

УДК 548.47

КВАНТОВЫЙ РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ БЛОХОВСКИХ ВОЛНОВЫХ ФУНКЦИЙ ЭЛЕКТРОНОВ СВЕРХВЫСОКОЙ ЭНЕРГИИ В ТОНКОЙ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ ПЛЕНКЕ

© 2024 г. С. М. Шкорняков*

*Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН, Москва, 119333 Россия
e-mail: shkorniyakov@mail.ru

Поступила в редакцию 10.05.2023 г.

После доработки 30.07.2023 г.

Принята к публикации 30.07.2023 г.

Проведен расчет коэффициента отражения электронов сверхвысокой энергии (~1 МэВ) при их нормальном падении на тонкую монокристаллическую пленку. Показано, что и при столь высоких энергиях частиц заметно проявляется квантовый размерный эффект у сформировавшихся в пленке блоховских волн. Установлено, что при определенной энергии электронов возникают узкие брэгговские пики. Приведена формула, определяющая их положение и интенсивность на кривые отражения. Проведено сравнение коэффициентов отражения при средних, высоких и сверхвысоких энергиях частиц.

Ключевые слова: квантовый размерный эффект, дифракция электронов, тонкие монокристаллические пленки, поверхность, молекулярно-лучевая эпитаксия, блоховские волны.

DOI: 10.31857/S1028096024020166, **EDN:** ARXBWZ

ВВЕДЕНИЕ

Квантовый размерный эффект электронов в тонких пленках полупроводников и металлов, а также в квантовых точках — хорошо изученное явление, получившее в последнее время обширное практическое применение. Суть эффекта обусловлена волновыми свойствами электронов, взаимодействующих с различными твердотельными объектами. Когда характерные размеры объектов сравнимы с длиной волны частиц, тогда можно наблюдать различные проявления квантового размерного эффекта.

В частности, когда толщина твердотельной пленки порядка единиц нанометров, а энергия электронов порядка единиц электронвольт, при нормальном падении частиц на пленку возникает осцилляционная зависимость от энергии их коэффициентов прохождения T и отражения R . При большей энергии электронов, т.е. при меньшей длине волны, которая становится меньше межатомного расстояния, из-за шероховатости поверхности пленки эффект не может наблюдаться экспериментально.

Ситуация меняется, если использовать монокристаллическую пленку. Впервые четко на это указал, по-видимому, Шишидо [1]. Он теоретически рассматривал проявление квантового размерного эффекта при резонансном туннелировании электронов через два тонких диэлектрических барьера с тонкой монокристаллической пленкой между ними. При туннелировании энергия частиц порядка единиц электронвольт. А так как в [1] была рассмотрена монокристаллическая пленка, то при определенной энергии электронов в ней формируются блоховские волны с длинами от межатомного расстояния и вплоть до толщины пленки. Это существенно упрощает задачу экспериментатора. Проблема теоретического исследования эффекта с размерно-квантованной монокристаллической пленкой была рассмотрена в [2–5]. В [6, 7], например, подробно рассматривали процесс рассеяния в поле одномерного ограниченного периодического потенциала. В дальнейшем вышли монографии и учебники, посвященные описанию размерных эффектов в твердых телах (например, [8–10]), и возникло целое направление в науке — нанотехнология. Ее последние достижения — создание гибких,

свободных монокристаллических поверхностей большой площади толщиной в один или несколько атомов на основе графена или других слоистых материалов [11] и конструирование различных приборов на их базе. Удалось также добиться заметных успехов в получении и использовании различных гетероструктур [12].

