

Определение эффективной массы электронов с использованием спектроскопии энергетических потерь в ПРЭМ

© К.Е. Приходько,^{1,2} М.М. Дементьева¹

¹ Национальный исследовательский центр „Курчатовский Институт“,
123182 Москва, Россия

² Национальный исследовательский ядерный университет МИФИ,
115409 Москва, Россия
e-mail: prihodko_ke@nrcki.ru

Поступило в Редакцию 24 апреля 2026 г.

В окончательной редакции 24 апреля 2026 г.

Принято к публикации 24 апреля 2026 г.

Выполнено экспериментальное определение эффективной массы электронов в функциональных материалах, используемых при создании логических элементов криогенных вычислительных устройств. Изучены тонкие сверхпроводящие пленки NbN толщиной 5 nm после ионного облучения, применяемые в качестве материала интегрированных криогенных сопротивлений. Также определена эффективная масса электронов в материалах межслоевых диэлектриков: Al_2O_3 и SiO_2 . Эффективная масса электрона m_e^* вычислялась из соотношения Крамерса–Кронига на основе экспериментальных спектров потерь энергии электронов в области возбуждения плазменных колебаний, полученных в рамках просвечивающей растровой электронной микроскопии. Установлено изменение эффективной массы электронов в NbN под действием облучения, а также показано преимущество использования Al_2O_3 в качестве межслоевого диэлектрика по сравнению с SiO_2 .

Ключевые слова: Спектроскопия потерь энергии электронов (EELS), просвечивающая электронная микроскопия высокого разрешения (HRTEM), определение эффективной массы электронов.

DOI: 10.61011/JTF.2026.10.63631.121-26

Введение

Развитие современной наноэлектроники требует создания новых устройств с различными наноразмерными новыми функциональными элементами. Такие устройства рассматриваются как альтернатива традиционным устройствам на основе полупроводниковых элементов, для которых в настоящее время достигнуты предельные параметры по быстродействию и энергопотреблению. К развиваемым новым направлениям микроэлектроники относятся такие направления как классическая сверхпроводящая наноэлектроника, квантовые системы для вычислений на основе кубитов, наноплатоника и наноплазмоники, различные нейроморфные системы и т.п. Определяющими параметрами являются быстродействие и энергопотребление перспективных схем по сравнению с традиционными полупроводниковыми.

Известно, что сверхвысокие частотные характеристики быстродействующих элементов напрямую связаны с подвижностью носителей заряда μ в таких системах. Величина μ зависит от структурного совершенства материала, используемого для создания функционального элемента, от количества примесей и дефектов в нем. Подвижность носителей заряда в классическом приближении (уравнение Друде) можно выразить следующим образом:

$$\mu = \frac{e \cdot \tau}{m_e^*}, \quad (1)$$

где e — заряд электрона, m_e^* — эффективная масса, τ — время релаксации. Из соотношения (1) видно, что на подвижность носителей влияет такая важная характеристика, как эффективная масса m_e^* . Чем меньше m_e^* , тем выше скорость и подвижность носителей заряда, что существенно улучшает частотные характеристики разрабатываемых устройств для области быстродействующей электроники и оптоэлектроники.

Классическими подходами определения эффективной массы электронного газа являются эксперименты с использованием циклотронного резонанса — измерение частоты вращения носителей в магнитном поле [1,2]; измерения эффекта Шубникова–де Гааза, основанного на определении температурной зависимости амплитуды осцилляций магнетосопротивления [3]; оптические методы — спектроскопия поглощения и фотолюминесценции, позволяющая оценить кривизну энергетической зоны [4].

В настоящей работе мы представляем метод измерения эффективной массы электронов в рамках аналитической просвечивающей растровой электронной микроскопии (ПРЭМ) для устройств, в которых применяются наноразмерные функциональные слои, а также размеры самих элементов достигают нескольких десятков нанометров, с учетом возможности изготовления образцов поперечных срезов методом фокусированного ионного пучка (ФИП) и вырезки образца непосредственно из интересующей зоны устройства [5].

Спектроскопия энергетических потерь электронов (СЭПЭ) является мощным инструментом, позволяющая не только изучать элементный состав и локальное окружение атомов, но и локально определять такие электрофизические характеристики материалов, как плотность электронных состояний на уровне Ферми, а также эффективную массу электронов. Такие возможности открывают перспективы изучения свойств наноразмерных элементов с локальностью, определяемой диаметром электронного зонда, что составляет доли нанометра.

Подобный подход был применен рядом исследователей для определения эффективной массы электронов в ряде материалов. Например, в работе [6] была получена величина эффективной массы $0.215m_0$ (где m_0 — масса покоя электрона) в материале ZnO и $0.163m_0$ для ZnSe, а в работе [7] — эффективная масса определялась для материала TiN разными подходами, включая методику СЭПЭ. Также соответствие с литературными данными было получено в работе [8] при измерении эффективной массы для материалов полупроводников GaAs ($0.183m_0$) и GaN ($0.07m_0$), применяя методику СЭПЭ.

Поскольку в НИЦ „Курчатовский институт“ в последние годы созданы основы [9] и ведутся интенсивные работы по созданию классических криогенных вычислительных элементов на основе сверхпроводящих нанопроводов из NbN с интегрированными под действием облучения участками нормального металла [10], объектами исследования в работе послужили все основные материалы, применяемые в таких устройствах.

1. Эксперимент

1.1. Образцы

В настоящей работе в качестве основных функциональных материалов исследуются тонкие сверхпроводящие пленки NbN, из которых изготавливаются сверхпроводящие нанопроводники, а также пленки NbN после ионного облучения, которые используются для формирования интегрированных сопротивлений — встроенных в сверхпроводящие нанопровода участков нормального металла. Также исследованы пленки межслоевого диэлектрика: аморфного оксида алюминия — Al_2O_3 и альтернативного диэлектрика SiO_2 , применяемого в работах других авторов [11].

Образцы NbN были получены методом распыления Nb на установке катодного распыления [12] в контролируемой газовой среде азота и криптона при давлении $\sim 10^{-5}$ Торр, где ионизация газа инициируется воздействием высокого электрического напряжения (1–3 кВ), а магнитное поле, которое создается с помощью внешнего водоохлаждаемого соленоида, размещаемого снаружи вакуумной камеры, увеличивает длину траекторий электронов, что приводит к дополнительной ионизации. Принципиальное отличие данной установки от схемы обычного магнетрона — внешний способ создания магнитного поля, поскольку в традиционной

установке магнетрона мишень фактически располагается на поверхности постоянного магнита. Для обычного магнетрона характерна высокая скорость осаждения пленок, что не целесообразно в случае напыления ультратонких сверхпроводящих пленок толщиной 1–5 нм. Пленки NbN были нанесены на монокристалльные подложки Si(100), покрытые слоем термического оксида SiO_2 , при этом температура подложки в процессе осаждения составляла 750 °С. Исходные пленки NbN толщиной 5 нм имеют поликристаллическую структуру, фазовый состав зерен NbN соответствует кубической сингонии (Fm-3m) с параметром решетки $a = 0.4394$ нм [13], критическая температура перехода в сверхпроводящее состояние 11 К, плотность критического тока не менее 5 МА/см².

