соотношение (3) позволяет выделить в кинетическом уравнении (1) параметр малости $\varepsilon = \sqrt{\lambda(E_0)/S(E_0)}$ (при выборе $\sqrt{\lambda(E_0)S(E_0)}$ и E_0 в качестве масштабов длин и энергий) и воспользоваться методами теории возмущений. Кинетическое уравнение при этом сводится к уравнению для изотропной части распределения, зависящей лишь от глубины и энергии. Дальнейшее упрощение уравнения возможно, если

$$l_{\text{in}}(E) \ll S(E).$$

В этом случае может быть использовано приближение непрерывного замедления, при котором неупругая часть

интеграла столкновений аппроксимируется дифференциальным оператором

$$R_{in}\Phi = \partial(\beta(E)\Phi)/\partial E.$$

В результате кинетическое уравнение для дифференциальной плотности потока сводится к уравнению диффузии. В безразмерных переменных это уравнение для однородного образца имеет вид [5]

$$\frac{1}{3v_1} \frac{\partial^2 U_0}{\partial z^2} - \frac{\partial}{\partial E} (\gamma(E)U_0) = \delta(z - z_0)\delta(E - 1). \quad (4)$$

Здесь $U_0(z, E)$ — изотропная часть распределения, зависящая лишь от глубины и энергии, $\gamma(E) = S(E_0)\beta(E)$, а энергия E измеряется в единицах E_0 . Дифференциальная плотность потока $\Phi(z, \Theta, E)$ связана с $U_0(z, E)$ соотношением

$$\Phi(z, \Theta, E) = U_0(z, E) + \sqrt{\frac{\lambda(E_0)}{S(E_0)} \frac{\cos \Theta}{v_1(E)}} \frac{\partial U_0(z, E)}{\partial z} + O(\varepsilon^2), \quad (5)$$

где $v_1(E)$ — первое собственное число безразмерной упругой части интеграла столкновений.

Как отмечено в [5], собственными функциями оператора $R_{el}\Phi$ являются сферические гармоники $Y_{i,k}(\Omega)$, следовательно,

$$\lambda R_{el}Y_{1,0} = v_1 Y_{1,0}.$$

Решение уравнения (4) имеет вид

$$U_0(z, E) = \frac{1}{\gamma(E)} \frac{1}{8\pi^{3/2}\tau(E)} \left(\exp(-(z - z_0)^2/(4\tau(E))) - \exp(-(z + z_0)^2/(4\tau(E))) \right),$$

где

$$\tau(E) = \int_1^E \frac{dE}{3\gamma(E)v_1(E)},$$

что после подстановки в (5) и (2) приводит к аналитическому выражению для функции выхода. Заметим, что диффузионное приближение применимо лишь вдали от поверхности (на глубинах порядка длины изотропизации и больших), и для корректного решения задачи необходимо рассмотрение пограничного слоя. Граничное условие в области диффузии при этом находится из условия сращивания решений, что в свою очередь приводит к появлению зависящего от энергии некоего множителя C в выражении для функции выхода, которое при этом имеет вид

$$q(z_0) = C \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{z_0}{L} \right) \right]. \quad (6)$$

На практике значения коэффициента C могут быть найдены из результатов численного расчета.

Входящая в выражение (6) длина выхода L оказывается связанной с длинами угловой и энергетической релаксации соотношением

$$L(E_0) = 2\sqrt{\lambda(E_0)S(E_0)\tau^*}, \quad (7)$$

где безразмерный коэффициент $\tau^* = \tau(0)$.

Функция выхода из образцов типа „слой на подложке“

В случае образцов типа „слой на подложке“ кинетика электронов определяется двумя наборами характерных длин, описывающими взаимодействие электронов с веществом слоя и подложки. Пусть характерные длины транспорта электронов в слое и в подложке (длина изотропизации, длина энергетической релаксации и первое собственное число упругой части интеграла столкновений) обозначаются соответственно $\lambda^{(1)}(E)$, $S^{(1)}(E)$, $v_1^{(1)}(E)$ и $\lambda^{(2)}(E)$, $S^{(2)}(E)$, $v_1^{(2)}(E)$.

При переходе к безразмерным величинам в кинетическом уравнении (1) примем за масштаб длины величину $\sqrt{\lambda^{(1)}(E_0)S^{(1)}(E_0)}$, относящуюся к слою. Рассмотрим случай, когда источник электронов находится в слое на глубине $z_0 < a$, где a — толщина слоя. С учетом введенных обозначений дифференциальное уравнение для изотропной части распределения принимает вид

$$\frac{1}{3v_1^{(1)}(E)} \frac{\partial^2 U_0}{\partial z^2} - \frac{\partial}{\partial E} (\gamma^{(1)}(E)U_0) = \delta(z - z_0)\delta(E - 1),$$

$$0 < z < a,$$

$$\frac{\lambda^{(2)}(E_0)}{\lambda^{(1)}(E_0)} \frac{1}{3v_1^{(2)}(E)} \frac{\partial^2 U_0}{\partial z^2} - \frac{S^{(1)}(E_0)}{S^{(2)}(E_0)} \frac{\partial}{\partial E} (\gamma^{(1)}(E)U_0) = 0,$$

$$a < z < \infty.$$

Обозначая $B_0 = \gamma^{(1)}U_0$, получим

$$\frac{1}{3v^{(1)}(E)\gamma^{(1)}(E)} \frac{\partial^2 B_0}{\partial z^2} - \frac{\partial B_0}{\partial E} = \delta(z - z_0)\delta(E - 1),$$

$$0 < z < a,$$

$$\frac{\lambda^{(2)}(E_0)S^{(2)}(E_0)}{\lambda^{(1)}(E_0)S^{(1)}(E_0)} \frac{1}{3v^{(2)}(E)\gamma^{(1)}(E)} \frac{\partial^2 B_0}{\partial z^2}$$

$$- \frac{\partial}{\partial E} \left(\frac{\gamma^{(2)}(E)}{\gamma^{(1)}(E)} B_0 \right) = 0, \quad a < z < \infty. \quad (8)$$