Все упомянутые выше явления касаются электронов с энергией порядка единиц электронвольт. В [13] теоретически было показано, что квантовый размерный эффект можно наблюдать при средних энергиях частиц (порядка 10 кэВ), а в [14] – при высоких (порядка 100 кэВ). Дело в том, что при рассеянии электронов как низких, так и высоких энергий в поле периодического одномерного потенциала монокристаллической пленки в ней формируются блоховские волны. В определенных узких диапазонах энергии электроны в кристалле распространяться не могут. Эти диапазоны соответствуют условию брэгговского отражения. В зонной картине, принятой в теории твердого тела, им соответствуют запрещенные зоны. Между ними существуют широкие разрешенные зоны, движение электронов в которых описывается блоховскими волновыми функциями, их длина волны изменяется в каждой разрешенной зоне от межплоскостного расстояния до поперечной толщины пленки. Поэтому создаются благоприятные условия для экспериментального наблюдения эффекта и при высоких энергиях.

В настоящей работе проведен расчет размерных эффектов при сверхвысокой энергии электронов (порядка 1 МэВ). Показано, что и при таких высоких энергиях они имеют место. Конечно, термин “сверхвысокая энергия” правомерен для энергии электронов, рассматриваемых в электронной микроскопии. Применительно к ускорительной технике он таковым не является. Для наблюдения квантового размерного эффекта можно использовать электроны каких угодно высоких энергий. Ограничения определяются механическим разрушением пленки. Нужно только подобрать соответствующую ее толщину. Ниже расчет сделан для толщины 1500 Å.

ВЫБОР МОДЕЛИ РАССЕЯНИЯ И РАСЧЕТНЫЕ ФОРМУЛЫ

В качестве электростатического потенциала в монокристаллической пленке была выбрана одномерная модель из периодической гребенки δ-функций (рис. 1). Гребенка моделирует сечение плоскостей пленки, параллельных ее поверхности. Одномерный потенциал довольно точно отражает суть явления.

Аналитически потенциальная энергия электрона в решетке задается следующим уравнением:

$$V(x) = -V_0 + \frac{\hbar^2}{2m} cU \sum_1^N \delta(x - c(n-1)),$$

$$\text{для } -\frac{c}{2} \leq x \leq cN - \frac{c}{2},$$

$$V(x) = 0, \text{ для } x < -\frac{c}{2}, x > cN - \frac{c}{2}.$$

Здесь c – период одномерной решетки, N – число периодов в ней, т.е. количество плоскостей в пленке, параллельных ее поверхности, $V_0 > 0$ – высота потенциальной ступеньки на границах пленки, $\delta(x)$ – дельта-функция Дирака, $U = 2\pi\gamma/c^2$ – “мощность” потенциала δ-функции, γ – безразмерный параметр модели, \hbar – постоянная Планка, m – масса электрона, x – координата по оси, перпендикулярной поверхности пленки.

Решая стационарное уравнение Шредингера с этим потенциалом, получаем следующие выражения для коэффициентов прохождения T и отражения R [15]:

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

где модуль блоховского волнового вектора μ определяется из уравнения дисперсии

$$\cos \mu c = \cos kc + \frac{cU}{2k} \sin kc,$$

k – модуль волнового вектора электрона в области с потенциальной энергией $-V_0$, $\lambda = \pi\sqrt{0.0268E_1}$,

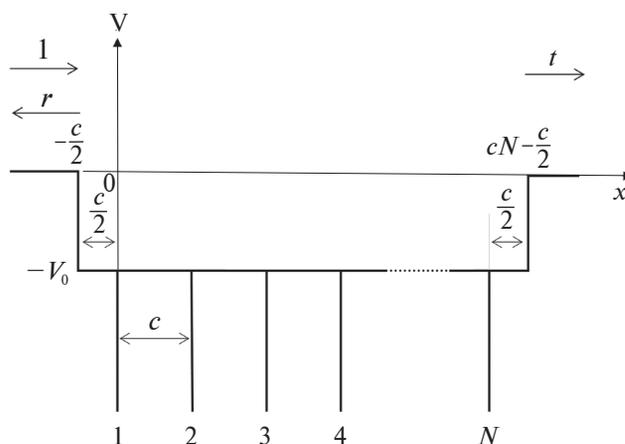


Рис. 1. Схема потенциальной энергии электрона в пленке: V_0 – средняя внутренняя энергия; N – число параллельных поверхности монослоев в пленке; c – период одномерной решетки; t – амплитуда прошедшей волны; r – амплитуда отраженной волны.