При создании различных функциональных элементов на базе ультратонких сверхпроводящих пленок NbN, в частности сопротивления различных номиналов, актуальной становится задача исследования изменения эффективной массы носителей заряда в материале пленки под действием облучения. Последнее связано с разрабатываемыми авторами технологии создания криоэлектронной элементной базы на основе нанопроводов из сверхпроводящего NbN с интегрированными участками нормального металла, сформированными из исходной пленки под действием низкоэнергетического ионного облучения. Тонкие пленки нитрида ниобия облучали ионными пучками кислорода с энергией 0.2 кэВ на установке с ВЧ плазменным источником ионов (частота 13.6 МГц) „Сорпа Cube“ производителя „CCR Technology“, экстрагированных из плазменного разряда путем подачи на образцы знакопеременного потенциала смещения с частотой прямоугольных импульсов до 100 кГц для реализации условий компенсации эффекта зарядки. Образцы облучались при комнатной температуре, доза облучения составляла $0.4 \cdot 10^{17}$ ions/cm².

Для исследования свойств и качества диэлектрических слоев, разделяющих разные функциональные слои нитрида ниобия, были изучены тонкие диэлектрические пленки Al_2O_3 толщиной 2 нм, нанесенные методом катодного распыления на установке, аналогичной [12], с помощью ячейки Пеннинга на подложки монокристаллического кремния, покрытого слоем оксида кремния. При напылении пленок Al_2O_3 поддерживалась комнатная температура подложек. Катодами являлись мишени из чистого металлического алюминия, в качестве рабочего газа использовался криптон, в качестве реактивного газа — кислород. Рабочее давление при напылении пленок составляло $5.2 \cdot 10^{-5}$ Торр, напряжение разряда (3–4) кВ, ток до 20 мА, а скорость напыления составила ~ 1 нм/мин, что обеспечивало контролируемое осаждение пленок нанометровой толщины.

Для приготовления поперечных срезов тонких пленок NbN и образцов пленок Al_2O_3 для исследования на ПЭМ был применен метод ФИП на установке „Helios Nanolab 650“ с двумя источниками — электронным и ионным (Ga^+). Прибор оборудован 4 системами газовой

инъекции на основе нафталина (для напыления углерода), напыления Pt и W, и травления металлизации на основе йода. На выбранную область образца, из которой впоследствии изготавливается образец-ламелла для просвечивающей электронной микроскопии, напыляются два защитных слоя Pt с целью предотвращения распыления поверхности ионами Ga. Первый слой Pt с поперечными размерами $20 \times 1.5 \mu\text{m}$ и толщиной порядка 50–150 nm напыляется электронным пучком с параметрами пучка 5 kV, 3.2 nA, затем более толстый слой ($20 \times 1.5 \mu\text{m}$) толщиной около $1.5 \mu\text{m}$ с помощью ионного пучка (30 kV, 0.79 nA). После нанесения защитного слоя Pt происходит травление канавок вокруг будущей ламеллы, вырезка и утонение образца ионами Ga^+ . На этапе первоначального травления канавок и вырезки ускоряющее напряжение Ga-ионной пушки составляло 30 keV и ток 2.5 nA, а окончательное утонение образца проходило при напряжении 2 keV и токе 0.12 nA.

1.2. Съёмка спектра плазмонных потерь и пика нулевых потерь

Спектроскопия энергетических потерь электронов в просвечивающей растровой электронной микроскопии (ПРЭМ) позволяет получить распределение потерь энергии падающих электронов по энергиям вследствие неупругого взаимодействия их с атомами исследуемого материала. Благодаря своей высокой энергии (100–300 keV) падающие на образец электроны способны проходить сквозь тонкий образец практически без рассеяния (при условии, что его толщина на изучаемом участке составляет 10–30 nm, что существенно меньше длины неупругого рассеяния для большинства веществ). Это позволяет на тонких образцах получать аналитическую информацию об интенсивности неупругого рассеяния с локальностью, определяемой диаметром падающего электронного зонда, что на серийном микроскопе, не оснащённом корректором сферических aberrаций на конденсорной системе, составляет величину $\sim 0.14 \text{ nm}$. Также в режиме ПРЭМ возможно получение изображения с пространственным разрешением вплоть до атомных размеров. Комбинируя СЭПЭ с малой толщиной образца ($\sim 10\text{--}30 \text{ nm}$) и узким падающим электронным зондом, данный метод позволяет проводить элементный и любой другой анализ малых объёмов материала с высоким пространственным разрешением.

Для локального измерения электрофизических свойств исследуемых материалов (в частности эффективной массы m_e^*), в настоящей работе используется область низких потерь энергии электронов (так называемые „плазмонные“ потери энергии в диапазоне от 10 до 50 eV). Кроме того, в область исследования входит пик нулевых потерь, который соответствует электронам, которые не подверглись неупругому взаимодействию с электронами образца, но могли участвовать в процессе упругого взаимодействия с

атомными ядрами исследуемого материала с потерями энергии, недоступными для регистрации.