Для дальнейшего упрощения уравнения существенно, что $\gamma^{(2)}(E)/\gamma^{(1)}(E)$ близко к единице и слабо зависит от энергии. Действительно, в том случае, когда средняя потеря энергии на единицу длины описывается формулой Бете, это отношение имеет вид

$$\frac{\gamma^{(2)}(E)}{\gamma^{(1)}(E)} = \left(1 + \frac{\sum_i N_i^{(2)} Z_i^{(2)} \ln(E)}{\sum_i N_i^{(2)} Z_i^{(2)} \ln(1.166E_0/I_i^{(2)})} \right) / \left(1 + \frac{\sum_i N_i^{(1)} Z_i^{(1)} \ln(E)}{\sum_i N_i^{(1)} Z_i^{(1)} \ln(1.166E_0/I_i^{(1)})} \right).$$

Здесь $N_i^{(1)}$, $N_i^{(2)}$ — концентрация рассеивателей i -го сорта в слое и в подложке; $Z_i^{(1)}$, $Z_i^{(2)}$ — атомные номера

рассеивателей; $I_i^{(1)}, I_i^{(2)}$ — средние потенциалы ионизации; в первой скобке суммирование происходит по всем элементам подложки, во второй — по всем элементам слоя.

Как видно, $\gamma^{(2)}(E)/\gamma^{(1)}(E) = 1 + O(1/\ln(E_0/I))$, где I — эффективный потенциал ионизации мишени, и в нулевом приближении можно считать, что это отношение равно 1. Тогда уравнение (8) в случае $a < z < \infty$ переходит в

$$\frac{\lambda^{(2)}(E_0)S^{(2)}(E_0)}{\lambda^{(1)}(E_0)S^{(1)}(E_0)} \frac{1}{3\nu_1^{(2)}(E)\gamma^{(2)}(E)} \frac{\partial^2 B_0}{\partial z^2} - \frac{\partial B_0}{\partial E} = 0.$$

Сделаем замену переменной

$$\tau = \int_1^E \frac{dE}{3\nu_1^{(1)}(E)\gamma^{(1)}(E)},$$

легко получить

$$\frac{\partial^2 B_0}{\partial z^2} - \frac{\partial B_0}{\partial \tau} = \delta(z - z_0)\delta(E - 1), \quad z < a, \quad (9)$$

$$D \frac{\partial^2 B_0}{\partial z^2} - \frac{\partial B_0}{\partial \tau} = 0, \quad z > a,$$

где

$$D = \frac{\lambda^{(2)}(E_0)S^{(2)}(E_0)}{\lambda^{(1)}(E_0)S^{(1)}(E_0)} \frac{\nu_1^{(1)}(E)\gamma^{(1)}(E)}{\nu_1^{(2)}(E)\gamma^{(2)}(E)}.$$

Рассмотрим теперь отношение $\nu_1^{(2)}(E)/\nu_1^{(1)}(E)$. При использовании экранированного сечения Резерфорда для описания упругих столкновений эта величина имеет вид

$$\frac{\nu^{(2)}(E)}{\nu^{(1)}(E)} = \left(1 - \frac{\sum_i N_i^{(2)}(Z_i^{(2)})^2 \ln(E)}{\sum_i N_i^{(2)}(Z_i^{(2)})^2 \ln(\alpha_i^{(2)}(E_0))} \right) / \left(1 - \frac{\sum_i N_i^{(1)} Z_i^{(1)} \ln(E)}{\sum_i N_i^{(1)} Z_i^{(1)} \ln(\alpha_i^{(1)}(E_0))} \right),$$

где $\alpha_i^{(k)}(E_0) = (0.565(Z_i^{(k)})^{1/3} e^2 \sqrt{m}/\hbar \sqrt{2E_0})^2$; $k = 1, 2$; m и e — заряд и масса электрона.

Суммирование в первой скобке происходит по всем элементам подложки, во второй скобке — по всем элементам слоя. Учитывая, что для всех i, k справедлива оценка $\alpha_i^{(k)}(E_0) \ll 1$, можно заключить, что $\nu_1^{(2)}(E)/\nu_1^{(1)}(E) = 1 + O(1/\ln(\alpha))$, где α — максимальное из значений $\alpha_i^{(k)}$. В силу этого в дальнейшем будем полагать, что $\nu_1^{(2)}(E)/\nu_1^{(1)}(E) = 1$. При этом

$$D = \left(\frac{L^{(2)}}{L^{(1)}} \right), \quad (10)$$

где $L^{(1)}, L^{(2)}$ — длины выхода соответственно из слоя и из подложки, определяемые соотношением (7).

Для определения решения уравнение (9) должно быть дополнено граничными условиями. Условия отсутствия источников электронов при $z = 0, z \rightarrow \infty$ дают

$$U_0|_{z=0} = 0, \quad U_0|_{z \rightarrow \infty} = 0.$$

Поскольку электроны могут только терять энергию и источники электронов с энергией, большей E_0 , отсутствуют, то

$$U_0|_{E=1+0} = 0.$$

Переходя от U_0 к функции B_0 и используя возраст частицы τ вместо безразмерной энергии E , получим

$$B_0(0, \tau) = 0, \quad B_0(z, \tau)|_{z \rightarrow \infty} = 0, \quad B_0(z, 0) = 0. \quad (11)$$

Задача (9), (11) может быть решена с помощью преобразования Лапласа. Изображение $F(z, p)$ при этом удовлетворяет уравнению

$$\frac{\partial^2 F(z, p)}{\partial z^2} - pF(z, p) = \delta(z - z_0), \quad z < a,$$

$$D \frac{\partial^2 F(z, p)}{\partial z^2} - pF(z, p) = 0, \quad z > a. \quad (12)$$

Для расчета функции выхода необходимо найти решение уравнения (12) на интервале $z < z_0$. Можно показать, что оно имеет вид

$$F(z, p) = -\frac{1}{2\sqrt{p}} \times \frac{\exp(-\sqrt{p}z_0) + \frac{(\sqrt{D}-1)}{(\sqrt{D}+1)} \exp(-\sqrt{p}(-z_0+2a))}{1 - \left(\frac{(\sqrt{D}-1)}{(\sqrt{D}+1)} \right) \cdot \exp(-\sqrt{p} \cdot 2a)} \times (\exp(\sqrt{p}z) - \exp(-\sqrt{p}z)). \quad (13)$$