$k = \pi\sqrt{0.0268(E_1 + V_0)}$, где $E_1 = (\sin^2(\alpha\pi/180))E$ – нормальная составляющая энергии электронов E падающего пучка [эВ], V_0 – величина потенциального скачка на границах пленки [эВ], α – угол скольжения [град], λ и k – модули волновых векторов [\AA^{-1}]. Коэффициент отражения $R = 1 - T$. Здесь следует отметить, что множитель 0.0268 в выражениях для λ и k , приведенных выше, имеет размерность [$\text{\AA}^{-2}\cdot\text{эВ}^{-1}$]. Подробные рекомендации к вычислительному алгоритму в случае, когда правая часть уравнения дисперсии (3) становится больше единицы, даны в [15].

Так как проводим расчет при сверхвысоких энергиях электронов, можно не учитывать скачок потенциала на границах пленки, т.е. положить $V_0 = 0$. Тогда $k = \lambda$, и, переходя от половинных углов в аргументах tg и ctg к целым из (11), получим:

$$T = \frac{1}{1 + \frac{1}{4}\left(\text{tg}\frac{kc}{2}\text{ctg}\frac{\mu c}{2} - \text{ctg}\frac{kc}{2}\text{tg}\frac{\mu c}{2}\right)^2 \sin^2 \mu c N} = \frac{1}{1 + \frac{1}{4}(\cos \mu c - \cos kc)^2 \sin^2 \mu c N} = \frac{1}{1 + \left(\frac{cU}{2k}\right)^2 \frac{\sin^2 \mu c N}{\sin^2 \mu c}}. \quad (4)$$

Последнее равенство следует из (12). В результате получили формулу (9) из [1], что является косвенной проверкой формулы (11) данной работы.

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 приведен рассчитанный график зависимости коэффициента отражения R от энергии падающих электронов E в диапазоне около 1 МэВ. Значения параметров следующие: $c = 5 \text{\AA}$, $y = -2$, $V_0 = 0$, $N = 300$. Видим, что наблюдаются дифракционные пики разной интенсивности, расстояние между которыми соответствует закону, полученному в [15]:

$$\Delta E_n \approx \frac{2\sqrt{E_n}}{\sqrt{0.0268c^2}}. \quad (5)$$

где $\Delta E_n = E_{n+1} - E_n$, E_n обозначает энергию, соответствующую номеру рефлекса n , c – период одномерной решетки [\AA], 0.0268, как говорилось выше, – размерный числовой множитель [$\text{\AA}^{-2}\cdot\text{эВ}^{-1}$].

Здесь следует отметить, что появление узких резонансных пиков вовсе не связано с квантовым размерным эффектом, а обусловлено известной формулой Вульфа–Брэгга:

$$2d\sin\alpha = n\lambda. \quad (6)$$

Однако при нормальном падении синус угла скольжения, присутствующий в оригинальной формуле Вульфа–Брэгга, равен единице, и параметром в условии резонанса остается длина волны излучения, которая и определяется его энергией. Так как в рассматриваемом случае межплоскостное расстояние $d = c$ и $\lambda = 2\pi/k$, формула Вульфа–Брэгга записывается как

$$kc = \pi n. \quad (7)$$

Из нее в [15] выводится формула (5) для расстояний между пиками.

