

Д. К. БОУЭН, Б. К. ТАННЕР

ВЫСОКОРАЗРЕШАЮЩАЯ РЕНТГЕНОВСКАЯ ДИФРАКТОМЕТРИЯ И ТОПОГРАФИЯ

1. ВВЕДЕНИЕ ИССЛЕДОВАНИЕ КРИСТАЛЛИЧЕСКОГО СОВЕРШЕНСТВА ДИФРАКЦИОННЫМИ МЕТОДАМИ

В этой главе мы знакомим читателя с высокоразрешающими дифракционными методами исследования материалов, начиная это знакомство с описания взаимодействия совершенного кристалла с плоскостным рентгеновским излучением, а именно с закона Брэгга и кривых качания. Мы сравниваем свойства рентгеновских лучей, электронов и нейтронов применительно к исследованию материалов, а также возможности рентгеновских и других методов анализа поверхности. Мы рассматриваем суть методов высокоразрешающей дифрактометрии и топографии и обсуждаем цели, которым они служат. Кроме того, мы приводим базовые положения теории, необходимые начинающему исследователю.

Начало экспериментальному исследованию материалов при помощи дифракционных методов было положено в 1911 г., когда фон Лауэ, Фридрих и Книппинг [1] получили первые дифрактограммы от кристалла каменной соли. В период между этим событием и 1917 г. теоретический фундамент был заложен Брэггом [2], фон Лауэ [3], Дарвином [4] и Эвальдом [5]. В последующие годы многие ученые внесли свой вклад в неуклонное развитие этого научного направления, среди которых были Ланг, Отье, Такаги, Топэн и Като, чьи работы по развитию экспериментальных и теоретических методов изучения нарушенных кристаллов и кристаллов с дефектами мы выделяем особо, поскольку именно эти методы составляют главный предмет данной книги.

В течение первых 60 или 70 лет своего развития рентгенодифракционное исследование сводилось к использованию двух главнейших методов. Монокристаллическая дифракция была основой рентгеноструктурного анализа, который служил для определения кристаллической и молекулярной структуры неорганических, органических и позже биологических соединений; этот метод и по сей день остается важнейшим инструментом, объясняющим сложные процессы типа действия энзимов и изготовления лекарств. Дифракция от поликристаллов стала незаменимым средством практического анализа материалов, разнообразие которых простирается от продуктов коррозии до наркотиков. Однако два технических достижения в начале 1980-х годов вызвали взрыв в развитии высокоразрешающей дифракции, которая, зародившись еще в 1920-е годы, долго оставалась малозначительным специальным методом. Толчком послужила гигантская интенсивность источников синхротронного излучения, использование которой позволило быстро изучить возможности многих новых методов, основанных на рассеянии рентгеновских лучей. Движущей силой стала потребность промышленности в быстром неразрушающем анализе дефектов в высокосоввершенных материалах электронной техники, которую не могли удовлетворить рентгеновские методы с низким разрешением. Любопытно, что развитие

рентгеновской оптики, которое стало возможным благодаря успехам электронной промышленности в производстве высокосоввершенных кристаллов кремния больших размеров, стало залогом развития лабораторной техники для быстрой диагностики промышленных материалов.

Развитие в области дифракции электронов и электронной микроскопии шло параллельно, но самостоятельным путем. Несмотря на очевидное сходство между теориями, их принято описывать при помощи различных обозначений, и никого не удивляет, что специалисты, имеющие опыт работы в одной из этих областей, слабо представляют себе, что делается в другой. Это обстоятельство вызывает особое сожаление ввиду того, что методы почти всегда взаимно дополняют друг друга и многие исследования только выигрывают от совместного использования электронных и рентгеновских (или нейтронных) методов. В этой книге акцент сделан на рентгеновских методах. Полный охват методов электронной дифракции можно найти во многих превосходных публикациях [6, 7], поэтому мы не стремились к сколько-нибудь детальному их описанию или обсуждению, но мы не упустили возможности провести параллели и подчеркнуть взаимно дополняющий характер методов, использующих электронные, рентгеновские и нейтронные излучения.

1.1. Взаимодействие кристалла с плоской волной

Любое излучение, которое попадает в вещество, претерпевает как рассеяние, так и поглощение. Самый простой подход к рассеянию основан на представлении о плоской волне. Согласно формальному определению, *плоской* называется волна, фаза которой постоянна в любой точке плоскости, перпендикулярной направлению ее распространения; то есть фронт такой волны имеет форму плоскости. Можно считать, что такая волна распространяется от точечного источника, расположенного на бесконечности; это — идеально коллимированная волна. Когда такая волна взаимодействует с трехмерной атомной решеткой, каждый рассеивающий центр (электрон или ядерная частица) становится источником сферических волн с фронтом, расположенным на сфере с центром в точке рассеяния. Если длина волны излучения сравнима с расстоянием между рассеивающими центрами, то результатом сложения амплитуд всех рассеянных волн будет формирование сильных пучков вдоль нескольких немногих направлений и почти полное отсутствие интенсивности вдоль остальных. Это явление и есть дифракция.

Самым простым и полезным описанием дифракции в кристалле остается то, которое было получено Брэггом [2]. Сильная дифрагированная интенсивность имеет место, когда все волны складываются в фазе. Переходя от каждого отдельного электрона ко всей кристаллической плоскости, рассеивающей как одно целое (рис. 1.1), несложно заключить, что сильная дифракция возникает, когда

$$n\lambda = 2d \sin\theta, \quad (1.1)$$

где n — целое число, описывающее порядок дифракционного отражения; λ — длина волны; d — межплоскостное расстояние между отражающими

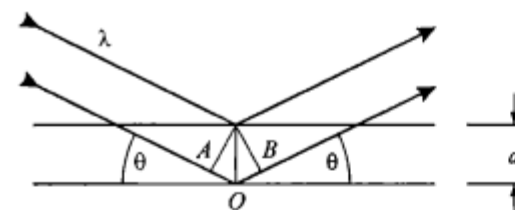


Рис. 1.1. Дифракция плоской волны рядом кристаллических плоскостей.

Сильное отражение получается тогда, когда углы θ падения и отражения равны друг другу и разность хода AOB между двумя лучами равна $n\lambda$, т. е. целому числу длин волн. Отсюда получается закон Брэгга $n\lambda = 2d \sin\theta$.

(дифрагирующими) плоскостями; θ — угол, который составляют падающее и дифрагированное излучения с отражающей плоскостью. Условие равенства углов падения и отражения не следует непосредственно из рис. 1.1, но возникает в результате объединения вкладов рассеяния от многих плоскостей, нормальных к поверхности. Малое количество плоскостей дает очень широкий пик, а большое количество плоскостей — узкий пик, приближающийся к значению, характерному для толстого кристалла. Таким образом, дифракционное отражение для данной плоскости и длины волны имеет место не в бесконечно узкой области углов, определяемой законом Брэгга, а захватывает малую область конечных размеров. Эта область, называемая *шириной кривой качания*, изменяется в широких пределах и определяет чувствительность данного метода к деформации. Примеры кривых качания для совершенных кристаллов показаны на рис. 1.2.

Кроме того, любое излучение в большей или меньшей степени поглощается в материале. Это явление хорошо описывается при помощи известного уравнения поглощения

$$I/I_0 = \exp\{-\mu t\}, \quad (1.2)$$

где I — проходящая и I_0 — падающая интенсивности; μ — линейный коэффициент поглощения; t — толщина образца в направлении рентгеновского пучка.

Интенсивности дифрагированных лучей, или, как их обычно называют, отражения, зависят от рассеивающей способности материала. Электроны рассеиваются сильно, нейтроны — слабо и рентгеновские лучи — средние. В кристалле основной единицей рассеяния является его *элементарная ячейка* и рассеяние под любым углом можно оценить, перемножая следующие величины:

- рассеивающую способность электрона или ядра,
- рассеивающую способность атома,
- рассеивающую способность элементарной ячейки,
- рассеивающую способность полного набора элементарных ячеек — все с учетом направления рассеяния и относительной фазы рассеянных волн.

Факторы рассеяния электрона, ядра или атома либо рассчитаны, либо измерены и сведены в таблицы для рентгеновских лучей [8]. Угловую зависимость интенсивности принято выражать через рассеивающую способность элементарной ячейки для конкретных отражения от кристаллической плоскости hkl , длины волны и, конечно, кристаллической структуры. Этот самый важный параметр называется *структурным фактором* F_{hkl} . Он явля-

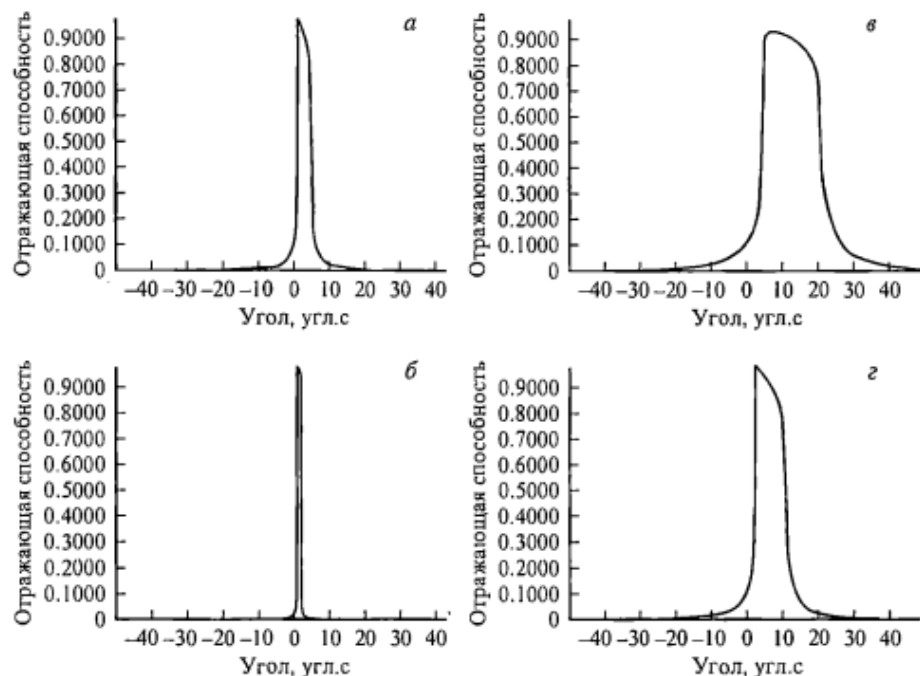


Рис. 1.2. Расчетные плосковолновые рентгеновские кривые качания.

а — Si 004 с Cu $K_{\alpha 1}$ (0.154 нм), FWHM = 3.83°; б — Si 333 с Mo $K_{\alpha 1}$ (0.071 нм), FWHM = 0.73°; в — Ge 111 с Cu $K_{\alpha 1}$ FWHM = 16.59°; г — GaAs 004 с Cu $K_{\alpha 1}$ FWHM = 8.55°.

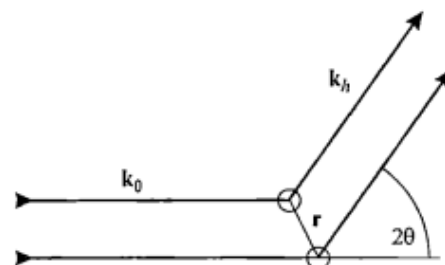
ется основной величиной, входящей во все выражения для дифрагированной интенсивности, глубины проникновения и ширины кривых качания, и его рассчитывают следующим образом. Волны с вектором $\mathbf{k}$, рассеянные от двух точек элементарной ячейки, расстояние между которыми определяется вектором $\mathbf{r}$ (рис. 1.3), будут иметь разность фаз

$$\exp(-2\pi i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) = \exp[-2\pi i (hu + kv + lw)] \quad (1.3)$$

для данного отражения hkl , где (u, v, w) — долевые координаты вектора $\mathbf{r}$. Теперь нам нужно сложить вместе волны, рассеянные каждым атомом, с учетом атомного фактора рассеяния каждого атома и фазы волны от каждого атома и просуммировать по-

Рис. 1.3. Сложение волн, рассеянных под углом 2θ от атомов, расположенных в начале координат и на расстоянии вектора $\mathbf{r}$ от начала координат.

Волновые векторы $\mathbf{k}_0$ и $\mathbf{k}_h$ указывают направления падающего и дифрагированного пучков соответственно; $|\mathbf{k}_0| = |\mathbf{k}_h| = 1/\lambda$.



лученный результат по всей элементарной ячейке:

$$F_{hkl} = \sum_i f_i \exp[-2\pi i (hu + kv + lw)]. \quad (1.4)$$

Здесь f_i — атомные факторы рассеяния для атомов сорта i . Они зависят как от θ , так и от λ . Фазы могут заставить волны складываться, как в случае, например, Si 004, или гасить друг друга, как в случае, например, Si 002. Чем больше структурный фактор, тем шире кривая качания.

Существует связь между рассеивающей и поглощающей способностью вещества, заключающаяся в том, что сильно рассеивающие материалы являются, в принципе, и сильно поглощающими. Как будет показано в гл. 4, оба параметра часто объединяют в один комплексный структурный фактор, реальная часть которого представляет собой фактор рассеяния (уравнение (1.4)), а мнимая — коэффициент поглощения (уравнение (1.2)).

1.2. Сравнение различных излучений, используемых для дифракции

В следующих главах процесс дифракции будет рассмотрен более полно, но и теперь мы имеем достаточно информации, чтобы обсудить выбор излучения и метода исследования. Если структурный фактор и рассеивающая способность излучения велики, то глубина проникновения мала и кривая качания широкая. Именно так обстоит дело с дифракцией электронов. Для рентгеновских лучей и еще в большей степени для нейтронов структурный фактор и коэффициент поглощения малы, глубина проникновения большая и кривые качания узкие. Эти свойства имеют три главных следствия для рентгеновских лучей, а также для нейтронов.

1. Методы являются, как правило, неразрушающими, поскольку для образцов промышленного масштаба есть возможность получить достаточные глубины проникновения и покрытие площади поверхности.

2. Методы хорошо чувствуют деформацию, поскольку узкие кривые качания испытывают значительное влияние со стороны малых поворотов решетки, вызванных деформациями в кристалле.

3. По сравнению с электронами пространственное разрешение методов получения дифракционных изображений низкое, поскольку интенсивность,

Таблица 1.1

Характеристики электронного, нейтронного и рентгеновского излучений

Характеристика	Электроны	Нейтроны	Рентгеновские лучи
Поглощение	Высокое	Очень низкое	Низкое
Проникновение	<1 мкм	~1 см	~1 мм
Ширина кривой качания	Градусы	<1 угл. с	Угловые секунды
Чувствительность к деформациям	10^{-3}	10^{-7}	10^{-7}
Пространственное разрешение	1 нм	30 мкм	1 мкм
Разрушающий характер действия	Да	Нет	Нет
Стоимость	Высокая	Очень высокая	Средняя
Технологичность	Хорошая	Плохая	Хорошая

рассеянная от областей малого размера, недостаточна для формирования качественного изображения и высокая чувствительность к деформации означает, что изображения дефектов очень широкие.

Эти характеристики сведены в табл. 1.1. И электронная микроскопия, и дифракция электронов, и рентгеновская топография, и дифракция рентгеновских лучей являются взаимно дополняющими методами почти во всех отношениях. Применения методов дифракции нейтронов и рентгеновских лучей похожи, однако методы дифракции нейтронов имеют решающее преимущество в некоторых случаях, таких как исследование магнитных материалов и очень толстых образцов. Теория хорошо описывает дифракцию всех трех типов излучений. Рентгеновские методы обладают двумя большими преимуществами: удобством и неразрушающим характером, поэтому их можно применять до того, как, скажем, начнется приготовление образцов для электронной микроскопии с последующим использованием результатов обоих методов, или их можно применять для быстрого контроля качества образцов.

1.3. Сравнение аналитических методов исследования поверхности

Высокая проникающая способность рентгеновских лучей является решающим фактором их применения при решении таких проблем, как выращивание кристаллов. Однако имеется сильная и все возрастающая потребность в методах диагностики очень тонких слоев различных материалов. Работа приборов, представленных на рынке в настоящее время, зависит от

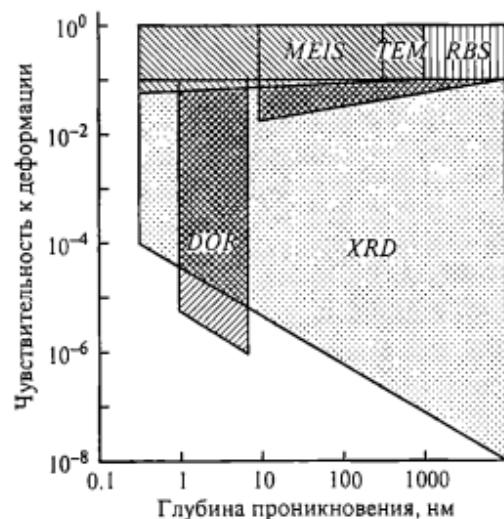


Рис. 1.4. Сравнение областей применения методов, чувствительных к напряжениям вблизи поверхности.

Минимальные пределы чувствительности нанесены в зависимости от разрешения по глубине. XRD — рентгеновская дифракция; DOR — дифференциальная оптическая рефлектометрия; MEIS — рассеяние ионов средних энергий; TEM — просвечивающая электронная микроскопия; RBS — обратное резерфордское рассеяние.

наличия в них ограниченного слоя материала толщиной в несколько нанометров. Если такие слои расположены близко к поверхности, что часто имеет место по причинам, обусловленным особенностями изготовления приборов, то их также можно исследовать рентгеновскими методами с использованием новых методов *скользящего падения*. Этот термин применяют для обозначения углов падения, близких к критическому углу полного внешнего отражения и на практике достигающих нескольких градусов. Как мы видели в предыдущем разделе, рентгеновские методы особенно чувствительны к деформации (как и большинство современных приборов), и поэтому уместно сравнить применимость различных методов, чувствительных к деформации поверхности. На рис. 1.4 показано сравнение областей применимости главных методов измерения деформаций, которые чувствительны к деформации в верхнем микрометровом слое кристаллического материала. Ясно видно, что рентгеновские методы играют важную роль, даже если эти методы и не обладают тем пространственным разрешением, которого можно достичь при помощи зонда заряженных частиц.

1.4. Высокоразрешающая рентгеновская дифрактометрия

Термин «*дифрактометрия*» здесь означает измерение кривой качания образца. Прежде всего необходимо правильно выбрать падающее излучение как по длине волны, так и по расходимости; и ясное понимание роли этого последнего параметра имеет особенно важное значение. Эталоном неизменно является плосковолновая кривая качания, т. е. такая кривая, которую можно было бы измерить при помощи идеально параллельного монохроматического падающего пучка, и все теоретические расчеты базируются на этом идеализированном излучении. Конечно, любое реальное излучение имеет как спектральную, так и угловую расходимость и хорошее приближение к плосковолновой кривой качания находят при условии, что эффекты уширения из-за всех этих факторов малы в сравнении с шириной теоретической плосковолновой кривой качания. Примеры, показанные на рис. 1.2, поясняют это утверждение. Ширина кривой качания может изменяться в пределах от 0.6" до 12". Расходимость хорошего синхротронного пучка может быть порядка 1", а расходимость пучка отпаянной рентгеновской трубки на расстоянии 1 м составляет приблизительно 80". Синхротронное излучение имеет непрерывный спектр, и однокристалльные кривые качания отображают этот спектр. Во всех других случаях слабое влияние образца на кривую качания будет подавлено влиянием функции источника. Другими словами, инструментальная функция стандартных порошковых и однокристалльных дифрактометров слишком велика, чтобы мы могли измерить слабые изменения профиля кривых качания почти совершенных кристаллов.

Улучшения расходимости за счет традиционных коллиматоров можно добиться только на больших синхротронных установках. Чтобы получить расходимость меньше одной угловой секунды при помощи отпаянной трубки в условиях лаборатории, потребовался бы коллиматор длиной несколько сотен метров и на таком расстоянии от источника интенсивность была бы непригодна для практического применения. Эту проблему можно решить

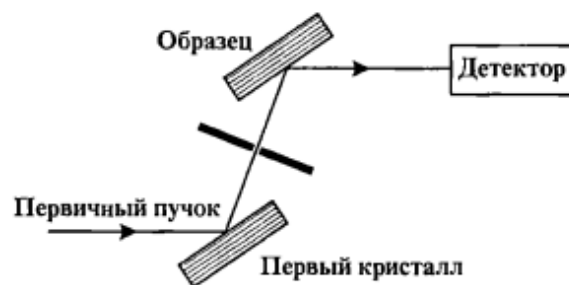


Рис. 1.5. Симметричная двухкристальная (+, -) схема для измерения кривых качания.

путем использования специального коллиматора пучка, который представляет собой дополнительную дифракционную систему, расположенную перед образцом. Измеренная кривая качания в таком случае является сверткой плосковолновых кривых качания коллиматора пучка и исследуемого кристалла, и из этой измеренной кривой можно определить большинство дифракционных характеристик образца.

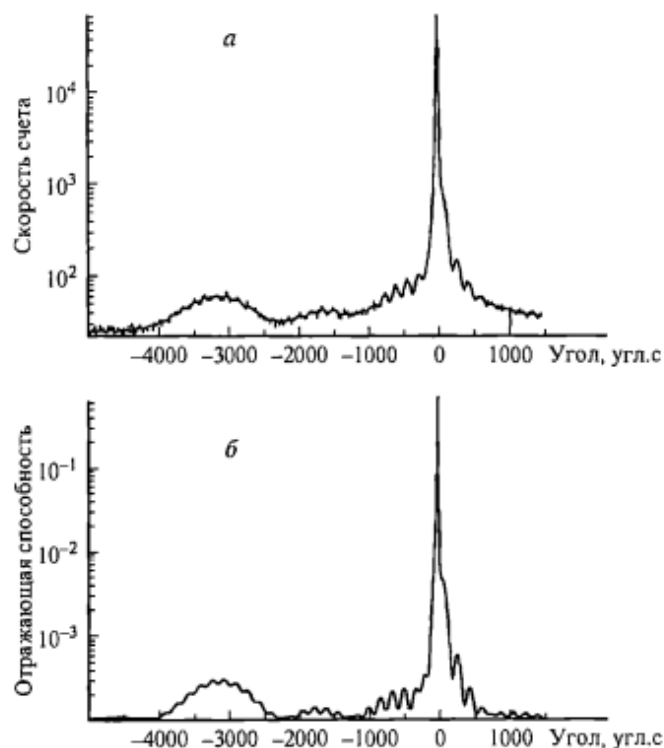


Рис. 1.6. Измеренная кривая качания для эпитаксиального слоя $\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{As}$ толщиной 17 нм, выращенного на GaAs-подложке и прикрытого слоем GaAs толщиной 0.1 мкм ($\text{Cu K}\alpha_1$ -излучение; кристалл GaAs — в качестве коллиматора пучка) (а). Теоретическое моделирование кривой качания данной структуры, посредством которой были определены состав слоя InGaAs (с точностью <1 %) и толщина слоя (с точностью до 0.1 нм) (б).

Простейший коллиматор — это совершенный кристалл того же типа, что и образец, установленный в отражающее положение для той же системы плоскостей и отклоняющий дифрагированный пучок в другую сторону, чем образец. Этот классический «+, - симметричный двухкристальный метод», показанный на рис. 1.5, дает превосходные и легко интерпретируемые результаты. Однако есть много способов изменить схему, чтобы, к примеру, повысить чувствительность к деформации или усилить дифракционный вклад тонких поверхностных слоев, и мы рассмотрим их подробно в этой книге.

Огромная полезность измерения кривых качания основана на двух основополагающих свойствах:

1. Тонкая структура кривых качания чрезвычайно чувствительна к деформациям и градиентам деформаций в образце.

2. Для данной структурной модели кривую качания можно рассчитать с высокой точностью на основе фундаментальной теории рассеяния рентгеновских лучей.

Кроме того, эти измерения проводятся легко и быстро и в настоящее время они практически незаменимы в 100 % исследований, контролирующих качество многослойных полупроводников. Соответствующий пример показан на рис. 1.6 для случая исследования структуры подложки GaAs со слоем тройного соединения и с тонким верхним слоем. Несоответствие между слоем и подложкой получается непосредственно из разделения пиков, а более тонкие детали можно объяснить с помощью компьютерного моделирования кривой качания. Получение такой кривой качания — дело нескольких минут. В результате простого анализа таких кривых можно определить состав тройных эпитаксиальных слоев, периоды сверхрешеток и толщины слоев, в то время как более полный анализ может дать полный профиль распределения деформации и состава по глубине структуры.

1.5. Трехосевая дифрактометрия

Трехосевая дифрактометрия является развитием метода высокоразрешающей дифрактометрии, и в этом случае кристалл-анализатор (или кристаллы) помещается перед детектором для того, чтобы ограничить приемную апертуру детектора по углу. Это приводит к разделению влияний деформаций и разориентаций на результаты измерения и дает возможность измерять диффузное рассеяние. В терминах обратной решетки, которые будут объяснены в гл. 5, пересечение в обратном пространстве угловых расходимостей пучков коллиматора и анализатора, каждый из которых может состоять из одного или нескольких кристаллов, определяет малый объем обратного пространства, который регистрируется детектором в данной установке. Поэтому можно получить полные двумерные карты обратного пространства, дающие самую подробную информацию о тонких слоях и состоянии поверхности.

В последующих главах мы проведем как фундаментальное теоретическое обсуждение, необходимое для понимания сложных кривых качания, кото-

рые вызываются сложными структурами, так и описание деталей эксперимента, которое требуется для надежного и однозначного измерения этих кривых.

1.6. Рентгеновская топография

Сущность топографических методов состоит в том, что они фиксируют распределение интенсивности дифрагированного пучка, таким образом формируя контраст изображения. Чувствительность методов вполне достаточна, чтобы выявлять отдельные дислокации, выделения, магнитные домены и другие дальнедействующие поля деформаций, но эти методы не могут выявлять точечные дефекты, за исключением плотных скоплений.

1.6.1. Рентгеновская топография в излучении обычных источников

Существует много методов рентгеновской топографии, однако наиболее популярными являются метод Ланга со щелевым коллиматором излучения и двухкристальные методы, которые можно считать разновидностью высоко-разрешающей дифрактометрии с детектором, формирующим изображения. Принципы получения изображения и дифрагированной интенсивности общие и могут быть применены к любому методу. Два примера иллюстрируют противоположные крайности: изображение высокого разрешения кремниевой пластины, полученное на фотопластинке сверхвысокого разрешения, на котором можно наблюдать детали полей деформаций отдельных



Рис. 1.7. Топограмма Ланга (на прохождение) пластины кремния, полученная в $\text{Mo } K_{\alpha 1}$ -излучении ($\lambda = 0.07 \text{ нм}$) от обычной рентгеновской трубки.

Фотопластинка сверхвысокого разрешения «Илфорд L4»; размер поля $3 \times 3.3 \text{ мм}$; отражение 022; дифракционный вектор направлен вверх; черные линии — изображения отдельных дислокаций.



Рис. 1.8. Двухкристальная топограмма кристалла GaP, полученная в $\text{Cu } K_{\alpha 1}$ -излучении от обычной рентгеновской трубки мощностью 1 кВт.

Детектор прямого преобразования для получения рентгеновских изображений (фирма «Bede Scientific»); экспозиция 1 мин. Видны трещины, границы субзерен и изменения плотности дислокаций.

дислокаций (рис. 1.7), и изображение, полученное в течение короткого времени на телевизионном детекторе, который быстро визуализирует крупные детали, характерные для скоплений дефектов, и распределение дефектов по площади (рис. 1.8).

1.6.2. Топография в синхротронном излучении

Высокая интенсивность и хорошая коллимация пучка делают синхротронное излучение совершенно подходящим для топографии, несмотря на такие отрицательные моменты, как неудобство и низкая производительность, связанные с необходимостью совершать поездки в лаборатории центров по использованию синхротронного излучения. Отсюда ясно, что применение топографии в синхротронном излучении наиболее целесообразно в следующих случаях:

- для динамических экспериментов, таких как рост кристаллов или процессы воздействия на кристаллы;
- для всеобъемлющих обзорных топографических экспериментов, т. е. в тех случаях, когда время, затрачиваемое на обычных источниках, было бы чрезмерным;
- для получения сведений, недоступных для традиционных методов, например, в случае нарушенных кристаллов, стробоскопической то-

2. РЕНТГЕНОВСКИЕ ДИФРАКЦИОННЫЕ МЕТОДЫ ВЫСОКОГО РАЗРЕШЕНИЯ

пографии, очень тонких слоев, аномальной дисперсии и одновременного осуществления топографии и флуоресценции;

- для быстрого поиска новых методов и подходов, которые в некоторых случаях можно затем перенести на лабораторное оборудование.

1.7. Заключение

Дифракция в кристалле излучения с длиной волны, сравнимой с межатомным расстоянием, выражается законом Брэгга. Для рентгеновских лучей область отражения имеет величину порядка нескольких угловых секунд и она зависит от структурного фактора, который в свою очередь зависит от типа атомов и их взаимного расположения. Структурный фактор определяет интенсивность отражения от данной кристаллической плоскости. Рентгеновскими лучами можно исследовать материалы, проникая в них на миллиметры, иногда сантиметры, или, используя методы скользящего падения, можно ограничить глубину проникновения до нанометров, чтобы сделать эти методы поверхностно-чувствительными. Методы высокого (углового) разрешения измеряют кривую отражения материала в условиях псевдоплоской волны. Эту кривую можно рассчитать на основе теории дифракции и модели структуры материала, чтобы определить эту структуру. Топографические методы дают прямые изображения многих типов дефектов в кристаллах, и эти методы можно использовать, чтобы оценить кристаллическое совершенство в условиях высокой чувствительности к деформациям.

Литература

1. Friedrich W., Knipping P., Von Laue M. // Proc. Bavarian Acad. Sci. 1912. P. 303.
2. Bragg W. L. // Proc. Roy. Soc. A. 1913. Vol. 89. P. 248.
3. Von Laue M. // Ann. Phys. 1918. Bd 56. S. 497.
4. Darwin C. G. // Phil. Mag. 1914. Vol. 27. P. 315.
5. Ewald P. P. // Ann. Phys. 1917. Vol. 54. P. 519.
6. Hirsch P. B., Howie A., Nicholson R. B., Pashley D. W., Whelan M. J. Electron microscopy of thin crystals. London: Butterworths, 1965.
7. Loretto M. H., Smallman R. E. Defect analysis in electron microscopy. New York: Interscience, 1975.
8. International tables for X-ray crystallography. Vol. 3. Dordrecht: Reidel, 1985.

Рассмотрение рентгеновских дифракционных методов высокого разрешения начнем с определения геометрии дифракции и инструментальных параметров, общих для дифрактометрических методов высокого разрешения. В качестве исходного пункта для наглядного представления рентгенооптических схем проведем построение диаграммы дю Монда, чтобы с ее помощью рассмотреть типы коллиматоров, используемых на практике. Затем обсудим главные инструментальные искажения в высокоразрешающей дифрактометрии: наклон, кривизну и дисперсию, рассмотрим требования, предъявляемые к рентгеновским детекторам, и наконец покажем, как на практике проводить измерения высокого разрешения.

2.1. Ограничения одноосевой дифракции

В первой главе мы увидели, что необходим рентгеновский пучок, очень близкий к плоской волне, для того чтобы рассмотреть детали тонкой структуры образца. Одноосевой дифрактометр использует пучок, который очень далек от плоской волны. Поэтому однокристалльные кривые уширены из-за расходимости пучка и спектральной ширины характеристических рентгеновских линий.

Расходимость зависит от размера источника h , размера щели s и расстояния «источник—образец» a . Из рис. 2.1 видно, что расходимость определяется как

$$\delta\theta = \frac{h + s}{a}. \quad (2.1)$$

Таким образом, для типичного случая $h = 0.4$ мм, $s = 1$ мм, $a = 500$ мм, $\delta\theta \sim 500''$, т. е. много больше ширины кривой качания для высокосовершенных кристаллов, которая обычно составляет несколько угловых секунд.

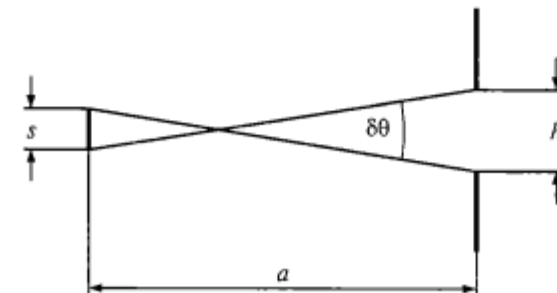


Рис. 2.1. Расходимость одноосевой системы.

Спектральная ширина рентгеновских характеристических линий приблизительно равна $\delta\lambda/\lambda \sim 10^{-4}$. Она возрастает до 10^{-3} , если линии $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$ обе участвуют в дифракции от образца. Влияние, которое она имеет на кривую качания, зависит от дисперсии системы в целом, включая кристаллический коллиматор и образец, и эта дисперсия может изменяться от нуля до очень большой величины. Она будет рассмотрена ниже, в разд. 2.6.

Поэтому следует ограничить угловую и спектральную расходимости пучка, падающего на образец. Кристаллические коллиматоры используются для того, чтобы коллимировать и монохроматизировать пучок, что необходимо для системы с высоким *угловым разрешением* и значительной *монохроматизацией*. Сначала рассмотрим характеристики источников и общие свойства дифракционных систем высокого разрешения, а затем проанализируем условия получения хорошо коллимированных пучков.

2.2. Источники рентгеновских лучей

Электромагнитное излучение генерируется путем ускорения или замедления заряженных частиц. Если ускорение достаточно велико и частицы обладают достаточной энергией, то излучение происходит в рентгеновской области, образуя непрерывный спектр. Помимо этого, квантовые переходы электронов между уровнями энергии в атомах вызывают эмиссию излучения с длиной волны

$$\lambda = hc / \Delta E,$$

где h — постоянная Планка; c — скорость света; ΔE — разность энергий двух уровней. Такое излучение создает линейчатый спектр, самые высокоэнергетические составляющие которого представляют собой жесткое рентгеновское излучение для большинства элементов. В дифрактометрии высокого разрешения используются как лабораторные, так и синхротронные источники излучения.

2.2.1. Лабораторные источники рентгеновского излучения

В лабораторном источнике рентгеновского излучения электроны ускоряются напряжением около 30 кВ по направлению к твердой мишени, где они тормозятся в результате столкновения. На выходе образуется линейчатый спектр на фоне непрерывного спектра. Линейчатый, или *характеристический*, спектр — это характеристика элемента, которая используется в рентгеновском флуоресцентном анализе для распознавания типа и количества элемента, присутствующего в образце. Другое название непрерывного излучения происходит от немецкого термина «*Bremsstrahlung*» — «тормозное излучение», так как оно испускается, когда электроны тормозятся твердым телом. Полный спектр лучей из медной мишени в функции ускоряющего напряжения показан на рис. 2.2. Ясно видно, что характеристическое излучение намного интенсивнее непрерывного, поэтому в дифрактометрии высокого разрешения используют почти исключительно это излучение.

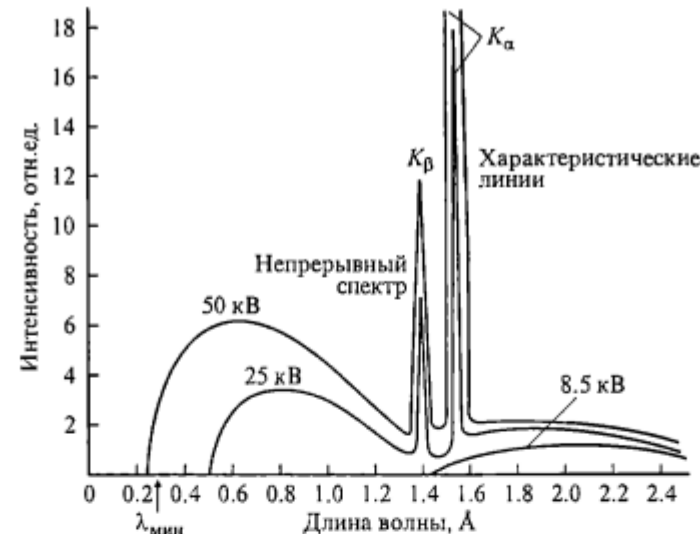


Рис. 2.2. Спектр рентгеновской эмиссии от медной мишени при различных напряжениях возбуждения.

Характеристические линии обозначаются K , L , M и т. д. в соответствии с обозначением электронной оболочки, на которую произошел переход электрона, с индексами α , β и т. д., указывающими, откуда он произошел. Таким образом, K_{α} -линии возникают в результате переходов $L \rightarrow K$, K_{β} -линии — в результате переходов $M \rightarrow K$ и так далее. Несомненно, что в дифрактометрии высокого разрешения линию $\text{Cu } K_{\alpha 1}$ выбирают чаще других, как из-за удобной длины волны (0.154 нм), которая соизмерима с большинством межплоскостных расстояний, так и из-за ее высокой интенсивности. Среди всех металлических мишеней медную легче всего охладить по причине ее высокой теплопроводности, и ее производительность лимитируется только отводом теплоты. Охлаждение может быть воздушным, водяным или смешанным в сочетании с вращением мишени для более эффективного рассеяния теплоты. Рентгеновские трубки работают при токе от долей миллиампера — для микрофокусного источника до порядка одного ампера — для трубок с вращающимся анодом, рассчитанным на очень высокую мощность.