Спектры плазмонных потерь были сняты на просвечивающем электронном микроскопе „Titan 80-300ST“ (FEI) без корректора сферических aberrаций, оснащённого спектрометром энергетических потерь электронов „GIF-2001“ (Gatan) с дисперсией 0.2 eV/ch. На рис. 1, а представлен характерный спектр низких потерь, включающий пик нулевых потерь. Все спектры в настоящей работе снимались в режиме ПРЭМ при ускоряющем напряжении 200 kV. Угол сходимости пучка α составлял 10 mrad, что соответствует диаметру электронного зонда $\sim 0.14 \text{ nm}$. Все спектры в области низких потерь энер-

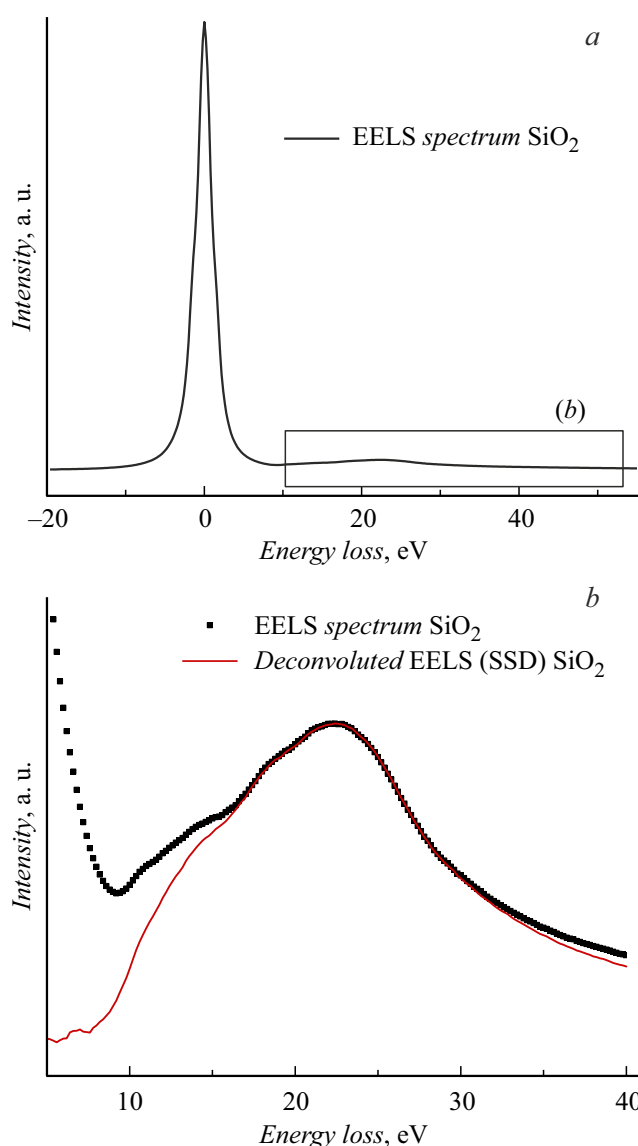


Рис. 1. а — экспериментальный спектр энергетических потерь электронов в области низких потерь для пленки термического SiO_2 ; б — экспериментальный спектр плазмонного пика для пленки термического SiO_2 (черная кривая). (б) — спектр однократного рассеяния, полученный путем Фурье- $\log$ деconvолуции (красная кривая).

гии, включая пик нулевых потерь, в настоящей работе регистрировались при длине камеры 77 mm, диаметре входного отверстия спектрометра 0.6 mm, при этом угол сбора спектрометра β составлял 2.3 mrad.

1.3. Расчет m_e^* по спектрам СЭПЭ

Плазменные возбуждения являются одной из основных форм неупругого рассеяния в твердых телах, которое возникает вследствие того, что электроны внешних оболочек (электроны проводимости в металле или валентные электроны в полупроводниках и диэлектриках) слабо связаны с атомами, при этом они связаны друг с другом электростатическими силами, а их квантовые состояния делокализованы в виде энергетических зон. При взаимодействии слабосвязанных электронов вещества с падающим электроном высокой энергии (~ 200 keV) происходит смещение атомных электронов под действием кулоновского отталкивания. В результате чего вдоль траектории движения электрона образуются области чередующегося суммарного положительного и отрицательного пространственного потенциала при условии, что скорость электрона превышает скорость v_F на поверхности Ферми. Такой отклик атомных электронов носит осцилляционный характер с частотой плазменных колебаний [14]:

$$\omega_p = \left[\frac{ne^2}{\epsilon_0 \epsilon_\infty m_e^*} \right]^{1/2}, \quad (2)$$

где n — концентрация электронов, участвующих в плазменных колебаниях, ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума, ϵ_∞ — высокочастотная диэлектрическая проницаемость.

Эффективная масса электрона может быть выражена через энергию плазменных колебаний ($E_p = \hbar \omega_p = \frac{\hbar}{2\pi} \omega_p$) следующим образом [8]:

$$m_e^* = \frac{n \cdot e^2 \cdot \hbar^2}{E_p^2 \cdot \epsilon_0 \cdot \epsilon_\infty}. \quad (3)$$

Для расчета m_e^* носителей заряда в рамках данной методики необходимо учесть ряд важных моментов. Для анализа экспериментального спектра (рис. 1, а) необходимо учесть эффекты многократных потерь энергии. Метод фурье-логарифмирования устраняет эффекты множественного рассеяния и описывает экспериментальный спектр в терминах суммы отдельных составляющих рассеяния, т.е. суммы нулевых потерь энергии (упругий вклад I_0), однократного рассеяния, двукратного и т.д.:

$$I(E) = I_0(E) + I_1(E) + I_2(E) + \dots,$$

где каждое слагаемое сопоставляется с функцией отклика прибора. Функция фурье-преобразования всего спектра $F(I)$ задается

$$F(I) = F(I_0) \exp\left(\frac{F(I_1)}{I_0}\right), \quad (4)$$

где $F(I_0)$ — фурье-преобразование от упругого вклада $I_0(E)$, $F(I_1)$ — фурье-преобразование однократного рассеяния, I_0 — интенсивность пика нулевых потерь. С этой целью производится процедура деконволюции спектра по методу фурье-log и извлечение компоненты однократного рассеяния путем логарифмирования выражения (4). Спектр однократного рассеяния в области плазменных потерь, полученный из экспериментальной кривой I (рис. 1, а) представлен на рис. 1, б (красная кривая).

Распределение однократных плазменных потерь $S(E)$ напрямую зависит от диэлектрических свойств образца и связано с мнимой частью обратной величины комплексной диэлектрической проницаемости соотношением:

$$S(E) = K \left[\operatorname{Im} \frac{-1}{\epsilon(E)} \right] \ln \left[1 + \frac{\beta^2}{\theta_E^2} \right], \quad (5)$$

где β — эффективный угол сбора спектрометра, θ_E — характеристический угол рассеяния; K — константа пропорциональности, зависящая от толщины образца, интенсивности пика нулевых потерь и энергии падающего пучка.

Константа K выражается следующим образом:

$$K = \frac{I_0}{\pi a_0 m_0 v^2}, \quad (6)$$

где I_0 — интенсивность пика нулевых потерь, t — толщина образца, a_0 — радиус Бора, m_0 — масса покоя электрона, v — скорость падающего электрона. Толщина образца определяется экспериментально:

$$t = \lambda \cdot \ln \frac{I_t}{I_0}, \quad (7)$$

где λ — средняя длина свободного пробега неупругого рассеяния электрона в nm, I_t — интенсивность общего числа электронов, претерпевших упругое и неупругое взаимодействие в области малых потерь энергии (до 50 eV), I_0 — интенсивность упруго рассеянных электронов.