Для вычисления оригинала заметим, что величина τ в уравнении (9) ограничена сверху: $\tau < \tau^*$. В случае использования формулы Бете и экранированного сечения Резерфорда величина τ^* приблизительно равна $1/12$. Это позволяет ограничиться рассмотрением случая малых τ , что соответствует большим значениям p . В этом случае выражение (13) может быть разложено в ряд по малому параметру $\exp(-\sqrt{p} \cdot 2a) \ll 1$, что дает

$$F(z, p) = -\frac{1}{2\sqrt{p}} \left\{ \exp(-\sqrt{p}(-z+z_0)) + \exp(-\sqrt{p}(z+z_0)) + \sum_{k=1}^{\infty} \left(\frac{\sqrt{D}-1}{\sqrt{D}+1} \right)^k \times \left[\exp(-\sqrt{p}(-z+z_0+2ka)) - \exp(-\sqrt{p}(z+z_0+2ka)) - \exp(-\sqrt{p}(-z+z_0+2ka)) + \exp(-\sqrt{p}(z+z_0+2ka)) \right] \right\}.$$

Переходя к оригиналу, получим решение уравнения (9) на интервале $z < z_0$:

$$B_0(z, \tau) = \frac{1}{2\pi\sqrt{\tau}} \left\{ \exp\left(-\frac{(-z+z_0)^2}{4\tau}\right) - \exp\left(-\frac{(z+z_0)^2}{4\tau}\right) + \sum_{k=1}^{\infty} \left(\frac{\sqrt{D}-1}{\sqrt{D}+1}\right)^k \times \left(\exp\left(-\frac{(-z+z_0+2ka)^2}{4\tau}\right) - \exp\left(-\frac{(z+z_0+2ka)^2}{4\tau}\right) - \exp\left(-\frac{(-z-z_0+2ka)^2}{4\tau}\right) + \exp\left(-\frac{(z-z_0+2ka)^2}{4\tau}\right)\right) \right\}. \quad (14)$$

Первые два слагаемых в (14) совпадают с решением для однородного образца [4]. Влияние подложки на дифференциальную плотность потока в слое выражено суммой по $k \neq 0$.

Аналогичные рассмотрения для случая, когда источник электронов находится в подложке, приводят к

$$B_0(z, \tau) = \frac{1}{\sqrt{\pi}(1+\sqrt{D})} \frac{1}{\sqrt{\tau}} \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{\sqrt{D}-1}{\sqrt{D}+1}\right)^k \times \left(\exp\left(-\frac{1}{4\tau} \left(\frac{z_0-a}{\sqrt{D}} + (2k+1)a - z\right)^2\right) - \exp\left(-\frac{1}{4\tau} \left(\frac{z_0-a}{\sqrt{D}} + (2k+1)a + z\right)^2\right)\right). \quad (15)$$

Чтобы найти функцию выхода из слоя и подложки, нужно подставить выражения (14), и (15) в (5) и (2). Функция выхода из слоя (определенная с точностью до множителя C , как и в случае однородного образца) имеет следующий вид:

$$q(z, E) = C \left\{ 1 - \operatorname{erf}\left(\frac{z}{L}\right) + \sum_{k=1}^{\infty} \left(\frac{\sqrt{D}-1}{\sqrt{D}+1}\right)^k \times \left(\operatorname{erf}\left(\frac{2ka-z}{L}\right) - \operatorname{erf}\left(\frac{2ka+z}{L}\right)\right) \right\}. \quad (16)$$

Первые два члена в (16), не входящие под знак суммы, совпадают с функцией выхода из однородного образца. Функция выхода из подложки определяется выражением

$$q(z, E) = C \left\{ \frac{2}{1+\sqrt{D}} \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{\sqrt{D}-1}{\sqrt{D}+1}\right)^k \times \left(1 - \operatorname{erf}\left(\frac{z-a}{\sqrt{D}L} + \frac{(2k+1)a}{L}\right)\right) \right\}. \quad (17)$$

Легко видеть, что в пределе $D \rightarrow 1$ выражения (16), (17) переходят в функцию выхода из однородного образца.

Численный расчет функции выхода из образцов типа „слой на подложке“

При выводе выражений (16), (17) был сделан ряд предположений. Первое из них — о справедливости соотношений (3), т.е. о применимости диффузионного приближения. Второе — о независимости от энергии отношений $\gamma^{(2)}(E)/\gamma^{(1)}(E)$, $\nu_1^{(2)}(E)/\nu_1^{(1)}(E)$ и, следовательно, коэффициента D . Эти предположения справедливы лишь в некотором приближении и в определенном диапазоне энергий и атомных номеров. Границы этого диапазона могут быть приблизительно оценены на основании анализа дифференциальных сечений рассеяния и характерных длин.

Другой способ определения границ применимости аналитических выражений для функции выхода — сравнение с результатами численного моделирования методом Монте-Карло. В некоторых случаях аналитические выражения описывают общую форму полученных зависимостей, даже несмотря на то, что сделанные при их выводе предположения нарушаются. При этом значения входящих в них параметров могут отличаться от найденных и должны быть скорректированы по результатам численного расчета.

В работе [7] описана применявшаяся нами при расчетах методом Монте-Карло физическая модель взаимодействия электронов с веществом — модель однократного рассеяния, в которой результат каждого акта взаимодействия электрона с веществом определяется дифференциальным сечением упругого и неупругого рассеяния. Для определения результатов упругого рассеяния используется дифференциальное сечение Мотта. Неупругое взаимодействие электронов с веществом мишени описывается дважды дифференциальным обратным свободным пробегом $d^2I_{in}^{-1}/d(\hbar\omega)d(\hbar q)$, т.е. вероятностью того, что электрон с энергией E потеряет энергию $\hbar\omega$ и импульс $\hbar q$ на единице пути. Дважды дифференциальный обратный свободный пробег может быть найден на основе данных о диэлектрической проницаемости вещества [8–10]. Описание расчета этой величины, как и разработанной нами процедуры розыгрыша результатов неупругого взаимодействия, позволяющей существенно сэкономить вычислительные ресурсы, приведено в [1]. Данные о дифференциальных сечениях упругого и неупругого взаимодействия могут быть найдены в электронном архиве [12].