K_{α} -линия является дублетом с разделением приблизительно 10^{-3} . Часто бывает важно, чтобы $K_{\alpha 2}$ -линия, интенсивность которой равна приблизительно половине интенсивности $K_{\alpha 1}$ -линии, не участвовала в дифракции, и ее исключают с помощью коллиматора пучка, как показано ниже.

2.2.2. Источники синхротронного излучения

На источниках синхротронного излучения электронный пучок заключается в сверхвысокий вакуум и тепловые параметры твердых тел перестают влиять на его свойства. При помощи магнитных полей электронный пучок сворачивают в замкнутое «кольцо» (на самом деле многоугольник со сглаженными углами); такие устройства называются накопительными кольцами. Название «*синхротронное излучение*» (СИ) установилось с тех пор, как

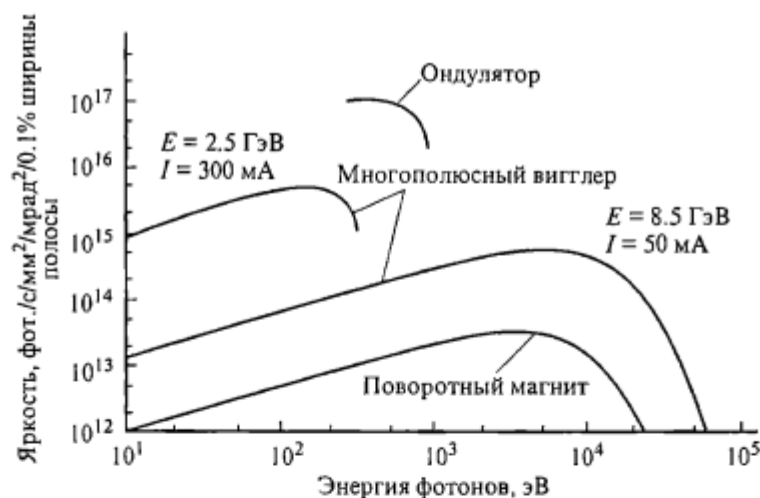


Рис. 2.3. Спектры синхротронного излучения для различных станций на «Фотонной фабрике».

явление было реализовано на синхротронах в земных условиях (хотя первоначально оно было предложено для объяснения эмиссии рентгеновских лучей, обнаруженной астрономами). Накопительное кольцо — это просто синхротронный пробег при постоянных, а не циклических состояниях энергии и магнитного поля. Синхротронные установки — это большие системы с диаметрами вплоть до ~100 м, которые строят в государственном или межгосударственном масштабе. Спектр излучения показан на рис. 2.3. Спектры всех источников синхротронного излучения с простыми поворотными магнитами похожи на этот, отличаясь только вертикальным и горизонтальным положением кривой по осям.

Так как электроны в накопительных кольцах движутся с релятивистскими скоростями, эмиссия электромагнитного излучения концентрируется в конус, ось которого совпадает с мгновенным направлением движения электрона. Поэтому излучение естественным образом коллимировано и хорошо согласуется с кристаллическим коллиматором, расположенным по ходу пучка. Это выгодно контрастирует с лабораторными источниками, при работе которых очень малая доля более или менее изотропной эмиссии попадает на образец. Главными характеристиками синхротронного излучения являются:

- непрерывный спектр,
- высокая интенсивность и яркость,
- высокая степень поляризации,
- импульсная временная структура обычно мегагерцевого диапазона частот.

Ценность этих источников особенно велика в тех случаях, когда необходима тонкая настройка параметров излучения, т. е. там, где важны как спектроскопические, так и рассеивающие свойства, и при проведении экспериментов, требующих поляризации и временной структуры излучения. Однако благодаря последним достижениям в области производства рентгеновских трубок, кристаллических коллиматоров и детекторов многие экс-

перименты по рассеянию осуществляются в удобных лабораторных условиях так же успешно, как и на синхротронах. Хотя в лаборатории трудно получить те же значения интенсивности, но фактически легче достичь хороших соотношений сигнал/шум. Если $\text{Cu } K_{\alpha 1}$ -линия подходит для проведения эксперимента, то вероятно, что более высокая производительность будет получена в случае лабораторного источника.

2.3. Системы высокого разрешения

На рис. 2.4 показаны основные узлы дифрактометра высокого разрешения. Коллиматор определяет угловую и спектральную расходимость пучка путем комбинации дифрагирующих элементов и угловых апертур. Апертуры могут задавать также пространственную ширину пучка. Пучок падает на образец, наклон которого должен настраиваться так, чтобы нормаль к отражающим плоскостям лежала точно в плоскости рисунка (в предположении, что и кристаллический коллиматор установлен подобным же образом). Образец установлен на оси, которую можно настроить с точностью по крайней мере до одной угловой секунды. Отраженный пучок попадает в детектор, который собирает все рентгеновские лучи, рассеянные образцом.

Прибор, показанный на рис. 2.4, является *двухосевым*. Первая ось предназначена для настройки кристаллического коллиматора, а вторая — для сканирования образца по углу Брэгга. Безотносительно к этому определению на практике встречаются дифрактометры с двенадцатью и более дополнительными «осями», к примеру для того, чтобы точно настроить многокристалльный коллиматор, поместить образец в рентгеновский пучок, настроить и сканировать образец и ограничить щели. Но проведение измерений и точность прибора обеспечиваются независимыми движениями двух основных осей. Таково принципиальное устройство дифрактометра высокого разрешения, который в настоящее время широко используется для измерений степени совершенства кристаллов, состава и толщины эпитаксиальных слоев.

В двухосевом высокоразрешающем дифрактометре детектор интегрирует интенсивность, рассеянную образцом, в пределах своего приемного угла.



Рис. 2.4. Схема высокоразрешающего двухосевого дифрактометра.

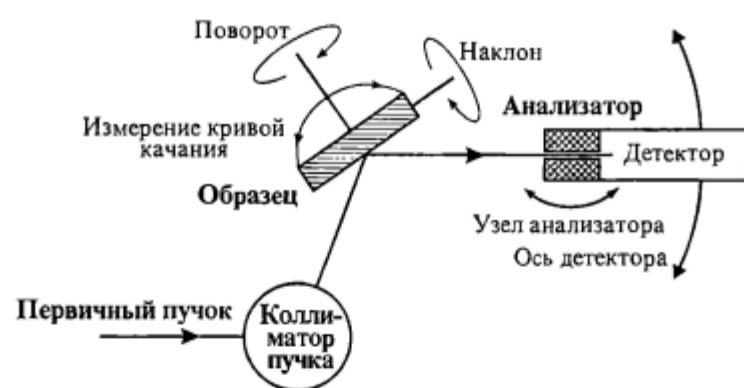


Рис. 2.5. Схема высокоразрешающего трехосевого дифрактометра.

Более подробные данные можно получить, если ограничить апертуру детектора при помощи другого рентгенооптического элемента, потеряв при этом в интенсивности. Ограничение апертуры детектора дает возможность перейти к *трехосевому* прибору (рис. 2.5), функционирование и точность которого обеспечиваются независимыми движениями кристаллического коллиматора, образца и анализатора. Вследствие более детального характера получаемой информации трехосевой прибор приобретает все большую популярность у исследователей, однако контроль качества, как правило, лучше проводить на двухосевом высокоразрешающем дифрактометре с меньшим количеством оптических элементов и поэтому более простом в обращении, светосильном и быстродействующем.

Рентгенотопографические камеры — это те же высокоразрешающие дифрактометры, в которых размеры пучка сделаны достаточно большими, чтобы покрывать требуемую площадь кристалла, или в которых обеспечено сканирование образца в пучке лучей. Топограмма получается на детекторе, регистрирующем изображения. В этом случае достаточное коллимирование пучка достигается посредством малых геометрических размеров источника и щелями, как в методе Ланга, но более высокой чувствительности к деформации можно достичь путем применения рентгенооптических элементов. Во всех рентгенотопографических методах изображение фиксирует распределение дифрагированной интенсивности по площади кристалла.

2.4. Диаграммы дю Монда

С тех пор как Эренберг, Эвальд и Марк [1] в начале 1920-х годов осуществили первые двухкристальные эксперименты, было разработано много типов коллиматоров пучка. Они могут иметь от одного до двенадцати элементов, участвующих в дифракции, разные геометрии и плоские, круговые, эллиптические, параболические или логарифмические поверхности. Среди такого, сбивающего с толку разнообразия трудно сделать правильный выбор, и поэтому необходимо иметь несколько простых способов анализа их характеристик. Логично рассмотреть поочередно для каждого элемента, как его выход соотносится с его входом. Этот и следующий разделы носят

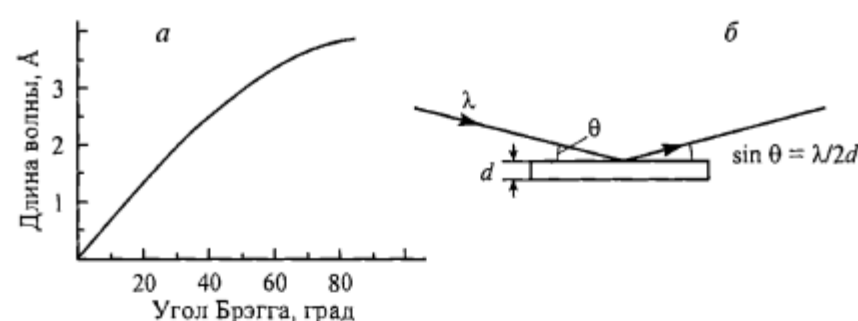


Рис. 2.6. Si 220 отражение.

а — диаграмма дю Монда, показывающая зависимость длины волны от угла дифракции, которая удовлетворяет закону Брэгга; б — соответствующая геометрия в реальном пространстве.

в основном справочный характер, но они могут быть полезны и при выборе системы, и в тех случаях, когда важно разобраться в деталях ее функционирования.

Ясное графическое представление, изобретенное дю Мондом [2] в 1937 г., остается по-прежнему очень полезным. Очевидный факт, что длины волн и углы дифракции кристалла должны удовлетворять закону Брэгга, дю Монд

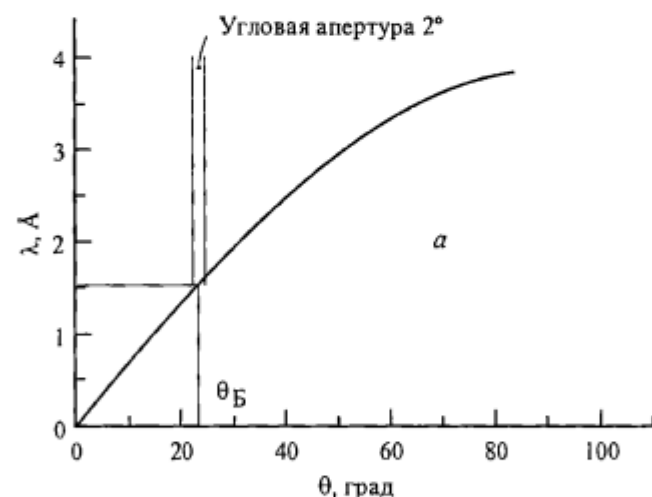


Рис. 2.7. Si 220 отражение в условиях падения плоской монохроматической волны. а — диаграмма дю Монда, показывающая угол, под которым волна испытывает дифракцию, угловую апертуру размером 2°, сквозь которую она легко проходит; б — соответствующая геометрия в реальном пространстве.

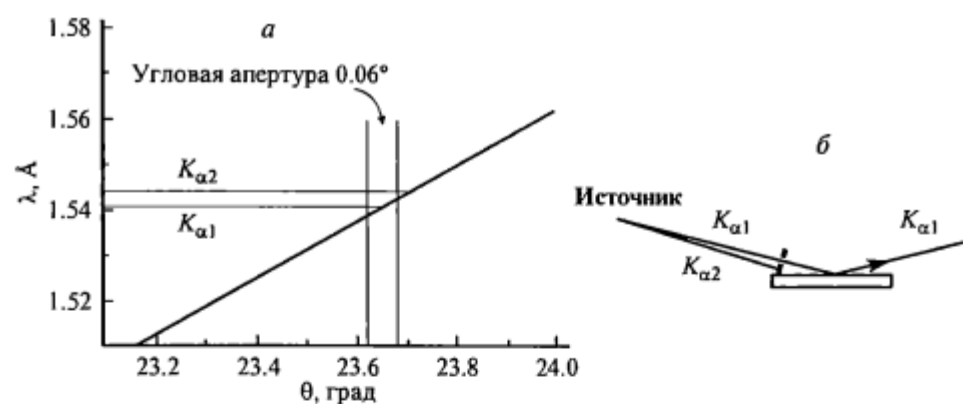


Рис. 2.8. Si 220 отражение спектральных рентгеновских линий в случае медной трубки.

a — диаграмма дю Монда, показывающая углы, под которыми линии $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$ испытывают дифракцию, и угловую апертуру размером 0.06° , пропускающую только $K_{\alpha 1}$; *b* — соответствующая геометрия в реальном пространстве.

догадался изобразить в виде зависимости длины волны от угла падения, чтобы показать дифракционную геометрию отражения от кристалла. Эта зависимость показана на рис. 2.6, *a* и, очевидно, представляет собой отрезок синусоиды. Фактически отражение в кристалле связывает длины волн, углы падения и рассеяния, как видно на рис. 2.6, *b*.

Далее мы рассматриваем ситуацию на входе в кристалл. На рис. 2.7 показано, что плоская монохроматическая волна изображается единственной точкой на оси длин волн и она будет отражаться под единственным углом. Горизонтальная ось углов также может быть источником данных, поскольку щель перед кристаллом будет ограничивать область углов, которые может принять кристалл. На рис. 2.7 широкая апертура расположена в центре падающего пучка и кристалл находится под точным углом Брэгга.

Однако на практике мы работаем с источником, излучение которого является полихроматическим и расходящимся. На рис. 2.8, *a* мы наносим на диаграмму дю Монда K -линии спектра медного излучения. Диаграмма показывает углы, под которыми произойдет отражение линий $\text{Cu } K_{\alpha 1}$ и $\text{Cu } K_{\alpha 2}$, и угловую апертуру (определяемую уравнением (2.1)), которая перекрывает линию $\text{Cu } K_{\alpha 2}$. Ширина апертуры теперь равна только 0.06° . Рис. 2.8, *b* показывает ситуацию в прямом пространстве.

Интегральная интенсивность отражения будет также зависеть от его угловой ширины. Поэтому можно считать, что график состоит из двух линий, разделенных шириной кривой качания. Она зависит от длины волны, угла Брэгга и структурного фактора. В масштабе рис. 2.6 линии расположены слишком близко друг к другу, чтобы их можно было различить, но такого построения достаточно для описания единичного отражения. Теперь становится понятным, почему однокристалльные дифрактометры не имеют достаточного углового разрешения для того, чтобы обеспечить измерение тонкой структуры кривой качания.

Теперь добавим другое отражение. Его знак относительно предыдущего отражения имеет важное значение. Для многократных отражений используют следующие обозначения.

- Первое отражение обозначается через $+n$.
- Следующему отражению присваивается символ n , если его межплоскостное расстояние идентично предыдущему отражению (тот же материал, та же плоскость), и m — если оно отличается.
- Второе отражение получает знак «плюс», если оно отклоняет пучок в ту же сторону, что и первый кристалл, и знак «минус» — если в противоположную сторону.

Таким образом, обычно используемый кристалл с прорезным каналом с двумя отражениями имеет обозначение $(+n, -n)$.

Построение диаграммы дю Монда сводится к следующему.

1. График $\lambda(\theta)$ для первого кристалла строится от начала координат. Он определяет направление падающего пучка и отсюда — ноль для угловых поворотов кристаллов.

2. В случае, когда пучок входит слева и образец — ниже пучка, кристалл выводится в отражающее положение путем поворота против часовой стрелки по углу Брэгга.

3. График $\lambda(\theta)$ для второго кристалла также строится от начала координат. Однако для знака имеется две возможности.

Первая. Если отклонение пучка от второго кристалла противоположно первому (за $+n$ следует $-n$ или $-m$), то график идет в том же направлении, что график для первого кристалла. Начала координат совпадают. Тогда:

а) Если второе отражение $-n$, то графики накладываются друг на друга и для появления отражения от второго кристалла не требуется никакого

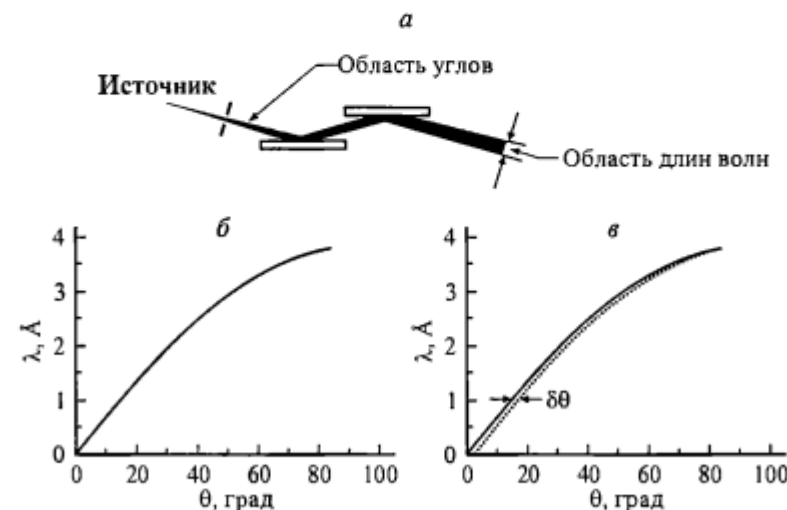


Рис. 2.9. Схема $(+n, -n)$ для Si 220 с излучением $\text{Cu } K_{\alpha}$.

a — геометрия в реальном пространстве; *b* — диаграмма дю Монда для случая, когда плоскости кристаллов параллельны и второй кристалл участвует в дифракции (графики накладываются друг на друга); *v* — диаграмма дю Монда для случая, когда второй кристалл повернут против часовой стрелки на угол $\delta\theta$ и выходит из отражения.

поворота, т. е. кристаллы остаются параллельными. Небольшой поворот заставляет кривые разделиться, и дифракция прекращается (рис. 2.9). Другое название этой схемы — *бездисперсионная*.

б) Если второе отражение $-m$, то графики расходятся, и чтобы вывести второй кристалл в отражающее положение, его необходимо повернуть (рис. 2.10). Область отражения системы, содержащая источник, апертуру и первый кристалл, определяется так, как рассмотрено выше, и дифракция от второго кристалла имеет место, когда его кривая на диаграмме дю Монда перекрывается с некоторой частью этой области.

Вторая. Если второй кристалл отклоняет пучок в ту же сторону, что первый (за $+n$ следует $+n$ или $+m$), то график идет в направлении, противоположном графику для первого кристалла. Начала координат снова совпадают. Однако дифракция от второго кристалла не наступит до тех пор, пока его не повернут на угол $2\theta_B$; кроме того, возможные рабочие области второго кристалла должны перекрыть фактическую рабочую область первого кристалла (рис. 2.11).

4. Если интенсивность источника однородна в соответствующем диапазоне длин волн, то интенсивность коллективного отражения пропорциональна площади перекрытия кривых качания на диаграмме дю Монда.

5. Рис. 2.12 показывает соответствующую область диаграммы дю Монда для схем $(+n, -n)$ и $(+n, +n)$ при значительно большем увеличении. Заштрихованная площадь соответствует области перекрытия. При этом плоско-волновую кривую качания считают квадратичной функцией, что является вовсе не плохим приближением, как будет показано в гл. 4.

6. Чтобы учесть и профиль кривой качания, и спектральное распределение источника, проинтегрируем произведение элемента площади, взя-

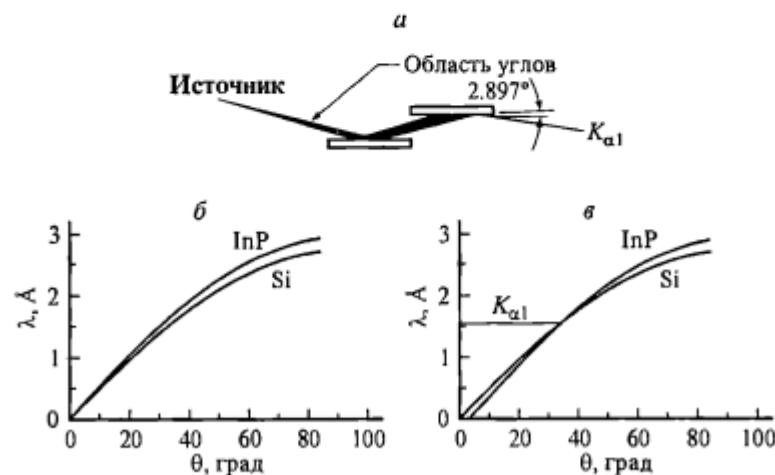


Рис. 2.10. Схема $(+n, -m)$ для InP 004 и Si 004 с излучением $\text{Cu } K_{\alpha 1}$.

a — геометрия в реальном пространстве; b — диаграмма дю Монда для случая, когда плоскости кристаллов параллельны и поэтому дифракция от второго кристалла отсутствует; v — диаграмма дю Монда для случая, когда второй кристалл, повернутый против часовой стрелки на угол 2.897° , участвует в дифракции.

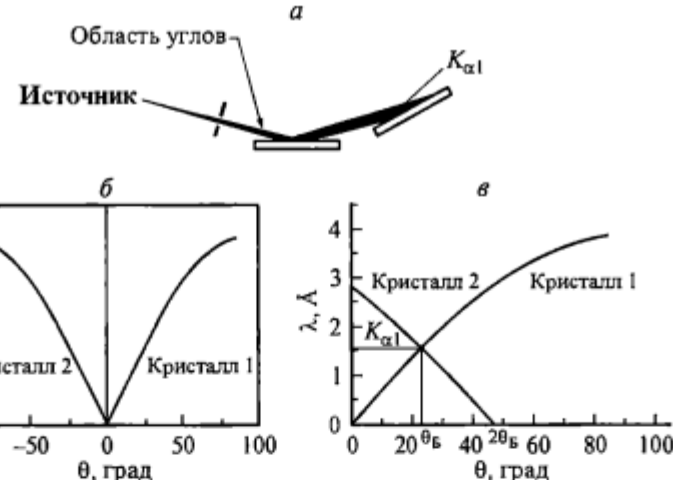


Рис. 2.11. Схема $(+n, +n)$ для Si 220 с излучением $\text{Cu } K_{\alpha}$.

a — геометрия в реальном пространстве; b — диаграмма дю Монда для случая, когда второй кристалл параллелен первому и не отражает; v — диаграмма дю Монда для случая, когда второй кристалл, повернутый против часовой стрелки на угол $2\theta_B$, участвует в дифракции.

того при постоянной длине волны $A(\lambda)$, на интенсивность $I(\lambda)$ при той же длине волны и на отражающие способности $R(\lambda, \theta)$ каждого кристалла, т. е.

$$I(\theta) = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} I(\lambda) A(\lambda) R_1(\lambda, \theta) R_2(\lambda, \theta) d\lambda. \quad (2.2)$$

Кривая качания, являющаяся результатом сканирования второго кристалла по углу, представляет собой график вышеприведенной интенсивности

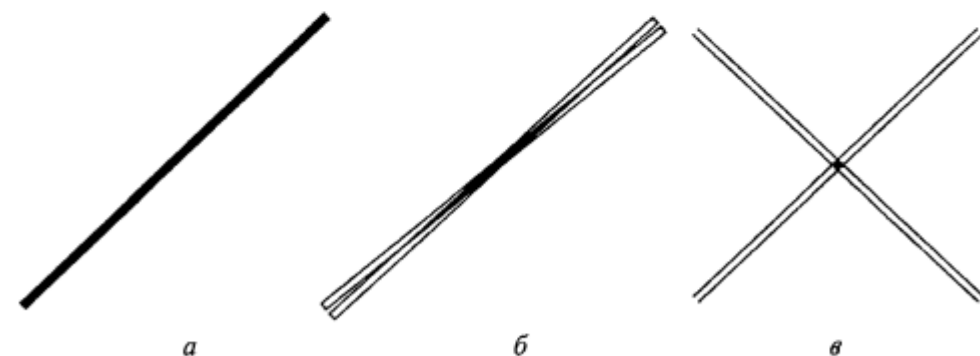


Рис. 2.12. Увеличенное изображение диаграмм дю Монда около перекрывающихся областей, ограниченных апертурой.

a — схема $(+n, -n)$: кривые полностью перекрываются; b — схема $(+n, -m)$ для InP 004 и Si 004 с излучением $\text{Cu } K_{\alpha 1}$ (см. также рис. 2.10); v — схема $(+n, +n)$, настроенная на максимальную интенсивность Si 220 с излучением $\text{Cu } K_{\alpha 1}$. Заштрихованные площади показывают полосы пропускания. Отметим, что случай a не дает никакой монохроматизации; b дает плохую монохроматизацию; v — превосходную монохроматизацию.

в зависимости от угла. С математической точки зрения это поперечная корреляция, как показано ниже.

Диаграмма дю Монда не претендует на количественное описание полной функции перехода между интенсивностью — длиной волны — расходимостью, характерных для кристаллического коллиматора. Это, скорее, полезная качественная и полуколичественная методика, которая существенно облегчает наглядное представление и понимание устройств, использующих многократную рентгеновскую дифракцию. Применяв фазово-пространственный подход, Матсушита [3] расширил представления дю Монда и довел их до полного количественного описания. Это может заинтересовать инженеров, занимающихся конструированием многокристалльных коллиматоров, но для понимания высокоразрешающей дифрактометрии нам нет необходимости углубляться в детали этого подхода.

2.5. Коллиматоры пучка

Мы рассмотрим коллиматоры пучка довольно подробно, поскольку ни один из обзоров по высокоразрешающей дифрактометрии не содержит описания всех последних разработок, хотя более ранние обзоры Бомонта и Харта [4], Кори с соавторами [5] и Вилкинса и Стивенсона [6] несомненно полезны. Коллиматоры пучка могут, в принципе, содержать следующие элементы:

- апертуры,
- брэгговские отражения от кристаллов или многослойников,
- плоские или изогнутые поверхности в положении полного внешнего отражения.

Апертуры и брэгговские отражения представляют интерес при работе с лабораторными источниками, а полное внешнее отражение играет важную роль в коллиматорах пучка на источниках синхротронного излучения, особенно в его мягкой области. Апертуры просто ограничивают верхнюю и нижнюю границы угла приема коллиматора пучка, и их действие можно видеть непосредственно на диаграмме дю Монда. Основная сложность состоит в разработке элементов, участвующих в дифракции.

2.5.1. Бездисперсионная схема

Для $(+n, -n)$ -схемы диаграмма дю Монда идентична для обоих отражений, поскольку и кристаллы, и отражающие плоскости идентичны, как видно на рис. 2.9. Область перекрытия определяет длины волн и углы, удовлетворяющие условию дифракции для обоих кристаллов. Отметим, что, когда первый кристалл и образец находятся в параллельном положении, все длины волн будут отражаться одновременно. Каждая длина волны выбирает свой собственный угол для брэгговского отражения от первого кристалла. Если кристаллы параллельны, то тот же угол Брэгга будет удовлетворять и отражению от образца. Поэтому схема *не имеет дисперсии* по длинам волн. Очень малое смещение одного кристалла относительно другого приведет к тому, что ни одна длина волны не будет удовлетворять условию двойной дифракции (рис. 2.9, в).

При любом угловом положении интенсивность, которая является результатом двух отражений, приблизительно соответствует площади при перекрытии диаграмм дю Монда двух совершенных кристаллов (рис. 2.12). Точнее, интенсивность каждого «луча», отраженного первым кристаллом, умножается на отражающую способность второго кристалла для угла, под которым этот луч падает на второй кристалл; полную интенсивность получают интегрированием по всем лучам (малым элементам телесного угла). Математически это представляет собой корреляцию двух кривых отражения совершенных кристаллов, рассчитанных по дифракционной теории. Если $R_1(\alpha)$ и $R_2(\alpha)$ — отражающие способности (в интенсивности) первого и второго кристаллов как функции угла падения α , то полная двухкристалльная отражающая способность $R(\beta)$ при любом угле β первого кристалла относительно второго получается из [7]:

$$R(\beta) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} R_1(\alpha) R_2(\alpha - \beta) d\alpha}{\int_{-\infty}^{+\infty} R_1(\alpha) d\alpha}. \quad (2.3)$$

Знаменатель (постоянная нормализации) является интегральной отражающей способностью первого кристалла. Рис. 2.13 показывает плосковолновую и двухкристалльную кривые качания снова для Si 220 и Cu $K_{\alpha 1}$ -излучения. Мы отмечаем следующие моменты.

1. Двухкристалльная кривая качания только на ~40 % шире, чем кривые отражения совершенного кристалла. Для отражений высокого порядка от совершенных кристаллов в коротковолновой области полуширина двухкристалльной кривой может быть вплоть до одной или менее угловой секунды.

2. Пиковые и интегральные интенсивности двухкристалльных кривых качания сравнимы с интенсивностями плосковолновой кривой отражения.

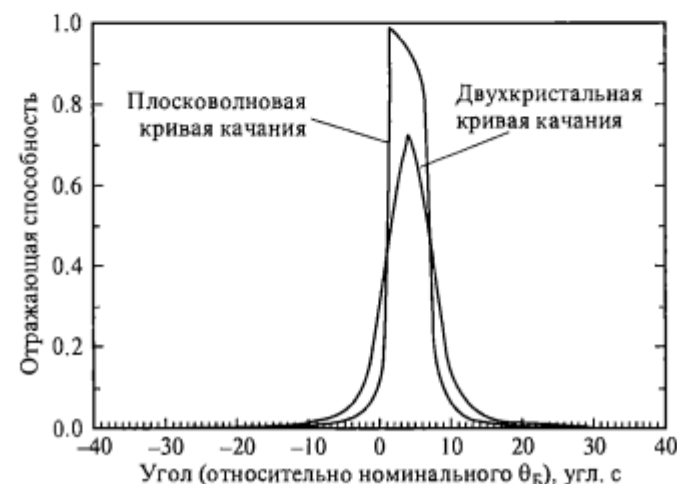
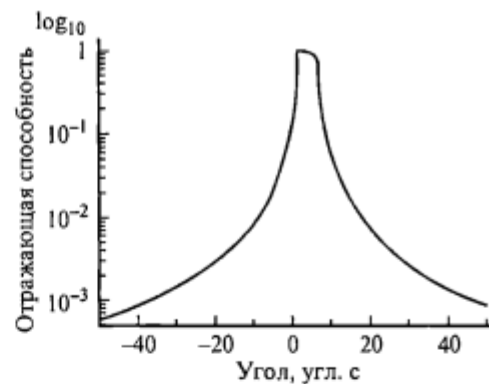


Рис. 2.13. Плосковолновая и двухкристалльная кривые качания для Si 220 с Cu $K_{\alpha 1}$ -излучением.

Рис. 2.14. Плосковолновая кривая качания для Si 220 с Cu $K_{\alpha 1}$, хвосты которой показаны в логарифмическом масштабе.



Поэтому коллиматоры с многократными отражениями могут быть довольно эффективными, если позаботиться о том, чтобы расходимости и приемные углы были приведены в соответствие.

Двухкристальная кривая качания симметрична, тогда как плосковолновая кривая — нет. Это следствие автокорреляции, поскольку автокорреляция любой функции является функцией уравновешенной.

Отметим, что мы используем характеристические линии только потому, что они имеют высокую интенсивность. Можно также работать, используя тормозное излучение, но его интенсивность очень низкая. Тем не менее таким путем можно использовать те длины волн, которые не соответствуют характеристическому спектру.

Если второй кристалл — это образец, а не элемент многокристального коллиматора, то таким образом мы вплотную приближаемся к тому, чтобы измерить плосковолновую отражающую способность материала. Узкие пики кривых качания дают возможность разделить отражения слабо рассогласованных слоев и подложки и увидеть сложную структуру интерференционных осцилляций, уже знакомых нам по рис. 1.6. Предел чувствительности зависит от толщины слоя, но для слоя в 1 мкм он равен приблизительно $50 \cdot 10^{-6}$ в случае симметричного отражения 004 от GaAs и Cu K_{α} -излучения. Со времени своего изобретения и по сей день этот метод широко используется для исследования узких отражений от кристаллических материалов.

Другой взгляд на традиционный двухкристальный метод состоит в том, что в этом методе измеряется разность между отражающими способностями образца и совершенного кристалла-эталоны. Этот метод можно считать первоначальным методом высокого разрешения, и его до сих пор предпочитают всем другим в тех случаях, когда имеются совершенные кристаллы-эталоны, а исследуемые образцы сделаны из того же материала. Однако практика использования этого метода сталкивается с рядом проблем, основные из которых следующие.

1. Как только мы обращаемся к исследованию образцов, изготовленных из другого материала, или меняем тип отражения, так сразу для согласования мы должны заменить и кристалл-эталон. Это неудобно, особенно если такую процедуру нужно проделывать часто, например в исследовательской лаборатории. Однако для однотипного контроля качества продукции это неважно.

2. Отраженная длина волны изменяется по ширине пучка. Если образец искривлен, то пики $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$ на кривой качания будут видны раздельно даже и в бездисперсионной схеме с плоскими кристаллами. Для удаления $K_{\alpha 2}$ -линии необходима узкая щель.

3. Кривая качания при единичном отражении имеет довольно широкие хвосты, что хорошо видно в логарифмическом масштабе на рис. 2.14. Это может помешать наблюдению тонкой структуры кривой качания образца.

В связи с этим было разработано много типов кристаллических коллиматоров, которые как коллимируют пучок, так и делают его монохроматическим, что необходимо для работы на высокоразрешающих дифрактометрах общего назначения.

2.5.2. Конструкция коллиматора с прорезным каналом

Харт и Бонзе решили проблему широких хвостов кривой качания, обнаружив, что последовательные (+n, -n)-отражения сужают кривую качания, не уменьшая существенно ее высоты, так как пиковая отражающая способность почти равна единице (рис. 2.15). Кроме того, они придумали простой способ для того, чтобы установить два кристалла строго параллельно, а именно при помощи алмазной пилы прорезать канал в большом монокристалле. Это положило начало практике использования монокристаллов рентгенооптических элементов, к которым в настоящее время относятся и водно-охлаждаемая «горячая оптика» для сверхмощных синхротронных источников [8], и рентгеновские интерферометры с одним кристаллом в геометрии отражения и тремя кристаллами в геометрии прохождения, со сканированием как по углу, так и по длине [9].

Для работы всех этих приборов необходимо наличие больших монокристаллов, слабо поглощающих рентгеновское излучение. Кремний явля-

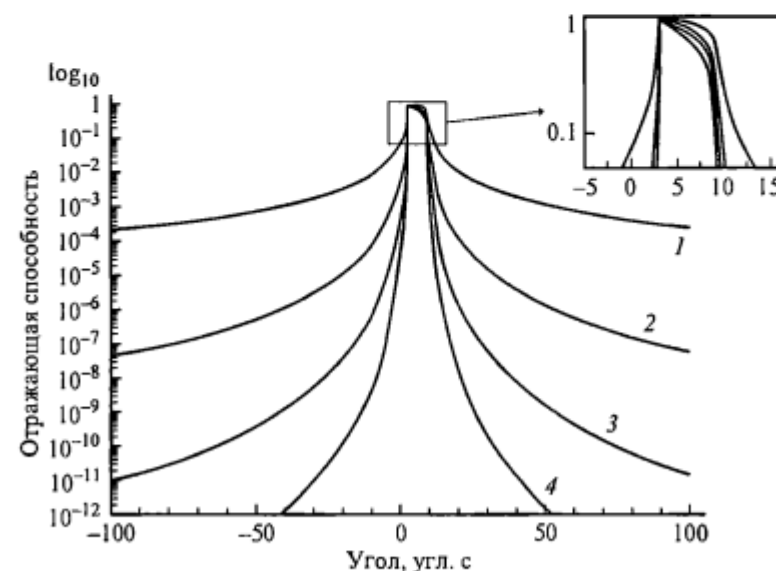


Рис. 2.15. Кривые качания, полученные в результате одного (1), двух (2), трех (3) и четырех (4) последовательных отражений в Si-кристалле с прорезным каналом для Cu K_{α} -излучения. На вставке показано, что около пика интенсивность почти не теряется, но хвосты уменьшаются очень сильно.



Рис. 2.16. Коллиматор пучка с прорезным каналом (1) в комбинации с кристаллом-монокроматором (2). (Конструкция Таннера и Боуэна).

Показан кристалл Si с тремя отражениями 220 с одним кристаллом-монокроматором Ge 220; Cu $K_{\alpha 1}$ -излучение.

ется почти идеальным материалом и к тому же экономичным благодаря успехам электронной промышленности. Материал, полученный методом зонной плавки, предпочтительнее, чем выращенный по методу Чохральского, так как в последнем случае он характеризуется некоторой неоднородностью, обусловленной присутствием кислорода. На рис. 2.15 в логарифмическом масштабе показаны кривые качания, полученные в результате одного, двух, трех и четырех последовательных отражений 220 Cu K_{α} -излучения в кремниевом кристалле с прорезным каналом. Влияние на хвосты очень сильное. Хотя интегральная интенсивность отражения уменьшилась, большая часть уменьшения имеет место на хвостах кривой, где интенсивность дает вклад в шум, а не в сигнал. Германий высокого качества также пригоден, хотя он стбит существенно дороже. Германий поглощает сильнее, но его широкая кривая качания дает более высокую интенсивность за счет разрешения. Кристаллы алмаза имеют некоторое применение в горячей оптике благодаря своим уникальным термическим свойствам. Отметим, что кривые, показанные на рис. 2.15, предполагают идеальную кристалличность и действие тепловых колебаний и точечных дефектов означает, что кривые не будут спадать так же быстро, как на этом рисунке, при значениях отражающей способности ниже $\sim 10^{-6}$.