Средняя длина свободного пробега неупругого рассеяния вычисляется следующим образом:

$$\lambda = \frac{106 \cdot F \cdot E_0}{E_m \ln((2 \cdot \beta \cdot E_0 / E_m))}, \quad (8)$$

где F — релятивистский поправочный коэффициент равный $F = \frac{1 + \frac{E_0}{100}}{(1 + (\frac{E_0}{511}))^2}$, E_0 — энергия падающего пучка в keV, β — угол сбора спектрометра в mrad, E_m — среднее значение потерь энергии в eV, зависящее от атомного номера Z исследуемого материала и представленное в виде $E_m = E_1 Z^m$, где E_1 и m — константы, определенные экспериментально и равные $E_1 = 7.6$ eV и $m = 0.36$. Погрешность такого измерения абсолютной толщины составляет $\pm 20\%$ [15]. Поскольку коэффициент K в выражении (6) прямо пропорционален толщине,

относительная погрешность его определения также составляет 20 %.

Угол сбора спектрометра β является одним из важных параметров при регистрации спектров энергетических потерь электронов. Угол сбора β определяется из технических характеристик ПЭМ, таких как модель микроскопа, эффективным расстоянием от образца до плоскости входной апертуры спектрометра, а также ее диаметром. В настоящей работе с учетом регистрации пика нулевых потерь I_0 , который имеет достаточно высокую интенсивность сигнала, выбиралась минимальная апертура спектрометра (0.6 mm) для избежания повреждения люминофора ПЗС — матрицы спектрометра при оптимальной длине камеры ($L = 77$ mm). Угол сбора спектрометра GIF-2001 для ПЭМ Titan 80–300 при съемке спектров составлял $\beta = 2.3$ mrad.

Метод анализа Крамерса–Кронига позволяет рассчитать действительную часть функции обратной диэлектрической проницаемости $\text{Re}\left[\frac{1}{\varepsilon(E)}\right]$ [16].

Функция комплексной диэлектрической проницаемости

$$\varepsilon(E) = \varepsilon_1(E) + i\varepsilon_2(E) \quad (9)$$

позволяет определить оптические свойства исследуемого образца (показатель преломления, коэффициент отражения, оптическое поглощение) и определяется соотношением, указанным в [16].

Условием возбуждения плазмонов в случае металлов (когда в материале присутствуют свободные электроны) являются условия, что

$$\begin{cases} \varepsilon_1(E_p) \sim 0 \\ \varepsilon_2 < 1 \end{cases} \quad (10)$$

При энергии E_p в спектре однократного рассеивания наблюдается пик плазмонных потерь.

При экспериментальном исследовании полупроводников и диэлектриков валентные электроны имеют энергию связи E_b и пик плазмонных потерь сдвинут в область больших энергий (если сравнить металл и его оксид), пик плазмонных потерь наблюдается при условии

$$\varepsilon_1 \approx \varepsilon_2, \quad (11)$$

и функция $\varepsilon_1(E)$ не принимает значение ноль или меньше нуля. Согласно графику на рис. 2, пику плазмонных колебаний соответствует энергия 21.6 eV.

Концентрация свободных электронов n , связанная с плазмонными колебаниями, определяется по зависимости эффективного числа электронов на единицу объема n_{eff} от энергии E (рис. 3) и вычисляется из мнимой части $\varepsilon_2(E)$ диэлектрической функции [8]. Плотность эффективных носителей заряда определяется при энергии пика плазмонных потерь, в данном случае для образца термического оксида кремния SiO_2 стрелкой показано значение n_{eff} , соответствующее энергии $E_p = 21.6$ eV.

Высокочастотная диэлектрическая проницаемость ε_∞ зависит от материала исследуемого образца и может

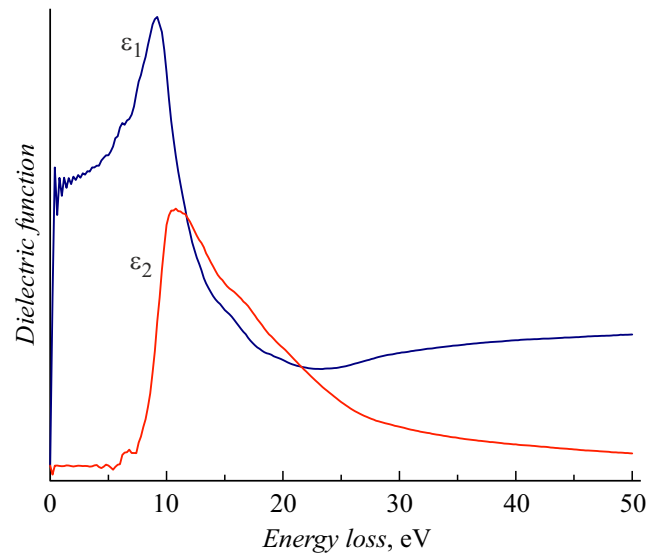


Рис. 2. Действительная часть $\varepsilon_1(E)$ (синяя линия) и мнимая часть $\varepsilon_2(E)$ (красная линия) полученной диэлектрической функции. При энергиях $E_{p1} = 11.6$ eV и $E_{p2} = 21.6$ eV кривая $\varepsilon_1(E)$ пересекает кривую $\varepsilon_2(E)$. На рис. 1, b при энергии E_{p2} наблюдается несимметричный широкий пик плазмонных потерь с плечом в области значений энергии E_{p1} .

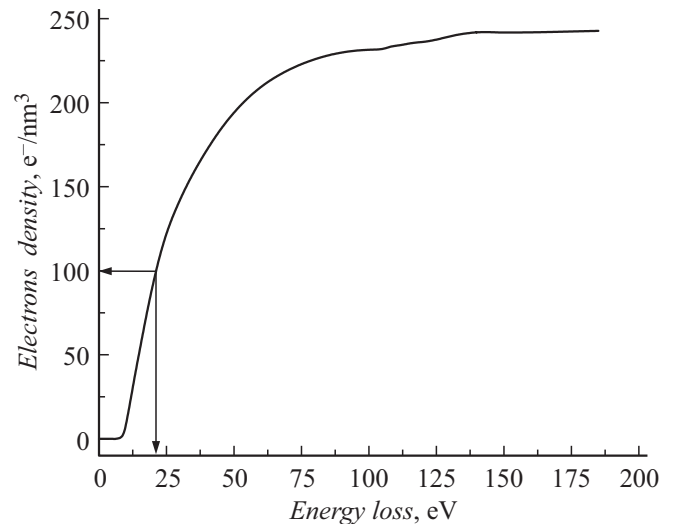


Рис. 3. Зависимость плотности электронов от энергии для образца. Крутой градиент при низких потерях энергии обусловлен валентными электронами, градиент меняется, когда задействованы все валентные электроны.