Нами был проведен ряд расчетов функции выхода для образцов с различным контрастом атомных номеров: „алюминий на золоте“ (слой алюминия на подложке из золота, в дальнейшем будем обозначать такие образцы Al/Au), „золото на алюминии“ (Au/Al), „алюминий на меди“ (Al/Cu) и „медь на алюминии“ (Cu/Al).

Толщина слоя варьировалась от нескольких нанометров до толщин, сравнимых с характерной глубиной выхода электронов (порядка сотен нанометров).

Анализ дифференциальных сечений упругого рассеяния показывает, что толщина слоя порядка десятков нанометров сравнима с характерной длиной изотропизации, т.е. при распространении электронов в слое не успевает произойти перераспределение по углам. Поэтому значения длин выхода из слоя L , входящие в выражения (16), (17), не совпадают с длинами выхода из однородных образцов того же состава $L^{(1)}$ и должны определяться в зависимости от толщины слоя.

Скорректированные длины выхода из слоя L и коэффициенты C определялись с помощью минимизации функционала

$$I(C, L; E, a)$$

$$= \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N [q_{MC}(z_i; E, a) - q_{Theor}(z_i; E, a)]^2}, \quad (18)$$

где $q_{Theor}(z_i; E, a)$ определяется выражениями (16) или (17); z_i — точки, в которых известна функция выхода $q_{MC}(z, E, a)$, найденная методом Монте-Карло.

Полученные таким образом значения L подставлялись в (16) и (17), куда они входят в явном виде и через коэффициент D . При расчете D по формуле (10) длина выхода из слоя $L^{(1)}$ заменялась на L . В подложке справедливо диффузионное приближение, поэтому в качестве длины выхода из подложки $L^{(2)}$ в формуле (10) использовались длины выхода из однородных образцов.

Сравнение аналитических зависимостей (16), (17), в которые входили скорректированные длины выхода L , с результатами расчета методом Монте-Карло показало хорошее совпадение для всех энергий (в диапазоне 0.5–10 keV) при различной толщине слоя (5–10 nm). Типичные значения функционала (18) при этом оказались порядка тысяч.

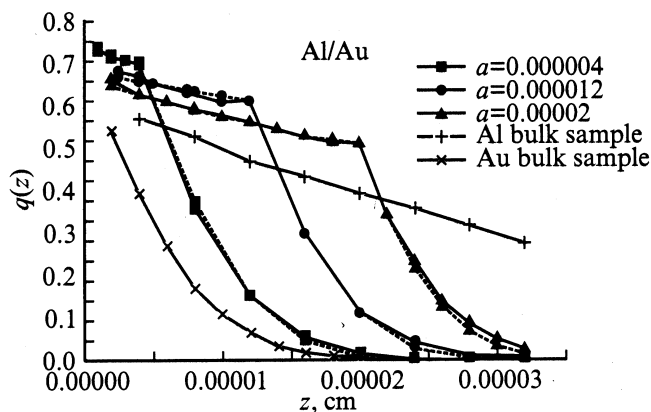


Рис. 1. Функции выхода в зависимости от глубины, рассчитанные численно (сплошные кривые) и аналитические (пунктир) для образцов Al/Au.

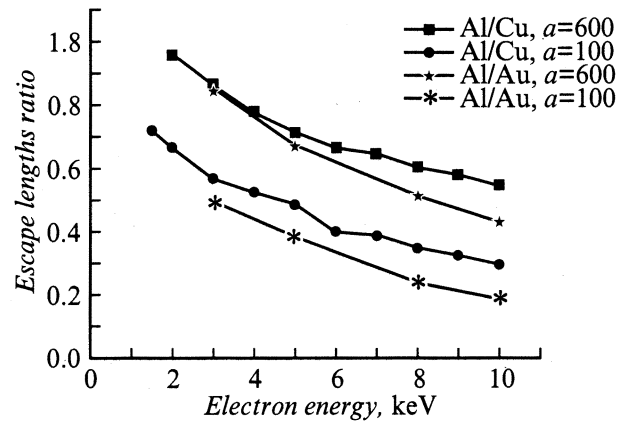


Рис. 2. Отношения длин выхода из слоя к длинам выхода из полубескоенного Al в случае образцов Al/Cu и Al/Au с толщиной слоя 10 и 16 nm.

На рис. 1 приведены результаты аналитического и численного расчета функции выхода для образцов типа Al/Au при начальной энергии электрона 10 keV. Видно, что кривые, полученные аналитическим и численным методами, практически совпадают.

Важно оценить величину поправок к длинам выхода из слоя по сравнению с длинами выхода из однородного образца в зависимости от энергии электронов, толщины слоя и соотношения атомных номеров слоя и подложки. Расчеты показали, что длины выхода из слоя легкого вещества на тяжелой подложке уменьшаются по сравнению с длинами выхода из однородного образца, а в случае слоя тяжелого вещества на легкой подложке длины выхода увеличиваются. Эти эффекты усиливаются с уменьшением толщины слоя и увеличением контраста атомных номеров. На рис. 2 приведены отношения длин выхода L из слоя толщиной 10 и 60 nm к длинам выхода $L^{(1)}$ из однородного образца для образцов Al/Au и Al/Cu в зависимости от начальной энергии электрона.

Расчет фотоэмиссии из образцов типа „слой на подложке“

Полученные результаты позволяют найти аналитические формулы для расчета фотоэмиссии электронов из образцов типа „слой на подложке“. Электронная эмиссия может быть описана в рамках трехступенчатой модели. Согласно этой модели, процесс индуцированной рентгеновским излучением электронной эмиссии может быть разделен на три стадии: поглощение рентгеновского фотона атомами вещества (ослабление рентгеновского излучения); генерация первичных электронов, т.е. фотоэлектронов и электронов, родившихся в ходе релаксации фотоионизованного атома (атомный фотоэффект); распространение первичных

электронов в веществе с генерацией каскада вторичных электронов и выход рожденных электронов из образца. При этом делается допущение, что указанные процессы происходят независимо, т.е. вероятность появления электрона в вакууме в результате падения рентгеновского фотона на поверхность образца определяется произведением соответствующих вероятностей.