Коллиматор с прорезным каналом не является монокроматором. У него нет дисперсии по длинам волн, и все волны, которые упали на первый кристалл под своими углами Брэгга, отразятся и от второго кристалла. Его рентгеновская оптика и диаграмма дю Монда идентичны (+n, -n)-схеме двухкристального метода, которая показана на рис. 2.9, но с тем отличием, что два кристалла вырезаны из одного монолита. Спектральная полоса пропускания определяется просто угловой апертурой, ограничиваемой щелью до или после кристалла или (как, например, в случае некоторых станций СИ) естественной расходимостью источника.

Присоединение одного кристалла-монокроматора делает устройство гораздо более гибким [10], так как мы приобретаем возможность независимого контроля над расходимостью (путем многократных отражений) и спектральным пропусканием, определяемым шириной отражения кристалла-монокроматора. На рис. 2.16 показан один из вариантов, в котором к коллиматору с прорезным каналом трехкратного отражения, дающему очень хорошее угловое разрешение, присоединен кристалл-монокроматор Ge 220, имеющий узкое спектральное пропускание.

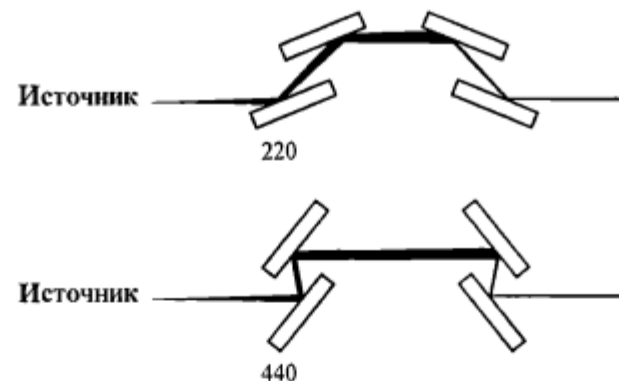


Рис. 2.17. Четырехкристальный (+n, -n, -n, +n)-коллиматор пучка конструкции дю Монда—Харта—Бартельса.

2.5.3. Конструкция дю Монда—Бартельса

Одна из ранних конструкций была предложена самим дю Мондом (и им же отвергнута), но реализована уже Хартом и нашла широкое применение в дифрактометрии благодаря Бартельсу. Она включает четыре отражающих кристалла в (+n, -n, -n, +n)-установке, показанной на рис. 2.17. Если зазоры между кристаллами одинаковы, то пучок на выходе из коллиматора проходит на той же высоте. Щели между кристаллами не участвуют в коллимации, а служат для уменьшения рассеяния. Эта схема удобно вписывается в конструкцию дифрактометра, но ее трудно настраивать в том случае, если используются четыре независимых кристалла. Бомонт и Харт [4], и Бартельс [11] использовали кристаллы Харта с прорезными каналами, чтобы изготовить простую конструкцию. Применяя германий, можно выбрать отражение 220, чтобы получить высокую интенсивность, или отражение 440, чтобы получить высокое разрешение. С формальной точки зрения конструкция дю Монда—Бартельса эквивалентна коллиматору с прорезным каналом с тремя параллельными отражениями и монокроматизирующим отражением, все кристаллы из одного и того же материала с одними и теми же отражающими плоскостями. При изготовлении первого и второго монолитов можно было бы использовать разные материалы, для того чтобы реализовать еще один компромисс между интенсивностью и разрешением, но при этом прибор лишится простоты конструкции.

2.5.4. Асимметричный коллиматор с прорезным каналом и коллиматор дю Монда

Использование германия вместо кремния дает более высокую интенсивность при той же геометрии отражения, но влечет за собой ряд практических проблем, поскольку германий дороже (примерно в десять раз), менее доступен, хрупок и имеет почти 50 %-ные поляризационные потери, когда угол Брэгга близок к 45° , как для отражения 440. Локсли, Таннер и Боуэн

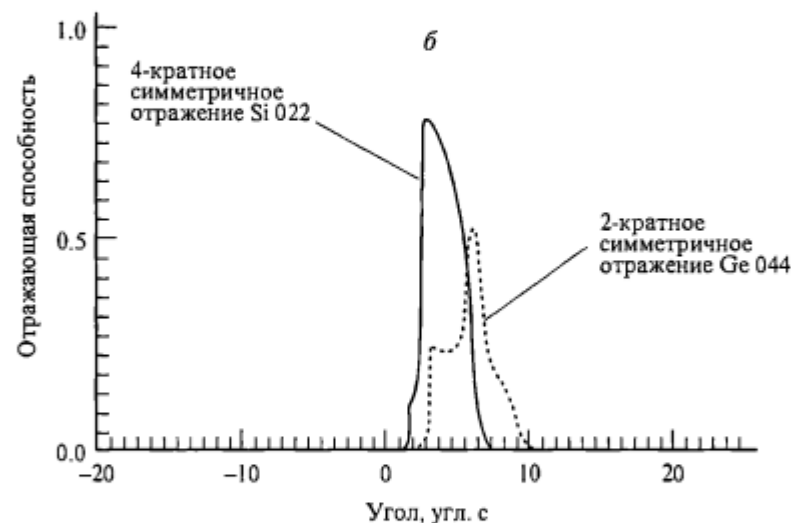
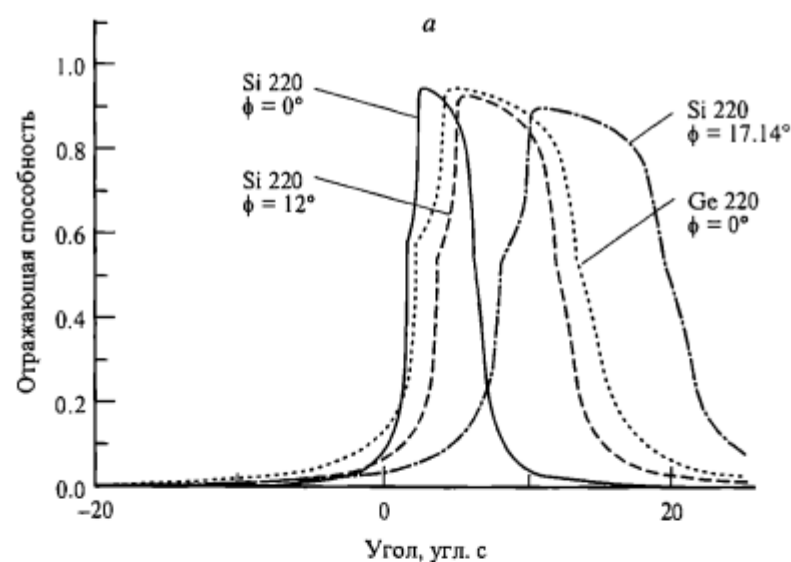


Рис. 2.18, а. Кривая качания Si 220 для разных значений угла среза ϕ : от 0 до 17.14° по сравнению с симметричной кривой Ge 220.

Ширина кривых Ge 220 симметричной и Si 220 с углом среза $\phi = 17.14^\circ$ равна $12''$ у каждой.

б. Кривые качания для «высокоразрешающей» схемы Si 022 (4 отражения) и Ge 044 (2 отражения).

Все расчеты выполнены для неполяризованного излучения, которое вызывает модуляции на левых сторонах кривых и более высокие поляризационные потери в случае Ge.

[12] усовершенствовали конструкции коллиматора с прорезным каналом и коллиматора дю Монда, исходя из принципа асимметричной дифракции. Как показано на рис. 2.18, асимметричное отражение уширяет кривую качания по сравнению с симметричным отражением. Объяснение этому можно будет увидеть в гл. 4, где теория рассматривается более подробно.

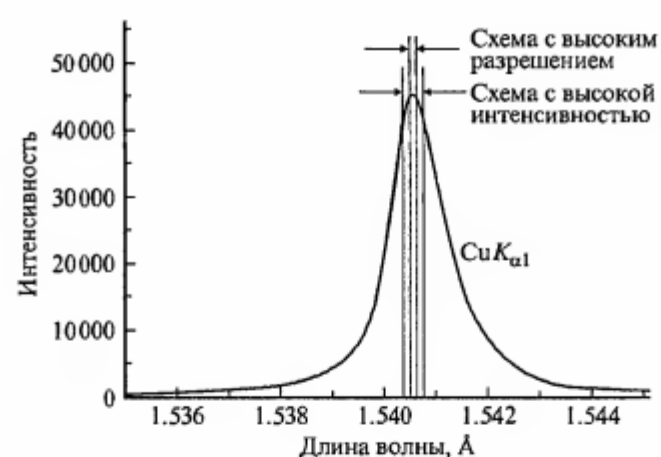


Рис. 2.19. Подробный график спектра от рентгеновской трубки с Cu-анодом около линий K_α , показывающий площадь, выбираемую схемами с высоким разрешением и высокой интенсивностью на основе многокристалльного коллиматора (на рис. 2.20).

Пока же мы просто отметим, что ширина кривой качания в асимметричном случае получается из формулы

$$w_{\text{асим}} = w_{\text{сим}} \sqrt{\frac{|\gamma_h|}{\gamma_0}}, \quad (2.4)$$

где γ_h и γ_0 — косинусы углов между внутренней нормалью к поверхности и направлениями падающего и дифрагированного пучков соответственно. Для геометрии Брэгга имеем:

для скользящего падения

$$\frac{|\gamma_h|}{\gamma_0} = \frac{\sin(\theta_B + \phi)}{\sin(\theta_B - \phi)} \quad (2.5)$$

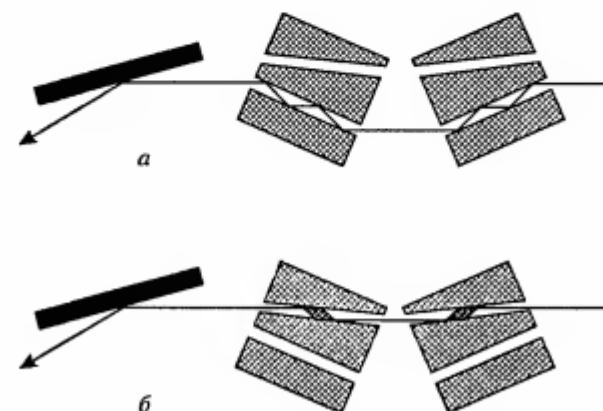


Рис. 2.20. Многокристалльный коллиматор пучка Локсли—Таннера—Боуэна с комбинацией схем для получения высокого разрешения и высокой интенсивности на базе принципа дю Монда. (Показано отражение 202 Si в $\text{Cu } K_\alpha$ -излучении).

а — геометрия схемы для получения высокого разрешения; б — геометрия схемы для получения высокой интенсивности.

и для скользящего отражения

$$\frac{|\gamma_h|}{\gamma_0} = \frac{\sin(\theta_B - \phi)}{\sin(\theta_B + \phi)}, \quad (2.6)$$

где ϕ — угол между брэгговской плоскостью и поверхностью кристалла.

Преимущество, от того что расходимость на входе выросла по сравнению с симметричным отражением, становится очевидным, если линию $\text{Cu } K_{\alpha 1}$ построить в увеличенном масштабе (рис. 2.19). На графике указаны угловые ширины симметричного и асимметричного отражений $\text{Si } 220$, которые используются в многокристальном коллиматоре, таком как на рис. 2.20. Ясно видно, что симметричное отражение не использует всю ширину линии источника и поэтому резкает интенсивность сильнее, чем это в действительности необходимо.

На рис. 2.20 показана конструкция коллиматора фирмы «Bede». Геометрия и ширина каналов выбраны таким образом, чтобы при помощи простой трансляции каждого монолита можно было перестроить систему коллиматора пучка с очень высоким разрешением, обеспечиваемым семью одинаковыми параллельными отражениями, в систему с высокой интенсивностью. Более того, оптимальные условия обеспечиваются выбором угла ϕ , а не диктуются материалом. Следует просто добавить еще прорезей для различных значений угла ϕ . Значения, показанные на рис. 2.20, целесообразны для экспериментов с полупроводниковыми соединениями, ширина кривой качания которых часто составляет около $12''$, но для порошковой дифракции можно было бы использовать всю ширину линии, равную приблизительно $200''$.

В заключение отметим, что правильная установка всех рентгенооптических элементов многокристального коллиматора требует приведения их к одной общей плоскости дисперсии. По определению эта плоскость содержит падающий и дифрагированный пучки (и, следовательно, также нормали к отражающим плоскостям) для любого данного отражения. Если плоскости дисперсии непараллельны, то некоторая доля интенсивности будет потеряна из-за того, что непараллельность вызовет ограничение угла приема в плоскости, перпендикулярной плоскости дисперсии.

2.5.5. Рентгеновские зеркала

Благодаря развитию сверхточных технологий стало возможным изготовление поверхностей, достаточно гладких, для того чтобы отражать рентгеновские лучи под малыми скользящими углами (обычно менее 1°), и достаточно точных, для того чтобы фокусировать их с минимальными искажениями [13]. Их применяют специально для излучения синхротронных источников, собственная расходимость которого очень низкая, но так как станции удалены от источника на десятки метров, то, собирая излучение по большому углу, можно добиться многократного усиления потока. Это делают при помощи изогнутых зеркал. Зеркала с двойной кривизной собирают излучение в пределах телесного угла и имеют специальное применение. Однако проблемы изготовления таких конструкций все еще не теряют

своей остроты, поскольку стандартные требования, предъявляемые к зеркалам для типичных современных станций, состоят в том, чтобы искажения формы были менее 1 мкм и шероховатость была менее 2 нм в пределах площади зеркала $100 \times 500 \text{ мм}$.

Сложная геометрия таких устройств требует, как правило, количественного анализа хода лучей, для того чтобы конструировать такие коллиматоры и предсказывать вносимые ими искажения. Принципы их конструкции достаточно просты.

- *Эллиптическое* зеркало применяют, чтобы фокусировать излучение от источника на образец, когда источник расположен в одном фокусе зеркала, а образец — в другом.
- *Эллипсоидальное* зеркало имеет такие же фокусирующие свойства, но оно собирает излучение по двум осям, а не по одной.
- *Параболическое* зеркало используется для того, чтобы собирать излучение от одного фокуса и доставлять его в виде параллельного пучка.
- *Параболоидальное* зеркало будет аналогичным образом собирать излучение по двум осям.
- Вышеперечисленные формы часто заменяют более простыми цилиндрическими или тороидальными зеркалами, но они гораздо менее эффективны и вносят существенно большие искажения.
- Для доставки монохроматических пучков зеркала объединяют с кристаллами, следя за тем, чтобы расходимости на кристалле согласовались с его собственной приемной областью (кривой качания).

Высокой интенсивности можно достичь не только с синхротронными, но и с обычными источниками, особенно если есть возможность расположить зеркало очень близко к микрофокусному источнику, как было показано недавними разработками фирмы «Bede Scientific». При изготовлении таких устройств требуется такая же точность, как и у зеркал для синхротронного излучения, но оптические элементы существенно меньше по размерам. Дальнейшее увеличение эффективности при тех же геометриях достигается, если заменить полное внешнее отражение на брэгговскую дифракцию. Это подразумевает изменение межплоскостного расстояния от точки к точке вдоль поверхности зеркала. Это условие, практически нереальное для кристаллов, выполнимо для синтетических многослойников, и такие концентраторы пучка уже становятся доступными как в виде фокусирующих (эллиптические и эллипсоидальные), так и в качестве коллимирующих (параболические и парабоидальные) устройств. Соответствующий обзор был сделан Арндтом [14], а применение многослойников с переменным параметром в качестве зеркал освещено Гёбелем [15].

2.6. Инструментальные искажения в высокоразрешающей дифрактометрии

Как и большинство других приборов, высокоразрешающий дифрактометр может дать неправильные результаты, если его настройка будет неточной. Изготовители современного оборудования в значительной степени облегчают настройку тем, что заранее настраивают отдельные элементы, осу-

ществляют их постоянную установку и создают автоматические алгоритмы настройки образца. Главные ошибки, которые могут быть при настройке образца и дифрактометра, следующие:

- наклон брэгговской плоскости образца, вследствие которого плоскость дисперсии образца не параллельна плоскости дисперсии кристаллического коллиматора;
- кривизна и мозаичная структура самого образца;
- дисперсия длин волн, вызванная полосой пропускания кристаллического коллиматора.

2.6.1. Наклон брэгговской плоскости

Теория этого искажения была разработана Шварцшильдом [16] в 1920-х годах. Для простоты мы рассмотрим случай, когда коллиматор состоит из одного кристалла и апертуры, как в классической двухкристальной схеме. Если брэгговские плоскости наклонены относительно оси, лежащей в плоскости падения и в брэгговских плоскостях, то лучи, которые не лежат в плоскости падения, не составляют равных углов в образце и первом кристалле. Если мы установим кристаллы таким образом, что средний луч (в плоскости дисперсии) составит равные углы в образце и кристалле-коллиматоре, то наклонный луч может отразиться под углом Брэгга от первого кристалла, но не будет удовлетворять условиям дифракции в образце (рис. 2.21). В результате только часть пучка лучей удовлетворяет условиям

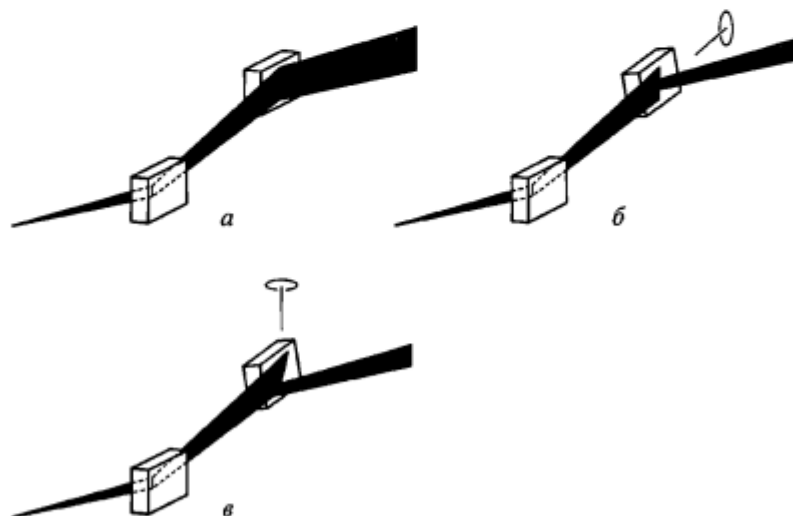


Рис. 2.21. Инструментальное искажение, вызванное наклоном брэгговской плоскости образца.

a — дифракционные плоскости параллельны, и дифракция происходит одновременно по всей высоте пучка; *b* — дифракционные плоскости расположены косо, и дифракция имеет место только в пределах узкой полосы; *в* — для измерения кривой качания кристалл поворачивают, при этом полоса движется вверх и вниз по кристаллу. Интегральная интенсивность остается приблизительно такой же, как и в случае *a*, но пиковая интенсивность уменьшается и ширина кривой увеличивается.

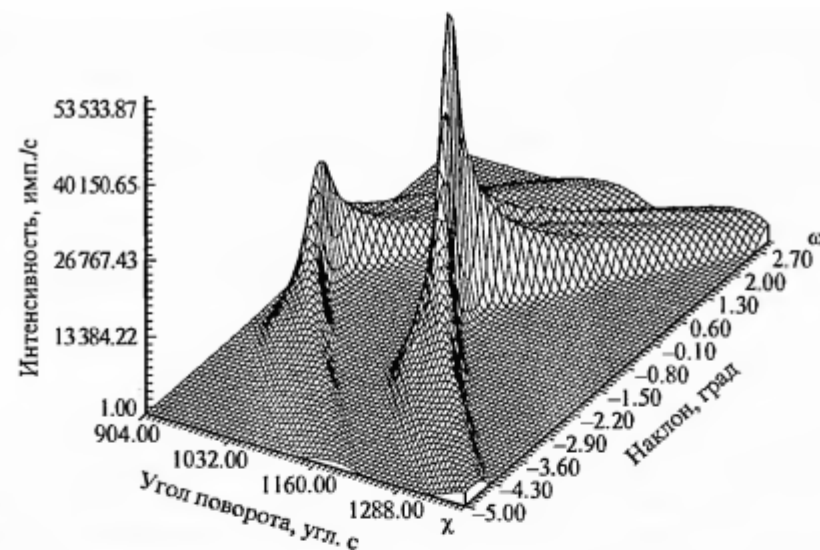


Рис. 2.22. Трехмерное построение дифрагированной интенсивности как функции поворотов образца, происходящих параллельно (χ) и перпендикулярно (ω) плоскости дисперсии.

Большой пик — это пик подложки GaAs; маленький пик — пик слоя GaAlAs. Ограниченное щелью отражение от кристалла GaAs, выступающего в качестве коллиматора пучка; $\text{Cu } K_{\alpha 1}$ -излучение.

Брэгга для обоих кристаллов. При качании кристаллов область отражения перемещается вверх и вниз. Из этого следует, что:

- кривая качания уширяется;
- высота пика уменьшается;
- площадь под пиками почти не изменяется;
- расстояние между пиками слоя и подложки почти не изменяется.

Рис. 2.22 демонстрирует это на основе экспериментальных данных. Образец представляет собой слой GaAlAs на подложке GaAs, и он был измерен на дифрактометре с однокристалльным коллиматором GaAs. Трехмерное построение показывает дифрагированную интенсивность в функции поворотов образца, выполняемых как параллельно, так и перпендикулярно плоскости дисперсии. Ось, перпендикулярная к плоскости дисперсии, — это ось ω , вокруг которой мы сканируем образец, измеряя его кривую качания; ось, параллельная плоскости дисперсии, — ось χ является источником искажения. Более крупный пик принадлежит подложке, а меньший — слою. В следующем разделе мы увидим, что состав слоя GaAlAs можно определить, измерив расстояние между пиками, структурное совершенство слоя и подложки, — измерив ширину пиков, а толщину слоя — из интегральной интенсивности отражения от слоя. Поэтому все эти параметры должны быть измерены точно, и можно видеть, что искажения наиболее сильно сказываются на высоте пиков, тогда как разделение пиков изменяется не очень сильно. В бездисперсионной схеме (+ n , - n)-уширение кривой качания $\delta\omega$ с хорошим приближением равно

$$\delta\omega = \varepsilon\eta, \quad (2.7)$$

где ε — расходимость пучка в направлении, нормальном к плоскости падения; η — угол наклона между брэгговскими плоскостями образца и плоскостью дисперсии коллиматора.

Природа уширения чисто геометрическая. Поэтому для узких кривых, которые узки сами по себе, оно важнее, чем для широких. Для деформированных слоевых систем борьба с наклоном часто является простой потерей времени. Кроме того, если вы имеете дисперсионную схему $(+n, -m)$, такую как при измерении образца InP с коллиматором GaAs, то уширение, вызванное наклоном образца, обычно меньше по сравнению с дисперсионным уширением. И тогда устранять наклон образца просто не имеет никакого смысла. При работе на синхротронном источнике, где расходимость очень низкая, устранять наклон и вовсе не нужно, за исключением случаев исследования кремния, требующих сверхвысокой чувствительности. Однако при исследовании образцов хорошего качества на лабораторном оборудовании оптимизация наклона должна быть нормой. Для типичного коллиматора ε имеет порядок 10^{-2} , и поэтому разориентация образца на 2° приведет к уширению пика на большую долю угловой минуты. Есть два способа постепенного выведения образца в положение с нулевым наклоном, которые рассмотрены ниже.

2.6.1.1. Наклон образца относительно оси, параллельной плоскости падения и брэгговской плоскости

Из рис. 2.22 видно, что мы должны изменять наклон образца до тех пор, пока высота пика кривой качания не достигнет своего максимального значения. Эту монотонную процедуру необязательно делать вручную: компьютер, снабженный соответствующим алгоритмом, поможет выполнить эту работу. Алгоритм должен учитывать: что отражение от многослойной структуры может содержать несколько пиков; что масштабы по осям ω и χ на рис. 2.22 очень разные; что небольшая неточность в схеме приведет к тому, что ось симметрии параболы (приблизительной) в плоскости ω — χ займет косое положение; что чем выше точность выведения оси, тем больше это отнимает времени; и что даже самый лучший в мире дифрактометр имеет люфт в управлении осями! Идеализированный алгоритм достижения максимума высоты пика кривой качания не будет иметь успеха.

Были разработаны две успешно работающие процедуры автоматической настройки. В каждом случае нужно сначала найти пик, а двойной поиск при дублированных пределах [17] — это самый быстрый метод поиска, если положение пика предварительно неизвестно. После этого можно оказаться либо на верхней, либо на нижней ветви «параболы» или слоя, или подложки (фактически это очень мелкая парабола с искаженной формой). Фьюстер [18] первый показал, что различить ветви можно, сначала перемещаясь вниз по ω , пока интенсивность не станет равной приблизительно половине пикового значения, затем перемещаясь вниз по χ . Если интенсивность увеличивается, значит, мы находимся на верхней ветви параболы, если она уменьшается, то — на нижней. Затем Фьюстер чередовал шаги по осям ω и χ до тех пор, пока пик не был найден. Положение пика опреде-

ляется тем, что интенсивность понижается, вместо того чтобы расти в начале χ -шага.

Этот алгоритм работает в большинстве случаев, но поиск ведется медленно и конечное состояние — не единственное. Поле I — ω — χ резко сужается около оптимального положения так, что при определенных уровнях интенсивности контур интенсивности имеет два значения χ , т. е. его форма напоминает греческую букву Σ , а не простую параболу. При некоторых начальных условиях пик будет найден в одной из левых точек на Σ , а не в правильной правой точке. Алгоритм, разработанный Локсли с соавторами [17], обходит эту проблему. Определение положения ветви параболы проводится по Фьюстеру. Ось χ сдвигается в известном направлении, пока интенсивность не упадет на $\sim 10\%$, затем делается шаг по оси ω , пока интенсивность не достигнет максимума и затем не упадет до 10% от пикового значения. Последовательное повторение этой процедуры приводит к оптимальному положению образца на гребне поверхности, если не сталкивается с неоднозначными условиями.

2.6.1.2. Вращение образца вокруг нормали к поверхности

Другой метод, основанный на α -вращении образца вокруг нормали к поверхности, был описан Таннером, Чу и Боуэном [19]; он зависит от геометрического положения конечной точки и, вообще говоря, при сравнимой точности должен работать быстрее. Этот метод, как и предыдущий, также поддается автоматизации. Однако он применим только для симметричных отражений. В основе метода лежит идея, согласно которой отражающие плоскости кристалла становятся параллельными, когда нормаль к отражающим плоскостям поворачивают так, чтобы положить ее в плоскость падения и таким образом найти угол Брэгга. Принцип метода изображен на рис. 2.23, который показывает 360-градусное α -сканирование образ-

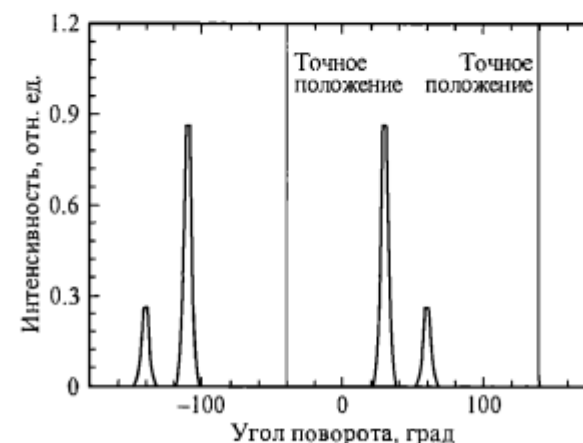


Рис. 2.23. 360-градусное α -сканирование образца с единичным эпитаксиальным слоем.

Отмечено значение α , дающее идеальную настройку отражающих плоскостей.

ца с единичным эпитаксиальным слоем. На рисунке отмечено положение α , дающее идеальную настройку отражающих плоскостей. График симметричен относительно идеального положения независимо от степени сложности кривой качания. Таким образом, при геометрическом способе поиска идеального положения нет необходимости искать любые положения максимумов и даже решать, какой из пиков принадлежит подложке.

Сначала находят пик путем поиска в положительном направлении на оси α . Так как пластины обычно разориентированы на доли градуса от номинальной кристаллографической плоскости, а иногда целенаправленно отклонены на угол до 4° , то это дает возможность быстро сканировать образец по сравнительно большому углу. Если это не работает, то применяют двойной поиск на оси ω . Когда на положительном направлении α -сканирования брэгговское положение найдено, поиск на этой оси повторяется в противоположном направлении, чтобы найти «пару» для пика Брэгга. Точное положение α находится в середине между этими двумя пиками.

Все алгоритмы автоматизации должны быть подвергнуты всесторонней проверке и испытаны на нестандартные и некорректные условия, такие как расстройство работы источника рентгеновских лучей, очень плохо настроенные образцы и даже образцы с идеальной настройкой!

2.6.2. Кривизна и мозаичная структура образца

Если образец искривлен, то даже для плоской волны будет существовать целый ряд положений, в которых он удовлетворяет дифракционным условиям. Кривая качания уширяется. Влияние кривизны легко уменьшить, уменьшая апертуру коллиматора. При исследовании полупроводниковых кристаллов не рекомендуется записывать кривые качания с коллиматором, размер апертуры которого меньше 1 мм, но лучше 0.5 мм. Обычно образцы искривляются, если рассогласованный слой формируется на подложке когерентно, вследствие чего подложка будет изгибаться, чтобы уменьшить упругую деформацию. Эффект имеет геометрическую природу и не зависит от геометрии дифракции. Табл. 2.1 иллюстрирует этот эффект.

Мозаичная структура образца приведет к аналогичному уширению. Если размер пучка можно уменьшить до величины ниже среднего размера ячейки мозаичности, то кривая качания сузится. Для более широкого пучка совершенство подложки можно оценить путем измерения полной ширины на половине высоты максимума (FWHM) брэгговского пика, измеренного с высоким разрешением, при условии, что искажения, обусловленные наклоном и кривизной образца, устранены, как описано выше. В таком случае уширение кривой качания вызвано в основном изменением разориентаций и дилатаций в кристалле

Таблица 2.1
Уширение кривых качания от InP в отражении 004.
Cu K_α -излучение, диаметр пучка 0.5 мм

Радиус, м	Ширина пика подложки, угл. с
∞	9.8
100	10.1
10	14.1
5	22.6
1	104

из-за его дислокационной структуры. Тем не менее важно подчеркнуть, что в случае, когда кристаллы содержат субзерна, размер которых сравним с площадью пучка, полуширина кривой качания (FWHM) может сильно зависеть от размера пучка. Измерения, выполненные для образцов с субзеренной структурой на пучках разной площади или разной расходимости, дадут разные значения полуширины, и это может послужить причиной пространственных дискуссий между производителями подложек и их потребителями! В таких случаях предпочтение должно быть отдано трехосевым методам построения карт обратного пространства, так как с их помощью можно разделить эффекты разориентации (мозаичности) и деформации.

2.6.3. Дисперсия

Если излучение после коллиматора распределено по многим длинам волн, то кривая качания может быть уширена. Будет ли это так, зависит от геометрии дифракции. Геометрия $(+n, -n)$ бездисперсионная, и все длины волн будут отражаться при одинаковом относительном положении образца и эталона. В случаях $(+n, -m)$, для которых межплоскостные расстояния коллиматора и образца не равны друг другу, кривая качания уширена за счет дисперсии. Уширение $\delta\theta$ в этих случаях определяется из выражения:

$$\delta\theta = \frac{\delta\lambda}{\lambda} \left| \operatorname{tg} \theta_1 - \operatorname{tg} \theta_2 \right|, \quad (2.8)$$

где θ_1 и θ_2 — углы Брэгга для кристалла-коллиматора и образца; $\delta\lambda/\lambda$ — спектральная ширина рентгеновского излучения, пропущенная коллиматором. Для схемы $(+n, -m)$ ее можно считать равной разделению между характеристическими K_α -линиями, так как эти линии дают основной вклад в интенсивность. Разделение равно разности между угловыми делениями $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$ в отражениях коллиматора и образца. Например, если InP измерен при использовании одного кристалла GaAs в качестве коллиматора пучка, то имеется уширение порядка $25''$. Это годится для многих целей, в том числе для исследования материалов низкого структурного совершенства, а также сильно рассогласованных эпитаксиальных систем, где пики слоев обычно находятся на расстоянии $1000''$ и более от подложки. Но анализировать качество хороших подложек при помощи этой схемы было бы неправильно.

Дисперсионная схема $(+n, -m)$ была наглядно показана при помощи диаграмм дю Монда, рис. 2.10. Здесь кривые не идентичны и кристаллы должны быть смещены из параллельного положения, чтобы дать одновременную дифракцию. По мере того как кристаллы смещаются, область перекрытия двигается вверх и вниз по кривой. Когда кривые становятся очень разными, интенсивности линий $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$ прослеживаются отдельно. Тогда пики на кривой качания разделяются, и, если кристалл-коллиматор нельзя заменить на более подходящий, в таких случаях необходимо удалить $K_{\alpha 2}$ -составляющую с помощью щели, расположенной после коллиматора пучка. Щель, установленная перед детектором, в случае, когда детектор сканиру-

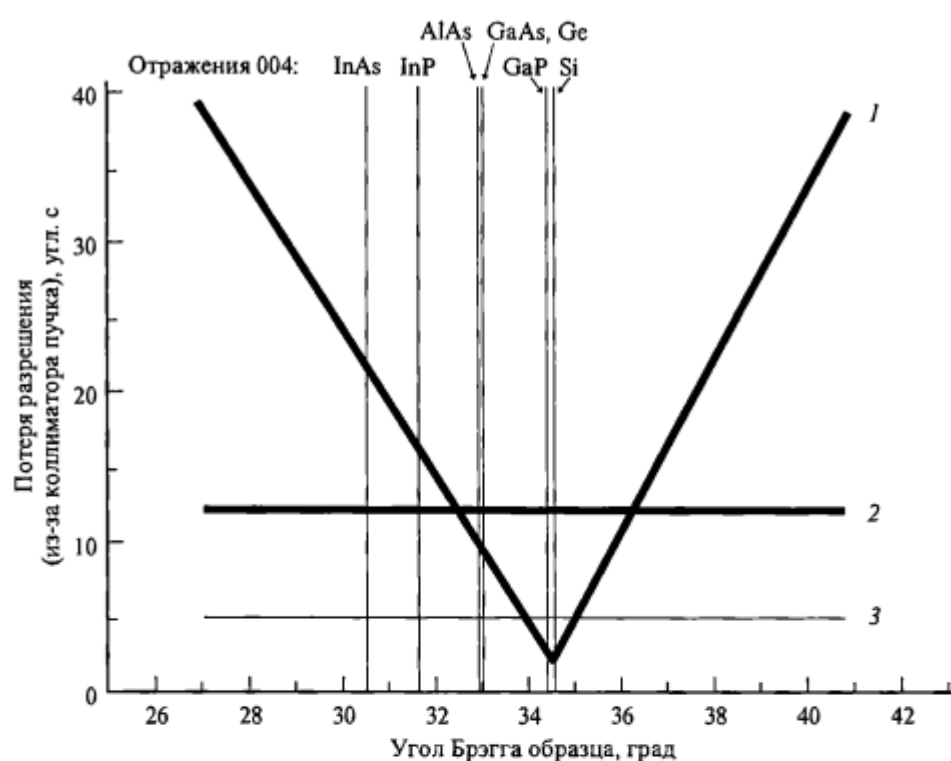


Рис. 2.24. Угловое разрешение высокоразрешающей системы. Сравнение «характеристических функций» двухкристального метода и монохроматора с четырьмя отражениями. (Конструкция Локсли—Таннера—Боуэна, схемы высокого разрешения и высокой интенсивности).

1 — двухкристальный метод (первый кристалл Si 004); 2 — два кристалла с прорезным каналом, положение высокой интенсивности; 3 — два кристалла с прорезным каналом, положение высокого разрешения.

«Характеристические функции» демонстрируют разрешение (ордината) и интенсивность (ширина) коллиматора, считанные в месте пересечения с вертикальной линией в угле Брэгга образца. Двухкристальная схема (для примера использовано отражение Si 004) превосходит как по разрешению, так и по интенсивности, когда первый кристалл и образец хорошо согласованы, но многокристальные монохроматизирующие системы превосходят ее, если нужно провести измерения целого ряда различных образцов.

ется с удвоенной угловой скоростью образца, также работает очень хорошо. Фактически это — трехосевой эксперимент низкого разрешения.

Для общего случая многокристального коллиматора не существует универсальной формулы уширения. Скорее, для коллиматора пучка строят диаграмму дю Монда и из нее определяют форму полосы пропускания по $\delta\theta$ и $\delta\lambda$. Затем на диаграмме изображают образец и сканируют его по полосе пропускания коллиматора. Для точного моделирования нужно, конечно, учитывать истинную форму кривых качания, так как они не описываются простыми прямоугольными функциями. Но диаграмму дю Монда в большинстве случаев используют для того, чтобы понять свойства конкретного многокристального коллиматора на полуколичественном уровне. Например, если размеры области пропускания в обоих направлениях намного меньше,

чем ширина кривой качания образца, то последняя будет измерена с высокой точностью, хотя интенсивность может быть слабой. Предположение, что уширение в монохроматоре с многократными отражениями равно расходимости пучка на выходе обычно соответствует истине.