Выведем также формулу для интенсивности брэгговских пиков. Так как их положение определяется условием (7), подставляя его в формулу (4) и дважды дифференцируя по правилу Лопиталья числитель и знаменатель дроби в знаменателе правой части уравнения (4) при условии (7), получим:

$$T = \frac{1}{1 + \left(\frac{cU}{2k}\right)^2 N^2}, \quad (8)$$

откуда

$$R = 1 - T = \frac{\left(\frac{cU}{2k}\right)^2 N^2}{1 + \left(\frac{cU}{2k}\right)^2 N^2}. \quad (9)$$

Видим, что высота пиков не зависит от их номера n . Кроме того они почти равны между собой и близки к единице. Поэтому их неравенство на рис. 2 вызвано недостаточно малым шагом по оси

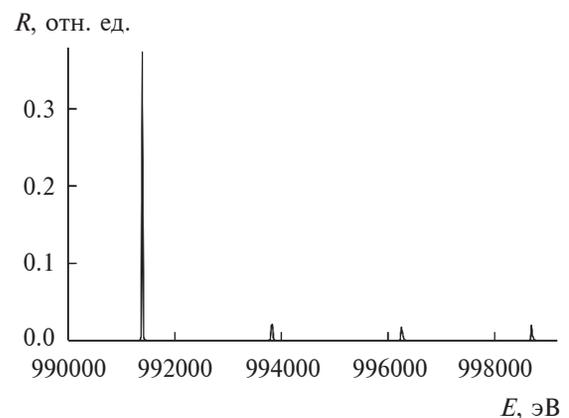


Рис. 2. График зависимости коэффициента отражения R от энергии падающих электронов E в диапазоне около 1 МэВ. Параметры: $c = 5 \text{\AA}$, $y = -2$, $V_0 = 0$, $N = 300$.

у при расчетах на компьютере, т.е. малым разрешением. И в случае полубесконечного кристалла эти пики будут присутствовать. Квантовый же размерный эффект проявляется только в пленках конечной толщины в виде гармонических осцилляций интенсивности отраженного пучка между брэгговскими пиками.

На рис. 3 представлена зависимость коэффициента отражения от энергии падающих электронов в увеличенном по оси ординат масштабе. Можно заметить у оснований пиков осцилляции интенсивности, которые четко выявляются при еще большем увеличении масштаба как по оси x , так и по оси y (рис. 4). Они и характеризуют квантовый размерный эффект в монокристаллической пленке. Количество максимумов интенсивности между брэгговскими пиками равно $N - 2$.

На рис. 5 приведены кривые $R(E)$ для трех диапазонов энергии падающих электронов. Сравнивая графики, полученные ранее для рассеяния электронов средней [14] (рис. 5а) и высокой [15] (рис. 5б) энергий с полученными в настоящей ра-

боте (рис. 5в), видим, что как качественно, так и количественно они близки. Основываясь на этом, можно сделать вывод, что квантовый размерный эффект в монокристаллической пленке, соответствующий данной экспериментальной ситуации, можно наблюдать при любой энергии падающих электронов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведен расчет коэффициента отражения электронов, падающих нормально на тонкую монокристаллическую пленку. Показано, что и при сверхвысоких энергиях частиц (порядка 1 МэВ) проявляется квантовый размерный эффект. Ранее этот факт не был известен. Считалось, что эффект наблюдается только в случае

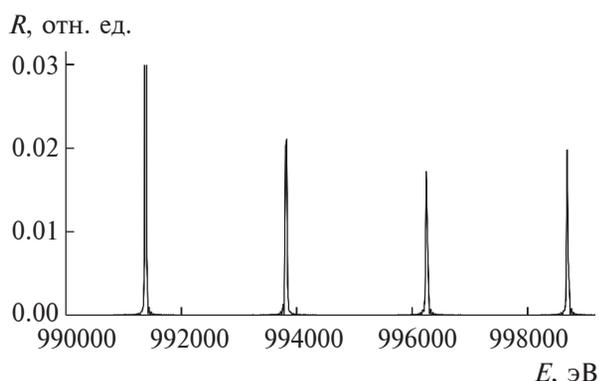


Рис. 3. Зависимость коэффициента отражения R от энергии падающих электронов E в диапазоне около 1 МэВ в увеличенном масштабе по оси ординат.