Моделирование первых двух этапов может быть осуществлено с помощью уравнения переноса излучения и вероятностей межуровневых переходов. Вероятности межуровневых переходов к настоящему времени рассчитаны многими группами исследователей в различных квантово-механических приближениях и могут считаться известными [13]. Интенсивность рентгеновского излучения на глубине z определяется следующим соотношением:

$$I(z) = I_0 \exp\left(-\int_0^z \mu(h\nu, \tau) d\tau / \sin \varphi\right).$$

Здесь I_0 — интенсивность падающего рентгеновского излучения; $\mu(h\nu, z)$ — линейный коэффициент поглощения; φ — угол между направлением распространения рентгеновского пучка и поверхностью образца.

Последняя стадия (транспорт электронов в веществе) характеризуется функцией выхода $q(E, z)$. Полный выход первичных электронов может быть представлен в виде

$$\kappa_p = \int_0^\infty I(z) \sum_i \sum_j \mu_i(z) P_{ij}(z) q(E_{ij}, z) dz / \sin \varphi. \quad (19)$$

Здесь μ_i — линейный коэффициент поглощения, обусловленный атомами i -го элемента; P_{ij} — вероятность генерации электрона с энергией E_{ij} в результате поглощения рентгеновского фотона на атоме i -го элемента. Необходимо рассматривать отдельно вклад в полный выход быстрых и медленных электронов, генерированных в слое и в подложке, так как форма функции выхода отличается для этих четырех случаев. Следует, однако, заметить, что при толщине слоя порядка десяти нанометров и больше медленные электроны, генерированные в подложке, практически не дают вклада в полный выход.

В работе [4] показано, что функция выхода электронов из однородных образцов хорошо аппроксимируется формулой (6) в области энергий порядка keV. В области энергий порядка десятков eV функция выхода описывается экспоненциальным законом

$$q(E_{ij}, z) = C_{ij} \exp\left(-\frac{z}{L_{ij}}\right). \quad (20)$$

В области промежуточных энергий функция выхода может быть аппроксимирована выражениями (20) или (6) приблизительно с одинаковой погрешностью. В силу того что для электронов с энергиями порядка

сотен и десятков eV влияние подложки на функцию выхода из мишени с толщиной слоя порядка 10 нанометров и больше незначительно, в качестве функции выхода медленных электронов может быть использована формула (20). Подставляя (20) в (19), легко получить

$$\begin{aligned} \kappa_p^{(\text{slow})}(h\nu) = & I_0 \sum \frac{L_{ij}^{(1)} \mu_i^{(1)}(h\nu) P_{ij}^{(1)}(h\nu) C_{ij}}{L_{ij}^{(1)} \mu^{(1)}(h\nu) + \sin \varphi} \\ & \times \left(1 - \exp\left(-\frac{\mu^{(1)}(h\nu)a}{\sin \varphi} - \frac{a}{L_{ij}^{(1)}}\right)\right) \\ & + I_0 \sum \frac{L_{ij}^{(s)} \mu_i^{(s)}(h\nu) P_{ij}^{(s)}(h\nu) C_{ij}}{L_{ij}^{(s)} \mu^{(s)}(h\nu) + \sin \varphi} \\ & \times \exp\left(-\frac{\mu^{(1)}(h\nu)a}{\sin \varphi} - \frac{a}{L_{ij}^{(1)}}\right). \quad (21) \end{aligned}$$

Здесь величины с верхними индексами (1) и (s) относятся соответственно к слою и к подложке, суммирование производится по всем группам медленных электронов. Вклад в полный выход быстрых электронов из слоя и из подложки легко найти, подставляя (16), (17) в (19). Вклад от слоя описывается выражением

$$\begin{aligned} \kappa_p^{(l)} = & \int_0^a I(z) \sum_i \sum_j \mu_i^{(l)} P_{ij}^{(l)} q^{(l)}(E_{ij}, z) dz / \sin \varphi \\ = & I_0 \sum P_{ij}^{(l)} \frac{\mu_i^{(l)}}{\mu^{(l)}} C_{ij} \left\{1 - \exp(-ca) \left(1 - \operatorname{erf}\left(\frac{a}{L_{ij}}\right)\right)\right. \\ & - \exp(\chi_{ij}^2) \left(\operatorname{erf}\left(\frac{a}{L_{ij}} + \chi_{ij}\right) - \operatorname{erf}(\chi_{ij})\right) \\ & + \sum_{k=1}^\infty \left(\frac{\sqrt{D_{ij}} - 1}{\sqrt{D_{ij}} + 1}\right)^k \left[\exp(-ca) \left(\operatorname{erf}\left(\frac{(2k+1)a}{L_{ij}}\right)\right. \right. \\ & \left. \left. - \operatorname{erf}\left(\frac{(2k-1)a}{L_{ij}}\right)\right) - \exp(\chi_{ij}^2 + 2kac) \right. \\ & \left. \times \left(\operatorname{erf}\left(\frac{(2k+1)a}{L_{ij}} + \chi_{ij}\right) - \operatorname{erf}\left(\frac{2ka}{L_{ij}} + \chi_{ij}\right)\right) \right. \\ & \left. + \exp(\chi_{ij}^2 - 2kac) \left(\operatorname{erf}\left(\frac{(2k+1)a}{L_{ij}} - \chi_{ij}\right) \right. \right. \\ & \left. \left. - \operatorname{erf}\left(\frac{2ka}{L_{ij}} - \chi_{ij}\right)\right)\right] \left. \right\}. \quad (22) \end{aligned}$$

Здесь величины $\mu^{(1)}$, $\mu_i^{(1)}$, $P_{ik}^{(1)}$ относятся к слою, $c = \mu^{(1)} / \sin \varphi$, $\chi_{ij} = CL_{ik} / 2$. Вклад в полный выход фотоэмиссии первичных электронов, генерированных в