Теперь мы готовы ответить на общий вопрос о том, что лучше для высокоразрешающего эксперимента — двухкристальная схема или монохроматор с четырьмя отражениями? Исходя из вышеизложенного, мы видим, что, если первый и второй кристаллы хорошо согласованы по углу Брэгга, то потеря в разрешении в двухкристальном варианте получается просто из корреляции уравнения (2.3). Она приблизительно в 1.4 раза больше, чем ширина плосковолновой кривой качания. Если они недостаточно согласованы, то возникают дополнительные потери согласно уравнению (2.8). Соответствующее построение для сравнения с монохроматором Локсли—Таннера—Боуэна (рис. 2.20) в положениях высокого разрешения и высокой интенсивности приведено на рис. 2.24. Диаграмма нарисована для Si 004 в качестве первого кристалла; для другого материала «V» имела бы очень похожую форму, только с центром на угле Брэгга для этого материала. Минимальное разрешение $2''$ в двухкристальной установке — это разность между шириной результирующей кривой качания и шириной той кривой качания, которая могла бы быть получена для совершенно плоской волны. Это значение увеличилось бы до $\sim 5''$ для более тяжелых соединений III—V групп, таких как GaAs. Тем не менее, если кристаллы недостаточно согласованы, монохроматоры с четырьмя отражениями имеют лучшие показатели и, следовательно, представляют большую ценность для обычной работы.

2.7. Детекторы

Очевидно, что детектор должен обладать высокой чувствительностью к рентгеновским лучам, иметь хороший динамический диапазон и низкий уровень шума. В высокоразрешающей дифрактометрии традиционный выбор детекторов составляли ионизационная камера, сцинтилляционный счетчик или пропорциональный счетчик с твердотельными детекторами, применяемый время от времени для специальных приложений, требующих низкого уровня шума. Чтобы понизить уровень шума, нужно перейти от измерения тока или напряжения в детекторе к счету единичных фотонов. Это обстоятельство ограничивает применение ионизационных камер пределами синхротронных исследований, где их высокий уровень насыщения можно эффективно использовать, а шумовые характеристики менее существенны. В этом разделе мы приводим краткий обзор поведения счетных детекторов и отсылаем читателя к работе Кнолля [20] за получением более подробной информации.

2.7.1. Пропорциональные счетчики

Пропорциональный счетчик состоит из трубки с положительным и отрицательным электродами, наполненной газом, например ксеноном. Отрицательный электрод представляет собой тонкий провод под напряжением

порядка -2 кВ. Рентгеновские фотоны ионизируют молекулы газа, которые дрейфуют по направлению к отрицательному электроду до тех пор, пока поле вокруг провода не достигнет значения, достаточного для их быстрого умножения в результате каскадного эффекта, и не вызовет импульс заряда в проводе. Импульс прерывают путем добавления газа, обычно галогена или углеводорода, который реагирует с ионами и останавливает каскад.

Пропорциональный счетчик может дать очень низкий уровень шума, много ниже 1 имп./с. Другое свойство пропорционального счетчика состоит в том, что импульс заряда пропорционален энергии фотонов с разрешением $\sim 10\% \delta E/E$, поэтому, чтобы очистить сигнал от паразитных фотонов, например космических лучей, можно использовать анализатор высоты импульсов. К главным недостаткам этого счетчика следует отнести трудность осуществления достаточно быстрого прерывания импульса, для того чтобы поднять скорость счета выше $\sim 10^6$ имп./с, и то, что вводимый в счетчик газ истощается, поэтому детектор имеет время жизни, ограниченное обычно двумя годами или около того. Его эффективность редко превышает 50% .

2.7.2. Сцинтилляционные счетчики

На первом этапе сцинтилляционный детектор преобразует рентгеновский фотон в оптический посредством сцинтиллятора. Оптический импульс затем усиливается при помощи фотоэлектронного умножителя. Хотя эффективность этого процесса составляет только $\sim 5\%$, но так как один рентгеновский фотон дает несколько сотен оптических, можно считать, что квантовая эффективность достигает 100% . Первоначально сцинтилляционные счетчики имели более сильный шум и более низкий динамический диапазон по сравнению с пропорциональными счетчиками, но разработки последнего времени изменили эту ситуацию на обратную. Путем использования быстрых сцинтилляторов с шириной импульса 10 нс (например, фотоэлек-

тронных умножителей из низкорadioактивного стекла и высокостабильной электроники), был достигнут динамический диапазон от 0.1 до $3 \cdot 10^6$ имп./с при высокой квантовой эффективности [21] (рис. 2.25). Энергетическое разрешение не такое хорошее, как у пропорционального счетчика, на уровне $\sim 50\%$, но все еще достаточное, чтобы отстроиться от космического фона.

2.7.3. Твердотельные детекторы

В твердотельных детекторах фотон, попадая на поверхность кремния или германия, вызывает появление в них электронно-дырочной пары. Электроны и дырки разделяются посредством смещения у p - n -перехода и усиливаются усилителем заряда. Для измерения импульсов служит многоканальный анализатор, применяемый в спектроскопии, но для дифракционных приложений одноканального анализатора (анализатора высоты импульсов) вполне достаточно. Уровень шума очень хороший, ниже 0.01 имп./с, но верхний предел довольно низкий для дифракции, на уровне нескольких единиц на 10^4 имп./с. Твердотельные детекторы имеют самое высокое энергетическое разрешение, $\sim 2\%$. Поэтому их применяют в основном в тех экспериментах, где скорость счета очень низкая и требуется хорошее отношение сигнал/шум. Однако, для того чтобы добиться такого низкого уровня шума, предусилитель должен работать при низких температурах, обычно ниже температуры жидкого азота.

Благодаря последним достижениям в полупроводниковом материаловедении появились твердотельные детекторы, работающие при комнатной температуре, которые сделаны из таких кристаллов, как иодид ртути. В настоящее время твердотельные детекторы не способны конкурировать с современными сцинтилляционными или пропорциональными детекторами ни по уровню шума, ни по динамическому диапазону, но есть надежда, что станут конкурентоспособными в будущем.

2.7.4. Позиционно-чувствительные детекторы

В обычных высокоразрешающих исследованиях детектор имеет довольно большую апертуру, как правило 5 — 25 мм. В низкоразрешающей трехосевой дифрактометрии встречаются задачи, которые можно решить при помощи позиционно-чувствительных детекторов. По существу это те же газонаполненные пропорциональные счетчики, но с определением положения импульса заряда по длине провода путем сравнения времени, затрачиваемого импульсом для достижения каждого из концов провода. И снова их скорость счета ограничена величиной $\sim 10^4$ имп./с, но разрешение по положению может достигать нескольких десятых микрометра.

2.7.5. Поправка на «мертвое время»

У верхнего конца области счетные детекторы испытывают насыщение из-за накопления импульсов из ионного каскада, сцинтиллятора или кристалла кремния. Эти импульсы имеют четкие характеристики, и статистичес-

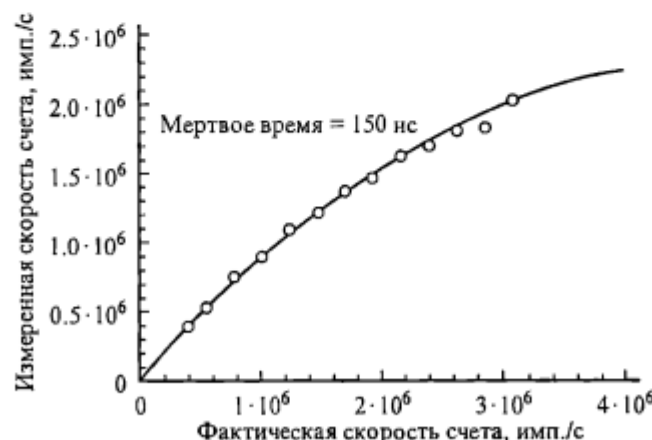


Рис. 2.25. Поведение усовершенствованного сцинтилляционного детектора при больших скоростях счета. (Из работы Кокертона и Таннера [21]).

Сплошная кривая — моделирование для запирающего детектора; точки — эксперимент.

кая обработка дает возможность провести коррекцию скорости счета на «мертвое время», в течение которого детектор не способен учесть новый импульс, потому что все еще обрабатывает предыдущий. Есть два предельных случая поведения, когда запирающийся детектор на период мертвого времени отключается полностью и по мере накопления импульсов его квантовая эффективность в конце концов уменьшается до нуля; и незапирающийся детектор, эффективность которого с ростом интенсивности уменьшается постепенно. Ниже приведены уравнения для описания этих предельных случаев:

с запиранием

$$R_{\text{изм}} = R_{\text{ист}} \exp(-R_{\text{ист}} \tau), \quad (2.9)$$

без запирания

$$R_{\text{изм}} = R_{\text{ист}} / (1 + R_{\text{ист}} \tau), \quad (2.10)$$

где $R_{\text{изм}}$ и $R_{\text{ист}}$ равны соответственно измеренной и истинной скоростям счета; τ — мертвое время, в течение которого детектор не чувствителен к новому импульсу. Реальные детекторы похожи на что-то среднее. Поэтому самый разумный подход состоит не в том, чтобы воспользоваться одной из этих простых формул, а в том, чтобы измерить кривые вроде тех, что изображены на рис. 2.25, и обработать их на основе кубического полиномиального сплайна. Таким образом можно достичь улучшения примерно в пять раз в динамической области.

2.8. Проведение эксперимента высокого разрешения

В этом разделе рассмотрены требования к полной настройке схемы и выведению образца. В зависимости от типа прибора и фирмы-изготовителя для этого существуют разные способы, и некоторые из них могут быть встроены в схему уже при изготовлении прибора. Даже если это так, пользователь поступает разумно, если спрашивает, как и с какой точностью они функционируют.

Симметричная схема, показанная, например, на рис. 2.4, представляет собой самый обычный и легкий дифракционный эксперимент, так как плоскости отражения параллельны поверхности образца, обычно это отражение 004 от пластин полупроводниковых материалов. Такой эксперимент дает сведения о деформациях в направлении, перпендикулярном поверхности, но важно отметить, что он ничего не говорит о деформации слоя в плоскости подложки. Из симметричной геометрии нельзя получить никаких данных о том, является ли слой когерентным или релаксированным. Используя брэгговские плоскости, которые не параллельны поверхности, мы измеряем деформации, параллельные поверхности, и, следовательно, можем измерить релаксацию. Это асимметричная схема, например, с отражением 224 или 113 от пластин с ориентацией (001). Только совместное использование как симметричных, так и асимметричных отражений дает наиболее полную информацию о структуре.

2.8.1. Настройка схемы эксперимента

1. Определите угол выхода пучка из окна рентгеновской трубки, который определяет размер пучка. Нужно стремиться получить пучок размером примерно 0.5×0.5 мм. Используйте максимальный угол, позволяющий достичь этого значения. Настройте схему таким образом, чтобы коллиматор пучка указывал на источник под этим углом.

2. Кристаллический коллиматор пучка может иметь небольшие настройки по углу, наклону и перемещению. Их нужно установить так, чтобы получить пучок, который

- проходит вдоль оси схемы с точностью до 0.1;
- проходит через ось образца (ω) с точностью до ~ 0.1 мм;
- параллелен каркасу дифрактометра (перпендикулярен оси ω) с точностью до ~ 0.1 ;
- максимален по интенсивности;
- содержит только $K_{\alpha 1}$ -линию.

3. Зафиксируйте все настройки с целью их сохранения.

2.8.2. Настройка образца и поиск отражения

1. Установите образец на держателе таким образом, чтобы он был нечувствителен к вибрациям и не полз, но не деформируйте его при креплении. Этого можно достичь креплением образца только в одной точке при помощи липкой ленты (которая имеется в лабораториях по выращиванию кристаллов). В некоторых дифрактометрах можно использовать кинематическую установку образца, осуществляемую под действием его собственного веса с минимальными ограничениями. В любом случае следует избегать слишком жесткого закрепления образца.

2. Убедитесь, что то место на образце, которое нужно измерить, освещено пучком. Самый лучший способ — настроить образец так, чтобы его поверхность лежала на оси ω . Для этого необходимо отрегулировать положение образца, сдвигая его в направлении, перпендикулярном поверхности, с точностью до 0.1 мм для нормальной работы и 0.01 мм или лучше — для работы в скользящей геометрии дифракции.

3. Теперь можно начать поиск симметричных отражений. Для асимметричных отражений образец следует поворачивать вокруг нормали к поверхности до тех пор, пока дифракционный вектор выбранного отражения не ляжет в плоскость падения коллиматора пучка. Обычно это поверхность дифрактометра. Чтобы найти асимметричное отражение, нужно точно знать ориентацию образца по двум осям; обычно ее определяют по положению плоского среза стороны пластины или по канавке.

4. Включите источник рентгеновских лучей и поиск пика путем ω -сканирования. Если положение пика неизвестно, то алгоритм двойного поиска, описанный в разд. 2.6.1.1, будет наиболее эффективным. Интенсивный пик хорошо виден, поэтому сканирование можно делать быстро при коротких временных интервалах счета импульсов в детекторе.

3. АНАЛИЗ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ СЛОЕВ

В этой главе мы рассматриваем измерение и анализ характеристик простых эпитаксиальных структур. Показав, как выбирать условия эксперимента, мы перейдем к определению основных параметров слоев, а именно: состава тройных соединений, несоответствия четверных, разориентации, толщины слоя, наклона, релаксации, признаков деформации, кривизны и напряжения, а также однородности по площади. Затем мы рассмотрим пределы применимости этого простого подхода.

3.1. Введение

Нет сомнений в том, что использование высокоразрешающей дифрактометрии в промышленности в значительной степени связано с исследованием эпитаксиальных структур на основе полупроводниковых соединений. Такие эпитаксиальные структуры характеризуются несоответствием параметров решетки, разориентацией, дефектностью, неоднородностью и изгибом. Все эти нарушения оказывают влияние на характеристики приборов и выход готовой продукции. Можно провести корреляцию между остаточными напряжениями и плохими характеристиками приборов или деградацией, а дислокации в границе раздела особенно опасны. В настоящее время слои соединений III и V групп почти так же совершенны, как кремний, как по концентрации дефектов, так и по однородности состава. Дефекты влияют на время жизни носителей и могут действовать как центры безызлучательной рекомбинации, а состав слоев влияет на ширину запрещенной зоны так же, как и на несоответствие параметров решетки. Поэтому на стадии разработки прибора важно установить, не мешают ли дефекты, возникшие на том или ином этапе производственного процесса, получить приемлемый выход приборов достаточно хорошего качества. Позже, в процессе изготовления, необходимо знать, находится ли процесс под соответствующим контролем.

В этой главе мы увидим, каким образом основные параметры относительно простых структур могут быть легко получены и объяснены из рентгеновских кривых качания. Назовем простыми такие структуры, которые состоят, например, из трех слоев толщиной 0.5 мкм каждый, выращенных на подложках высокого качества, дающих кривые качания почти теоретической ширины. Будучи простыми, эти структуры тем не менее составляют большой сектор производства оптоэлектронных приборов и являются, безусловно, примерами, взятыми из жизни. Рассмотрение их характеристик будет иллюстрацией многих важных принципов. В следующих главах мы разовьем методы исследования до понимания более сложных случаев.

3.2. Плосковолновая дифракция от гетероэпитаксиальных слоев

На рис. 3.1 схематически показаны дефекты, которые являются общими для эпитаксиальных структур. Несоответствие параметров решетки имеет первостепенное значение, так как само по себе является мерой деформации в слое, а также дает нам возможность определить состав тройных соединений и, следовательно, сделать заключение о ширине запрещенной зоны. Толщина слоя также является важной характеристикой, влияющей на работу приборов.

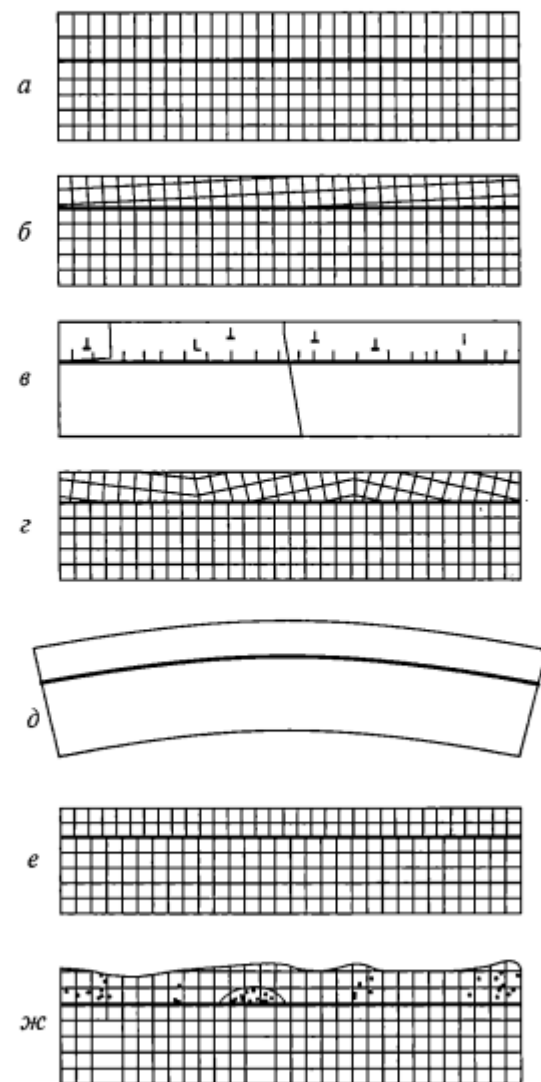


Рис. 3.1. Схематическое изображение дефектов, общих для эпитаксиальных структур.

а — несоответствие параметров решеток; б — разориентация; в — дислокации; г — мозаичность; д — кривизна; е — релаксация; ж — неоднородность.

Таблица 3.1

Влияние параметров подложки и слоя на кривые качания

Параметр материала	Влияние на кривую качания	Отличительные особенности
Несоответствие	Разделение пиков слоя и подложки	Инвариантно относительно поворота образца
Разориентация	Разделение пиков слоя и подложки	Изменяет знак при повороте образца
Дислокации	Уширяют пик	Уширение инвариантно относительно размера пучка. Пик не сдвигается при изменении положения пучка на образце
Мозаичность	Уширяет пик	Уширение может расти пропорционально площади пучка вплоть до размера ячейки мозаичности. Пик не сдвигается при изменении положения пучка на образце
Кривизна	Уширяет пик	Уширение линейно увеличивается с размером пучка. Пик систематически сдвигается вместе с изменением положения пучка на образце
Релаксация	Изменяет разделение пиков	По-разному влияет на симметричные и асимметричные отражения
Толщина	Влияет на интенсивность пика; вносит интерференционные осцилляции	Интегральная интенсивность увеличивается с толщиной вплоть до насыщения. Период осцилляций определяется толщиной
Неоднородность	Эффекты изменяются с положением на образце	Можно построить карту распределения отдельных характеристик

Представив дифракцию плоской волны от эпитаксиальных слоев, мы увидим, что в общем случае имеются различия в углах дифракции между слоем и подложкой, независимо от того, обусловлены ли они разориентацией ($\delta\theta$) или несоответствием (δd). Поэтому на кривой качания возникнут два или несколько пиков. Пики могут быть уширены за счет дефектов, если они вызывают добавочные повороты в решетке кристалла. Кроме того, из-за интерференции между волнами, рассеянными от границ раздела, появятся маленькие пики, которые будут определяться толщиной слоев. В разных областях в материале будут видны разные дефекты. Табл. 3.1 суммирует влияние наиболее важных параметров на кривые качания. Отличительные особенности каждого типа воздействия будут рассматриваться в данной главе на количественном уровне. Однако сначала нам нужно убедиться, что экспериментальное измерение спланировано правильно.

3.3. Выбор условий эксперимента

В большинстве случаев высокоразрешающую дифрактометрию используют в геометрии отражения. Материалы $A^{III}B^V$ и $A^{II}B^VI$ слишком поглощающие, чтобы их было удобно исследовать на просвет; и во всяком случае

Таблица 3.2

Экстинкционные длины для GaAs на Cu $K\alpha$ -излучении

Отражение	Угол Брэгга, град	Полуширина кривой качания	Длина экстинкции, мкм
004	33.024	5.34	7.1
044	50.420	6.80	9.5
115	45.070	2.60	21.2
224	41.873	9.50	6.5

методы на отражение дают сведения только о соответствующей приповерхностной области.

В геометрии отражения интенсивность волнового поля внутри кристалла быстро понижается с расстоянием от поверхности вследствие перекачки энергии в дифрагированный пучок.

При малых углах падения пучка на поверхность образца поглощение также начинает играть заметную роль. Путем выбора излучения и отражения (включая его симметрию) проникновение в кристалл можно изменять в пределах между ~ 0.05 и 10 мкм. Это идеально подходит для приборных структур. Проникновение измеряется длиной экстинкции ξ_g , определяемой как глубина, на которой падающая интенсивность уменьшилась до $1/e$ от своего значения у поверхности. Ее можно рассчитать из дифракционной теории, и некоторые примеры для GaAs в Cu $K\alpha$ -излучении приведены в табл. 3.2. Предполагается, что поверхность пластины имеет ориентацию (001), следовательно, отражение 004 является симметричным, а все остальные — несимметричными.

При меньших углах скольжения эффект поглощения, грубо говоря, разделяет длины экстинкции пополам. Для получения действительно коротких экстинкционных длин в характеристическом излучении есть возможность использовать косые отражения так, чтобы получить очень малые углы скольжения. Минимум проникновения в условиях дифракции получается при критическом угле полного внешнего отражения. Затем наступает очень быстрый переход к полному внешнему отражению, но пучок, конечно, «захватывает» кристалл и проникает на глубину нескольких атомных слоев. Это дает двумерную дифракцию, которая в настоящее время используется

для получения сведений о поверхностных слоях, но такие эксперименты редко предпринимают на обычных источниках рентгенов-

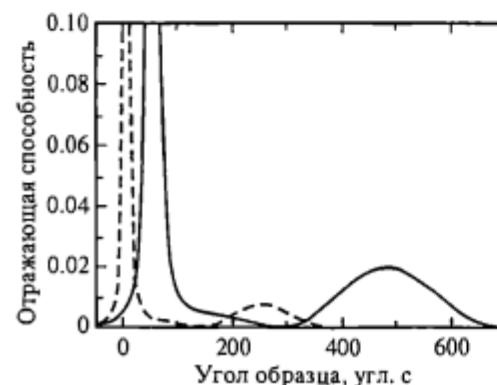


Рис. 3.2. Эффект использования геометрии скольжения падения, показанный на примере, рассчитанном для пленки $In_{0.5177}Ga_{0.4823}As$ толщиной 150 нм на подложке InP (001).

Сплошные кривые — 044 асимметричное отражение скольжения; штриховые — 004 симметричное отражение.

ских лучей. Даже в случаях более традиционных схем скользящие углы дифракции могут быть очень полезным средством исследования тонких пленок. Рис. 3.2 показывает очень сильный эффект, полученный для тонкого эпитаксиального слоя InGaAs на InP. Мы видим, что если симметричные рефлексы не используются, то излучение и отражение следует выбирать преимущественно с целью управления глубиной проникновения. Сильные отражения имеют более короткие экстинкционные длины. К сожалению, самые сильные рефлексы в решетке сфалерита, 111 и 220, недоступны в геометрии отражения для пластин с ориентацией (001) в Cu K_α -излучении, хотя они идеально подходят для геометрии прохождения.

Как показано ниже, большинство важных параметров можно извлечь из симметричных отражений. Исключение составляет измерение релаксации, т. е. степени, в которой интерфейс неидеально когерентен с подложкой. Большое несоответствие вызовет существенную деформацию в слое, которая при определенной критической толщине релаксирует с образованием дислокаций в интерфейсе. Их среднюю плотность можно точно измерить путем измерения несоответствия решетки как параллельно, так и перпендикулярно интерфейсу; для этого помимо симметричного требуется асимметричное отражение с большой составляющей вектора отражения, параллельной интерфейсу, и определение разориентации слоя относительно подложки.

Точность всех измерений улучшится, если фон (за пределами пиков) низкий. Он никогда не должен быть выше, чем несколько импульсов в секунду, если мы используем пучки размером 1×1 мм или меньше, но можно достичь значений и менее 0.1—0.2 имп./с при помощи стандартного оборудования и хорошего детектора. Для того чтобы добиться этого, существуют следующие принципы:

1. Убедитесь, что между концом коллиматора и входом детектора нет незранированного пути излучения.

2. Убедитесь, что незранированного пути нет между точкой на первом кристалле, в которую попадает первичный пучок, и входом детектора.

Поэтому узел «первый кристалл/коллиматор» должен быть окружен защитным кожухом и на пути пучка между кристаллами следует поставить щели, ограничивающие пучок. Теперь становится очевидно, что необходимо определить оптическую ось прибора и расположить поверхности первого и второго кристаллов на этой оптической оси. При использовании излучения высоких энергий может появиться необходимость в экранировании также и стенок детектора. Если проблемы остаются, то их можно преодолеть, экспериментируя с расположением экранов в соответствии с принципами, изложенными выше. Необходимо, чтобы соединение коллиматора с кожухом рентгеновской трубки было сконструировано правильно, так как оно может быть источником сильного шума. Просвинцованный плексиглас — очень полезный защитный материал, поскольку плексиглас прозрачен и поэтому удобен для настройки.

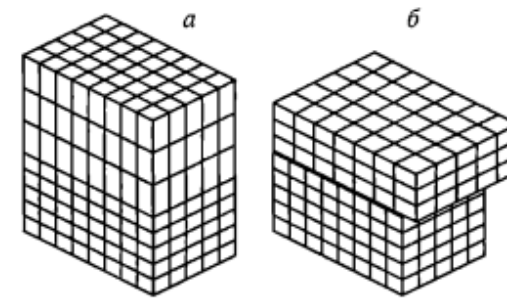


Рис. 3.3. Тетрагональная дисторсия в когерентном эпитаксиальном слое.
а — слой упруго деформирован до согласования с подложкой; б — слой полностью релаксирован.

3.4. Определение параметров слоев

Теперь допустим, что мы правильно зарегистрировали имеющиеся кривые качания и измерили подложку с единичным эпитаксиальным слоем толщиной более 0.5 мкм (и менее, скажем, 5 мкм). Измерение даст нам два пика — от слоя и от подложки. Тот же самый анализ будет применим и для нескольких пиков (за исключением пиков сверхрешеток) при условии, что они хорошо разделяются, так что интерференционные эффекты минимизированы. Основные параметры извлекают из симметричных отражений, если другое не оговорено особо. Примеры, которые мы приводим для подложек и слоев с ориентацией (001), носят достаточно общий характер (с тем ограничением, что значение коэффициента Пуассона должно строго соответствовать ориентации подложки).

3.4.1. Несоответствие параметров решетки

Измерим расстояние между пиками слоя и подложки в бездисперсионной схеме; обозначим его $\delta\theta$. Оно связано с изменением межплоскостного расстояния в направлении, *нормальном* к подложке, посредством уравнения

$$\delta d / d = -\delta \theta \operatorname{ctg} \theta. \quad (3.1)$$

Если отражение — это обычное симметричное отражение 004, то «экспериментальное рентгеновское несоответствие» равно

$$m^* = \delta a / a = \delta d / d, \quad (3.2)$$

при этом разориентация слоя относительно подложки в данный момент не учитывается. Оно получается непосредственно из измерений, без всяких дополнительных параметров или предположений. Однако оно не является тем несоответствием, которое мы измерили бы, если бы отделили слой от подложки и дали ему отрелаксировать до естественного, ненапряженного состояния. Слой упруго деформирован до соответствия с подложкой в плоскости, *параллельной* подложке, в направлениях как x , так и y , и как следствие появляется *тетрагональная дисторсия* эпитаксиального слоя, как показано на рис. 3.3.

Истинное, или релаксированное, несоответствие m определяется относительно релаксированных (т. е. нормальных табличных) параметров решетки a_l и a_s материалов слоя и подложки как:

$$m = (a_l - a_s) / a_s. \quad (3.3)$$

Его можно рассчитать посредством довольно простой теории упругости [1] как

$$m = m^* \left[(1 - \nu) / (1 + \nu) \right], \quad (3.4)$$

где ν — коэффициент Пуассона. Так как $\nu \sim 1/3$, получаем соответственно $m \sim m^*/2$ в качестве приблизительного руководства. Для точной работы нужно определить значения коэффициентов Пуассона всех составляющих, и, в принципе, они будут изменяться вместе с составом раствора.

Точность, присущая измерениям несоответствия, очень велика. Например, слой толщиной 1 мкм, который рассогласован с подложкой InP на $220 \cdot 10^{-6}$, дает расщепление пиков $28''$; его можно измерить с точностью до $\sim 2\%$, получив разрешение $4\text{—}5 \cdot 10^{-6}$. Ниже $100 \cdot 10^{-6}$ пики начинают накладываться друг на друга, но расщепление вплоть до $50 \cdot 10^{-6}$ можно обрабатывать при помощи простых методов; расщепления меньшей величины можно определить посредством компьютерного моделирования всей кривой качания, как будет показано в гл. 5.

3.4.2. Состав твердого раствора

Состав слоя тройного твердого раствора можно определить из закона Вегарда, который утверждает, что параметр решетки твердого раствора может быть получен из линейной зависимости параметра решетки от состава, если следовать линии, проведенной между значениями для чистых составляющих. Этот процесс можно автоматизировать посредством программного обеспечения, которое осуществляет все расчеты, необходимые для получения разделения пиков, релаксированного несоответствия и состава для тройных слоев. Закон Вегарда [2] первоначально был предложен для солевых пар с ионным типом связи, таких как KCl—KBr, широко был исследован для металлов, в которых он работает не слишком хорошо, и получил широкое применение для полупроводниковых соединений типа $A^{\text{III}}B^{\text{V}}$. Закон основан на упругих взаимодействиях между атомами и поэтому целесообразен в тех случаях, когда все электронные взаимодействия в ряду твердого раствора очень похожи.

Определение состава многослойных композиций на основе четверных соединений представляет значительные трудности вследствие большого количества переменных. Если состав слоев не изменяется по толщине и имеется только два типа слоев, например подложка InP и буферные слои и одно четверное соединение для активной области и верхнего слоя, то несоответствие можно получить из расщепления пиков. Однако состав не может быть получен из определения несоответствия, так как остается еще одна

степень свободы. Поэтому проведение измерения ширины запрещенной зоны при помощи фотолюминесценции плюс определение несоответствия действительно являются достаточными для установления состава.

3.4.3. Разориентация подложки

На подложках часто указан некоторый контрольный угол разориентации от плоскости (001), величину которого нужно подтвердить. Для этого требуется держатель образца, который может вращать образец вокруг нормали к поверхности. Если использовать метод вращения образца, чтобы довести отражающие плоскости образца до параллельности плоскостям кристалла-эталона, то в окончательной установке нормали к отражающим плоскостям образца и эталона и нормаль к поверхности образца будут лежать в одной плоскости. Поворот образца на следующие 180° (в другую компланарную конфигурацию) даст сдвиг в положении брэгговского пика. Он будет в точности равен удвоенному углу разориентации между отражающей плоскостью и поверхностью образца.

3.4.4. Разориентация слоя

Если слой разориентирован относительно подложки, это приведет к смещению пика слоя относительно пика подложки по причинам, не связанным с составом. Перед нами стоят две проблемы: как измерить истинные разделения пиков и как определить собственно разориентацию. Сдвиг, обусловленный разориентацией, будет изменяться вместе с абсолютным направлением падения пучка относительно подложки (т. е. в отношении вращения образца вокруг нормали к его поверхности), и посредством этого его можно отличить от разделения, вызванного несоответствием. Если образец повернуть на угол α вокруг его нормали, то смещение пика слоя от положения, которое он имел бы в отсутствие разориентации, равно $\beta \cos \alpha$, где β — угол разориентации. Из этого следует, что истинное разделение пиков, вызванное несоответствием, можно получить, поворачивая образец на 180° в его плоскости и усредняя два измерения разделения, т. е.

$$\delta\theta = (\delta\theta_0 + \delta\theta_{180}) / 2. \quad (3.5)$$

Этого недостаточно для измерения самой разориентации, так как мы не знаем, было ли наше первоначальное измерение проведено в том направлении, в котором разориентация максимальна (т. е. когда нормали к отражающим плоскостям кристалла-эталона, подложки и слоя — все компланарны). Требуется третье (по крайней мере) измерение, за которым следует подгонка трех измерений отклонения пика слоя под синусную кривую, чтобы найти максимальное отклонение, которое и является величиной разориентации. Лучше всего делать третье измерение через 90° к первому. Тогда мы имеем результаты измерений значения α , отстоящие на 0° , 90° и 180° . Мы все еще не знаем, где находится начало отсчета для α ; пусть оно

расположено в положении $-\omega$ от нашего нулевого значения α . Тогда, после того как часть разделения пиков, вызванная несоответствием, установлена так, как показано выше, мы имеем три значения разделения: Δ_0 , Δ_{90} и Δ_{180} , которые определяются через β (разориентацию) и ω (нулевое положение разориентации, когда все дифракционные векторы компланарны) следующим образом:

$$\Delta_0 = \beta \cos \omega, \quad (3.6)$$

$$\Delta_{90} = \beta \cos (90 + \omega) = -\beta \sin \omega, \quad (3.7)$$

$$\Delta_{180} = \beta \cos (180 + \omega) = -\beta \cos \omega, \quad (3.8)$$

затем из (3.6) и (3.7) получим

$$\operatorname{tg} \omega = \Delta_{90} / \Delta_0, \quad (3.9)$$

что и определяет ω . Затем разориентацию β можно найти путем подстановки ω в любое из этих уравнений.

3.4.5. Плотность дислокаций

Дислокации обычно присутствуют в двух областях. Слой с большим несоответствием может релаксировать, и тогда на интерфейсе возникают дислокации, чтобы снять деформацию. Поэтому на интерфейсе наблюдают сетку дислокаций. Скользящие дислокации могут зарождаться путем локальной пластической деформации, обусловленной термическими или механическими напряжениями, и распространяться по объему слоя. Кроме того, дислокации в слое могут зарождаться в процессе его роста, например быть связанными с включениями.

Дислокации на интерфейсе снимают напряжения между слоем и подложкой, что приводит к сдвигам положений пиков в асимметричных отражениях, которые будут рассмотрены ниже. По мере того как структуры становятся более сложными, все труднее понять, какие эффекты можно приписать релаксации на интерфейсе, а какие — собственно структуре слоя. Поэтому часто очень полезно применить топографию, чтобы увидеть дислокации непосредственно, как будет показано в гл. 8—10. С другой стороны, дислокации внутри эпитаксиального слоя могут иметь любые возможные векторы Бюргерса и в среднем содержать приблизительно равное количество векторов каждого знака. Дислокации не сдвигают кривую качания, но они ее уширяют и приносят диффузное рассеяние. Простая модель уширения была предложена Хиршем [3], который показал, что разумная оценка плотности дислокаций ρ это

$$\rho = \frac{\beta^2}{9b^2} [\text{см}^{-2}], \quad (3.10)$$

где β — уширение кривой качания, в радианах; b — вектор Бюргерса, в

сантиметрах. Каганер [4] с коллегами недавно опубликовал существенно лучшую количественную модель уширения.

Диффузное рассеяние возникает потому, что дислокации — это дефекты, которые вызывают локальные повороты решетки во всех направлениях. Это приводит к рассеянию от областей вблизи ядер дислокаций, которое не распространяется в том же направлении, что и дифракция от объема кристалла. Вклад рассеяния чисто кинематический (он изменяет интенсивность, а не амплитуду), и в результате формируется широкий низкий пик, центр которого должен совпадать с пиком Брэгга для слоя с дислокациями или подложки, поскольку все локальные развороты симметричны относительно ненарушенной решетки. Мы можем вполне удовлетворительно описать диффузное рассеяние при помощи функций Гаусса или Лоренца в виде

$$I = \frac{A}{k^2 + \Delta\theta^2}. \quad (3.11)$$

Следующий эффект, который можно видеть в толстых слоях с большим несоответствием, например в GaAs на Si, состоит в уменьшении плотности дислокаций от интерфейса к поверхности, что в конечном счете является целью, к которой стремятся специалисты по выращиванию кристаллов; вследствие этого эффекта кривые качания трудно моделировать. Тем не менее уменьшение плотности дислокаций можно заметить при помощи двух измерений, в одном из которых используется обычное симметричное отражение 004, а в другом — сильно асимметричное, ограничивающее проникновение лучей пределами области, очень близкой к поверхности [5]. Если плотность дислокаций действительно уменьшается по направлению к поверхности, то в этом случае кривые качания, полученные в условиях меньшей длины экстинкции (и при такой же измеряемой площади), покажут меньшее уширение.

3.4.6. Кривизна и мозаичность

Если образец изогнут, то изменение в угле от одного края пучка к другому будет влиять на кривую качания и она уширится. Расчет этого эффекта очень простой. Пусть радиус кривизны образца равен R и диаметр пучка равен s . Тогда изменение в угле падения поперек пучка будет s/R , как изображено на рис. 3.4. Для стандартных измерений мы хотим, чтобы уширение составляло малую долю ширины собственной кривой качания; в случае материалов $A^{III}B^V$ мы могли бы принять его равным $\sim 2''$, или 10^{-5} рад, что составляет 10—15 % собственной ширины для $\text{Cu K}\alpha$ -излучения. Если диаметр пучка равен 1 мм, то наш критерий удовлетворяется для образца с радиусом кривизны не менее 100 м (табл. 3.3). То, что это не



Рис. 3.4. Изменение угла падения поперек пучка на искривленном образце.