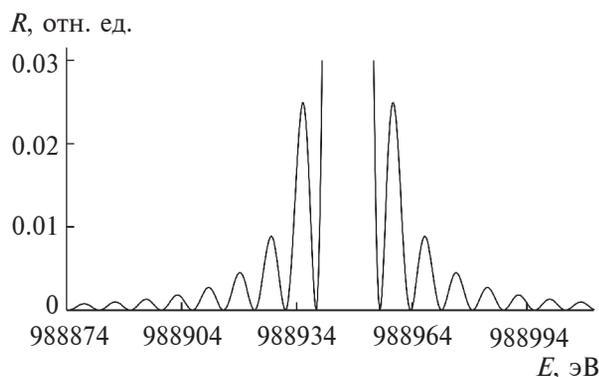


Рис. 4. Зависимость коэффициента отражения R от энергии падающих электронов E в диапазоне около 1 МэВ при еще большем увеличении масштаба как по оси x , так и по оси y .

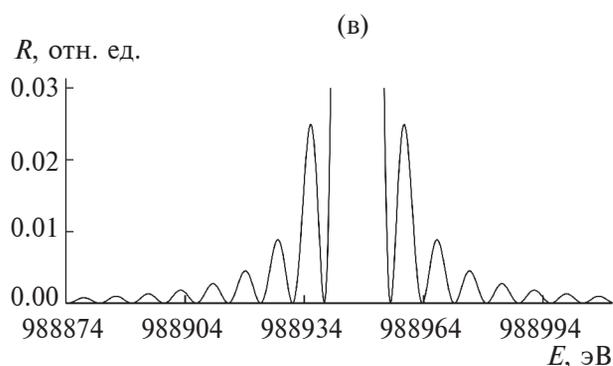
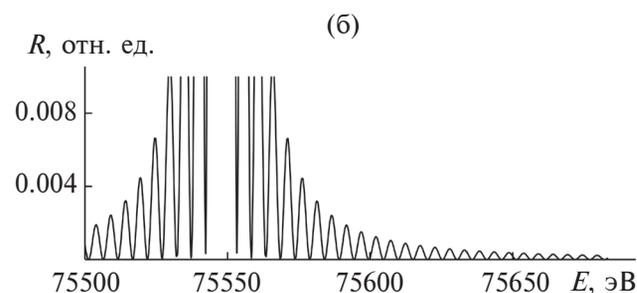
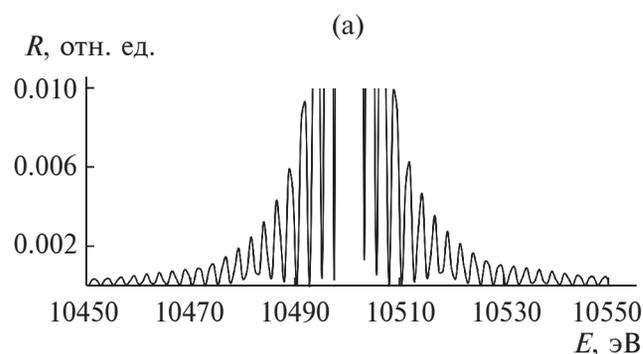


Рис. 5. Кривые $R(E)$ для трех диапазонов энергии падающих электронов: а – средней; б – высокой; в – сверхвысокой.

электронов низкой энергии, и его действительно наблюдали в туннельных экспериментах, где это требование выполняется. В монокристаллической же пленке формируются блоховские волны, длина которых изменяется от периода одномерной решетки и до толщины пленки. Это существенно ослабляет требования к объекту исследования и делает принципиально возможным наблюдение эффекта. Также следует отметить, что ранее при построении теории дифракции электронов средней и высокой энергии от монокристаллических пленок не учитывали отражение от второй границы пленки (считали, что оно мало, и им пренебрегали) [16]. Его учет приводит к возникновению квантового размерного эффекта при рассеянии электронов на пленке.