подложке, дается следующим выражением:

$$\begin{aligned} \kappa_p^{(s)} = & I_0 \exp(-\mu^{(1)}a) \sum P_{ij}^{(s)} \frac{\mu_i^{(s)}}{\mu^{(s)}} C_{ij} \frac{2}{1 + \sqrt{D_{ij}}} \\ & \times \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{\sqrt{D_{ij}} - 1}{\sqrt{D_{ij}} + 1} \right)^k \left\{ 1 - \operatorname{erf} \left(\frac{(2k+1)a}{L_{ik}} \right) \right. \\ & - \exp(D_{ij}\chi_{ij}^2 + (2k+1)ac\sqrt{D_{ij}}) \\ & \left. \times \left(1 - \operatorname{erf} \left(\frac{(2k+1)a}{L_{ik}} + \sqrt{D_{ij}}\chi_{ij} \right) \right) \right\}. \quad (23) \end{aligned}$$

Величины $\mu^{(1)}$, $\mu_i^{(1)}$, $P_{ik}^{(1)}$ относятся к подложке $c = \mu^{(s)}/\sin\varphi$. Суммирование в выражениях (22), (23) производится по всем группам быстрых первичных электронов, генерированных соответственно в слое и в подложке.

Полный выход первичных электронов определяется как сумма всех вкладов

$$\kappa_p = \kappa_p^{(1)} + \kappa_p^{(s)} + \kappa_p^{(\text{slow})}.$$

Расчет полного выхода по формулам (21)–(23) был сделан для ряда однородных образцов и образцов типа „слой на подложке“. Полученные кривые сравнивались с результатами численного моделирования фотоэмиссии методом Монте-Карло.

Сравнение результатов аналитического и численного расчета полного выхода фотоэмиссии было выполнено для однородных образцов алюминия (угол облучения, отсчитываемый от поверхности образца, $\varphi = 5^\circ$) и германия ($\varphi = 2^\circ$). Энергия фотона менялась вблизи K -края алюминия в диапазоне 1.5–2.0 keV и вблизи K -края германия в диапазоне 11–12 keV. При расчетах методом Монте-Карло использовались те же данные (линейные коэффициенты поглощения рентгеновского излучения, сечения фотоионизации отдельных атомных оболочек, вероятности межуровневых переходов), что и в аналитических выражениях для полного выхода.

Статистическая ошибка численного моделирования составляла приблизительно 1%. Для этого пришлось моделировать 10^6 актов падения фотона на поверхность образца в каждой точке по энергии фотона. В случае алюминия (рис. 3, *a*) зависимости, полученные аналитически и методом Монте-Карло (учитывались только первичные электроны), отличаются приблизительно на 2% вблизи K -края. На расстоянии 0.2 keV от K -края и более результаты, полученные численно и аналитически, совпадают в пределах погрешности численного расчета. Для германия (рис. 3, *b*) расхождение между результатами аналитического и численного расчета составило приблизительно 3%. Оно отчасти объясняется тем, что при моделировании методом Монте-Карло учитывался вклад флуоресцентных фотонов в полный выход фотоэмиссии. При моделировании без учета флуоресценции фотонов

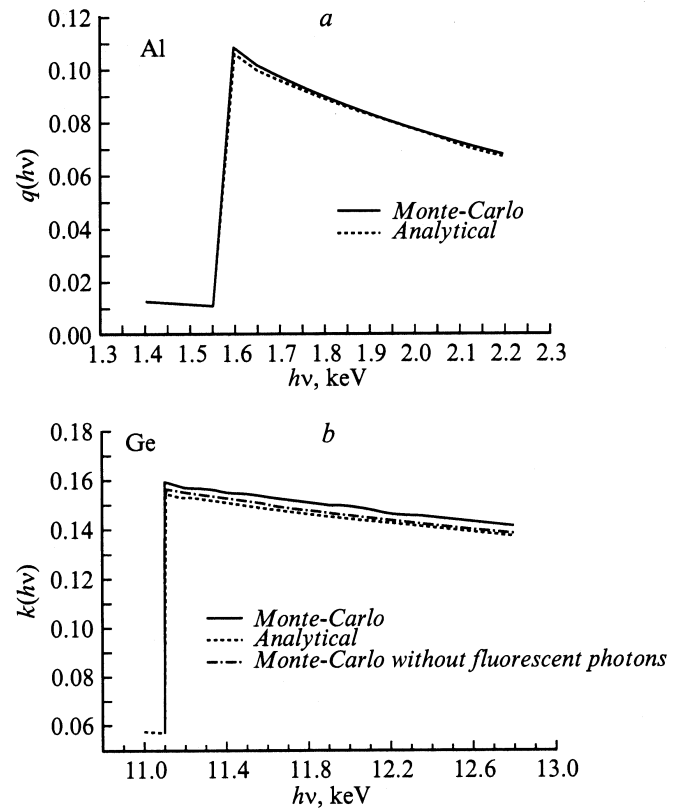


Рис. 3. Полный выход фотоэмиссии, рассчитанный аналитически (пунктир) и методом Монте-Карло (сплошная кривая) для образцов Al (*a*) и Ge (*b*). Штрихпунктир (*b*) — результат расчета методом Монте-Карло без учета флуоресцентных фотонов.

расхождение между результатами, полученными численно и аналитически, составляет около 1%, т.е. едва превышает ошибку численного расчета. Его причиной, по-видимому, является погрешность аналитической аппроксимации функции выхода. В случае алюминия учет флуоресцентных фотонов не влияет на результат.