быть определена из зависимости эффективной диэлектрической проницаемости $\varepsilon_{0,\text{eff}}(E)$ от значений потерь энергии, которая в свою очередь является функцией $\varepsilon_2(E)$:

$$\varepsilon_{0,\text{eff}}(E) = 1 + \frac{2}{\pi} \int_0^{E_0} \frac{\varepsilon_2(E')}{E'} dE'. \quad (12)$$

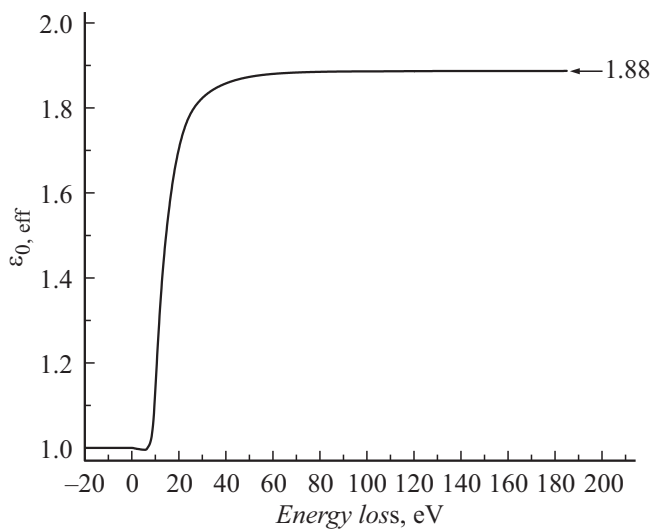


Рис. 4. Зависимость диэлектрической проницаемости от энергии для термического SiO_2 . Как видно, кривая начинается при энергии запрещенной зоны 8 эВ и выравнивается после 75 эВ, что дает высокочастотную диэлектрическую проницаемость, равную 1.88.

В качестве примера на рис. 4 приведена зависимость $\epsilon_{0,eff}(E)$ для образца термического SiO_2 . Во-первых, следует отметить, что начало зависимости приходится на значение энергии соответствующей энергии запрещенной зоны для SiO_2 . Во-вторых, с ростом потерь энергии значение эффективной диэлектрической проницаемости увеличивается и при энергиях, когда учтены все переходы в валентной зоне, $\epsilon_{0,eff}(E)$ выходит на насыщение. Постоянная величина $\epsilon_{0,eff}(E)$ при больших энергиях и есть высокочастотная диэлектрическая проницаемость ϵ_∞ , позволяющая определить m_e^* согласно выражению (3).

На основе полученных нами экспериментальных данных методом СЭПЭ для термического SiO_2 оценка эффективной массы электрона, согласно выражению (3), составила: $m_e^*/m_0 = (0.16 \pm 0.03)$. Следует отметить, что для оксида кремния (SiO_2) не существует единственного значения эффективной массы. Этот параметр сильно зависит от физических условий: типа носителя заряда, метода определения и, что особенно важно, толщины пленки. Так, согласно литературным данным, были измерены значения порядка $\sim 0.42m_0$ [17,18], которые изменялись на $0.3m_0$ в зависимости от внешних воздействий.

В настоящей работе мы демонстрируем применение данной методики с помощью спектроскопии энергетических потерь электронов, полученной в ПРЭМ, и возможность измерения эффективной массы носителей заряда m_e^* локально с нанометровым разрешением из интересующей нас области.

2. Результаты и обсуждение

Образцы поперечных срезов исследовались на просвечивающем электронном микроскопе в режиме параллельного пучка для получения изображений с высоким разрешением (ВРПЭМ), а для получения данных по глубине пленки — в просвечивающем растровом режиме (ПРЭМ) — с помощью сфокусированного электронного зонда. На рис. 5, а представлено ПЭМ изображение с атомным разрешением поперечного среза образца монокристаллического кремния, покрытого слоем естественного оксида, на который сверху методом катодного распыления при комнатной температуре подложки нанесен тонкий диэлектрический слой оксида алюминия, применяемого в качестве межслоевого диэлектрика в создаваемых логических криогенных устройствах на основе сверхпроводящих нанопроводов из NbN [10]. На рис. 5, б показаны профили атомных концентраций химических элементов, полученные методом относительных атомных концентраций путем анализа интенсивностей потерь энергии электронов в области характеристических потерь: для кислорода — K-линия (532 эВ); для алюминия — K-линия (1560 эВ); для кремния — k-линия (1839 эВ).

Как видно на рис. 5, естественный оксид кремния, как и напыленный слой оксида алюминия являются аморфными, о чем свидетельствует отсутствие порядка в расположении атомов в этих слоях. Однако наблюдается разница контраста на изображении двух слоев, так верхний слой выглядит более темным, что является следствием его большей плотности, поскольку при вырезке поперечного среза на установке ФИП формируется плоскопараллельная ламель, имеющая одинаковую толщину.

Аналитическим методом определения относительных атомных концентраций элементов с применением спектроскопии потерь энергии электронов в области характеристических потерь была выполнена идентификация состава двух слоев (рис. 5, б). Было показано, что верхние 2 нм на рис. 5 соответствуют предельному оксиду алюминия Al_2O_3 , далее атомный состав аморфного слоя, вплоть до подложки из монокристаллического кремния, отвечает оксиду кремния SiO_2 .

Описанным выше методом обработки спектров энергетических потерь электронов в области пика нулевых потерь и плазменных потерь были определены эффективные массы электронов в сечении образца в направлении от поверхности в сторону подложки вдоль направления нормали.