Таблица 3.3

Влияние кривизны на уширение кривых качания

Размер пучка, мм	Радиус кривизны, м	Уширение, угл. с
5	100	10
5	20	50
1	100	2
1	20	10
0.5	100	1
0.5	20	5

всегда справедливо, подчеркивает необходимость использования пучков малой площади тогда, когда нужно получить точные значения ширины двухосевых кривых качания для напряженных образцов, хотя кривизна и не влияет на расщепление.

Кривизну можно скомпенсировать в процессе теоретического моделирования кривой качания. Если профиль пучка квадратный, то в этом случае кривая качания получается путем свертки с функцией ограниченного объема, ширина которой равна угловому изменению поперек пучка, и обычно такое приближение вполне удовлетворительно. Однако следствием свертки будет потеря некоторой информации: например, тонкая структура интерференционных осцилляций будет размыта.

Кривизна для данного несоответствия меньше сказывается на малых образцах, чем на целых пластинах, поэтому если есть подозрения на напряжение и нужно выявить детали, то измерение можно повторить, отколов часть пластины и взяв ее в качестве образца.

Собственно кривизну довольно легко измерить, транслируя образец на расстояние x параллельно самому себе вдоль диаметра (подразумевается, что пластина круглая), повторяя измерение и фиксируя сдвиг $\delta\theta$ в абсолютном положении брэгговского пика. Тогда снова

$$R = s / \delta\theta. \quad (3.12)$$

Этим способом измеряют кривизну вокруг оси, перпендикулярной плоскости дисперсии, т. е. цилиндрическую кривизну, и может оказаться, что необходимо повернуть пластину на 90° , чтобы получить ортогональную компоненту. Кривизну можно связать со средним напряжением в пластине, когда известны ее толщина, диаметр и модуль упругости. Самый точный метод состоит в том, чтобы измерить несколько точек на пластине и воспользоваться формулой линейной регрессии для определения средней кривизны.

Повернув образец (рис. 3.5), мы получаем:

$$s = x \cos \alpha + y \sin \alpha, \quad (3.13)$$

$$\theta_{\text{полл}} = \left[\frac{1}{R} \right] s + \theta_0. \quad (3.14)$$

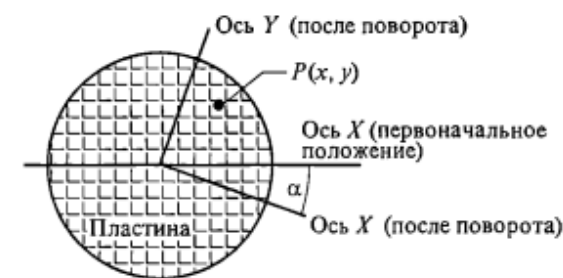


Рис. 3.5. Проекция измеренных точек на плоскость дисперсии.

Величины $\theta_{\text{полл}}$ и s обрабатывают при помощи линейной регрессии (метод наименьших квадратов) и получают величину $1/R$. Разности в измерениях дают однородность кривизны.

3.4.7. Релаксация

Уравнение (3.4) содержит допущение, что интерфейс полностью когерентен. Если интерфейс только частично когерентен, т. е. содержит дислокации несоответствия, то говорят, что интерфейс релаксированный и уравнение (3.4) не имеет силы для определения релаксированного несоответствия. Обратите внимание на две разные трактовки слова «релаксированный» в последнем предложении! Необходимо измерить несоответствие, параллельное интерфейсу, так же как и перпендикулярное интерфейсу. Для этого нам нужно асимметричное отражение, которое составляет как можно больший угол с поверхностью: отражения 224 и 113 оба присмлемы.

На рис. 3.6 показаны когерентный и релаксированный слои, и ясно видно, что и несоответствие, и разориентация изменяются между слоем и подложкой. *Тетрагональная дисторсия* изменяется. Из уравнений (3.6) и (3.9) ясно, что влияние наклона на разделение пиков обращается, если повернуть образец на 180° вокруг нормали к его поверхности; но разделение, обусловленное несоответствием, при таком повороте не изменится. Поэтому, для того чтобы отделить наклон от истинного разделения, мы можем провести измерения в геометрии скользящего падения или скользящего отражения (рис. 3.7).

Полученные в результате значения разделений пиков $\delta\theta_{\text{пад}}$ и $\delta\theta_{\text{отр}}$ теперь различаются в этих двух геометриях:

для скользящего падения

$$\Delta\theta_{\text{пад}} = \delta\theta + \delta\phi, \quad (3.15)$$

для скользящего отражения

$$\Delta\theta_{\text{отр}} = \delta\theta - \delta\phi. \quad (3.16)$$

Тем самым мы можем определить $\delta\theta$ и $\delta\phi$ независимо. Нам нужно знать параметр решетки слоя параллельно и перпендикулярно подложке, т. е. *in*

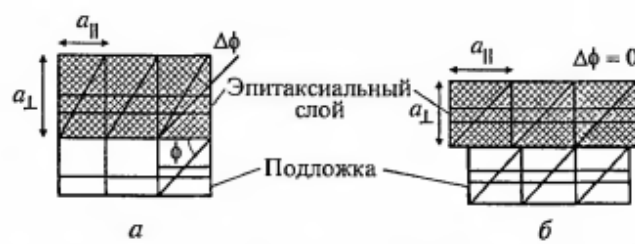


Рис. 3.6. Вид сбоку на эпитаксиальные слои: полностью когерентный (а) и полностью релаксированный (б). (С разрешения К. М. Мэтти).

Процесс релаксации изменяет как межплоскостные расстояния в эпитаксиальном слое, так и углы между отражающими плоскостями и поверхностью.

situ параметры элементарной ячейки слоя a_s , b_s и c_s . Из них мы можем рассчитать релаксацию и (с учетом коэффициента Пуассона) определить параметр полностью релаксированной решетки эпитаксиального слоя. Пусть параметр (кубической) решетки подложки равен a_s ; пусть h , k , l — индексы (асимметричного) отражения; λ — длина волны; θ — угол Брэгга; ϕ — угол между отражающей плоскостью и поверхностью, а нижние индексы s и l и в этом случае относятся к подложке и слою.

Сначала мы рассмотрим случай, когда релаксация симметрична, т. е. дисторсия тетрагональна и $a_l = b_l$. Мы знаем λ , θ_s и ϕ_s , поэтому с помощью уравнений (3.10) и (3.11) мы можем вычислить

$$\theta_l = \theta_s + \delta\theta, \quad (3.17)$$

$$\phi_l = \phi_s + \delta\phi. \quad (3.18)$$

Из уравнения для межплоскостного расстояния в тетрагональных кристаллах

$$\frac{1}{d_{hkl}^2} = \frac{h^2 + k^2}{a_l^2} + \frac{l^2}{c_l^2} \quad (3.19)$$

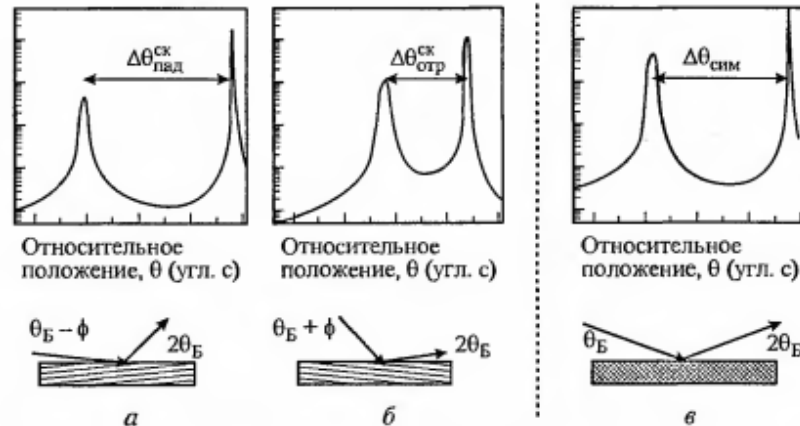


Рис. 3.7. Геометрия скользкого падения (а) и скользкого отражения (б); в — симметричное сканирование. (С разрешения К. М. Мэтти).

и закона Брэгга мы получаем:

$$\frac{4 \sin^2 \theta_l}{\lambda^2} = \frac{h^2 + k^2}{a_l^2} + \frac{l^2}{c_l^2}. \quad (3.20)$$

Предполагая, что поверхность кристалла 001, мы используем формулу для углов между плоскостями в тетрагональных кристаллах, чтобы получить

$$\sec^2 \phi_l = \frac{c_l^2}{l^2} \left(\frac{h^2 + k^2}{a_l^2} + \frac{l^2}{c_l^2} \right). \quad (3.21)$$

Уравнения (3.16) и (3.17) мы можем решить для постоянных ячейки слоя:

$$c_l = \frac{l \lambda}{2 \sin \theta_l \cos \phi_l}, \quad (3.22)$$

$$a_l = \frac{l \lambda}{2 \sin \theta_l} \sqrt{\frac{h^2 + k^2}{l^2}}. \quad (3.23)$$

Точность c_l можно сопоставить с измерением симметричного отражения 001. Релаксация R (%) определяется как

$$R = \frac{a_l^R - a_s}{a_l^R - a_s} \cdot 100, \quad (3.24)$$

где a_l^R — полностью релаксированный параметр (кубической) решетки эпитаксиального слоя. Мы можем найти его, если знаем коэффициент Пуассона слоя ν , так как для любого слоя, деформированного в двух компланарных направлениях ϵ_{xx} и ϵ_{yy} , вертикальная деформация получается из соотношения [1]

$$\epsilon_{zz} = -(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) \left(\frac{\nu}{1 - \nu} \right). \quad (3.25)$$

Так как $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = (a_l^R - a_l) / a_l^R$ и $c_l = a_l^R (1 + \epsilon_{zz})$, то

$$c_l = a_l^R \left[1 - \frac{2(a_l^R - a_l)}{a_l^R} \right] \left(\frac{\nu}{1 - \nu} \right), \quad (3.26)$$

$$a_l^R = \frac{c_l - 2a_l \left(\frac{\nu}{1 - \nu} \right)}{1 - 2 \left(\frac{\nu}{1 - \nu} \right)}. \quad (3.27)$$

Полностью релаксированный параметр слоя a_l^R — это значение, которое мы должны использовать в законе Вегарда, чтобы найти состав эпитаксиального слоя.

Если мы уверены, что плоскости (001) в слое и подложке остаются параллельными, что разумно, если поверхность подложки срезана параллельно (001), но неразумно, если она срезана под наклоном, то мы можем, в принципе, извлечь величину релаксации непосредственно из симметричного отражения и отражения скользящего падения без использования скользящего отражения. Это может сэкономить время измерения при проведении контроля качества. Вывод выражения довольно длинный, но простой. Симметричное отражение дает параметр решетки слоя c_l . Находим выражения для $\delta\theta$ и $\delta\phi$ через параметры решетки подложки и c_l , используя формулы для межплоскостных расстояний и углов тетрагональной решетки. Решаем их относительно a_l , что дает

$$a_l = \frac{\sqrt{(h^2 + k^2) c^2}}{\sqrt{\left[l \operatorname{cosec} \phi - \frac{c \operatorname{tg} \theta \sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}{a_s} \right] \Delta\theta - \operatorname{tg} \theta + \operatorname{ctg} \phi}} - l^2, \quad (3.28)$$

и затем продолжаем, как прежде. Это уравнение, которое публикуется впервые, содержит предположения, что $\delta\theta$ и $\delta\phi$ малы, а если это не так, то решение, найденное итерационным путем, предпочтительнее [5]. Начиная с известного c_l и значения a_l , полученного из уравнения (3.27), рассчитываем $\Delta\theta$ и повторяем вычисление a_l до тех пор, пока согласие с экспериментальным $\Delta\theta$ не станет хорошим.

После того как параллельное несоответствие определено, можно получить некоторые данные о средней плотности дислокаций несоответствия на интерфейсе. У нас нет возможности провести однозначное определение типов присутствующих дислокаций, так как дислокации разных типов могут объединяться и давать одинаковую деформацию. Тем не менее параллельное несоответствие полностью обусловлено плотностью дислокаций на интерфейсе (или очень близко от него), и поэтому

$$\frac{a_l - a_s}{a_s} = \frac{b}{s}, \quad (3.29)$$

где b — величина вектора Бюргерса дислокаций на интерфейсе в проекции на направление, заданное пересечением плоскости падения с интерфейсом; s — расстояние между ними в том же направлении. Если природа дислокаций известна, например из электронной микроскопии или рентгеновской топографии, и получены два асимметричных отражения, то общую плотность дислокаций на интерфейсе можно определить однозначно.

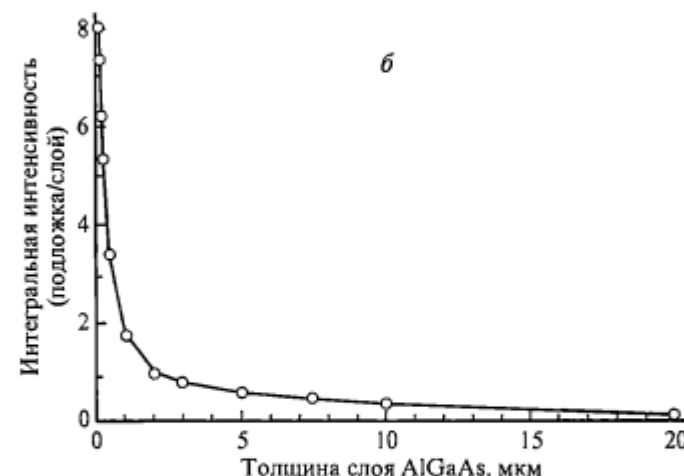
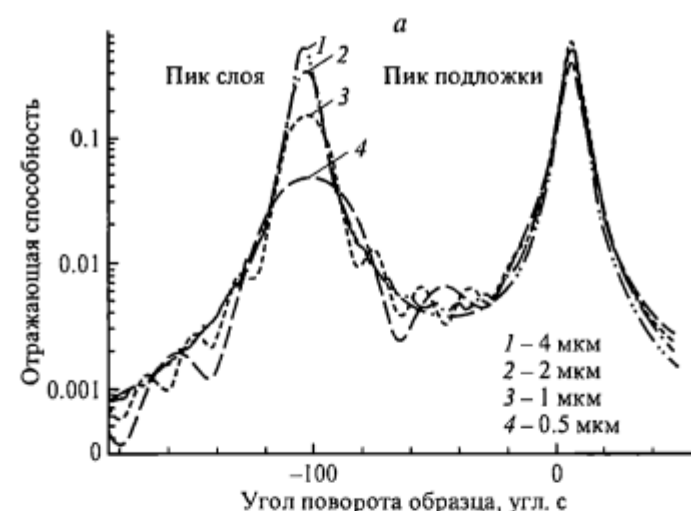


Рис. 3.8. Влияние толщины на пиковую интенсивность слоя.

а — кривые качания; б — отношение интегральных интенсивностей пиков подложки и эпитаксиального слоя. Расчетные кривые для слоя $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ на подложке GaAs. Cu K_α -излучение, отражение 004.

3.4.8. Толщина

Толщина слоя определяет относительную интенсивность пиков слоя и подложки. И в этом случае при условии, что структура простая (в следующих главах рассматриваются ситуации, для которых это не так), интенсивность пика слоя монотонно увеличивается с толщиной. Соответствующие значения интенсивности пиков, определяемые либо эмпирическим путем, либо с помощью компьютерного расчета, и калибровочная постоянная будут зависеть от особенностей измеряемой системы. Пример показан на рис. 3.8.

Подходящая величина для измерения интенсивности — это интегральная интенсивность, определяемая площадью под пиком, а не пиковая интенсивность. Это можно объяснить тем, что она меньше подвержена изменениям под влиянием структуры материала. Если присутствует много дислокаций, например в деформированном материале, таком как слой InGaAs средней толщины на GaAs, то пик слоя в этом случае будет низким и уширенным, но интегральная интенсивность в первом приближении будет той же самой. Измерение интегральной интенсивности не всегда возможно, когда пики находятся близко друг к другу. Измерение интегральной интенсивности проводится вплоть до хвостов пика, где она сливается с фоном. Очевидно, что более точные значения получатся, если фон низкий, и это придает особый смысл использованию хорошего экспериментального оборудования.

Кривые качания на рис. 3.8 показывают малые периодические осцилляции, расположенные около пика слоя. Они называются *толщинными осцилляциями* и представляют собой очень хороший способ измерения толщины слоя. Самый точный способ — это компьютерное моделирование (гл. 5), однако часто моделирование начинают с того, что измеряют разделение интерференционных пиков $\Delta\theta_p$, которое получается из уравнения

$$\Delta\theta_p = \frac{\lambda \gamma_g}{t \sin 2\theta}, \quad (3.30)$$

где λ — длина волны; t — толщина; γ_g — косинус угла между дифрагированным пучком и внутренней нормалью к поверхности. Для геометрии отражения выражение принимает вид

$$\Delta\theta_p = \frac{\lambda \sin(\theta \pm \phi)}{t \sin 2\theta}, \quad (3.31)$$

где ϕ — это снова угол между отражающей плоскостью и поверхностью; положительный знак (+) относится к скользящему падению, а отрицательный (−) — к скользящему отражению. Для обычного симметричного случая мы можем упростить и преобразовать выражение, получив

$$t = \frac{\lambda}{2\Delta\theta_p \cos \theta}. \quad (3.32)$$

Этот очень полезный метод имеет также то преимущество, что уравнения не содержат никаких сведений о материале или дифракционных условиях, помимо угла Брэгга и геометрии. Независимость от параметров конкретного материала возникает потому, что коэффициент преломления рентгеновских лучей очень близок к единице. Эти уравнения, конечно, аналогичны уравнениям для оптической интерференции от тонких пленок, так как физика явлений одинакова, но в оптике нам действительно необходимо знать коэффициент преломления.

Таблица 3.4

Сравнение результатов лучшего фурье-анализа со структурой образца [7]

Образец	Толщина слоя (по моделированию кривых качания)	Толщина слоя (по преобразованию Фурье)
GaAs	550 Å	(990 ± 20) Å
Al _{0.18} Ga _{0.82} As	400 Å	(1100 ± 20) Å
In _{0.13} Ga _{0.87} As	180 Å	

Если слоев больше, чем один, то будут наблюдаться интерференционные осцилляции от каждого из них. Если толщины слоев отличаются, то взаимное наложение осцилляций вызовет биения. Могут возникнуть очень сложные картины, как например в случае структуры транзистора с высокой подвижностью электронов (HEMT), моделирование которой будет рассмотрено в гл. 5.

Новички в данной области часто полагают, что простого фурье-анализа будет достаточно, чтобы вытащить периодичности автоматически. Это, однако, совсем не простая задача, как было показано в работе Хадсона, Таннера и Бланта [7]. Здесь существует две проблемы. Одна из них заключается в том, что интерференционные осцилляции очень слабые и почти не поддаются наблюдению. Поэтому интенсивность фурье-пика низкая и может быть скрыта под шумом. Необходим детектор с низким уровнем шума. Вторая проблема состоит в том, что в преобразовании абсолютно преобладает острый пик от подложки, который, конечно, оставляет интенсивность повсюду в фурье-пространстве и маскирует любую другую модуляцию. Метод, который оказался наиболее успешным, состоял в следующем.

1. Удаляем пик подложки с кривой качания: на практике обрезаем кривую качания и изучаем только одну сторону.
2. Из средних значений кривой определяем «фон» для толщинных осцилляций и определяем данные сглаженной кривой.
3. Вычитаем остаточный фон.
4. Осуществляем автокорреляцию обработанной кривой.
5. Осуществляем преобразование Фурье.

Результаты анализа показаны в табл. 3.4. Можно видеть, что хотя некоторые из периодичностей извлечены, но они обусловлены разностными частотами или биениями и не соответствуют ни одному отдельному слою. Можно сделать вывод, что фурье-анализ, применяемый совместно с вышеописанной методикой, оказывает сильную поддержку опытному исследователю, но он еще не подходит для автоматизированного анализа.

Были исследованы возможности более сложных интегральных преобразований, например двумерного преобразования Вигнера [8], но пока безрезультатно. При таком преобразовании даже самые превосходные данные приобретают слишком сильный разброс и шум, а следовательно, не являются достаточно надежными.

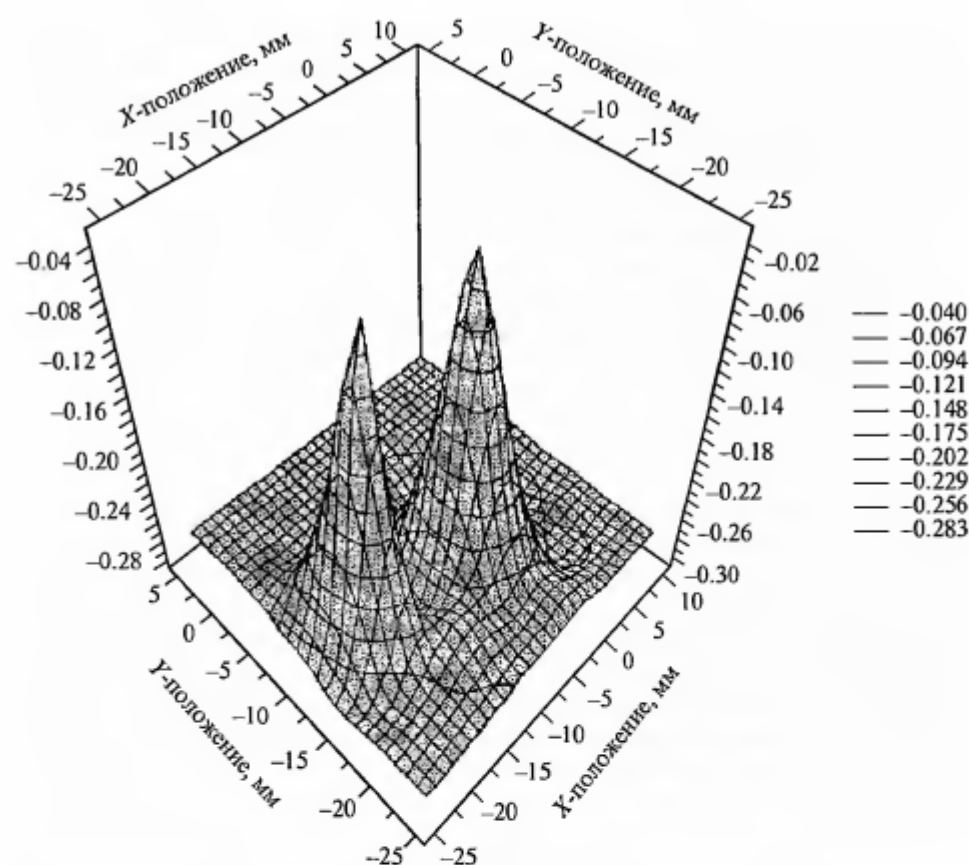


Рис. 3.9. Построение в виде сетки, показывающее изменение содержания In в слое InAlAs на подложке GaAs. (С разрешения Т. Лаффорда).

3.4.9. Однородность по площади

Что бы ни утверждали специалисты по выращиванию кристаллов, эпитаксиальные слои неоднородны по площади. Один процент соответствия считается очень хорошим. Поэтому необходимо, чтобы каждое измерение повторялось в нескольких точках по каждой пластине. Сетка 9×9 мм по площади трехдюймовой пластины считается полной, хотя и сетки 3×3 мм часто бывает вполне достаточно. Ясно, что автоматизированный сбор данных по такой сетке — это большая помощь. На рис. 3.9 изображена «карта пластины», построенная в виде сетки на поверхности. Это построение применимо к любому параметру, который можно количественно определить из кривой качания.

3.4.10. Ограничения и проблемы

На протяжении всей этой главы мы стояли на точке зрения «интенсивности», которая требует, чтобы частоты хорошо разделялись и взаимодей-

ствие между ними было минимальным. Мы показали, что таким путем можно извлечь очень много данных. Но истинная физика волн, конечно же, должна рассматривать амплитуду, а не интенсивность, и нам следует ожидать, что в определенных ситуациях интерференционные эффекты являются определяющими. К таким ситуациям относятся случаи:

- тонких слоев, скажем, менее 0.5 мкм;
- малых несоответствий, так что пики покрывают друг друга;
- множественных пиков;
- сверхрешеток.

Чтобы анализировать эти случаи, требуется компьютерное моделирование, которое будет рассмотрено в следующих главах.

3.5. Заключение

В этой главе мы увидели, какие данные можно извлечь непосредственно из кривых качания в отсутствие компьютерного моделирования, что позволит в дальнейшем провести еще более подробные исследования. Кроме того, данный подход имеет непосредственное практическое применение в полупроводниковой промышленности, так как большинство рассмотренных методов можно автоматизировать и использовать для очень быстрого анализа при проведении контроля качества. Эти методы превосходно подходят для того, чтобы измерять и анализировать состав тройного твердого раствора автоматически, быстрее чем за 30 с.

Литература

1. Landau L. D., Lifschitz E. M. Elasticity. Oxford: Pergamon, 1972.
2. Vegard L. // Z. Phys. 1921. Bd 5. P. 17.
3. Hirsch P. B. Mosaic structure // Progress in metal physics / Eds B. Chalmers, R. King. New York: Pergamon, 1956. Ch. 6.
4. Kaganer V. M., Köhler R., Schmidbauer M., Opitz R., Jenischen B. // Phys. Rev. 1973 (1997). Bd 55.
5. Lee J. W., Bowen D. K., Salerno J. P. // Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 1987. Vol. 91. P. 193—198.
6. Matney K. M. // Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 1995. Vol. 379. P. 257.
7. Hudson J. M., Tanner B. K., Blunt R. // Advan. X-ray Anal. 1994. Vol. 37. P. 135.
8. Clinciu R. MSc thesis. University of Warwick, 1992.

4. ТЕОРИЯ РАССЕЯНИЯ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ

В этой главе мы сначала расширим наши представления о кинематической теории, рассмотрим интенсивность рентгеновских отражений, запрещенные отражения, решение для тонкого кристалла, аномальную дисперсию и геометрию обратного пространства. Затем проведем анализ результатов динамической теории, рассмотрим параметры отклонения, дисперсионную поверхность и ее геометрию, граничные условия, области брэгговских отражений, поляризацию, формулы для интенсивности и глубины проникновения. Мы кратко остановимся на теории в приближении падающей сферической волны и теории Пеннинга—Полдера для нарушенных кристаллов. В конце главы мы дадим сводку полезных формул.

4.1. Введение

Теория рассеяния рентгеновских лучей очень хорошо разработана для практического применения! Это точная теория, основанная на немногих глубоких положениях, и с помощью персональных компьютеров ее можно использовать для определения структуры перспективных промышленных материалов и тем самым содействовать их разработке и контролю их качества. Поэтому исследователи или инженеры, хорошо овладевшие этой теорией, будут способны лучше планировать измерения и более точно объяснять их результаты.

Дать полный вывод теории рассеяния рентгеновских лучей не входит в наши планы, так как это интересно главным образом специалистам и может быть найдено во множестве блестящих книг и обзоров. Исследователь нуждается в качественном понимании теории для того, чтобы оценить основные особенности схемы эксперимента и объяснить кривые качания высокого разрешения и рентгеновские изображения. Он нуждается также в таких данных, как ширина идеальных кривых качания или глубина проникновения рентгеновских лучей для конкретного образца. Поэтому ограничимся объяснением тех положений теории, которые нужны для понимания следующих глав этой книги, и дадим сводку основных формул.

Традиционный подход к теории рассеяния рентгеновских лучей, который в то же время полезен с практической точки зрения, состоит в рассмотрении процесса рассеяния на двух уровнях — так называемых *кинематической* и *динамической теорий*. Более простая кинематическая теория предполагает, что незначительное количество энергии переносится в дифрагированный пучок, вследствие чего эффектами многократного рассеяния можно пренебречь. Это довольно точное приближение для описания геометрии дифракции во всех случаях, и в разумных пределах оно также довольно точно описывает интенсивности, когда рассеяние очень слабое. Примерами слабого рассеяния являются рассеяние тонкими кристаллами, рассеяние поверхностью и диффузное рассеяние. Когда рассеяние сильное,

это приближение не работает, как например при расчете интенсивностей дифракционных отражений и ширины кривых качания почти совершенных кристаллов. Примерами таких кристаллов являются многие полупроводниковые структуры, применяемые в промышленности; таким образом, легко видеть, почему для их исследования мы должны использовать динамическую теорию. К счастью, многие понятия кинематической теории, такие как структурный фактор и геометрия дифракции, используются также и в динамической теории.

4.2. Кинематическая теория

4.2.1. Структурный фактор

Мы начали рассматривать кинематическую теорию в первой главе и показали, как суммирование рассеяния от атомов с учетом фазы даст рассеяние от элементарной ячейки, т. е. структурный фактор. Повторим еще раз это важное уравнение. Структурный фактор для отражения hkl равен

$$F_{hkl} = \sum_i f_i \exp \left[-2\pi i (hu + kv + lw) \right], \quad (4.1)$$

где (u, v, w) — долевые координаты вектора $\mathbf{r}$, направленного из начала координат элементарной ячейки к атому типа i с атомным фактором рассеяния f_i , и суммирование проводится по всем атомам в элементарной ячейке. Посмотрим на это уравнение более внимательно и обсудим предположения, сделанные при его получении. Вот они:

1. Интенсивность рассеяния очень мала. Потеря интенсивности из-за повторного рассеяния незначительна, и поэтому коэффициент преломления равен 1.

2. Точка наблюдения находится на расстоянии, существенно превышающем размеры любого рассеивающего объема, освещаемого когерентным потоком.

3. Волны, рассеянные различными атомами, почти параллельны. Мы представим их одним волновым вектором $\mathbf{k}_d$.

Условия 2 и 3 эквивалентны приближениям Фраунгофера или дальнего поля в обычной оптике. Размер когерентно освещаемой области, который можно получить при помощи лабораторных источников рентгеновских лучей, в поперечнике составляет несколько микрон. Поэтому можно ожидать, что данная теория будет применима в тех случаях, когда рассеяние слабое, но при сильном рассеянии ее расхождение с результатами эксперимента будет значительным.

Факторы атомного рассеяния f_i обычно рассчитывают, исходя из рассеяния одним свободным электроном. Электроны при этом рассматриваются как классические осцилляторы, так как предполагается, что электрон является свободной заряженной частицей. Под влиянием электромагнитного поля падающего рентгеновского излучения электрон приходит в состояние вынужденного колебания и сам начинает излучать во всех направлениях с той же частотой, что и частота падающей волны. Это называется упругим,

или томпсоновским, рассеянием. Для рентгеновского пучка отношение интенсивности I , рассеянной одним электроном в пределах угла 2θ , к падающей интенсивности I_0 равно

$$\frac{I}{I_0} = \frac{C^2 r_e^2}{R^2}, \quad (4.2)$$

где R — расстояние от частицы до точки наблюдения; r_e (так называемый классический радиус электрона) равен (в единицах СГС, в которых теория выражается компактно)

$$r_e = \frac{e}{mc^2}, \quad (4.3)$$

где e — заряд электрона, m — его масса покоя и c — скорость света; C — фактор, зависящий от состояния поляризации. Если электрический вектор рентгеновской волны перпендикулярен плоскости дисперсии, то $C = 1$; это так называемая σ -поляризация. Для π -поляризации, при которой электрический вектор параллелен плоскости дисперсии, $C = \cos 2\theta$. Для отдельного электрона угловая зависимость рассеянной интенсивности возникает благодаря этому поляризационному члену. То, что электроны в твердом теле не являются классическими осцилляторами, не имеет значения, так как электрон — это только единица отсчета и такое рассмотрение позволяет проявиться состоянию поляризации. На самом деле поведение электронов в атоме по отношению к упругому рассеянию рентгеновских лучей удивительно похоже на поведение классических осцилляторов. Если бы все электроны атома были сосредоточены в одной точке, то мы бы просто умножили фактор электронного рассеяния на атомный номер Z и получили фактор атомного рассеяния f_i . Это — хорошее приближение, когда угол рассеяния 2θ мал, и поэтому все электроны рассеивают почти в фазе. Однако атомы имеют конечные размеры, соизмеримые с длинами волн рентгеновских лучей, и когда $2\theta \neq 0$, мы должны суммировать с учетом фазы, т. е. так, как мы суммировали рассеяние атомов с учетом фазы, чтобы получить структурный фактор, описываемый уравнением (4.1). Мы приходим к похожему уравнению для фактора атомного рассеяния, но так как распределение электронов непрерывно, то мы представим его в интегральном виде, а не в виде суммы. В единицах f_i или в *электронных единицах* (и поэтому не имеющий размерности), атомный фактор равен

$$f_i = \int_V \rho(r) \exp(2\pi i \mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}) dV. \quad (4.4)$$

Вектор рассеяния $\mathbf{Q} = \mathbf{k}_h - \mathbf{k}_0$, где $\mathbf{k}_0$ — вектор падающего пучка; $\mathbf{k}_h$ — вектор рассеянного пучка; он показан на рис. 4.1.

Из рис. 4.1 следует, что модуль вектора рассеяния Q получается из выражения

$$Q = \frac{2 \sin \theta}{\lambda}. \quad (4.5)$$

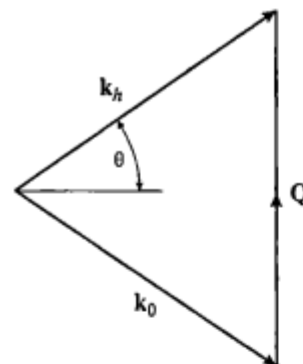


Рис. 4.1. Соотношение между вектором падающего пучка $\mathbf{k}_0$, вектором рассеянного пучка $\mathbf{k}_h$ и вектором рассеяния $\mathbf{Q}$.

Направления векторов соответствуют их действительным направлениям, а величины k_0 и k_h равны $1/\lambda$.

В уравнении (4.4) $\rho(r) dV$ — это вероятность того, что электрон в атоме находится внутри элемента объема dV на расстоянии r от ядра; $\rho(r)$ — это плотность вероятности электрона, измеримая величина, имеющая важное значение. Поэтому амплитуда рассеяния равна преобразованию Фурье электронной плотности. Теперь видно, что для данного атома фактор атомного рассеяния зависит только от Q . Зависимость атомного фактора от угла рассеяния имеет важное значение; она показана на рис. 4.2.

4.2.2. Интенсивность рентгеновских отражений

Лучшими уравнениями для интенсивности являются уравнения динамической теории, но и кинематическая теория может быть полезна тем, что дает нам некоторое понимание, основанное на простой идее, согласно которой интенсивность рассеяния монотонно возрастает с увеличением структурного фактора, описываемого уравнением (4.1). Структурные факторы отражений для различных структур с кубической решеткой показаны в табл. 4.1 Отметим, что структурные факторы могут быть комплексными величинами, но это зависит от выбора начала координат элементарной ячейки. Формулы для интенсивности всегда содержат модуль структурного фактора $|F_h| = \sqrt{F_h F_h^*} = \sqrt{F_h F_{\bar{h}}}$ (или его эквивалент, выраженный через поляризуемость, например $\sqrt{\chi_h \chi_{\bar{h}}}$), а также величину $1/V$, где V — объем

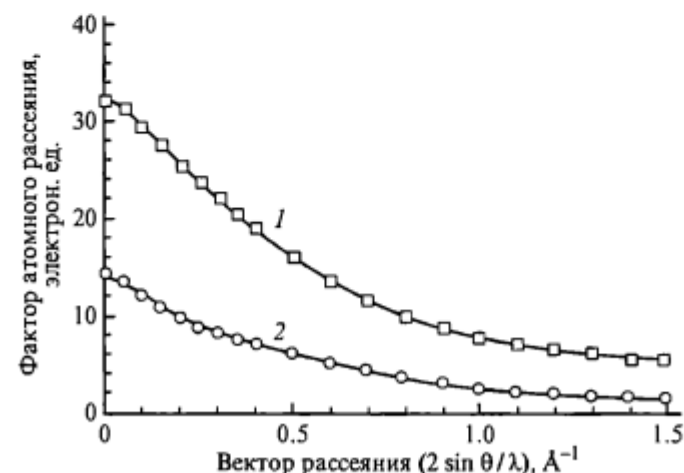


Рис. 4.2. Зависимость фактора атомного рассеяния f_i от угла рассеяния 2θ . Значения: 1 — для германия ($Z = 32$); 2 — для кремния ($Z = 14$).