Отдельно стоит вопрос об учете вклада вторичных электронов в полный выход фотоэмиссии. При моделировании методом Монте-Карло этот вклад может быть учтен следующим образом: любые потери энергии в результате неупругого взаимодействия электронов с мишенью идут на процесс генерации вторичных электронов, траектории которых затем прослеживаются точно так же, как траектории первичных электронов. Расчеты показывают, что при таком учете вклада вторичных электронов полный выход возрастает в несколько раз. Энергия вторичных электронов мала по сравнению с энергией первичных электронов, поэтому их вклад может быть существенно уменьшен, если не принимать в рассмотрение электроны с энергией, меньшей некоторого предельного значения (энергии обрезки). Физически это эквивалентно существованию электростатического барьера или запирающего напряжения вблизи поверх-

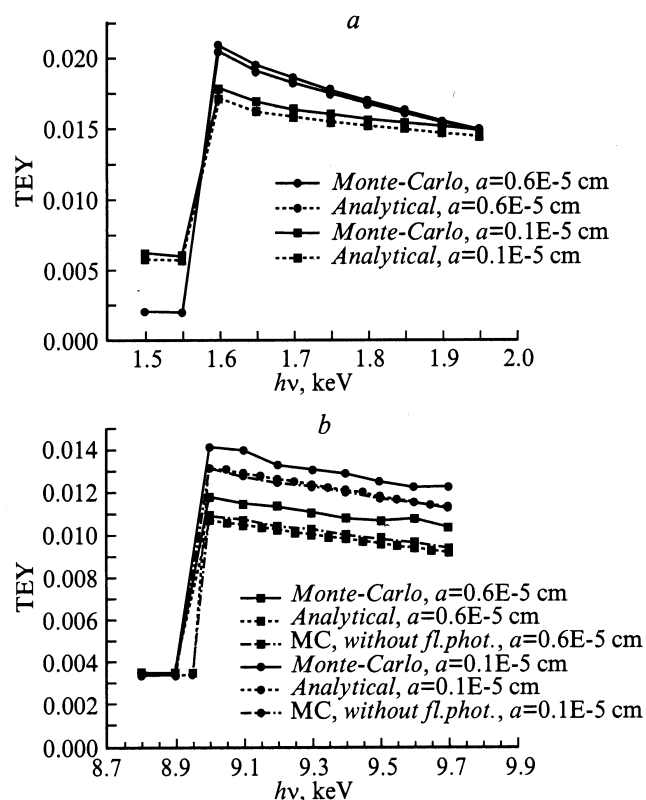


Рис. 4. Полный выход фотоэмиссии из образцов Al/Cu вблизи К-краев алюминия (а) и меди (b).

ности образца. Учет энергии обрезки практически не влияет на функцию выхода и длины выхода быстрых электронов (с начальными энергиями больше 2 keV), в то время как для более медленных электронов влияние энергии обрезки существенно. При энергии обрезки, равной 100 keV, расхождение между результатами расчета методом Монте-Карло с учетом вторичных электронов и результатом аналитического расчета, учитывающего только первичные электроны, составляет около 15%, а при энергии обрезки, равной 250 keV — приблизительно 10%. Таким образом, можно оценить вклад относительно быстрых вторичных электронов в полный выход фотоэмиссии.

Полный выход был рассчитан затем для образцов Al/Cu (слой алюминия на подложке из меди) и Cu/Al (слой меди на подложке из алюминия) с толщиной слоя, меняющейся в диапазоне 10–16 нм. Диапазон изменения толщины слоя был выбран исходя из результатов расчета длин выхода наиболее представительных групп оже-электронов (составляющих основную часть первичных электронов) из однородных алюминия и меди и из образцов типа Al/Cu и Cu/Al.

Энергия рентгеновских квантов менялась вблизи К-края алюминия (1.5–1.95 keV) и меди (8.8–9.7 keV). Зависимости полного выхода фотоэмиссии от энергии фотона, рассчитанные аналитически, приведены на

рис. 4, 5 вместе с результатами расчета методом Монте-Карло. Угол облучения $\varphi = 30^\circ$. Для образцов типа Al/Cu (рис. 4) при энергии рентгеновского излучения вблизи К-края алюминия аналитический и численный методы дают весьма удовлетворительное совпадение результатов. Расхождение, которое составляет около 3% при толщине слоя 10 нм и уменьшается с ростом толщины слоя, объясняется погрешностью аналитической аппроксимации функции выхода из подложки на больших глубинах. Полный выход при энергиях фотона, меньших К-края алюминия, обусловленный в основном вкладом электронов из подложки, с увеличением толщины слоя алюминия уменьшается, а полный выход после К-края увеличивается.

Вблизи К-края меди аналитический расчет дает значения полного выхода примерно на 10% меньше, чем численный. Эта разница в большой степени обусловлена вкладом в полный выход флуоресцентных фотонов. Значения полного выхода, полученные при расчете ме-

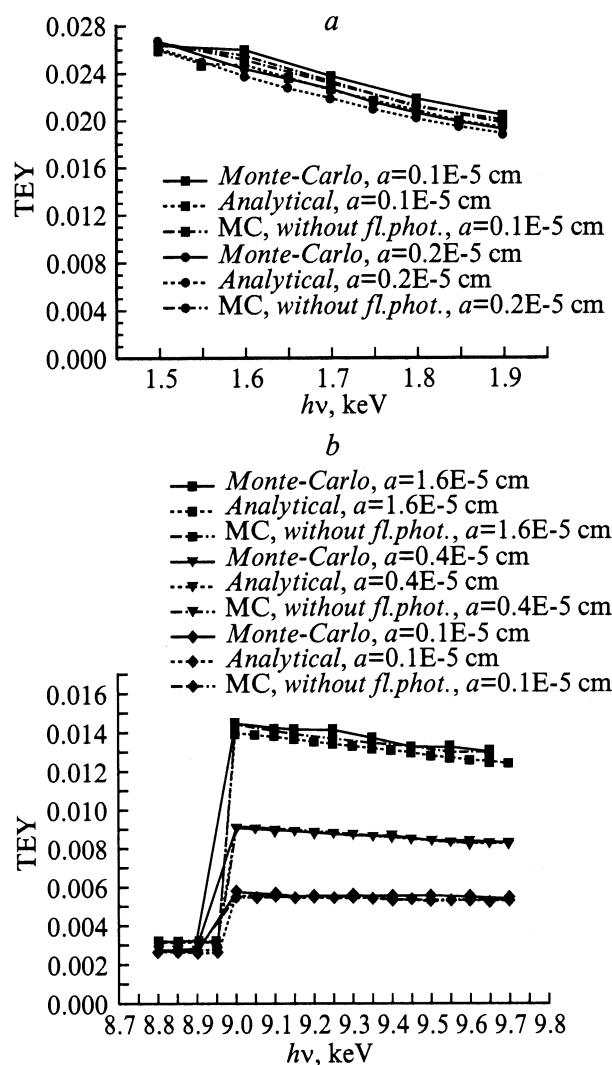


Рис. 5. Полный выход фотоэмиссии из образцов Cu/Al вблизи К-краев алюминия (а) и меди (b).