На рис. 6 показаны соответствующие профили изменения эффективной массы электронов. На рис. 6 видно, что оксид алюминия Al_2O_3 характеризуется большим значением эффективной массы электронов порядка $0.3m_0$, что согласуется с приведенными значениями в работах [19,20] по сравнению с оксидом кремния SiO_2 , который в настоящей работе является естественным

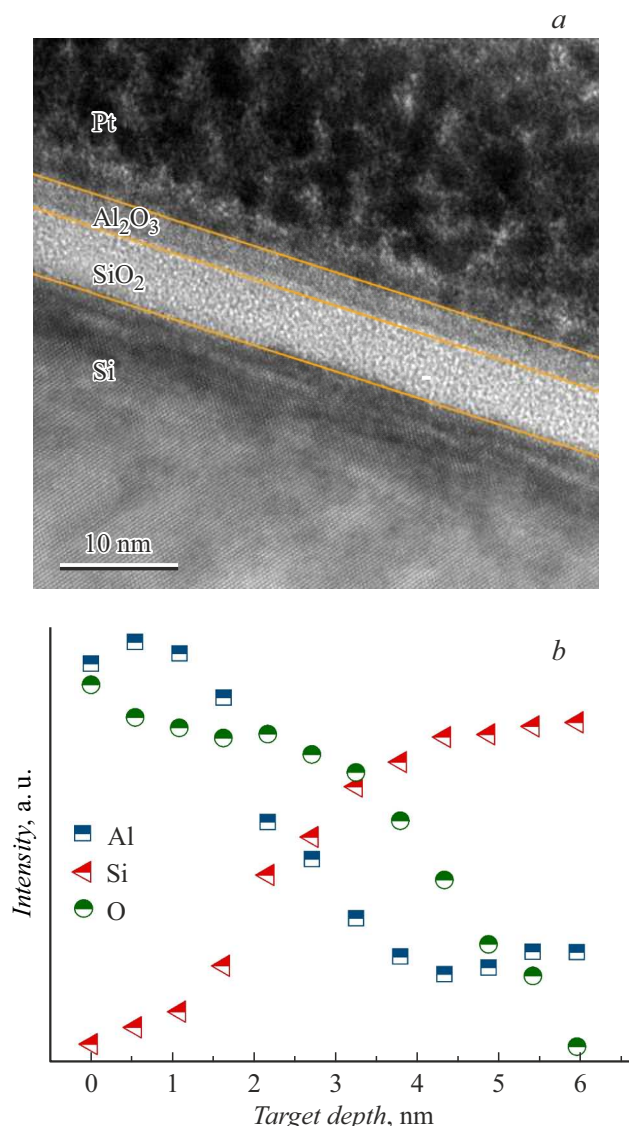


Рис. 5. *a* — ПЭМ-изображение высокого разрешения поперечного среза пленки Al_2O_3 ; *b* — профиль распределения интенсивности характеристических потерь энергии электронов для элементов Al, Si, O по глубине пленки.

окислом на поверхности подложки Si. Оксид алюминия Al_2O_3 соответственно проявляет более высокие диэлектрические свойства, что позволяет использовать меньшие толщины межслоевого диэлектрика при одинаковом уровне напряжений между различными слоями в многослойных структурах.

Эффективная масса электрона в твердом теле не является фундаментальной константой, как масса покоя свободного электрона, и зависит в общем случае от двух основных факторов: от кристаллической структуры материала и внешних условий, которые изменяют эту структуру или состояние электрона. Поскольку эффективная масса электрона обратно пропорциональна кривизне энергетической зоны, то значительно изогнутая зона означает малую эффективную массу, и электроны

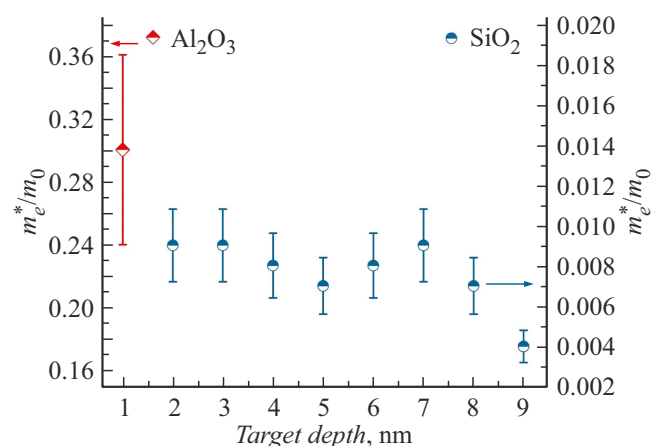


Рис. 6. Значение эффективной массы m_e^* в единицах m_0 , измеренная методом СЭПЭ по глубине поперечного среза для слоев $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$.

легко ускоряются, что например, характерно для графена [21]. Плоская зона означает большую эффективную массу и „тяжелые“, малоподвижные электроны.

Также важную роль играет анизотропия кристаллической решетки. В кристаллах с более низкой симметрией наблюдается различие эффективной массы вдоль разных кристаллографических направлений, в отличие от кубических кристаллов или аморфных материалов. Например, электроны в кремнии могут иметь продольную массу ($\sim 0.98m_0$) и поперечную массу ($\sim 0.19m_0$) [22].

Когда материал ограничен в очень малом объеме (например, в квантовой яме), разрешенные энергетические состояния для электронов становятся дискретными. Это изменяет плотность состояний и эффективную массу, что также необходимо учитывать при верификации данных.

В дополнение к проведенному выше экспериментальному сравнению эффективной массы электронов в оксиде алюминия и оксиде кремния далее проведем сравнительную оценку их теплофизических характеристик для их использования в качестве разделительного диэлектрика в криогенных логических вычислительных устройствах, разрабатываемых в НИЦ „Курчатовский институт“, с точки зрения их способности осуществлять перенос тепла от нагревателя (резистивного элемента затвора) к нагреваемому участку сверхпроводящего нанопровода, находящегося в соседнем слое через слой диэлектрика.

Поскольку ключевым этапом нагрева сверхпроводящего участка канала от затвора в разрабатываемых устройствах является передача теплоты через слой изолирующего межслоевого диэлектрика, рассмотрим этот процесс подробнее.

Как хорошо известно, распространение тепла в твердых телах в приближении точечного источника описы-

вается дифференциальным уравнением второго порядка:

$$\frac{\partial T}{\partial t} - \alpha \nabla^2 T = f(r, t), \quad (13)$$

где T — температура, $f(r, t)$ — функция источника тепла, α — коэффициент температуропроводности, $[m^2/s]$. В то же время совершенно аналогичным образом выглядит дифференциальное уравнение диффузии, только в нем вместо коэффициента температуропроводности выступает коэффициент диффузии D , $[m^2/s]$. Тот факт, что распространение тепла и диффузия описываются аналогичными уравнениями, позволяет перенести некоторые результаты диффузионных процессов на процессы распространения тепла.

Например, хорошо известно понятие диффузионной длины:

$$L = \sqrt{D\tau}, \quad (14)$$

которое характеризует среднее расстояние, на которое распространяется диффундирующая примесь за время τ .