Таблица 4.1

Значения $|F_{hkl}|$ для ряда полезных отражений от структур с кубической решеткой. (Примеры даны для величин $|F_{hkl}|/V$, имеющих размерность [электрон. ед./Å] для одного кристалла каждого типа)

Отражение	ГЦК	Al	Алмаз, кубическая	Si	Сфалерит	GaAs
001	0	0	0	0	0	0
002	4f	0.41	0	0	4(f ₁ - f ₂)	0.05
004	4f	0.28	8f	0.39	4(f ₁ + f ₂)	1.02
111	4f	0.43	5.66f	0.38	4√(f ₁ ² + f ₂ ²)	0.99
222	4f	0.31	0	0	4(f ₁ - f ₂)	0.04
333	4f	0.21	5.66f	0.24	4√(f ₁ ² + f ₂ ²)	0.61
011	0	0	0	0	0	0
022	4f	0.35	8f	0.45	4(f ₁ + f ₂)	1.20
044	4f	—	8f	0.31	4(f ₁ + f ₂)	0.80
112	0	0	0	0	0	0
224	4f	0.23	8f	0.35	4(f ₁ + f ₂)	0.90
113	4f	0.32	5.66f	0.30	4√(f ₁ ² + f ₂ ²)	0.79
115	4f	0.21	5.66f	0.24	4√(f ₁ ² + f ₂ ²)	0.61

элементарной ячейки. Формулы для модуля структурного фактора даны в той же таблице. Кроме того, в ней приведены модули структурного фактора для алюминия, кремния и арсенида галлия, чтобы показать влияние материала и угла рассеяния; величины модулей были поделены на V для того, чтобы осуществить прямое сравнение между разными материалами. Ряд значений равен нулю, например для отражений 001 и 002 в кубической структуре с решеткой типа алмаза, образованной атомами кремния и германия. Эти отражения часто называют запрещенными отражениями. Такие отражения, как 002 и 222 в решетке типа сфалерита, которую имеет целый класс очень важных полупроводников, например арсенид галлия и фосфид индия, являются не запрещенными, но слабыми, так как они зависят от разности между факторами рассеяния атомов, образующих соединение. Их иногда называют «квазизапрещенными», и они могут быть очень полезны для усиления чувствительности к изменениям состава в таких материалах, как нестехиометричные структуры или сверхрешетки. В качестве примера можно привести простую сверхрешетку GaAs/GaAlAs, для исследования которой отражение 002 особенно применимо.

4.2.3. Интенсивность отражения от тонкого кристалла

Формула интенсивности отражения от тонкого кристалла является самой полезной формулой интенсивности, которую можно получить из кинематической теории, так как она применима для тонких слоев и блоков

мозаики. Мы суммируем рассеяние от каждой элементарной ячейки тем же способом, которым мы суммировали рассеяние от каждого атома, чтобы получить структурный фактор, или рассеивающую способность, элементарной ячейки. То есть мы учитываем разность фаз $\mathbf{r}_i \cdot \mathbf{Q}$ между волнами, рассеянными элементарными ячейками, расположенными на разных расстояниях $\mathbf{r}_i$ от начала координат. Расчет приводит нас к выражению для интерференционной функции J , которая описывает интерференцию волн, рассеянных всеми элементарными ячейками в кристалле:

$$J = \sum_i \exp(2\pi i \mathbf{r}_i \cdot \mathbf{Q}). \quad (4.6)$$

Суммирование производится по всем элементарным ячейкам в кристалле. Полная амплитуда рассеяния получается из формулы $A = F_{hkl} J$ (где F_{hkl} — структурный фактор для отражения hkl), а интенсивность I определяется квадратом амплитуды:

$$I = F_{hkl}^2 J^2. \quad (4.7)$$

Мы можем рассчитать величину интенсивности для кристалла малых размеров. Для того чтобы учесть размерный эффект, представим кристалл в виде параллелепипеда со сторонами $n_1 \mathbf{a}_1$, $n_2 \mathbf{a}_2$ и $n_3 \mathbf{a}_3$, где $\mathbf{a}_1$, $\mathbf{a}_2$ и $\mathbf{a}_3$ — единичные векторы элементарной ячейки; n_i — количество элементарных ячеек в каждой из сторон параллелепипеда. Интерференционная функция становится равной

$$J = \sum_{n_1=1}^{n_1} \exp(2\pi i n_1 \mathbf{a}_1 \cdot \mathbf{Q}) \sum_{n_2=1}^{n_2} \exp(2\pi i n_2 \mathbf{a}_2 \cdot \mathbf{Q}) \sum_{n_3=1}^{n_3} \exp(2\pi i n_3 \mathbf{a}_3 \cdot \mathbf{Q}). \quad (4.8)$$

Из первой главы нам известно, что мы не получим значительной интенсивности, если не выполняется закон Брэгга, поэтому необходимо рассмотреть отклонения от точного условия Брэгга. Из уравнения (4.5) следует, что условие Брэгга выполняется, когда $Q = 1/d_{hkl}$, где d_{hkl} — межплоскостное расстояние для плоскостей с индексами Миллера hkl , структурный фактор которых не равен нулю. В обозначениях рис. 4.1 геометрия брэгговской дифракции и закон Брэгга выполняются, если вектор $\mathbf{Q} = \mathbf{h}$, где $|\mathbf{h}| = 1/d_{hkl}$, и направление $\mathbf{h}$ перпендикулярно плоскостям с индексами hkl (мы скоро увидим, что это характеризует $\mathbf{h}$ как вектор *обратной решетки* кристалла). При помощи простой тригонометрии из рис. 4.1 получаем закон Брэгга. Мы можем выразить отклонения от закона Брэгга через вектор отклонения $\mathbf{q}$, т. е.

$$\mathbf{Q} = \mathbf{h} + \mathbf{q}. \quad (4.9)$$

После подстановки в один из членов, например в член, содержащий $\mathbf{a}_1$, выражение для интерференционной функции значительно упрощается:

$$\mathbf{a}_1 \cdot \mathbf{Q} = \mathbf{a}_1 \cdot (\mathbf{h} + \mathbf{q}) = \mathbf{a}_1 \cdot \mathbf{h} + \mathbf{a}_1 \cdot \mathbf{q}. \quad (4.10)$$

Первый член $\mathbf{a}_1 \cdot \mathbf{h}$ — это индекс Миллера h , целое число. Поэтому при подстановке в интерференционную функцию этот член становится едини-

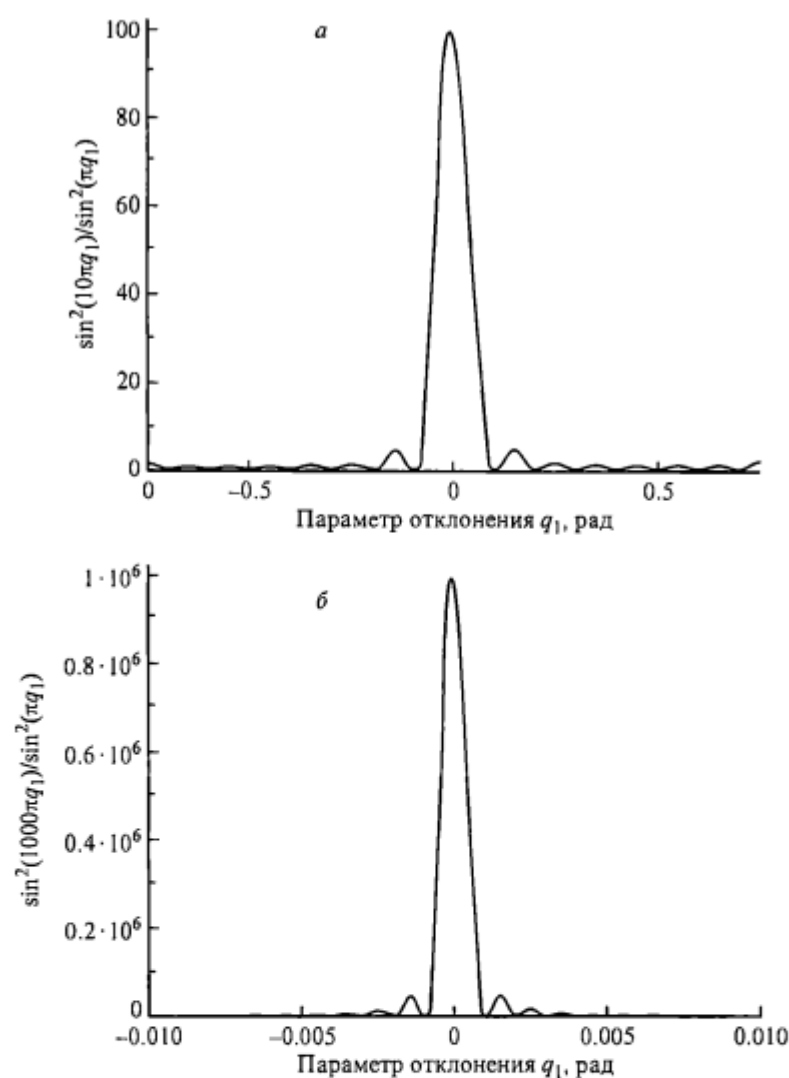


Рис. 4.3. Рассеянная интенсивность как функция одной компоненты вектора отклонения $\mathbf{q}$.

a — $n_1 = 10$; b — $n_1 = 1000$.

цей, так как $\exp(2\pi n i) = 1$. Это соответствует сильному брэгговскому отражению, когда $\mathbf{q} = 0$. После подстановки второго члена интерференционная функция принимает вид

$$J_1 = \sum_{n_1=1}^{n_1} \exp(2\pi i n_1 q_1) = \frac{\sin(\pi n_1 q_1)}{\sin(\pi q_1)}, \quad (4.11)$$

где q_1 — составляющая вектора $\mathbf{q}$ вдоль первой оси на диаграмме рис. 4.1. Фактически это первая ось обратной решетки, которая в кубическом

кристалле параллельна оси решетки в реальном пространстве. Окончательное выражение для интенсивности имеет вид

$$I = F^2 J^2 = F_{hkl}^2 \frac{\sin^2(\pi n_1 q_1)}{\sin^2(\pi q_1)} \frac{\sin^2(\pi n_2 q_2)}{\sin^2(\pi q_2)} \frac{\sin^2(\pi n_3 q_3)}{\sin^2(\pi q_3)}. \quad (4.12)$$

В области малых значений вектора отклонения $\mathbf{q}$ оно упрощается до произведения трех функций вида $\sin^2(x)$. Для одной из составляющих выражение для интенсивности показано на рис. 4.3.

На рис. 4.3 можно проследить следующие особенности рассеяния от тонкого кристалла (или кристалла малых размеров).

1. Сильное рассеяние сосредоточено только вблизи $\mathbf{q} = 0$, т. е. в условиях точного брэгговского отражения. Слабое рассеяние от атомов усиливается здесь рядами атомных плоскостей, рассеивающих в фазе, и сильное рассеяние проявляется только благодаря этому усилению. Поэтому рентгеновские дифракционные методы интегрируют рассеяние на протяжении многих атомных слоев.

2. Первый ноль имеет место при $n_i q_i = 1$, т. е. ширина дифракционного пика изменяется обратно пропорционально количеству атомов. Ожидалось появление заметного уширения дифракционных максимумов для кристаллитов, размер которых меньше нескольких нанометров, и это наблюдается в действительности.

3. Пиковая интенсивность, а также интегральная интенсивность пропорциональны $|F_h|^2$.

4. Интенсивность рассеяния пропорциональна объему кристалла. Это означает, что рассеяние от тонкого эпитаксиального слоя большой площади по сравнению с диаметром пучка пропорционально толщине слоя.

5. Для монокристаллов больших размеров кинематическая теория предсказывает чрезвычайно узкие кривые качания, которые не наблюдаются в действительности. Такие случаи требуют применения динамической теории.

4.2.4. Аномальная дисперсия

Когда какое-нибудь явление кажется не согласующимся с простой теорией, его часто называют «аномальным», и название продолжает существовать долгое время даже после того, как теория найдет правильное объяснение такому явлению. Поведение любой механической или электрической колебательной системы вблизи резонанса имеет свойства, существенно отличающиеся от тех, которые проявляются в нерезонансных (гораздо более обычных) условиях. При рассеянии рентгеновских лучей условие резонанса осуществляется около края их поглощения, когда энергия первичного фотона чуть-чуть выше энергии, требующейся для возбуждения перехода электронов между энергетическими уровнями в атоме. Если рассчитывать на более быстрые, чем где-либо, изменения в поведении как рассеяния, так и поглощения, то их можно отнести к *аномальной дисперсии*. Рассмотрение можно унифицировать, считая факторы атомного рассеяния f_i (и получающиеся из них структурные факторы) комплексными числами. Реальную

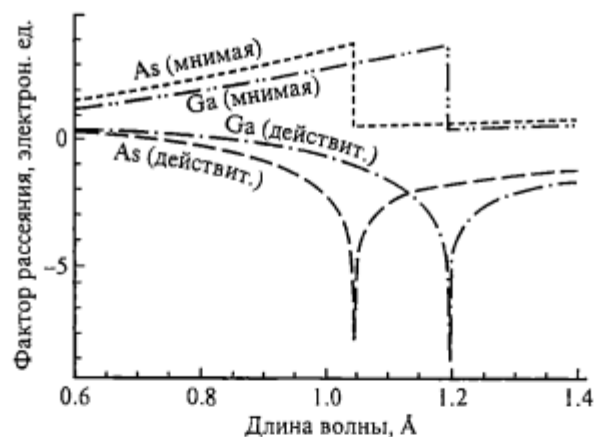


Рис. 4.4. Реальная (рассеяние) и мнимая (поглощение) составляющие фактора атомного рассеяния для галлия и мышьяка вблизи K -краев поглощения. (По Кокertonу с соавторами [1]).

часть такого рассеяния составляет рассеяние, которое рассматривалось до сих пор, а мнимую часть составляет поглощение. Так как мы используем экспоненциальное представление результирующей волны, т. е.

$$A = \exp(2\pi i \phi), \quad (4.13)$$

где комплексная функция ϕ линейно изменяется с факторами атомного рассеяния, то мнимая часть автоматически преобразуется в обычное уравнение для поглощения

$$I/I_0 = \exp(-\mu t), \quad (4.14)$$

которое обсуждалось в разд. 1.1. Реальную часть мы используем для предсказания поведения рассеяния, например в дифракционном эксперименте. Находясь близко к краю поглощения и исключая все другие эффекты, такие как комптоновское рассеяние, мы получим, что реальная и мнимая части рассеяния, вызванного осциллятором, должны быть связаны математическим соотношением, известным как преобразование Крамера—Кронига.

Эффекты края поглощения для важного случая полупроводниковых соединений показаны на рис. 4.4, где можно увидеть реальную и мнимую части факторов рассеяния для галлия и мышьяка около K -краев поглощения. Наблюдаемые соотношения между величинами и результирующие интенсивности можно использовать для проведения измерений, чувствительных к изменению состава, и такие эксперименты были проведены с целью определения стехиометрии полупроводниковых соединений III—V групп [1]. Однако в большинстве случаев для таких экспериментов требуется очень тонкая регулировка параметров излучения синхротронных источников.

Еще одним вариантом применения рассеяния около края поглощения является метод исследования протяженной тонкой структуры поглощения рентгеновских лучей (EXAFS). С одной стороны, энергия, поглощенная материалом при возбуждении электрона при переходе между уровнями, за-

висит от атомного окружения, а с другой — процесс можно рассматривать как обратное рассеяние и взаимную интерференцию испускаемых электронов в зависимости от окружения или как модификацию состояния, до которого возбуждается испускаемый электрон, снова в зависимости от окружения. Это — мощный инструмент анализа кристаллической структуры, особенно для нанокристаллов или кластерных областей в «аморфных» материалах [2]. Его применение в сочетании с высокоразрешающей дифрактометрией не было систематическим и имело место только в условиях синхротронного излучения.

4.2.5. Геометрия обратного пространства

Мы ввели обратное пространство (на рис. 4.1) с целью указать на его несомненную полезность, прежде чем дать ему формальные определения. Обратное пространство настолько эффективно в интерпретации многих дифракционных экспериментов, что мы должны понять его более глубоко. Оно будет активно использоваться при рассмотрении трехкристалльных экспериментов, в которых построение карт распределения интенсивности в обратном пространстве является главнейшим методом исследования.

Рис. 4.1 можно немного дополнить, чтобы показать наиболее полезное построение, а именно *сферу Эвальда*. Так как мы имеем дело с упругим рассеянием, то величины k_0 и k_h всегда равны $1/\lambda$. Поэтому сфера радиусом $1/\lambda$ определяет все возможные направления векторов падающего и рассеянного пучков. Вектор падающего пучка направлен из центра этой *сферы Эвальда* к началу координат, вектор рассеянного пучка — из центра в любую точку на поверхности сферы, а вектор рассеяния — из начала координат в конец вектора рассеянного пучка. Рис. 4.5 показывает плоское сечение этого трехмерного построения. На рисунке вектор рассеяния Q построен так, что он совпадает с вектором h , который удовлетворяет точному условию Брэгга (уравнение (4.9)), и мы ожидаем появления сильного дифракционного отражения.

Конечно, от регулярной решетки можно получить много отражений и если представить набор векторов, таких как h , то затем можно получить графическое изображение всех отражающих плоскостей и соответствующих направлений отражения в кристалле. Мы фактически уже вывели все правила; осталось только формально описать их:

1. Масштаб обратного пространства имеет размерность обратной длины. (Отметим, что в большинстве физических текстов обратная длина масштабируется с делением на 2π для удобства математической обработки квантовой теории. В этой книге, как

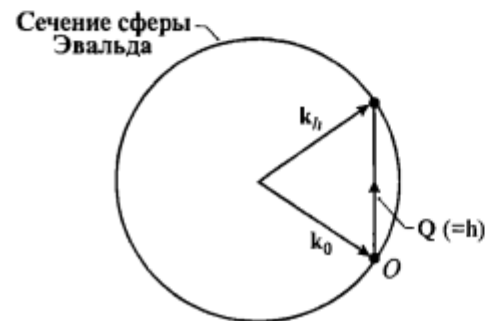


Рис. 4.5. Построение сферы Эвальда в обратном пространстве.

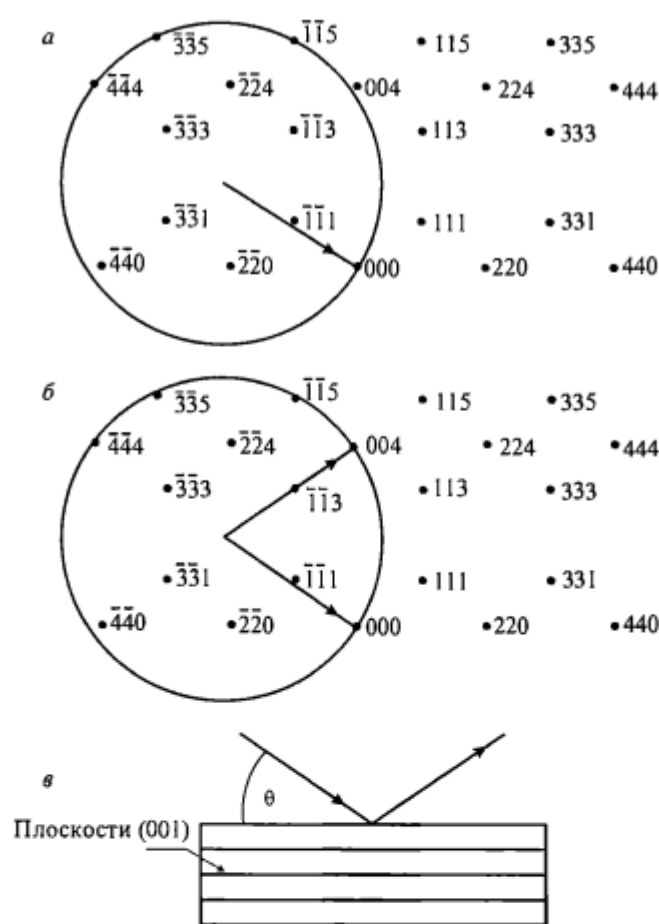


Рис. 4.6. Эксперимент высокого разрешения.

a — кристалл еще не выведен в брэгговское положение, и дифрагированный пучок не появился; *б* — падающий пучок повернут так, чтобы сфера Эвальда прошла через ТОР 004 и возник дифрагированный пучок. Сфера Эвальда построена в масштабе для $\text{Si } K_\alpha$ -излучения, а обратная решетка — в масштабе кристаллической решетки кремния; *в* — схема эксперимента.

и вообще в кристаллографической литературе, мы не пользуемся таким масштабированием).

2. Все направления в реальном пространстве сохраняются и в обратном пространстве.

3. Вектор обратной решетки строится для каждой плоскости реальной решетки следующим образом:

- направление вектора выбираем перпендикулярным плоскости в реальном пространстве;
- величина вектора равна обратной величине межплоскостного расстояния в реальном пространстве.

4. Конец каждого такого вектора, исходящего из начала координат обратной решетки, является узлом или точкой обратной решетки (иногда сокращенно называемой ТОРом).

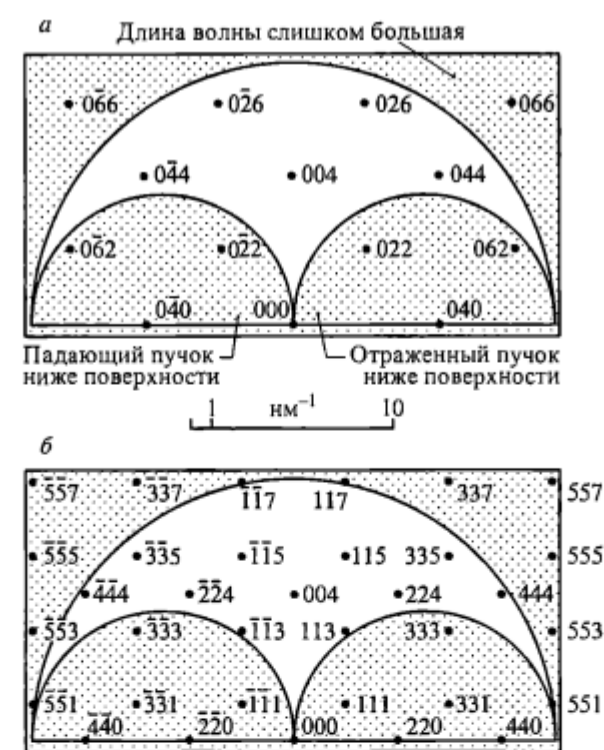


Рис. 4.7. Доступные разрешенные отражения в эксперименте высокого разрешения, построенные в обратном пространстве для образца кремния с поверхностью (001) и $\text{Si } K_\alpha$ -излучения.

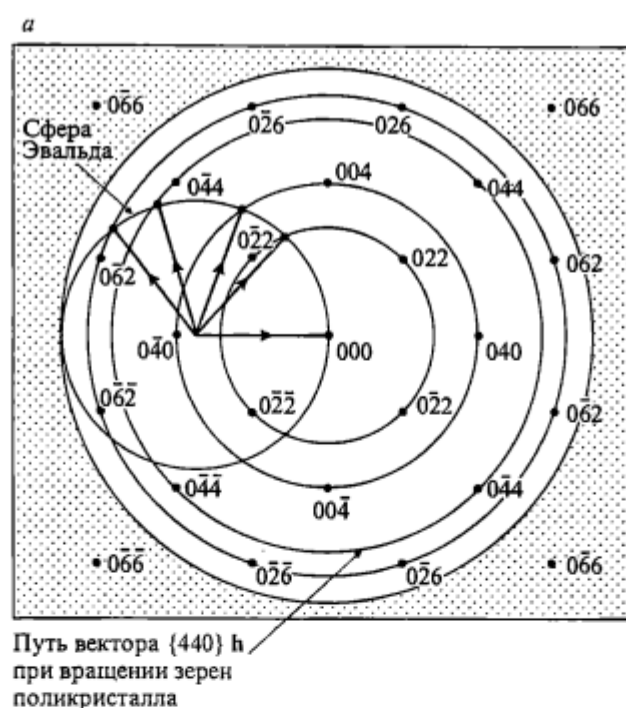
a — падающий пучок в плоскости (100), сечение обратной решетки перпендикулярно [100]; *б* — падающий пучок в плоскости (110), сечение обратной решетки перпендикулярно [110]. Случай (*б*) возможен, если падающий пучок параллелен или перпендикулярен плоскости плоского среза по (110), который присутствует на многих полупроводниковых пластинах, в этом случае доступно гораздо больше отражений. Полукруглые сегменты, показывающие доступные и недоступные отражения, являются сечениями полусфер, оси которых вертикальны на этой диаграмме.

5. Обратная решетка представляет собой набор ТОРов.

Таким образом, оси обратной решетки перпендикулярны плоскостям решетки (100), (010) и (001) в реальном пространстве. Кроме того, в кубических, тетрагональных и орторомбических кристаллах справедливо утверждение, что эти оси параллельны направлениям [100], [010] и [001], но оно не справедливо для кристаллов других систем. В общем случае оси обратного пространства $\mathbf{a}_1^*$, $\mathbf{a}_2^*$ и $\mathbf{a}_3^*$ выражаются через оси $\mathbf{a}_1$, $\mathbf{a}_2$ и $\mathbf{a}_3$ в реальном пространстве следующим образом:

$$\mathbf{a}_1^* = \frac{\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3}{\mathbf{a}_1 \cdot [\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3]}, \quad \mathbf{a}_2^* = \frac{\mathbf{a}_3 \times \mathbf{a}_1}{\mathbf{a}_2 \cdot [\mathbf{a}_3 \times \mathbf{a}_1]}, \quad \mathbf{a}_3^* = \frac{\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2}{\mathbf{a}_3 \cdot [\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2]}. \quad (4.15)$$

Покажем применение этого представления на нескольких примерах. Все они изображены в масштабе решетки и структуры кремния. На рис. 4.6



Путь вектора $\{440\}h$ при вращении зерен поликристалла



Рис. 4.8. Дифракционный эксперимент с поликристаллическим образцом.

а — построение в обратном пространстве: сфера Эвальда фиксирована и решетка поворачивается во всем диапазоне углов вокруг начала координат. На этом двумерном сечении показаны повороты только вокруг направления $[100]$, а пересечения со сферой Эвальда определяют дифракционные условия; *б* — соответствующие векторы дифракции в реальном пространстве.

показан эксперимент высокого разрешения. Очень удобно использовать обратное пространство, чтобы показать отражения, которые можно получить в условиях данного эксперимента. Они показаны на рис. 4.7 для образца кремния с поверхностью (001) в условиях $\text{Cu K}\alpha$ -излучения при двух ориентациях падающего пучка: (100) и (110) . Большой полукруг содержит все узлы, через которые проходит сфера Эвальда, когда падающий пучок поворачивают на 180° от почти скользящего по поверхности положения в одном направлении до почти скользящего положения в противоположном направлении. Малый полукруг *слева* содержит узлы, недоступные в геометрии отражения, потому что падающий пучок входил бы из-под поверхности кристалла. Малый полукруг *справа* также недоступен в геометрии отражения, так как дифрагированный пучок выходил бы через кристалл. Эти две

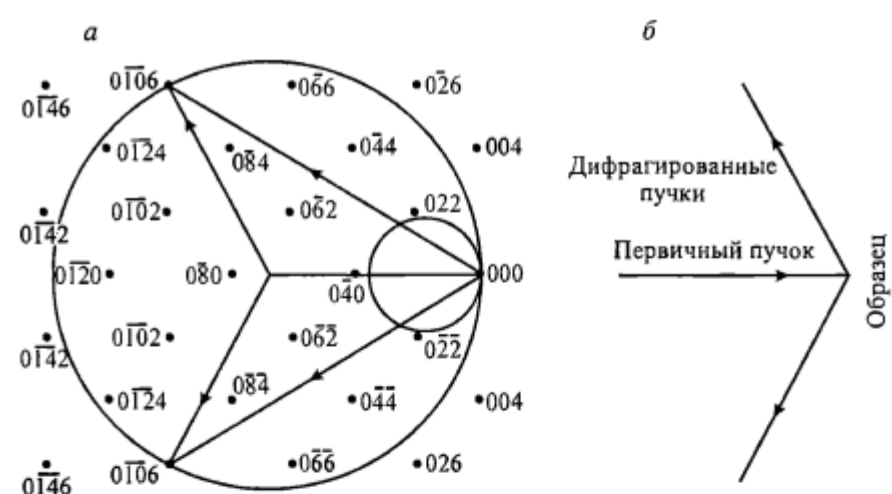


Рис. 4.9. Метод обратного отражения Лауэ: направление падающего пучка и положение обратной решетки фиксированы в пространстве и дифракционные отражения выбирают из пучка соответствующие длины волн.

Сфера Эвальда может иметь любой диаметр из интервала, ограниченного самой короткой и самой длинной волнами. Круг большего диаметра показывает среднюю длину волны и дифрагированные пучки, которые возникают на этой длине волн.

области доступны в геометрии прохождения. Условия отражения и прохождения часто называют *случаем Брэгга* и *случаем Лауэ* соответственно.

В дифракционных экспериментах с порошками длина волны и направление падения пучка фиксированы, а случайная ориентация зерен в порошковом образце означает, что обратную решетку поворачивают во всем диапазоне углов вокруг начала координат. Дифрагированный пучок возникает всякий раз, когда ТОР пересекает сферу Эвальда. Это показано в двух измерениях на рис. 4.8. Кроме того, это построение помогает увидеть, когда отражения перекрываются сферой Эвальда, как например на рис. 4.9, где метод Лауэ в геометрии обратного отражения представлен при помощи обратной решетки. В этом методе сфера Эвальда перекрывает область длин волн от минимальной, которая задается напряжением на рентгеновской трубке (наибольший диаметр сферы Эвальда), до максимальной, которая определяется поглощением в окнах трубки и на воздухе. Плоскости кристалла будут участвовать в дифракции, если их вектор обратной решетки пересекает сферу Эвальда с радиусом, определяемым длиной волны в пределах этой области.

Эти примеры показывают большую практическую ценность построения сферы Эвальда. Тем не менее, спустя почти 60 лет, после того как Эвальд заложил основы теории рассеяния рентгеновских лучей, мы действительно слышали, как он признался, что хотел бы, чтобы люди называли его именем что-нибудь иное из созданного им, так как «сфера Эвальда», по его мнению, была такой тривиальной идеей!

4.3. Динамическая теория

Мы уже сказали о том, что кинематическая теория плохо подходит для предсказания интенсивностей отражений от чего-либо, кроме очень тонких слоев или кристаллитов очень малых размеров. Предположение, что никакая энергия не переносится в дифрагированное излучение, может удовлетворять условиям дифракции нейтрино, но оно совсем не подходит для описания дифракции рентгеновских лучей в кристаллах, большинство из которых представляет практический интерес для полупроводниковой промышленности. Дело не только в масштабе структурного фактора. С увеличением толщины кристалла наступает насыщение интенсивности, которое кинематическая теория не может предсказать, так же как многие дополнительные интерференционные эффекты, обусловленные присутствием сильных волновых полей. Уравнения, описывающие интенсивность как функцию толщины, становятся существенно нелинейными. Однако благодаря теоретическим исследованиям, которые ведутся на протяжении уже более 80 лет, динамическая теория, исправляющая все эти большие ошибки, оказалась хорошо разработанной. Более того, недавно появившееся программное обеспечение, которое позволяет получать численные решения на доступных персональных компьютерах, означает, что ученые, работающие в промышленности, могут получить точное количественное описание рассеяния и использовать его для развития технологических процессов и контроля качества структур.

В основе метода моделирования заложена идея, согласно которой пучок, дифрагированный набором отражающих плоскостей, находится под правильным углом, чтобы повторно отразиться от тех же плоскостей. Рис. 4.10

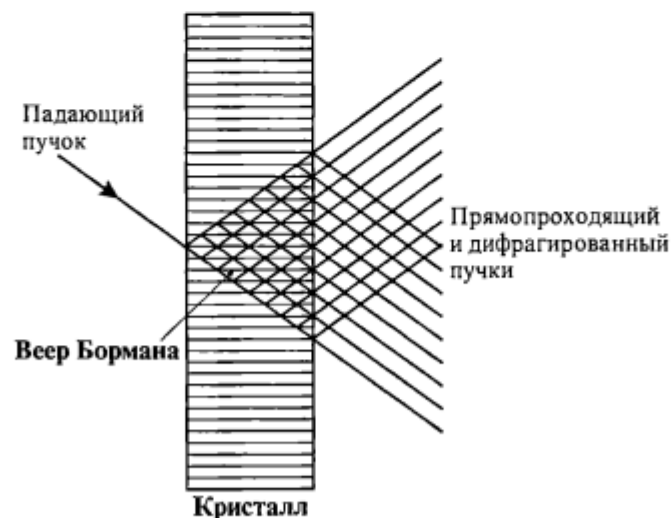


Рис. 4.10. Пучки рентгеновских лучей, дифрагированные набором отражающих плоскостей и повторно отраженные от тех же плоскостей.

Треугольник, ограниченный падающим и дифрагированным пучками на входной поверхности, называется *вееером Бормана*.

иллюстрирует эту идею. Видно, что энергия распределена в пределах области треугольного сечения, известной как *вееер Бормана*. Мы ожидаем, что это приведет к сложному выражению для интенсивности, как и происходит в действительности, хотя, если область распределения энергии однородна, выражение для интенсивности легко приводится к виду, удобному для расчета на персональном компьютере. Если эта область неоднородна, как во всех материалах, представляющих практический интерес, то сочетание дифрагированного и *прямопроходящего дифракционного* пучков (мы не можем более представлять падающий пучок как проходящий без изменения через кристалл) должно быть рассмотрено локально, вокруг неоднородностей. *Теория Такаги—Топэна* основана на выведении и решении связанной пары дифференциальных уравнений, которые описывают изменения в амплитуде в каждом из направлений — прямопроходящем дифракционном и дифрагированном.

Подход Такаги—Топэна и методы моделирования, которые из него вытекают, настолько полезны и эффективны, что мы рассмотрим их подробно в следующей главе. Однако в этом методе мы теряем все, кроме численных значений амплитуд и интенсивностей. Мы не знаем, как пучки распространяются через кристалл, как и когда они станут интерферировать, какие параметры определяют ширину и форму кривых качания; другими словами, физика уходит на задний план. Поэтому мы начинаем обсуждение динамической теории с того, что даем классическое физическое толкование и объясняем те положения, которые из него вытекают. Это прольет свет на многие аспекты экспериментальных измерений и на интерпретацию результатов в оставшейся части книги. Мы не будем пытаться дать полный вывод математических выражений, так как они хорошо изложены во многих блестящих публикациях [3—11], но вместо этого представим основы и допущения теории и объясним выводы и результаты. Мы в значительной степени следуем рассмотрению Баттермана и Коля [6] и Харта [7].

4.3.1. Фундаментальные уравнения

Попробуем отыскать представление для волн, возникающих внутри кристалла и на выходе из него при падении на кристалл рентгеновского излучения. Распространение любых электромагнитных волн в любой среде можно точно описать с помощью уравнений Максвелла. В векторном выражении они имеют вид:

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad \nabla \times \mathbf{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}, \quad (4.16)$$

где $\mathbf{E}$ — вектор электрического поля; $\mathbf{B}$ — магнитная индукция; $\mathbf{D}$ — вектор плотности электрического потока (электрическая индукция); $\mathbf{H}$ — вектор магнитного поля; c — скорость света в вакууме. Рассматриваемая модель предполагает, что на рентгеновских частотах электрическая проводимость в кристалле равна нулю, магнитная проницаемость выражена в абсолютной гауссовой системе единиц и равна единице.