тодом Монте-Карло без учета флюоресцентных фотонов, отличаются от результатов аналитического расчета примерно на 3% при толщине слоя 60 nm и уменьшаются с уменьшением толщины слоя. С увеличением толщины слоя алюминия полный выход электронов из меди уменьшается. При энергиях фотонов до K -края меди толщина слоя алюминия практически не влияет на полный выход, что объясняется малым вкладом электронов из подложки.

В случае образцов типа Cu/Al (рис. 5) результаты численного и аналитического расчета полного выхода при энергии фотона вблизи K -края алюминия отличаются примерно на 6%, из них $\sim 3\%$ следует приписать вкладу флюоресцентных фотонов, а оставшиеся $\sim 3\%$ — погрешности аппроксимации функции выхода. Скачок полного выхода на K -крае алюминия заметен только при толщине слоя меди 10 nm, при большей толщине слоя вероятность выхода электронов из алюминия сквозь слой меди чрезвычайно мала.

Вблизи K -края меди результаты аналитического и численного расчета практически совпадают. Погрешность аппроксимации функции выхода делается заметной только при достаточно большой толщине слоя (160 nm), когда полный выход фотоэмиссии уже мало отличается от полного выхода из однородных образцов. Вклад флюоресцентных фотонов делается заметным при очень малой толщине слоя (по-видимому, за счет генерации электронов в подложке) и при очень большой толщине слоя (по-видимому, за счет генерации электронов в слое). И в том и в другом случае он едва превышает статистическую ошибку. С увеличением толщины слоя меди полный выход электронов из меди растет.

Заключение

В диффузионном приближении получено аналитическое решение кинетического уравнения, описывающего распространение электронов средних энергий (порядка keV) в образцах, представляющих собой слой вещества на полубесконечной однородной подложке другого состава. На основании найденного решения получены аналитические выражения для функции выхода из слоя и из подложки.

Для проверки полученных выражений и для уточнения численных значений входящих в них параметров использовано сравнение с результатами численного моделирования функции выхода методом Монте-Карло. В расчетах методом Монте-Карло использована модель однократного рассеяния. Упругое взаимодействие электронов с веществом описывалось с помощью дифференциального сечения Мотта, а неупругое взаимодействие — с помощью дважды дифференциального обратного свободного пробега, рассчитанного с применением диэлектрического формализма.

Анализ длин выхода, входящих в аналитические выражения для функции выхода, показал, что они не совпадают с длинами выхода из однородного образца и зависят от толщины слоя и состава подложки. Отличие от длин выхода из однородного образца усиливается с уменьшением толщины слоя и увеличением контраста атомных номеров вещества слоя и подложки. Длины выхода из слоя могут быть определены из результатов численного моделирования функции выхода методом Монте-Карло. При использовании в аналитических выражениях значений параметров, найденных с помощью результатов численного моделирования, аналитическая аппроксимация функции выхода с большой точностью приближает зависимости, полученные методом Монте-Карло.

На основе аналитической аппроксимации функции выхода разработан полуаналитический алгоритм расчета полного выхода фотоэмиссии из однородных образцов и из образцов типа „слой на подложке“. Согласно этому алгоритму, полный выход определяется аналитическими выражениями, полученными на основе решения кинетического уравнения в диффузионном приближении. Численные значения параметров, входящих в аналитические выражения (длин выхода и зависящих от энергии множителей C), извлекаются из результатов предварительного моделирования функции выхода методом Монте-Карло. Для ряда образцов различного состава результаты расчета полного выхода фотоэмиссии с помощью разработанной процедуры сопоставлены с результатами численного моделирования полного выхода методом Монте-Карло. Сделана оценка влияния различных процессов на окончательный результат. Констатируется удовлетворительное совпадение результатов, полученных аналитическим и численным методами.

Список литературы

- [1] X-Ray Absorption. Principles, Applications, Techniques of EXAFS, SEXAFS and XANES / Ed. by D.C. Koningsberger & R. Prins. New York: John Wiley & Sons; Chichester; Prispance; Toronto; Singapore, 1991. Vol. 92. 673 p.
- [2] Spectroscopy for Surface Science / Ed. R.G.H. Clark, R.E. Hester. Advances in Spectroscopy. Chichester (England), 1998. Vol. 26.
- [3] Lecture: New Brunch in the Non-destructive Solid Body Characterization „X-ray Induced Electron Emission at Absorption Edges. Ioffe Institute-95“. 1995.
- [4] *Bakaleinikov L.A., Pogrebitsky K.Ju., Tropp E.A. et al. // The Nucleus. 1997. Vol. 34. P. 1–14.*
- [5] *Бакалейников Л.А., Конников С.Г., Погребицкий К.Ю. и др. // ЖТФ. 1994. Т. 64. Вып. 4. С. 9–16.*
- [6] *Бакалейников Л.А., Флегонтова Е.Ю., Погребицкий К.Ю. и др. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 7. С. 14–20.*
- [7] *Бакалейников Л.А., Тропп Э.А. // ЖТФ. 1986. Т. 56. Вып. 1. С. 16–26.*
- [8] *Пайнс Д. Элементарные возбуждения в твердых телах. М.: Мир, 1965. 382 с.*

- [9] Fundamental Studies on the Interactions of kV Electrons with Solids for Applications to Electron Spectroscopies. PHD Thesis. Osaka University, 1990. 219 p.
- [10] *Palik E.D.* Handbook of Optical Constants of Solids. New York, 1985.
- [11] *Флегонтова Е.Ю., Бакалейников Л.А., Погребницкий К.Ю.* и др. // ЖТФ. 2000. Т. 70. Вып. 12. С. 6–11.
- [12] Электронный архив <http://www.ioffe.rssi.ru/ES>.
- [13] *Amusia M.Ya.* Atomic Photoeffect. New York; London: Plenum Press, 1990. 303 p.