Аналогом диффузионной длины в случае распространения тепла выступает расстояние от источника тепла, на котором тело нагревается до определенной температуры за время t :

$$X = \sqrt{\alpha t}. \quad (15)$$

Для нас из (15) важен следующий вывод: для нагрева тела некоторым постоянным точечным источником тепла до определенной температуры на расстоянии x от источника, требуется время τ , которое пропорционально квадрату расстояния до источника тепла:

$$\tau \sim \frac{x^2}{\alpha}, \quad (16)$$

где коэффициентом пропорциональности выступает обратная температуропроводность и чем больше α , тем меньше времени необходимо, чтобы достичь определенной температуры на заданном расстоянии от источника тепла.

Коэффициент температуропроводности α связан с коэффициентом теплопроводности λ соотношением

$$\alpha = \frac{\lambda}{c_p \rho}, \quad (17)$$

где c_p — теплоемкость при постоянном давлении; ρ — плотность вещества.

В таблице приведены значения теплопроводности [23] для оксидов алюминия и кремния при криогенных температурах, максимально близких к используемой рабочей температуре (~ 4 К) для криогенных элементов, рассматриваемых в работе; значения теплоемкости при постоянном давлении [23] при температуре 20 К — минимально доступной по литературным данным; рассчитанные по формуле (17) величины температуропроводности при криогенных температурах.

Анализ данных таблицы показывает, что оксид алюминия характеризуется существенно меньшей теплоемкостью, чем оксид кремния. Как показывает анализ

Теплофизические свойства межслоевых диэлектриков при криогенных температурах

Межслоевой диэлектрик	Теплопроводность λ , W/(m·K)	Теплоемкость c_p , J/(kg·K)	Температуропроводность α , m ² /s
Al ₂ O ₃	240	0.78	0.0773
SiO ₂	470	16.6	0.0129

литературных данных [23], эта особенность начинает проявляться при температурах ниже 80 К. Как следует из таблицы, низкое значение теплоемкости оксида алюминия определяет большую величину его температуропроводности.

Таким образом, при криогенных температурах оксид алюминия Al₂O₃ является более хорошим проводником тепла, чем оксид кремния SiO₂. Это обстоятельство определяет перспективность его использования в криогенных вычислительных устройствах, поскольку меньшие времена распространения тепла через оксид алюминия определяют потенциально большие достижимые частоты работы устройств.

Анализ спектров потерь энергии электронов в области плазменных потерь также был применен для демонстрации увеличения эффективной массы электронов после проведения ионного облучения тонких пленок NbN на участках, где в сверхпроводящих нанопроводах создавались криогенные сопротивления. На рис. 7, а (левая ось) показан профиль изменения эффективной массы электронов вглубь образца от его поверхности после ионного облучения. Дополнительно на графике приведено расчетное распределение плотности вакансий в подсистеме атомов N (рис. 7, а, правая ось). Расчет проводился в программном пакете SRIM [24]. Из расчетной кривой видно, что максимальные повреждения происходят на глубине порядка 0.5 нм и заканчиваются на глубине 3 нм, и с этим связана резкая граница по значению эффективной массы электрона по глубине облученной пленки NbN. Наблюдаемые осцилляции уровня повреждения по глубине материала (рис. 7, б) обусловлены величинами средних пробега ионов кислорода между последовательными актами выбивания атомов азота из узлов кристаллической решетки NbN.

Как видно на рис. 7, а, эффективная масса электронов в верхней облученной части по толщине пленки возросла примерно в два раза по сравнению со значением, измеренным для нижней немодифицированной области пленки NbN. Верхняя облученная область пленки соответствует аморфной области 1 на рис. 7, б, нижняя часть пленки соотносится с поликристаллической областью 2 на рис. 7, б. Приведенные данные показывают, что изменения под облучением происходят не на всю глубину пленки и нижняя поликристаллическая часть находит-

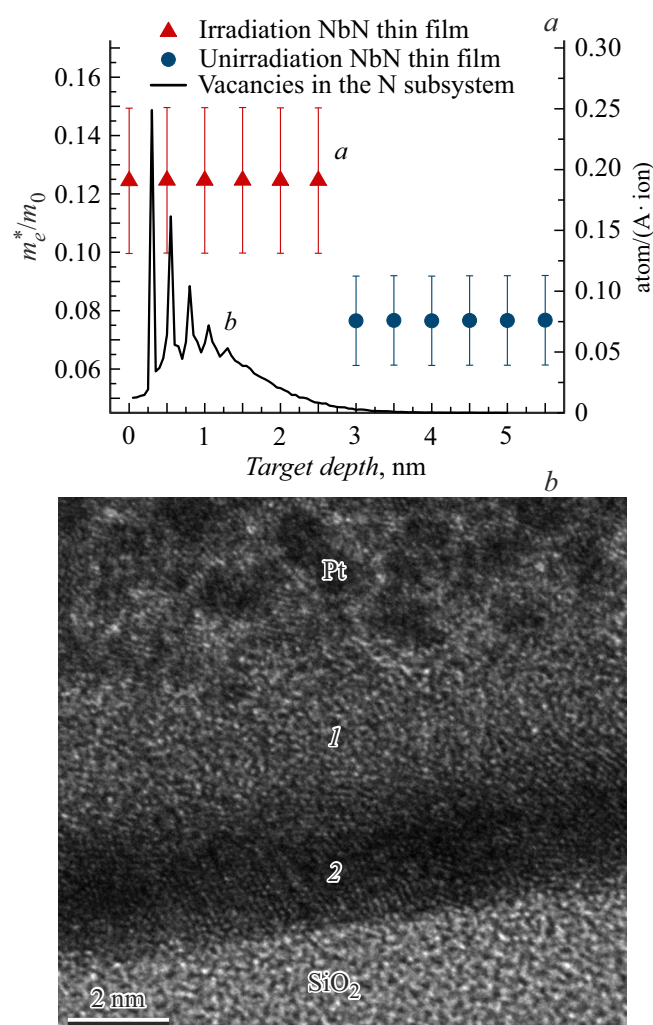


Рис. 7. *a* — значение эффективной массы m_e^* в единицах m_0 , измеренная методом СЭПЭ по глубине поперечного среза для сверхпроводящей пленки NbN, облученной ионами O^+ до дозы $0.4 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$, и значение плотности распределения вакансий N при облучении пленки NbN ионами O^+ с энергией 0.2 keV (расчетная кривая в программном пакете SRIM) [24]; *b* — ПЭМ-изображение высокого разрешения поперечного среза пленки NbN, облученной ионами O^+ с энергией 0.2 keV.