Введем описание свойств кристалла и рентгеновского излучения и решим эти уравнения относительно смещения электричества, описываемого индукцией $\mathbf{D}$. Поляризуемость кристалла была подробно рассмотрена Хартом [7], который показал, что рассеяние рентгеновских лучей в кристалле удовлетворительно описывается рядом Фурье как для электронной плотности, так и для диэлектрической восприимчивости и суммирование производится по всем векторам обратной решетки $\mathbf{h}$. Таким образом, кристалл можно представить как

$$\chi(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{h}} \chi_{\mathbf{h}} \exp(-2\pi i \mathbf{h} \cdot \mathbf{r}) \quad (4.17)$$

и коэффициенты разложения $\chi_{\mathbf{h}}$ выразить через уже знакомый нам структурный фактор

$$\chi_{\mathbf{h}} = -\frac{r_e \lambda^2}{\pi V} F_{\mathbf{h}}, \quad (4.18)$$

где V — объем элементарной ячейки, для которой вычисляется структурный фактор. В уравнении (4.18) свойства рентгеновских лучей представлены длиной волны λ . Используя наблюдаемый факт, согласно которому показатель преломления рентгеновских лучей мало отличается от единицы, мы делаем некоторые упрощающие допущения, а именно предполагаем, что на рентгеновских частотах χ — очень малая величина. После подстановки в уравнения Максвелла и исключения составляющей магнитного поля приходим к волновому уравнению:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{D} = -\frac{(1+\chi)}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2}. \quad (4.19)$$

Что можно предположить о решении? Очевидно, что это должно быть волновое соотношение. Мы ожидаем (исходя из знакомства с брэгговской дифракцией), что решение должно быть плоской волной или суммой плоских волн. Используем большие буквы $\mathbf{K}_0$ и $\mathbf{K}_{\mathbf{h}}$ для обозначения волновых векторов внутри кристалла, чтобы отличить их от $\mathbf{k}_0$ и $\mathbf{k}_{\mathbf{h}}$ за пределами кристалла. Внутри кристалла разрешенные значения волнового вектора должны удовлетворять закону сохранения импульса, т. е.

$$\mathbf{K}_0 + \mathbf{h} = \mathbf{K}_{\mathbf{h}}. \quad (4.20)$$

Это условие Лауэ несколько менее строгое, чем закон Брэгга, из-за того что в нем мы уже не имеем равенства $|\mathbf{K}_0| = |\mathbf{K}_{\mathbf{h}}| = 1/\lambda$, но все еще ожидаем появления сильного дифракционного отражения только в том случае, когда находимся около условия Брэгга. Эвальд предположил, а Блох [12] показал, что волны, которые существуют в кристалле, должны изменяться с периодичностью решетки, т. е. решения волнового уравнения (4.19) должны иметь вид

$$\mathbf{D} = \sum_{\mathbf{h}} \mathbf{D}_{\mathbf{h}} \exp(-2\pi i \mathbf{K}_{\mathbf{h}} \cdot \mathbf{r}), \quad (4.21)$$

где значения $\mathbf{K}_{\mathbf{h}}$ связаны уравнением (4.20). В поддержку теоремы Блоха можно привести следующее образное представление: все волны, которые не имеют периодичности решетки, будут сильно гаситься из-за конфликта с «волнами электронной плотности», которые являются атомами. В дальнейшем мы можем ограничиться случаем, когда два пучка намного сильнее других. Это — дифрагированный и прямопроходящий дифракционный пучки, показанные на рис. 4.10. Из рис. 4.6 сразу видно, что для возбуждения более чем одной дифрагированной волны, требуется особенно тщательная отладка дифракционного эксперимента, поэтому двухлучевой случай является очень хорошим приближением. В противоположность этому сфера Эвальда, описывающая дифракцию электронов, в масштабе данной диаграммы является почти плоской и много пучков возбуждаются в кристалле почти во всех случаях. В двухволновом приближении решение уравнений Максвелла для электромагнитного поля в кристалле (см., например, Баттермана и Коля [6]), выраженное через амплитуды D_0 и $D_{\mathbf{h}}$ двух сильных пучков, имеет вид

$$\left\{ \begin{aligned} [k^2(1+\chi_0) - \mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{K}_0] D_0 + k^2 C \chi_{\mathbf{h}} D_{\mathbf{h}} &= 0, \\ k^2 C \chi_{\mathbf{h}} D_0 + [k^2(1+\chi_0) - \mathbf{K}_{\mathbf{h}} \cdot \mathbf{K}_{\mathbf{h}}] D_{\mathbf{h}} &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (4.22)$$

Фактор поляризации C равен скалярному произведению $\mathbf{D}_0 \mathbf{D}_{\mathbf{h}}$. Он равен единице для σ -поляризации, когда вектор электрического поля перпендикулярен плоскости дисперсии, и $\cos(2\theta_{\mathbf{h}})$ — для π -поляризации, когда вектор электрического поля лежит в плоскости дисперсии. Мы можем применить уравнение (4.20) (которое подразумевает, что $\text{Im}(\mathbf{K}_0) = \text{Im}(\mathbf{K}_{\mathbf{h}})$, так как $\mathbf{h}$ — действительное число) и ввести очень важное понятие о параметрах отклонения α_0 и $\alpha_{\mathbf{h}}$, для того чтобы представить решение в простой форме. Параметры отклонения, которые выражают отклонение волновых векторов падающего и дифрагированного пучков от условия $|\mathbf{k}_0| = |\mathbf{k}_{\mathbf{h}}| = 1/\lambda$, принятого в кинематической теории, определяются как

$$\left\{ \begin{aligned} \alpha_0 &= \frac{1}{2k} [\mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{K}_0 - k^2(1+\chi_0)], \\ \alpha_{\mathbf{h}} &= \frac{1}{2k} [\mathbf{K}_{\mathbf{h}} \cdot \mathbf{K}_{\mathbf{h}} - k^2(1+\chi_0)]. \end{aligned} \right\} \quad (4.23)$$

Фактически параметры отклонения определяют локальный показатель преломления кристалла. Решение теперь можно выразить через соотношение между разрешенными значениями параметров отклонения:

$$\alpha_0 \alpha_{\mathbf{h}} = k^2 C^2 \chi_{\mathbf{h}} \chi_{\mathbf{h}}. \quad (4.24)$$

Это уравнение определяет геометрию дифракции в двухлучевом приближении динамической теории. Отношение амплитуд, также выраженное через параметры отклонения, имеет вид

$$\frac{D_{\mathbf{h}}}{D_0} = \frac{2\alpha_0}{C \chi_{\mathbf{h}} k} = \frac{C \chi_{\mathbf{h}} k}{2\alpha_{\mathbf{h}}}, \quad (4.25)$$

и, кроме того,

$$\left(\frac{D_h}{D_0}\right)^2 = \frac{\alpha_0 \chi_h}{\alpha_h \chi_h} \quad (4.26)$$

Уравнения (4.25) называются *фундаментальными уравнениями двухлучевого приближения динамической теории*. Они дают нам возможность рассчитывать волновые поля и интенсивности внутри кристалла (и на выходе из него). Из фундаментальных уравнений следует много выводов и решений, особенно когда применяются граничные условия, суть которых состоит в согласовании волн на границах так, чтобы они были непрерывны при переходе через границу. Такие уравнения будут приводиться по мере необходимости. Но прежде дадим наглядное представление о фундаментальных уравнениях, для того чтобы сделать главные выводы теории на более качественном уровне.

4.3.2. Дисперсионное пространство и геометрия дифракции

Уравнение (4.24) дает нам разрешенные значения параметров отклонения. Волны, удовлетворяющие этому уравнению, могут существовать в кристалле для данной длины волны падающего излучения, а другие — нет. Мы намереваемся изобразить все разрешенные волновые векторы, находящиеся около условия Брэгга, в виде диаграммы. Так как уравнение (4.24) связывает волновые векторы с локальным показателем преломления, то оно является дисперсионным соотношением. Поэтому диаграмма, изображающая все разрешенные волновые векторы, называется *дисперсионной поверхностью*.

Сначала мы должны внести поправку на средний показатель преломления в волновой вектор внутри кристалла, умножив волновые векторы на средний показатель преломления $(1 + \chi/2)$, и получить исправленные значения для волновых векторов в кристалле. Это выражение выводится из классической теории дисперсии [7]. Из уравнения (4.18) следует, что χ — отрицательно, поэтому волновой вектор внутри кристалла короче, чем в вакууме (на несколько единиц в 10^{-6}), в противоположность поведению электронов или видимого света. Геометрическое место волновых векторов с исправленной длиной k расположено на сферах с центрами в начале координат обратной решетки и в конечной точке вектора $\mathbf{h}$, как показано на рис. 4.11 (в двух измерениях видны только круглые сечения этих сфер). Эти сферы фактически представляют собой кинематические дисперсионные поверхности; они в самом деле являются очень точным представлением, когда волновые векторы находятся далеко от условия Брэгга, так как если $D_h \rightarrow 0$, то параметр отклонения $\alpha_h \rightarrow 0$ согласно уравнению (4.25). «Далеко» означает несколько угловых минут в лучшем случае!

Рис. 4.11 совершенно точен в масштабе диаграммы. Все эффекты, которые рассматривает динамическая теория, сосредоточены в пределах области не шире, чем толщина линий при пересечении двух окружностей в точке L_0 . Кроме того, изменение длины волнового вектора вследствие поправки на средний показатель преломления нельзя заметить на этом рисунке. В таком



Рис. 4.11. Кинематическая дисперсионная поверхность. (Показано сечение сферы Эвальда).

В плоскости рисунка круги с радиусом $(1/\lambda_{\text{вакуум}})(1 + \chi/2)$ и с центрами в начале координат O и $TOP H$ являются представлением разрешенных волновых векторов в кристалле далеко от дифракционного условия.

случае давайте увеличим рис. 4.11 примерно в 10^6 раз; рисунок должен быть нарисован в новом масштабе, и точки O и H теперь находятся справа на расстоянии $\sim 50 \cdot 10^3$ м. Участки окружностей с центрами в O и H теперь не отличаются от прямых линий. Действие среднего показателя преломления выглядит как сдвиг из точки пересечения этих линий в вакууме (точка Лауэ L) в точку L_0 . Однако из уравнения (4.24) видно, что параметры отклонения, измеренные перпендикулярно этим линиям, могут быть равны нулю, если диэлектрическая восприимчивость равна нулю. В реальных случаях должно существовать отклонение, и его форма, снова согласно уравнению (4.24), является гиперболой. Поэтому окружности с центрами в O и H не являются представлением решений уравнений Максвелла, когда имеет место дифракция. Гипербола представляет собой геометрическое место параметров отклонения. Это и есть *дисперсионная поверхность*.

Для полноты заметим, что дисперсионная поверхность имеет строго гиперболическую форму только тогда, когда окружности аппроксимируются прямыми линиями. В трех измерениях линии, конечно, становятся конусами, и дисперсионная поверхность превращается в гиперboloид вращения. Кроме того, мы будем иметь две независимые дисперсионные поверхности для двух состояний поляризации, σ и π . Это следует принимать во внимание при обработке данных, полученных в неполяризованном излучении от источников типа лабораторных установок, но на диаграммах мы будем изображать только одно состояние поляризации.

Дисперсионная поверхность имеет две ветви, обозначаемые 1 и 2. Волны от двух ветвей находятся в противофазе. Позже мы увидим, что это влияет на их поглощение. Какие из точек дисперсионной поверхности (допустимые решения уравнений Максвелла) будут выбраны, зависит от угла падения и граничных условий, и мы рассмотрим это в следующем разделе. Одна такая точка, обозначенная через A , показана на рис. 4.12. Показаны значения параметров отклонения в точке A . Вектор, направленный из точки A в точку O , — это вектор $\mathbf{K}_0$, а вектор, направленный из A в H , — это вектор $\mathbf{K}_h$. Зафиксировав их, мы знаем отношение амплитуд из уравнения (4.25). Кроме того, из уравнения видно, что интенсивность дифрагиро-

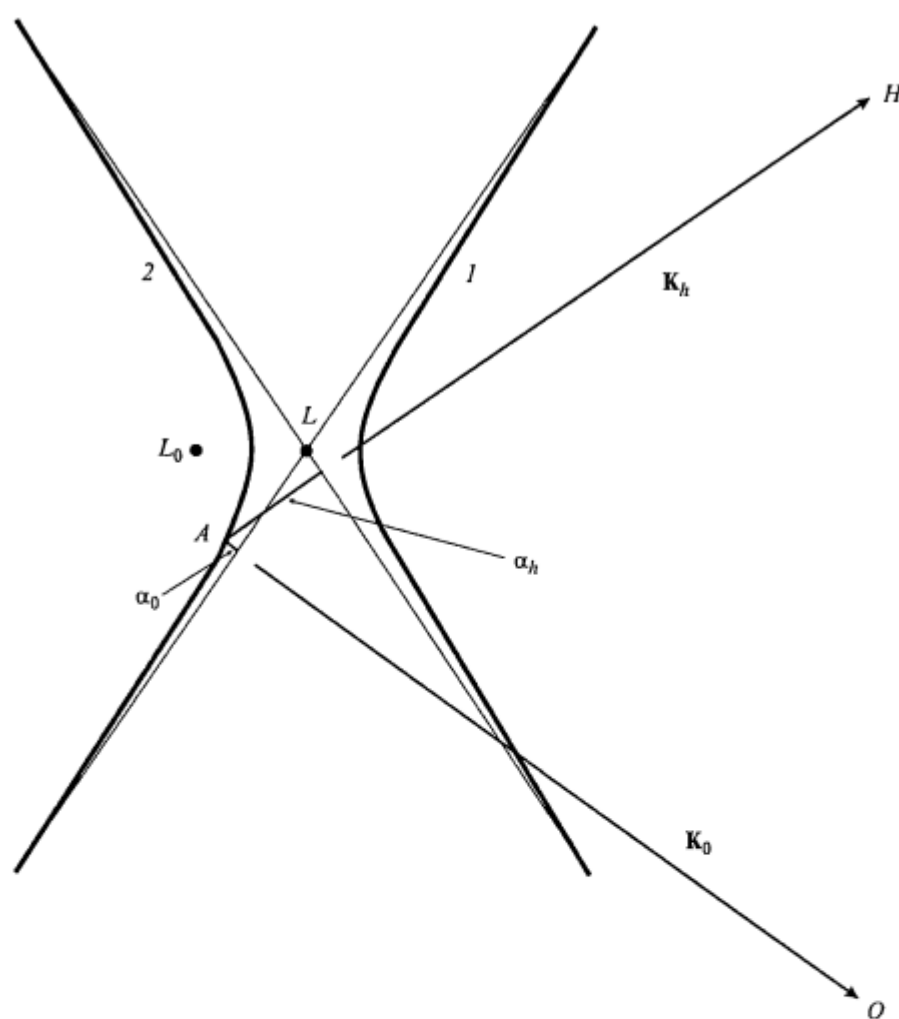


Рис. 4.12. Увеличенное изображение области около точки L_0 на рис. 4.11.

L — точка Лоренца (точка Лауэ после внесения поправки на средний показатель преломления); A — одна из связанных точек, возбужденных на дисперсионной поверхности; α_0 и α_h — параметры отклонения в этой точке (параметры отклонения показаны на ветви 2).

ванного пучка будет максимальна, когда $\alpha_0 = \alpha_h$ в центре дисперсионной поверхности. Однако из-за смещения между L и L_0 , вектор падающего пучка в этой точке не точно параллелен вектору, который получается из расчета по обычному закону Брэгга. Имеется сдвиг, вызванный показателем преломления, который всегда увеличивает расчетное значение угла Брэгга на несколько угловых секунд. Диаметр дисперсионной поверхности приблизительно равен $\chi_h k$, $\sim 10^{-5} \cdot k$, и поэтому растет с увеличением структурного фактора. Позже мы увидим, что он прямо пропорционален ширине кривой качания кристалла.

Каждый раз мы должны решать уравнения или моделировать полученные решения, но вместо этого можно добиться понимания на качественном

уровне, что облегчит решение задачи. Лучевая оптика является одним из таких способов, поэтому давайте обратимся к геометрической оптике до того, как перейдем к волновой. Лучи являются разумным представлением, если дифракционное уширение не слишком велико, т. е. для пути луча $\sim \Lambda^2/\lambda$, где Λ — это ширина пучка. Для рентгеновского пучка шириной 0.1 мм это расстояние равно ~ 20 м, поэтому лучевое приближение действительно дает нам полезное исходное представление. Направление луча находится благодаря интересному свойству дисперсионной поверхности. Оно формально описывается с помощью вектора Пойнтинга, параллельного вектору $\mathbf{E} \times \mathbf{H}$, а Като в [13, 14] показал, что вектор Пойнтинга перпендикулярен дисперсионной поверхности в той точке, где определяется отношение амплитуд. Таким образом, как только выбраны активные точки (решения уравнений Максвелла), направление потока энергии, или лучевого потока, находится легко. В рентгеновской топографии при обсуждении того, какой контраст можно ожидать от дефектов, расположенных в кристалле на разной глубине, мы покажем, что такое представление является очень полезным.

4.3.3. Граничные условия

Любая точка на каждой из ветвей дисперсионной поверхности является равноправным решением уравнений Максвелла. Однако только те точки, которые приходят в состояние возбуждения, допускают непрерывность волн (в частности, волн электрического смещения $\mathbf{D}$) повсюду, включая переход извне внутрь кристалла. Можно использовать аналогию с волнами на поверхности воды. И в этом случае имеется важное дисперсионное соотношение, так как скорость волн в океане выше, чем в мелких прибрежных водах, и результирующий подъем волн у берегов доставляет истинное удовольствие любителям серфинга. Тем не менее при всех этих переходах, поверхность воды остается непрерывной.

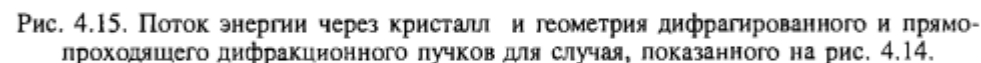
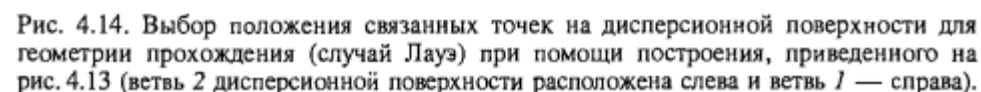
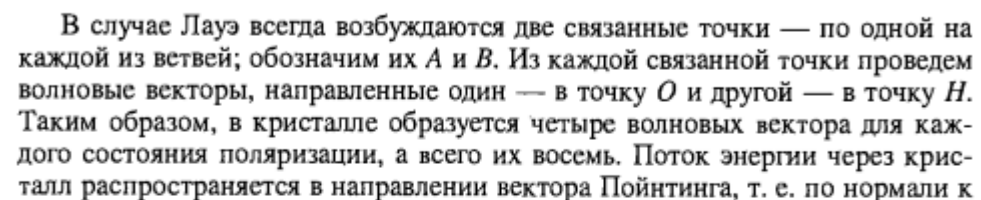
Говоря формальным языком, волны должны быть согласованы по амплитуде на поверхности и по фазовой скорости параллельно поверхности кристалла. Из этого вытекает, что тангенциальные компоненты векторов $\mathbf{D}$ и $\mathbf{H}$ должны быть непрерывными при переходе через поверхность и компоненты волновых векторов, параллельные поверхности, внутри и вне кристалла должны быть одинаковыми.

Если $\mathbf{n}$ — единичный вектор нормали к поверхности кристалла, то, каковы бы ни были значения $\mathbf{K}_0$ или вектора результирующей блоховской волны внутри кристалла, справедливо следующее соотношение:

$$\mathbf{K}_0 - \mathbf{k}_0 = \delta \mathbf{n}, \quad (4.27)$$

где δ — скалярная величина. Соответствующее построение показано на рис. 4.13 в виде диаграммы. Просто, опустив нормаль к поверхности из начала вектора $\mathbf{k}_0$, мы получим линию, в одной из точек которой должен начинаться вектор (векторы) $\mathbf{K}_0$. Но он должен начинаться также на дисперсионной поверхности. Поэтому их пересечение дает нам точки возбуждения, известные как *связанные точки*. На рис. 4.14 показано полное построение для случая Лауэ (прохождение).

Вышеприведенное геометрическое построение удовлетворяет требованию о постоянстве тангенциальной составляющей волновых векторов.



дисперсионной поверхности в связанных точках, и только у выходной поверхности волны действительно расщепляются на пучки — дифрагированный и прямопроходящий дифракционный, как показано на рис. 4.15. Мы должны повторить построение граничных условий для волн, покидающих выходную поверхность кристалла, но, если поверхности параллельны, оно будет идентично построению у входной поверхности. Смещение прямопроходящего дифракционного пучка от прямого пучка, испытывающего обычное ослабление, достаточно большое, для того чтобы его можно было измерить на фотопластинке при подходящей толщине кристалла, и это дало возможность осуществить одну из экспериментальных проверок применимости динамической теории к высоко совершенным кристаллам [15].

Случай Брэгга (отражение) показан на рис. 4.16. Здесь ситуация не столь очевидна, потому что в зависимости от геометрии нормаль к поверхности либо пересекает две связанные точки на одной и той же ветви дисперсионной поверхности, либо не пересекает ни одной. Векторы Пойнтинга, соответствующие двум разным связанным точкам, различаются; поток энергии из одной точки направлен внутрь кристалла, а из другой — вне кристалла. Внешний поток поэтому не образует никаких волновых полей внутри кристалла, и им можно пренебречь. Таким образом, для каждого состояния поляризации возбуждается только одно волновое поле.

В тех случаях, когда ни одна из связанных точек не приходит в состояние возбуждения, в кристалле не возникает никакого волнового поля

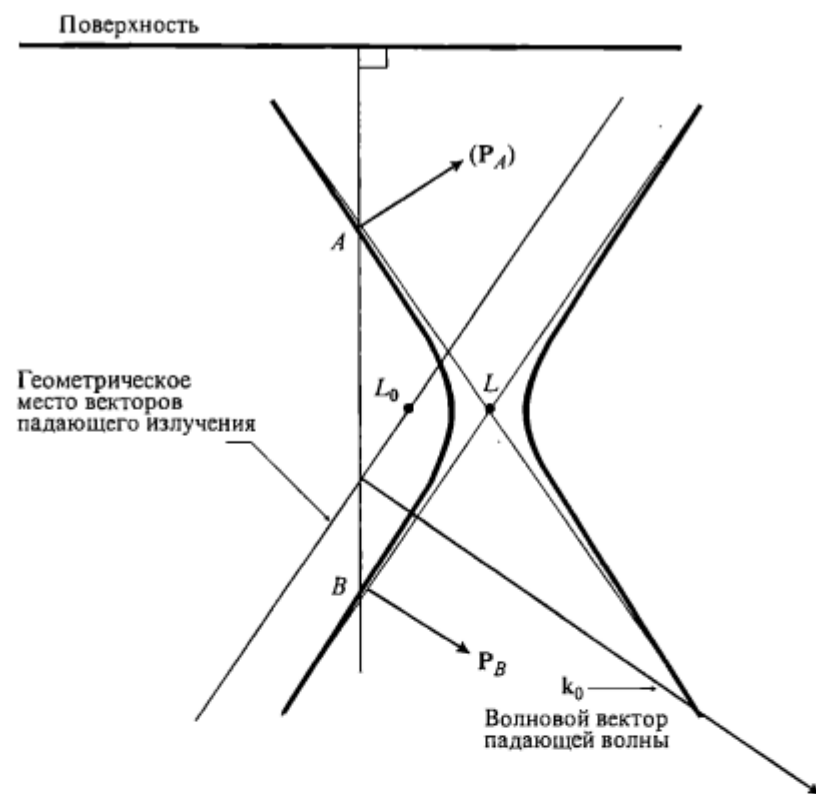


Рис. 4.16. Выбор положения связанных точек на дисперсионной поверхности в геометрии отражения (геометрия Брэгга) при помощи построения, приведенного на рис. 4.13.

(кроме слабой, очень быстро затухающей волны). Рентгеновские лучи эффективно выталкиваются из кристалла, и отражающая способность при нулевом поглощении равна 100 %. Это и есть *область полного отражения*.

4.3.4. Поглощение

Предыдущее рассмотрение было фактически проведено для материалов с нулевым поглощением, но учет поглощения влияет только на интенсивности. И построение дисперсионной поверхности, и согласование волновых векторов производятся всегда с реальными частями волновых векторов. При учете поглощения отражающая способность в геометрии Брэгга опускается ниже 100 %, но для таких слабо поглощающих материалов, как кремний она может быть все еще выше 99 %.

Далеко от условия Лауэ поглощение проявляется как нормальное фотоэлектрическое поглощение, его можно было бы измерить (с учетом плотности) так же как в жидкости или газе того же атомного состава. Около условия Лауэ поглощение рассчитывается через мнимые части диэлектрических восприимчивостей, что приводит к появлению мнимых составляющих волновых векторов. Эти мнимые составляющие всегда направлены

нормально к поверхности кристалла, и, следовательно, плоскости постоянного ослабления параллельны поверхности. Коэффициент ослабления $\mu(\mathbf{n})$, нормальный к поверхности, определяется выражением

$$\mu(\mathbf{n}) = -4\pi \operatorname{Im}(\mathbf{K}_0). \quad (4.28)$$

Сложнее выразить ослабление вдоль направления вектора Пойнтинга [16] так, чтобы мы могли видеть поглощение «лучей» в материале; однако интересно привести результат одного из вычислений Баттермана и Коля [6] для кристалла германия толщиной 1 мм в $\text{Cu K}\alpha$ -излучении. Далеко от дифракционного условия нормальное фотоэлектрическое поглощение дает $\mu t = 38$, поэтому прошедшая интенсивность была бы умноженной на $\exp\{-38\}$, что составляет $3.14 \cdot 10^{-14}$ от падающей интенсивности, но она совершенно не поддается регистрации. Однако в условиях сильной дифракции двум ветвям дисперсионной поверхности и двум состояниям поляризации отвечает разное поглощение, как показано в табл. 4.2 для отражающих плоскостей 220. Интенсивность 2σ -луча составляет 15 % от интенсивности падающего пучка, и ее легко измерить. Ослабление поглощения известно как эффект Бормана, или аномальное пропускание. И в этом случае эффект Бормана не является аномальным, поскольку теория смогла его объяснить, и он очень полезен при изучении толстых кристаллов с помощью рентгеновской топографии, так как любой дефект в веере Бормана будет нарушать условия сильного пропускания и давать контраст в изображении.

Величины, приведенные в табл. 4.2, рассчитаны для симметричной геометрии прохождения; плоскости 220 расположены нормально к поверхности, и из построения граничных условий следует, что возбужденные связанные точки находятся на диаметре дисперсионной поверхности. Вектор Пойнтинга перпендикулярен вектору $\mathbf{h}$, и поэтому поток энергии распространяется вдоль отражающих плоскостей. Различие коэффициентов поглощения имеет простое физическое объяснение. Волновые поля $\mathbf{K}_0$ и $\mathbf{K}_h$ имеют составляющие, которые распространяются в противоположных направлениях (параллельно и антипараллельно $\mathbf{h}$), с волновыми векторами, связанными уравнением Лауэ (4.20). Взаимодействие этих волн с другой парой распространяющихся волн приведет к образованию стоячих волн в кристалле, перпендикулярных к брэгговским плоскостям, и несложно пока-

Таблица 4.2

Поглощение (выраженное в безразмерных единицах μt) для различных пучков, появившихся в результате дифракционного отражения 220 в кристалле германия толщиной 1 мм

Ветвь	Поляризация	μt
2	σ	1.9
2	π	12.5
1	π	63.5
1	σ	74.0

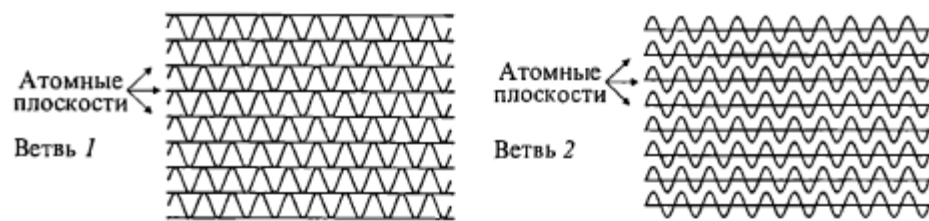


Рис. 4.17. Расположение стоячих волновых полей в симметричной геометрии Лауэ.

Пучности волновых полей от ветви 1 дисперсионной поверхности приходятся на атомные плоскости, и волновые поля испытывают сильное поглощение. Узлы волновых полей от ветви 2 дисперсионной поверхности лежат на атомных плоскостях, и волновые поля испытывают слабое поглощение.

зат, что их периодичность в обратном пространстве соответствует просто d , межплоскостному расстоянию. Возможно также определить фазу стоячих волн. Для волн, соответствующих ветви 2, узлы стоячего волнового поля расположены на самих атомных плоскостях, в то время как для ветви 1 они находятся между атомными плоскостями, как изображено на рис. 4.17. Поэтому разумно предположить, что фотоэлектрическое поглощение, которое обусловлено главным образом взаимодействием с внутренними электронными оболочками K и L , должно иметь минимум, когда пучности стоячей волны (области сильного электрического поля) находятся между атомными положениями, а не на самих атомных плоскостях. Интересным и полезным моментом является то сильное воздействие, которое это оказывает на величину поглощения.

4.3.5. Глубина проникновения

Глубина проникновения в отсутствие поглощения определяется длиной экстинкции ξ_h . Это глубина, на которой интенсивность отражения в совершенном кристалле падает в $1/e$ раз и на которой блоховская волна изменяет фазу на 2π :

$$\xi_h = \frac{\lambda \sqrt{|\gamma_h \gamma_0|}}{C \sqrt{\chi_h \chi_h}}. \quad (4.29)$$

Суммарное воздействие поглощения и этого эффекта заставляет интенсивность ослабляться быстрее. В отсутствие экстинкции глубина поглощения t_a получается из соотношения

$$t_a = \frac{\sin \varphi}{\mu}, \quad (4.30)$$

где μ — линейный коэффициент поглощения; φ — угол между падающим пучком и поверхностью кристалла.

4.3.6. Сферические волны

Мы уже не раз подчеркивали, что приближение плоской волны очень трудно получить при использовании лабораторных источников, которые правильнее описывать как источники сферических волн. Для такого источ-

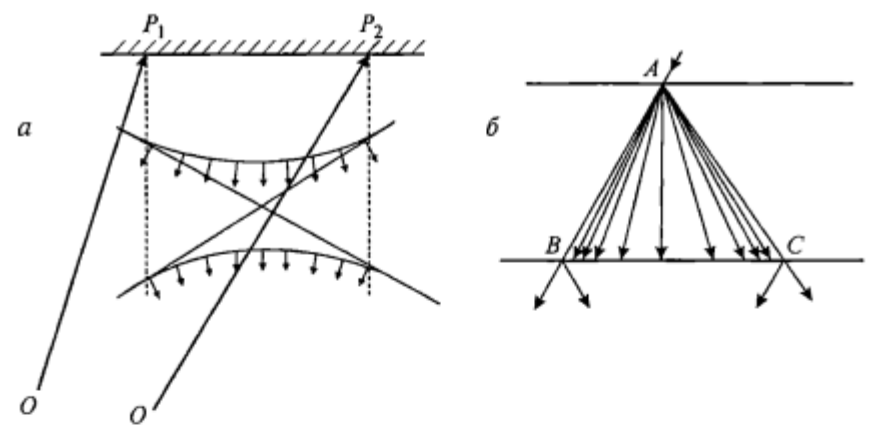


Рис. 4.18. Влияние сферических волн, падающих на поверхность кристалла, на возбуждение блоховских волн в кристалле.

а — представление в обратном пространстве: расходящийся падающий пучок характеризуется волновыми векторами, заключенными между направлениями P_1O и P_2O ; б — ситуация в реальном пространстве: энергия распределяется внутри всего веера Бормана ABC . Показаны пучки, возникающие на выходе из кристалла.

ника распределение интенсивности отражения от монокристалла будет определяться функцией источника (о ней см. в след. главах), а не вышеприведенными формулами и выражения для интегральной интенсивности будут умножаться на функцию источника.

Эффект, возникающий в результате действия расходящегося пучка на волновое поле внутри кристалла, играет очень важную роль в рентгеновской топографии, и его полезно рассмотреть на качественном уровне. Так как профиль кривой качания соответствует возбуждению связанных точек на дисперсионной поверхности последовательно на протяжении ее гиперболической области (рис. 4.18), из этого следует, что источник с расходимостью, большей чем ширина кривой качания, возбудит все точки на дисперсионной поверхности в пределах этой области. Графический способ представления этого эффекта, разработанный Като [14], состоит в том, что вся дисперсионная поверхность освещается расходящимся пучком. Как показано на рис. 4.18, б, это создает поток энергии внутри веера Бормана, ограниченного направлениями падающего и дифрагированного пучков. Это можно сравнить с многократным отражением пучков, изображенным на рис. 4.10. Такое представление будет наиболее полезным при интерпретации изображений на рентгеновских топограммах в геометрии прохождения. Дефекты в любой точке внутри веера Бормана могут давать вклад в изменение дифрагированной интенсивности на выходной поверхности кристалла и, следовательно, в контраст изображения.

4.4. Рассеяние в несовершенных кристаллах

В этой главе мы не будем останавливаться на детальном обсуждении более сложной проблемы рассеяния рентгеновских лучей в несовершенных кристаллах. Соответствующая теория будет представлена в последующих

главах по мере надобности. В этом разделе дадим только качественное описание влияния различных несовершенств и сошлемся на некоторые результаты.

4.4.1. Тепловые колебания

Атомы в кристалле не находятся в фиксированных положениях, а постоянно совершают *тепловые колебания*. Это приводит к уменьшению интенсивности рассеяния. По Захариазену [9] учет влияния этого эффекта на рассеяние Лауэ—Брэгга состоит в том, чтобы заменить факторы атомного рассеяния f_i на факторы g_i , определяемые выражением

$$g_i = f_i \exp(-M_k). \quad (4.31)$$

Здесь экспонента M_k зависит от среднеквадратичного отклонения атома от его положения равновесия и, следовательно, от температуры. Зависимость линейна с $(kT/m)(\sin \theta/\lambda)^2$, где k — постоянная Больцмана; T — абсолютная температура; θ — угол рассеяния; λ — длина волны; m — атомная масса (для материала из атомов одного сорта). Кроме того, имеются более сложные выражения, зависящие от симметрии кристалла. Так, например, для кремния при комнатной температуре f_i уменьшаются приблизительно на 6 %. С учетом этой поправки все уравнения динамической теории по-прежнему применимы.

4.4.2. Тепловое диффузное рассеяние

Когда атомы смещены из узлов решетки, они, очевидно, некоторое время находятся в различных положениях. Это означает, что они рассеивают рентгеновские лучи по направлениям, не совпадающим с направлением, которое предсказывается законом Брэгга. Это и есть *тепловое диффузное рассеяние*. Максимум теплового диффузного рассеяния смещен от брэгговских максимумов обычно на несколько угловых минут и слабее примерно на шесть порядков. В некоторых кристаллических структурах усредненные по времени колебания решетки могут не иметь такой же симметрии, как у основной решетки, и это сверх того приведет к диффузным брэгговским отражениям, которые могут появиться между узлами обратной решетки основной структуры.

4.4.3. Мозаичная структура

Мозаичная структура является самым типичным дефектом в большинстве реальных материалов. Предполагается, что блок мозаики — это совершенный кристалл определенного размера, отделенный резким изменением ориентации (большим, чем угловая ширина кривой качания) от соседних блоков. Эти разные блоки рассеивают независимо. Влияние мозаичности на рассеяние зависит от масштаба блоков мозаики по отношению к длине

экстинкции. Если линейный размер блоков существенно больше, чем длина экстинкции, то формулы динамического рассеяния применимы к каждому блоку и падающий пучок ослабляется путем многократного рассеяния, прежде чем он достигает следующего блока. Это явление известно как *первичная экстинкция*. Если блоки существенно меньше, чем длина экстинкции, применимы формулы кинематического рассеяния и пучок ослабляется только за счет фотоэлектрического поглощения; это так называемая *вторичная экстинкция*. Расчеты экстинкции в мозаичных кристаллах играют важную роль в анализе кристаллической структуры несовершенных кристаллов, но они не так актуальны для высокоразрешающей дифрактометрии. Мы попутно рассмотрим рассеяние от областей мозаичности, например при построении карт рассеяния в обратном пространстве, но заметим, что необходимость рассматривать трехмерное представление мозаичных кристаллов появляется нечасто.

4.4.4. Рассеяние на дислокациях

Случай, который можно рассматривать как рассеяние от области мозаичности, это рассеяние от нарушенной области вокруг отдельной дислокации. Можно различить два предельных случая. Если дислокации хорошо разделяются, т. е. кинематическое рассеяние от данной дислокации пренебрежимо мало, в то время как рассеяние от соседней с ней дислокации значительное, то в этом случае объемы нарушенного материала, разориентированного в пределах ширины кривой качания, могут быть рассчитаны и их вклад добавлен в рассеяние [17]. Если деформационные поля дислокаций сильно перекрываются, то в данном случае нужно построить корреляционную функцию, описывающую средние поля смещений, из которой можно будет рассчитать рассеяние. При современном оснащении трехосевых дифрактометров рассеяние от групп дислокаций [18] и даже от отдельных дислокаций [19] достаточно сильное, чтобы его измерить и получить количественные данные о плотности дислокаций.

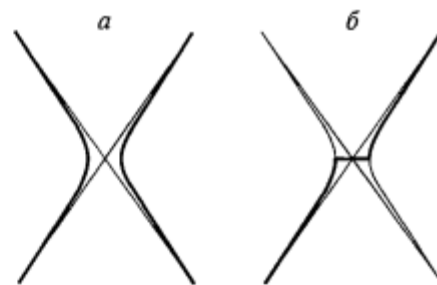
4.5. Формулы для определения ширины, формы и интенсивности кривых качания

В этой главе мы собираем все полезные формулы для описания формы, ширины и интегральной интенсивности кривых качания.

Сильная дифрагированная волна возникает только при условии, что оба параметра отклонения существенно больше нуля (уравнение (4.25)). Графический способ представления этого условия состоит в том, что область дисперсионной поверхности, отвечающая сильному отражению, имеет гиперболическую форму, т. е. существенно отличается от окружностей с центрами в точках O и H . Рис. 4.19 показывает, как связанные точки возбуждаются в каждом случае, когда мы пересекаем область отражения. Отметим, что в геометрии Лауэ связанные точки возбуждаются на обеих ветвях, а в геометрии Брэгга — на одной или на другой ветви, либо не возбуждаются

Рис. 4.19. Область сильной дифракции в геометрии Лауэ (а) и в геометрии Брэгга (б).

Жирными линиями показана область дисперсионной поверхности, на которой располагаются центры возбуждения, возникающие при прохождении кривой качания.



ни на одной из ветвей, как в случае полного внешнего отражения, когда волна выталкивается из кристалла.