Два последних фактора, на которые впервые обращено внимание в настоящей работе, ранее не учитывали ни в теоретических моделях эффекта, ни при его экспериментальном исследовании. Показано, что на кривой отражения присутствуют брэгговские пики. Выполнена оценка расстояния между ними и их интенсивности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Shishido F.* // Tech. Rep. ISSP. Ser. A. 1973. № 616. P. 1.
2. *Пшеничнов Е.А.* // ФТТ. 1962. Т. 4. Вып. 5. С. 1113.
3. *Schnupp P.* // Phys. Stat. Sol. 1967. V. 21. P. 567.
4. *Schnupp P.* // Solid State Electron. 1967. V. 10. P. 785.
5. *Lopez-Cruz E., Helman J.S.* // Phys. Rev. B. 1974. V. 6. № 4. P. 1751.
6. *Van Rossum M.C.W., Nieuwenhuizen Th.M.* // Rev. Mod. Phys. 1999. V. 71. № 1. P. 313.
7. *Barra F., Gaspard P.* // J. Phys. A. 1999. V. 32. P. 3357.
8. *Драгунов В.П., Неизвестный И.Г., Гридчин В.Ф.* Основы наноэлектроники. М.: Физматкнига-Логос, 2006. 494 с.
9. *Шука А.А.* Наноэлектроника. М.: Физматкнига, 2007. 463 с.
10. *Мартинес-Дуарт Дж М., Мартин-Палма Р Дж., Агулло-Руеда Ф.* Нанотехнологии для микро - и оптоэлектроники. Сер. Мир материалов и технологий. М.: Техносфера, 2007. 367 с.
11. *Li J., Chen M., Samad A. et al.* // Nat. Mater. 2022. V. 21. P. 740.
12. *Hoang A.T., Hu L., Katiyar A.K., Ahn J.-H.* // Matter. 2022. V. 5. P. 4116.
13. *Шкорняков С.М.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2022. № 2. С. 104. <https://doi.org/10.31857/S1028096022020121> (*Shkornyakov S.M.* // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech. 2022. V. 16. №1. P. 181. <https://doi.org/10.1134/S1027451022010311>)
14. *Шкорняков С.М.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2022. № 8. С. 102. <https://doi.org/10.31857/S1028096022080143> (*Shkornyakov S.M.* // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech. 2022. V.16. № 4. P. 653. <https://doi.org/10.1134/S1027451022040334>)
15. *Шкорняков С.М.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2017. № 6. С. 83. <https://doi.org/10.7868/S020735281706018X> (*Shkornyakov S.M.* // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech. 2017. V. 11. № 3. P. 650. <https://doi.org/10.1134/S1027451017030351>)
16. *Хирш П., Хови А., Николсон Р., Пэшли Д., Уэлан М.* Электронная микроскопия тонких кристаллов. М.: Мир, 1968. 574 с. (*Hirsch P.B., Howie A., Nicholson R.B., Pashley D.W., Whelan M.J.* Electron Microscopy of Thin Crystals. London, Butterworths, 1965.)

Quantum Size Effect of Bloch Wave Functions of Ultra-High Energy Electrons in a Thin Single-Crystal Film

S. M. Shkornyakov*

Shubnikov Institute of Crystallography FSRC "Crystallography and Photonics" RAS, Moscow, 119333 Russia
*e-mail: shkornyakov@mail.ru

The reflection coefficient of ultra-high-energy electrons (~1 MeV) at their normal incidence on a thin single-crystal film is calculated. It is shown that even at such high particle energies, the quantum size effect of the Bloch waves formed in the film is noticeably manifested. Narrow Bragg reflection peaks are found to appear at certain electron energies. A formula is given that determines their position and intensity on the reflection curve. A comparison is made of reflection coefficients at medium, high and ultra-high particle energies.

Keywords: quantum size effect, electron diffraction, thin single-crystal films, surface, molecular beam epitaxy, Bloch waves.