ся в исходном состоянии и соответствует исходной пленке NbN. Такая разница в значениях эффективных масс привела, во-первых, к потере сверхпроводимости в верхней части пленки за счет изменения атомного состава материала (замене атомов азота на атомы кислорода), а, во-вторых, к уменьшению толщины оставшейся пленки NbN меньше характерного значения длины когерентности для куперовских пар в NbN ($\sim 4 \text{ nm}$), что обуславливает потерю в ней сверхпроводимости и металлический характер электрической проводимости в области проведения облучения. Это один из способов формирования криогенных сопротивлений под действием ионного облучения на выбранных участках сверхпроводящих нанопроводов.

Заклучение

В работе продемонстрирована простая локальная методика определения эффективной массы электронов методами анализа спектров энергетических потерь электронов в области плазменных потерь (в ПРЭМ) на примере изучения диэлектрических свойств напыленного оксида алюминия и естественного оксида кремния, проведен их сравнительный анализ.

Также продемонстрировано увеличение эффективной массы электронов в зоне проведения ионного облучения, что сопровождается одним из способов формирования под действием ионного облучения криогенных сопротивлений в составе криогенных логических устройств.

Финансирование работы

Работа проведена в рамках выполнения государственного задания НИЦ „Курчатовский институт“.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Ю.Б. Васильев, F. Gouider, G. Nachtwei, P.D. Buckle. ФТП, **44** (11), 1559 (2010). [Y.B. Vasilyev, F. Gouider, G. Nachtwei, P.D. Buckle. Semiconductors, **44**, 1511 (2010). DOI: 10.1134/S1063782610110266]
- [2] Б. Лэкс. УФН, **70** (1), 111 (1960).
- [3] В.А. Кульбачинский, Л.Н. Овешников, Р.А. Луний, Н.А. Юзева, Г.Б. Галиев, Е.А. Климов, П.П. Мальцев. ФТП, **49** (2), 204 (2025). [V.A. Kulbachinskii, L.N. Oveshnikov, R.A. Lunin, N.A. Yuzeeva, G.B. Galiev, E.A. Klimov, P.P. Maltsev. Semiconductors, **49**, 199 (2015). DOI: 10.1134/S1063782615020165]
- [4] П.А. Генцарь, А.И. Власенко. ФТП, **40** (9), 1094 (2006). [P.A. Gentsar, A.I. Vlasenko. Semiconductors, **40**, 1066 (2006). DOI: 10.1134/S1063782606090144]
- [5] К.Е. Приходько, М.М. Дементьева. ЖТФ, **93** (7), 1054 (2023). DOI: 10.21883/jtf.2023.07.55769.67-23
- [6] Z.H. Zhang, Ming He, Quan Li. Solid State Commun., **149** (41–42), 1856 (2009). DOI: 10.1016/j.ssc.2009.06.031
- [7] C.G.H. Walker, J.A.D. Matthew, C.A. Anderson, N.M.D. Brown. Surf. Sci., **412/413**, 405 (1998). DOI: 10.1016/S0039-6028(98)00459-2
- [8] M.H. Gass, A.J. Papworth, R. Beanland, T.J. Bullough, P.R. Chalker. Phys. Rev. B, **73** (3), 35312 (2006). DOI: 10.1103/PhysRevB.73.035312
- [9] Б.А. Гурович, К.Е. Приходько, А.Г. Домантовский, В.Л. Столяров, Д.А. Комаров, Е.А. Кулешова, Л.В. Кутузов. Способ перевода сверхпроводника в элементах логики наноразмерных электронных устройств из сверхпроводящего состояния в нормальное (Патент 2674063 USA. РФ, 2018)
- [10] Б.А. Гурович, К.Е. Приходько, Л.В. Кутузов, Б.В. Гончаров, Д.А. Комаров, Е.М. Малиева. ФТТ, **64** (10), 1390 (2022). DOI: 10.21883/FTT.2022.10.53079.47NN

- [11] R. Baghdadi, J.P. Allmaras, B.A. Butters, A.E. Dane, S. Iqbal, A.N. McCaughan, E.A. Toomey, Q.-Y. Zhao, A.G. Kozorezov, K.K. Berggren. *Phys. Rev. Appl.*, **14**, 054011 (2020). DOI: 10.1103/PhysRevApplied.14.054011
- [12] Б.А. Гурович, Б.В. Гончаров, К.Е. Приходько, В.Л. Столяров, Л.В. Кутузов, Д.А. Гончарова, Е.М. Малиева, М.М. Дементьева, Г.Ю. Голубев, А.С. Фролов. *ЖТФ*, **95** (10), 1924 (2025). DOI: 10.61011/JTF.2025.10.61346.111-25
- [13] K.E. Prikhodko, B.A. Gurovich, M.M. Dement'eva. *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, **130** (1), 012046 (2016). DOI: 10.1088/1757-899X/130/1/012046
- [14] R.F. Egerton. *Reports Prog. Phys.*, **72** (1), 016502 (2009). DOI: 10.1088/0034-4885/72/1/016502
- [15] T. Malis, S. Cheng, R. Egerton. *J. Electron Microsc. Tech.*, **8** (2), 193 (1988). DOI: 10.1002/jemt.1060080206
- [16] R.F. Egerton. *Electron Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope* (Springer, NY., 2011)
- [17] R.K. Chanana. *TECS*, **11** (4), 172 (2023). DOI: 10.14738/tecs.114.15367
- [18] R. Ludeke, A. Schenk, A. Schenk. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **17** (4), 1823 (1999). DOI: 10.1116/1.590833
- [19] Y. Yeo, T. King, C. Hu. *IEEE Trans. Electron Dev.*, **50** (4), 1027 (2003). DOI: 10.1109/TED.2003.812504
- [20] T.V. Perevalov, V.A. Gritsenko, V.V. Kaichev. *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, **52**, 30501 (2010). DOI: 10.1051/epjap/2010159
- [21] J. Zheng, X. Zhao, Y. Zhao, X. Gao. *Scientific Reports*, **3**, 01271 (2013). DOI: 10.1038/srep01271
- [22] L.E. Ramos, L.K. Teles, L.M.R. Scolfaro, J.L.P. Castineira, A.L. Rosa, J.R. Leite. *Phys. Rev. B*, **63**, 165210 (2001). DOI: 10.1103/PhysRevB.63.165210
- [23] И.С. Григорьев, Е.З. Мейлихов. *Физические величины* (Энергоатомиздат, М., 1991)
- [24] J.F. Ziegler. Электронный ресурс. Режим доступа: <http://www.srim.org/>