На рис. 4.19 область гиперболической формы показана отдельно, чтобы яснее представить ее зависимость от диаметра Λ дисперсионной поверхности. Так как вектор $\mathbf{K}_0$ большой, мы можем написать:

$$\Delta\theta_{1/2} = \frac{\Lambda}{\sin \theta_B K_0}. \quad (4.32)$$

Так как $h = 2K_0 \sin \theta_B$ (это закон Брэгга), то

$$\Delta\theta_{1/2} = \frac{2\Lambda}{h}. \quad (4.33)$$

для симметричного случая (отражающие плоскости параллельны или перпендикулярны поверхности). В асимметричном случае дисперсионную по-

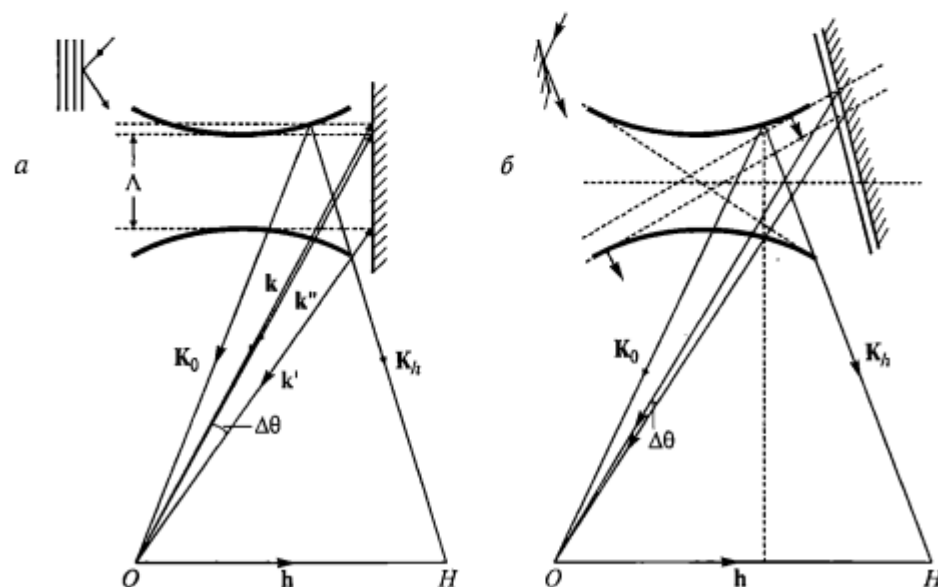
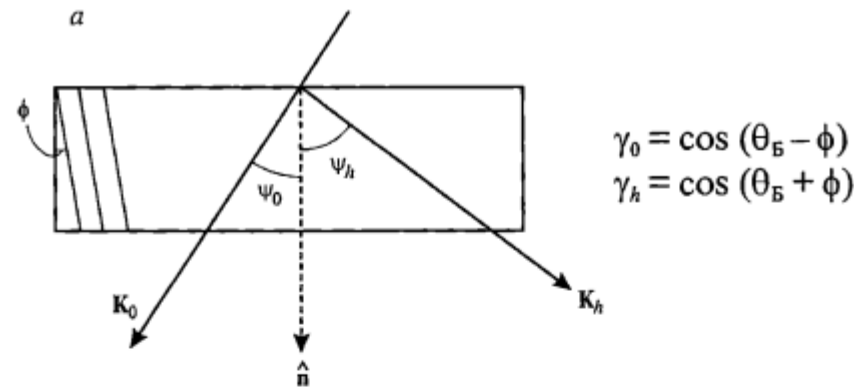


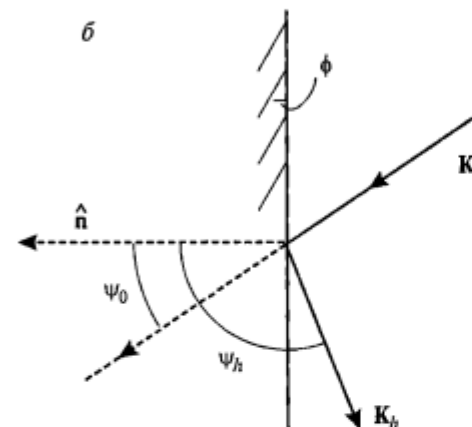
Рис. 4.20. Зависимость области сильного дифракционного отражения от диаметра дисперсионной поверхности.

а — симметричное отражение; б — асимметричное отражение.



$$\gamma_0 = \cos(\theta_B - \phi)$$

$$\gamma_h = \cos(\theta_B + \phi)$$



$$\gamma_0 = \sin(\theta_B - \phi)$$

$$|\gamma_h| = \sin(\theta_B + \phi)$$

$$\gamma_0 = (\mathbf{K}_0 \cdot \hat{\mathbf{n}})/k$$

$$\gamma_h = (\mathbf{K}_h \cdot \hat{\mathbf{n}})/k$$

или

$$\gamma_0 = \cos \psi_0$$

$$\gamma_h = \cos \psi_h$$

Рис. 4.21. Определение направляющих косинусов γ_0 и γ_h .
а — случай Лауэ; б — случай Брэгга.

верхность «рассматривают» под косым углом и это будет давать уширение или сужение кривой качания для скользкого падения или скользкого отражения соответственно (рис. 4.20).

Уравнение (4.33) выполняется, по крайней мере приблизительно, для обеих геометрий, как прохождения, так и отражения, но тонкая структура кривых качания в каждом случае разная. Вывод выражений, описывающих форму кривых качания, достаточно сложный, и мы приведем их без вывода. Здесь приведены самые общие выражения для случая асимметричной дифракции, в которых используются направляющие косинусы γ_0 и γ_h . Их определяют как косинусы углов, которые падающий и отраженный пучки соответственно образуют с внутренними нормальными к поверхности (рис. 4.21). Выражения для асимметричной геометрии общего вида можно упростить, когда фактическая геометрия дифракции известна. Фактор асимметрии b

получается из выражения

$$b = \gamma_0 / \gamma_h,$$

где $b = 1$ для симметричной лауэ-геометрии и $b = -1$ для симметричной брэгговской геометрии.

4.5.1. Формулы для случая Брэгга

Полуширина кривой качания w (ширина кривой на половине высоты максимума) определяется выражением

$$w = \frac{2C \sqrt{\chi_h \chi_h'}}{\sin 2\theta_B} \sqrt{\frac{|\gamma_h|}{\gamma_0}}. \quad (4.34)$$

Отметим, что если $w_{\text{сим}}$ — это полуширина кривой качания для симметричного отражения, то

$$w = w_{\text{сим}} \sqrt{\frac{|\gamma_h|}{\gamma_0}}. \quad (4.35)$$

Мы приводим простейшее выражение для формы, или профиля, кривой качания в функции параметра отклонения η , который изменяется от -1 до $+1$ в области, вмещающей всю дифрагированную интенсивность. В таком случае отражающая способность в зависимости от угла имеет вид

$$R_B = |b| \left| \eta \pm \sqrt{\eta^2 - 1} \right|^2, \quad (4.36)$$

где η определяется как

$$\eta = \frac{-b \Delta\theta \sin 2\theta + 1/2 \chi_0 (1 - b)}{|C| |b|^{1/2} (\chi_h \chi_h')^{1/2}} \quad (4.37)$$

для общего случая асимметричной геометрии при нулевом поглощении (т. е. χ_0 и χ_h — действительные числа). Положительный корень квадратный соответствует связанным точкам, расположенным на ветви 1, и отрицательный — на ветви 2. Добавляя поглощение, мы получаем действительную и мнимую части параметра отклонения:

$$\eta' = \frac{-\Delta\theta \sin 2\theta + \chi_0'}{|C| \chi_h'}, \quad (4.38)$$

$$\eta'' = -\frac{\chi_h''}{\chi_h'} \left(\eta' - \frac{1}{|C| \epsilon} \right), \quad (4.39)$$

где $\epsilon = \chi_h'' / \chi_0''$.

Примеры кривых качания для случаев низкого и высокого поглощения будут показаны в следующей главе.

Интегральная интенсивность I_{hi} в асимметричной брэгговской геометрии без учета поглощения равна

$$I_{hi} = \frac{4}{3} \frac{1 + |\cos 2\theta|}{\sin 2\theta} \sqrt{\frac{|\gamma_h|}{\gamma_0}} |\chi_h| \quad (4.40)$$

и с учетом поглощения

$$I_{hi} = \frac{\lambda^2 (e^2/mc^2) N |F_H'| |P|}{\pi \sin 2\theta} \int \left(\frac{E_H^e}{E_0^e} \right)^2 d\eta, \quad (4.41)$$

где

$$\left(\frac{E_H^e}{E_0^e} \right)^2 = G(\eta) - [G^2(\eta) - 1]^{1/2}, \quad (4.42)$$

$$G(\eta) = \frac{\eta^2 + X^2 + \left\{ [\eta^2 - (1 + Y^2 - Z^2)]^2 + [2X(\eta + Z)]^2 \right\}^{1/2}}{1 + B^2} \quad (4.43)$$

и

$$X = \frac{F_0''}{|P| F_H'}, \quad Y = \frac{F_H''}{F_H'}, \quad Z = \frac{|P| F_H''}{F_0''}. \quad (4.44)$$

4.5.2. Формулы для случая Лауэ

В геометрии Лауэ в предельном случае толстого непоглощающего кристалла ширина кривой качания равна

$$\Delta\theta = \frac{2 |C| e^2 \lambda^2 |F_h'|}{\pi V mc^2 \sin 2\theta} = \frac{2 |C| |\chi_h|}{\sin 2\theta}. \quad (4.45)$$

Профиль кривой качания в асимметричной лауэ-геометрии без учета поглощения определяется выражением

$$R_0 = \frac{1 + 2\eta^2 + \cos 2\pi \frac{t}{\Lambda} \sqrt{1 + \eta^2}}{2(1 + \eta^2)},$$

$$R_h = \frac{1 - \cos 2\pi \frac{t}{\Lambda} \sqrt{1 + \eta^2}}{2(1 + \eta^2)}, \quad (4.46)$$

где R_0 и R_h — отражающие способности прямопроходящего и дифрагированного пучков соответственно.

Отметим, что интенсивность теперь является периодической функцией как толщины кристалла t , так и обратной величины диаметра дисперсион-

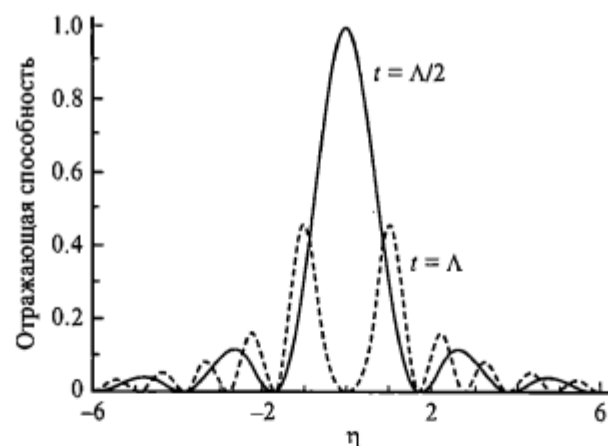


Рис. 4.22. График распределения интенсивности как функции параметра отклонения и толщины кристалла t .

ной поверхности $1/\Lambda$. Это наглядно изображено на рис. 4.22, который показывает кривую качания как функцию толщины кристалла.

Интегральная интенсивность в геометрии Лауэ без учета поглощения получается из формулы

$$I_{hi} = \frac{|C| |\chi_h|}{\sin 2\theta} \frac{\gamma_h}{\gamma_0} \int_0^{2\pi t \Lambda_0^{-1}} J_0(z) dz, \quad (4.47)$$

где J_0 — функция Бесселя нулевого порядка.

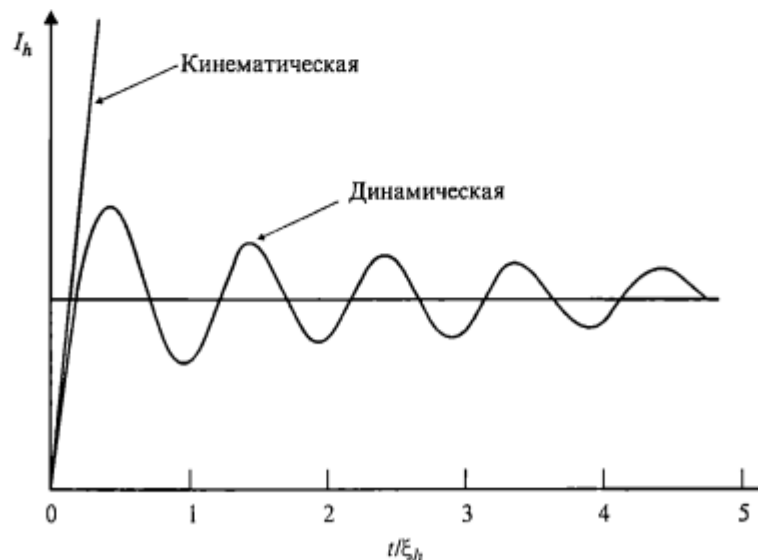


Рис. 4.23. Интегральная интенсивность в геометрии прохождения как функция толщины кристалла согласно кинематической и динамической теориям.

Здесь контраст с кинематической теорией выступает с наибольшей очевидностью. Обе кривые на рис. 4.23 построены как функции толщины. Видно, что для малых толщин обе формулы дают аналогичные результаты, но при больших толщинах кинематическая теория коренным образом расходится с динамической и динамическая интенсивность осциллирует около уровня насыщения после толщины $\sim \xi_h$.

С учетом поглощения отражающая способность определяется выражением

$$R_H^{\eta'} = \exp(-\mu_0 t) \cos B \int_0^{\pi} \frac{\cos \left[\frac{B}{(1 + (\eta')^2)^{1/2}} \right]}{(1 + (\eta')^2) \cos B} d\eta', \quad (4.48)$$

где

$$\eta' = \frac{\Delta\theta \sin 2\theta}{|C| |\chi_h|} \quad (4.49)$$

и

$$B = \frac{\mu_0 t |C| F_h''}{F_0''}. \quad (4.50)$$

4.6. Заключение

Итак, мы увидели, что можем количественно описать распространение и рассеяние рентгеновских лучей в совершенных кристаллах. Эта теория очень хорошо разработана, и ее точность проверялась очень много раз на протяжении более 80 лет. Такие кристаллы, как кремний и германий, достаточно совершенны, чтобы показать количественное согласие с теорией в пределах диапазона по меньшей мере семи или восьми порядков величины рассеянной интенсивности. Теория находит постоянное применение для конструирования рентгеновской оптики и при моделировании рассеяния в эпитаксиальных слоях кристаллических материалов.

Литература

1. Cockerton S., Green G. S., Tanner B. K. // Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 1989. Vol. 139. P. 65.
2. Brown G. S. // Synchrotron radiation research / Eds H. Winick, S. Doniach. New York: Plenum Press, 1980. P. 387; Evans J. // Catalysis, Royal Society of Chemistry. Spec. Period. Rep. 1989. N 8. P. 1.
3. James R. W. The optical principles of the diffraction of X-rays. Connecticut: Ox Bow Press, 1982.
4. Authier A. // Advances in structure research and diffraction methods / Eds Brill and Mason. 1970. Vol. 3. P. 1.

5. МОДЕЛИРОВАНИЕ РЕНТГЕНОВСКИХ ДИФРАКЦИОННЫХ КРИВЫХ КАЧАНИЯ

5. Authier A. // *X-ray and neutron dynamical diffraction: Theory and applications* / Eds A. Authier, S. Lagomarsino, B. K. Tanner. New York: Plenum Press, 1997. P. 1.
6. Batterman B. W., Cole H. // *Rev. Mod. Phys.* 1966. Vol. 36. P. 681.
7. Hart M. // *Characterization of crystal growth defects by X-ray methods* / Eds B. K. Tanner, D. K. Bowen. New York: Plenum Press, 1980. P. 216.
8. Pinsker Z. G. *Dynamical scattering of X-rays in crystals*. Berlin: Springer, 1977; Пинскер З. Г. *Динамическое рассеяние рентгеновских лучей в идеальных кристаллах*. М.: Мир, 1974.
9. Zachariasen W. H. *Theory of X-ray diffraction in crystals*. New York: Wiley-Dover reprint. 1945.
10. Hart M. // *Rept. Prog. Phys.* 1971. Vol. 34. P. 435.
11. Laue M. von. *Röntgenstrahlinterferenzen*. Frankfurt: Akad. Verlag, 1960.
12. Ziman J. M. // *Principles of the theory of solids*. London: Cambridge University Press, 1964.
13. Kato N. // *Acta Crystallogr.* 1958. Vol. 11. P. 885.
14. Kato N. // *Acta Crystallogr.* 1960. Vol. 13. P. 349.
15. Authier A. // *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris.* 1960. T. 251. P. 2003; Authier A., Balibar F., Epelboin Y. // *Phys. Stat. Sol.* 1970. Vol. 41. P. 225.
16. Bonse U. // *Z. Phys.* 1964. Bd 177. S. 385.
17. Kaganer V. M., Kohler R., Schmidbauer M., Opitz R., Jenichen B. // *Phys. Rev. B.* 1997. Vol. 55. P. 1793.
18. Koppensteiner E., Schuh A., Bauer G., Holy V., Watson G. P., Fitzgerald E. A. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1995. Vol. 28. P. A114.
19. Goorsky M. S., Mehkinpour M., Streit D. C., Block T. R. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1995. Vol. 28. P. A92.

В этой главе рассматривается компьютерное приложение динамической теории дифракции: теория Такаги—Топэна, решение для сеток и тонких слоев, моделирование кривых качания высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии, параметры отклонения, стратегии моделирования, действие деформации, дислокаций и скоплений дефектов. Приведен ряд примеров моделирования.

5.1. Введение

В гл. 3 мы продвинулись, насколько могли, в анализе кривых качания эпитаксиальных слоев, исходя непосредственно из характеристик самих этих кривых. В конце главы отметили пределы этого простого и большей частью геометрического анализа. Когда преобладают эффекты межслоевой интерференции, как например в очень тонких слоях, хорошо согласованных слоях или сверхрешетках, простая теория малоприменима для их описания. Поэтому мы должны использовать метод, основанный на динамической теории рассеяния рентгеновских лучей, которая в общих чертах была изложена в предыдущей главе. В принципе, это изложение содержит все, что нам нужно, так как теперь мы располагаем общими представлениями и формулами, описывающими амплитуду и распространение блоховской волны, согласование на границах раздела и интерференционные эффекты.

К сожалению, классическая динамическая теория, в значительной степени проясняя физику распространения волн, в то же время не очень удобна для практического использования. В ней много монотонных расчетов: в частности, например, проблемы согласования волн и размножения пучков следует рассматривать на каждой границе. Если бы теория осталась в своем классическом виде, можно с уверенностью сказать, что высокоразрешающая рентгеновская дифрактометрия не стала бы тем основным методом, которым она является сегодня. В идеале мы хотим иметь такую теорию, с помощью которой, имея экспериментальную кривую качания, можно определить структуру. Это пока еще невозможно, так как проблема относится к классу обратных задач с ограниченными экспериментальными данными (в частности, данными о фазе рентгеновских лучей и об ограниченной области обратного пространства, которую дает нам кривая качания). То что мы действительно имеем, — это практическую теорию, на основе которой можно создавать компьютерные программы и моделировать кривые качания материала с известной структурой. Сравнение деталей формы, а затем и интенсивностей теоретических и экспериментальных кривых дает возможность постепенно приближать модельную структуру к реальной. Моделирование кривых качания — это мощный метод анализа сложных структур. Помимо этого, моделирование ценно для планирования экспериментов, оп-

тимизации стратегии сбора данных и для повышения образовательного уровня новых исследователей и операторов, работающих на высокоразрешающих дифрактометрах.

5.1.1. Обобщенная дифракционная теория Такаги—Топэна

Эту обобщенную дифракционную теорию, развитую независимо Такаги [1, 2] и Топэном [3], можно применять для описания распространения рентгеновских лучей через кристалл с *любым типом* искажений решетки. Теория Такаги—Топэна формулируется не в терминах волновых полей, а в виде соотношений, описывающих процессы множественного рассеяния и знакомых специалистам в области электронной микроскопии по уравнениям Хови—Уэлана. В ней предполагается, что рентгеновские лучи распространяются в виде плоских волн и рассеяние происходит как в направлении дифрагированного пучка, так и из него. Хотя такое описание и кажется неверным с физической точки зрения, мы должны помнить, что блоховские волны представляют собой просто сумму плоских волн в прямом и дифрагированном направлениях. Поэтому математически мы всегда можем соблюсти баланс, добавляя уточняющие фазовые множители в рассеяние от прямопроходящей волны к дифрагированной и обратно.

Применение этой теории для моделирования кривых качания многокомпонентных и многослойных систем дает нам то преимущество, что мы предполагаем волновой вектор единственным и никакого согласования на границах делать не нужно. Таким образом, пожертвовав пониманием физики того, что происходит в кристалле, мы получаем метод математических вычислений, который работает превосходно. Теория применима одинаково хорошо и к деформированным, и к нарушенным, и к совершенным кристаллам. Поэтому она превратилась в самый мощный метод как для объяснения кривых качания сложных эпитаксиальных систем, так и для расчета контраста дефектов типа дислокаций на рентгеновских топограммах. При помощи методов расчета контраста рассеянную рентгеновскую интенсивность связывают с микроскопическими деформациями решетки в кристалле.

Волновое поле внутри кристалла описывается в дифференциальной форме; D_0 и D_h теперь представляют собой полные амплитуды волн в прямом и дифрагированном направлениях, которые являются медленно меняющимися функциями координат. Насколько медленно? Как ни странно, теория работает очень хорошо и для изменений настолько резких, как дефекты упаковки и релаксированные интерфейсы эпитаксиальных слоев. И в этом случае $\mathbf{K}_0$ и $\mathbf{K}_h$ — это векторы падающей и рассеянной волн. Кроме того, мы считаем, что вектор $|\mathbf{K}_0| = nk$, где n — коэффициент преломления вдали от брэгговского отражения. Как это большей частью принято при рассмотрении рентгеновской дифракции, мы используем двухволновое приближение, согласно которому волновые поля только в преломленном и дифрагированном направлениях имеют заметную интенсивность. При этих допущениях Такаги и Топэн взяли представление волнового поля в виде модифицированной блоховской волны и получили два связанных дифференциальных уравнения второго порядка в частных производных, выражен-

ных в направлениях преломленного и дифрагированного пучков $\mathbf{s}_0$ и $\mathbf{s}_h$ (которые являются *единичными* векторами в направлениях $\mathbf{K}_0$ и $\mathbf{K}_h$):

$$\frac{i\pi\partial D_0}{\lambda\partial s_0} = \chi_0 D_0 + C_{\chi-h} D_h, \quad (5.1)$$

$$\frac{i\pi\partial D_h}{\lambda\partial s_h} = (\chi_0 - \alpha_h) D_h + C_{\chi h} D_0, \quad (5.2)$$

где C — фактор поляризации; α_h представляет отклонение падающей волны от точного брэгговского положения. Этот параметр имеет ключевое значение, так как именно его мы изменяем, когда сканируем образец и регистрируем кривую качания. Мы рассматриваем рассогласованные слои, слои с градиентом состава и все виды дефектов согласно тому влиянию, которое они оказывают на вектор локально искаженной обратной решетки и, следовательно, на параметр отклонения.

Для совершенного однородного кристалла независимо от того, монокристалл ли это или тонкий слой, уравнения Такаги—Топэна имеют точное решение, которое приведено в следующем разделе. Однако для общего случая многослойных систем необходимо численное интегрирование этих уравнений. Представления дисперсионной поверхности теряют смысл, и мы не можем прямо ответить на вопрос, в каких направлениях распространяются волновые поля. Уравнения дают нам *непосредственно* интенсивности прямого и дифрагированного пучков, образующихся на выходе из кристалла, и сохраняют все детали интерференционной картины.

5.2. Методики получения численного решения

Теперь наша задача состоит в том, чтобы решить уравнения Такаги—Топэна и увязать решение с параметром отклонения, чтобы иметь возможность предсказывать любую интенсивность. Для общего случая деформированного кристалла используют численное решение. Самым общим является решение по сетке точек, которую можно изменять любым путем, чтобы, например, моделировать деформации, вызванные дислокацией или выделением на заданной глубине, и, исходя из этого, рассчитывать рентгенотопографическое изображение. Это обсуждается в восьмой главе. Было принято много попыток решить уравнения Такаги аналитическим путем. Единственные решения, которые нам здесь действительно интересны, — это решения для совершенного кристалла и тонкого слоя.

5.2.1. Решения для тонкого слоя и подложки

Халивелл, Джулер и Норман получили важное решение уравнений Такаги—Топэна для однородного слоя с известными составом, структурой и толщиной [4]. Это дает возможность получить любое одномерное распре-

ление деформации путем разбиения кристалла на ламели постоянной деформации. Решение выражается в функции следующих переменных:

$$A = C_{\chi-h}, \quad (5.3)$$

$$B = \frac{(1-b)\chi_0}{2} + \frac{\alpha_h \pi}{2}, \quad (5.4)$$

$$D = \frac{\pi}{\lambda \gamma_0}, \quad (5.5)$$

$$E = -C b \gamma_h, \quad (5.6)$$

где $b = \gamma_0 / \gamma_h$. Кроме того, мы пишем

$$F = \sqrt{BB - EA}. \quad (5.7)$$

Все они являются комплексными переменными, так как поляризуемости — это комплексные числа. Мы получаем отношение амплитуд X наверху (на выходе из) слоя, исходя из отношения амплитуд X' внизу (на входе):

$$X = \frac{X'F + i(BX' + E) \operatorname{tg}(DF(z-w))}{F - i(AX' + B) \operatorname{tg}(DF(z-w))}. \quad (5.8)$$

Переменная z — это глубина выше глубины w , на которой отношение амплитуд равно известному значению X' ; фактически это толщина слоя или ламели. Мы знаем отношение амплитуд глубоко внутри кристалла; здесь как дифрагированная интенсивность, так и первичная амплитуда равны нулю, но, так как их отношение должно быть всегда меньше 1, в этом случае и отношение амплитуд $X' = D_h / D_0(z)$ тоже должно быть равно нулю. В конце концов можно получить отражающую способность толстого кристалла:

$$X = - \left(\frac{B + F \operatorname{sign}(\operatorname{Im}(F))}{A} \right). \quad (5.9)$$

Параметры A , B , D и E играют принципиально важную роль. Они зависят от поляризуемостей кристалла χ_0 , χ_h , $\chi_{\bar{h}}$, косинусов углов наклона падающего и дифрагированного лучей относительно внутренней нормали к поверхности (γ_0 и γ_h при факторе асимметрии $b = \gamma_0 / \gamma_h$), фактора поляризации C , длины волны λ и параметра отклонения α_h . За исключением α_h , мы можем найти или вычислить все эти величины, исходя из состава и структуры материала и геометрии эксперимента. Таким образом, проблема сводится к расчету параметра отклонения.

5.2.2. Вычисление деформации и несоответствия

При умеренно больших углах параметр отклонения получается из выражения [5]:

$$\alpha_h = -2 \Delta \theta_h \sin 2\theta_B, \quad (5.10)$$

где $\Delta \theta_h$ — локальное отклонение от точного угла Брэгга, учитывающее деформации решетки (с тем условием, что углы падения ниже угла Брэгга отрицательны); θ_B — локальный точный угол Брэгга в вакууме. При малых углах, которые имеют очень важное значение для анализа тонких слоев, лучше подходит выражение [6]:

$$\alpha_h = \left[\gamma_0 (\gamma_0 - \gamma_h - 2 \sin \theta_B \cos \phi) + \frac{1}{2} \chi_0 (1 - b) \right] \times \\ \times \left[|b|^{1/2} C (\chi_h \chi_{\bar{h}})^{1/2} \right]^{-1}. \quad (5.11)$$

Вычисление угла Брэгга и параметра отклонения требует строго научного подхода, чтобы рассматривать деформации и несоответствия независимо от того, вызваны ли они изменениями состава или, например, ионной имплантацией. Хороший метод состоит в следующем. Все углы отклонения соотносятся с идеальным углом Брэгга подложки. Тогда метод вычисления параметра отклонения для произвольного слоя будет состоять из следующих этапов:

1. Опираясь на базы данных, определяется элементарная ячейка материала слоя в полностью релаксированном (т.е. объемном) состоянии. Для растворов, в состав которых входит более одного материала, применяется закон Вегарда к параметрам решетки, коэффициентам Пуассона и структурным факторам. Находится диэлектрическая восприимчивость слоев (пренебрежимо малым изменением восприимчивости в тех случаях, когда слой деформирован, можно пренебречь).

2. Вычисляются деформации ϵ_{xx} и ϵ_{yy} , которые могли бы быть, если бы параметры решетки слоя в плоскости интерфейса были изменены до сопряжения с подложкой (полностью когерентная эпитаксия). Величины ϵ_{xx} и ϵ_{yy} умножают на $(1 - R)$, где R — это (частичная) релаксация слоя. (См. обсуждение измерения релаксации в гл. 3).

3. Рассчитывается деформация слоя ϵ_{zz} в направлении, перпендикулярном интерфейсу, из соотношения [7]:

$$\epsilon_{zz} = -(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) \left\{ \frac{\nu}{1 - \nu} \right\}. \quad (5.12)$$

4. Чтобы получить новую элементарную ячейку, применяются деформации к материалу слоя. Отсюда находят угол Брэгга слоя, разность $\Delta \theta$ между углами Брэгга слоя и подложки и угол наклона $\Delta \phi$ между отражающими плоскостями в слое относительно подложки. Затем параметр откло-

нения α_h вычисляется отдельно для каждой геометрии дифракции следующим образом:

— в симметричном случае

$$\alpha_h = \Delta\theta_s - \Delta\theta; \quad (5.13)$$

— в асимметричном случае при скользящем падении

$$\alpha_h = \Delta\theta_s - (\Delta\theta - \Delta\phi); \quad (5.14)$$

— в асимметричном случае при скользящем отражении

$$\alpha_h = \Delta\theta_s - (\Delta\theta + \Delta\phi), \quad (5.15)$$

где $\Delta\theta$ — отклонение от угла Брэгга в подложке — является определяющим параметром, который задает и начало отсчета, и масштаб на оси абсцисс на заключительном построении кривой качания.

Отметим, что методика, описанная в пункте 3, является более общей, чем обычная приближенная формула

$$m = m^* \cdot \left\{ \frac{1 - \nu}{1 + \nu} \right\}, \quad (5.16)$$

где m и m^* — это релаксированное и рентгеновское несоответствия. Отметим, что рентгеновское несоответствие — это не деформация в слое, а несоответствие между подложкой и слоем в деформированном состоянии. Эта формула пренебрегает членами второго порядка, которые могут стать большими для слоев с большим несоответствием, и она хуже подходит для учета релаксации. Новый метод является гораздо более общим, дает возможность точно вычислять асимметричные отражения и не делать приближений в расчетах при больших значениях параметра отклонения.

Из вышеприведенных уравнений видно, что в слое предполагается тетрагональная дисторсия. Строго говоря, это верно только при условии, что ориентация подложки (001), хотя для симметричных отражений рассмотрение имеет силу при любой ориентации подложки в приближении изотропной теории упругости. Тем не менее дисторсия в слое была бы, например, тригональной на поверхности подложки (111), что серьезно повлияло бы на результаты вычисления угла Брэгга.

5.2.3. Вычисление отражающей способности

Таким образом, мы вычисляем отражающую способность всего материала, разбитого на подслои, от подложки до поверхности, используя отношение амплитуд толстого кристалла в качестве входного значения для первой ламели, затем значение на выходе из первой как входное значение для второй и так далее. На выходе из материала отношение амплитуд преобразуется в отношение интенсивностей. Этот расчет повторяется для каждой точки на кривой качания, соответствующей различным отклонениям от

Брэгговского условия. Он дает нам плоскостную отражающую способность, которая подходит для экспериментов с синхротронным излучением и для других экспериментов с пучками, высококоллимированными при помощи многокристалльных систем.

5.2.4. Приближения и ограничения

Динамическая теория дифракции — это очень точная и высокопрактичная теория, но ни одна из теорий не дает идеального описания всей сложности реальных образцов. Каковы же ограничения и приближения динамической теории и насколько они серьезны?

Двухволновое приближение. Наиболее практичные программы моделирования используют только два луча — прямой и дифрагированный, т. е. помимо падающего имеется еще только один сильный пучок. Для большинства случаев это — превосходное приближение, так как весьма трудно осуществить настоящий многоволновой рентгеновский дифракционный эксперимент. Ситуация с рентгеновским рассеянием противоположна той, которая имеет место в просвечивающей электронной микроскопии (где почти невозможно избежать многоволновой дифракции), вследствие того что длина волны, используемая в большинстве рентгеновских экспериментов, больше и сфера Эвальда изогнута резче. Для излучения высокой энергии, которое, например, доступно на современных накопительных кольцах, многоволновая дифракция начинает играть более существенную роль, но в обычных экспериментах по исследованию материалов ею можно пренебречь.

Однако при углах скользящего падения, близких к критическому углу, зеркально отраженный пучок начинает играть важную роль и его вклад в рассеяние в конце концов делается основным. Это — важный эффект, и при расчете рассеяния для углов скольжения, близких к критическому углу, двухволновое приближение становится причиной серьезной ошибки. К счастью, интенсивность зеркально отраженного пучка убывает как четвертая степень угла рассеяния и он становится слабее дифрагированного (вблизи пика Брэгга) уже при углах, больших приблизительно двух-трехкратного значения критического угла. Критический угол равен 0.22° для кремния и 0.31° для GaAs в случае $\text{Cu } K_\alpha$ -излучения, и его зависимость от длины волны является линейной.

Закон Вегарда. Стало общепринятым аппроксимировать поведение твердого раствора в отношении как параметра решетки, так и коэффициента Пуассона путем линейной интерполяции между конечными точками системы, образующей раствор; например, значения для $\text{Ga}_{0.5}\text{Al}_{0.5}\text{As}$ берутся посередине между значениями для GaAs и AlAs. В отсутствие обширных экспериментальных данных, которых просто нет, это — единственный общий метод, имеющий широкое практическое применение. Нет и общей теории, описывающей отклонения от линейной зависимости, известной как закон Вегарда, который первоначально был предложен и хорошо оправдал себя в линейных изменениях параметров решетки ионных кристаллов [8]. В системах, которые изучались, интерполяция параметра решетки оказалась разумной. Например, система «кремний—германий» отклоняется от

закона Вегарда только на $\sim 2\%$ при любом соотношении компонентов [9]. Почти нет сведений о поведении коэффициента Пуассона в зависимости от состава твердого раствора в полупроводниках, но известно, что поведение упругих постоянных сильно зависит от электронных взаимодействий. Было бы неудивительно, если бы имелись большие отклонения от закона Вегарда в некоторых нестандартных случаях. И конечно, в отсутствие надежных экспериментальных данных нет возможности оценить величину этой ошибки в обычных случаях. Ошибки закона Вегарда содержатся, конечно, не в теории рассеяния, а в тех данных, которые закладываются в модель структуры. Если мы располагаем хорошими данными, закон Вегарда перестает быть источником ошибок.

Дислокационное уширение. В настоящее время этот эффект можно только приблизительно представить так, как было показано в гл. 4, а не включать его в динамическую теорию с тем, чтобы она полностью описывала влияние дислокаций. Дислокационное уширение является важной причиной уширения пиков в «трудных» материалах, таких как деформированные слои.

Пренебрежение диффузным рассеянием. Кроме того, как было показано в гл. 4, дислокации вызывают диффузное рассеяние от околоядерных областей. Точечные дефекты всех типов также вызывают диффузное рассеяние. Хотя мы до сих пор не имеем законченных теорий, чтобы его описать, мы можем довольно хорошо представить диффузное рассеяние при помощи функции Лоренца вида

$$I = \frac{A}{k^2 + \Delta\theta^2}. \quad (5.17)$$

В некоторых случаях можно найти лоренциан более высокого порядка, чтобы получить лучшее совпадение.

Компьютерные приближения. Их почти совсем нет в современных коммерческих программах для компьютерного моделирования (хотя программы действительно отличаются по полноте учета всех эффектов, описанных в этой главе). Основные источники ошибок находятся в способе учета инструментальной функции, от которой в значительной степени зависит обмен между скоростью и точностью при обработке больших массивов данных.

Точность и чувствительность по всей кривой качания. Хотя использование закона Вегарда вносит неопределенность, которую нельзя количественно оценить, ясно, что другие ошибки не превышают уровня $\sim 1\%$, если образец хорошего качества и точно описан. То, что путем моделирования было получено очень много успешных результатов, которые помогли наладить работу полупроводниковых приборов с параметрами, критически зависящими от состава твердого раствора, заставляет поверить, что величина ошибок, вносимых законом Вегарда, также находится на уровне 1% . Поэтому можно ожидать, что для образцов хорошего качества с плотностью дислокаций ниже 10^3 см^{-2} удастся получить совпадение между расчетными и экспериментальными данными на уровне $2\text{—}5\%$ для положений и интенсивностей по всей кривой качания.

Эти цифры не следует путать с чувствительностью метода. Мы увидим, что некоторые характеристики покажут чувствительность гораздо выше той, которая вытекает из рассмотренных приближений. Чувствительность всегда усиливается для слабых структурных характеристик, если они могут модулировать эффекты, вызванные сильными характеристиками. Примерами являются пики, которые возникают вблизи пика подложки и изменяют его форму [10], или очень тонкие слои с большой разницей в атомных номерах элементов по отношению к соседним слоям.

5.3. Учет инструментальных искажений

Теперь мы должны ввести инструментальную функцию, которая при использовании систем на основе лабораторного оборудования является результатом влияния коллиматора пучка. В гл. 2 мы подробно рассмотрели коллиматоры пучка и показали, что их можно охарактеризовать посредством интенсивности, зависящей как от расходимости, так и от длины волны.

5.3.1. Эффект коллиматора пучка

Рассмотрим сначала расходимость пучка. В гл. 2 было показано, что для учета расходимости необходимо выполнить математическую операцию корреляции (часто ошибочно называемую сверткой) между плоскостными кривыми качания кристаллов, соответствующих коллиматору пучка и образцу. Если $R_1(\alpha, \lambda)$ и $R_2(\alpha, \lambda)$ — отражающие способности (в единицах интенсивности) первого и второго кристаллов, зависящие от угла падения α для данной длины волны λ , то полная двухкристалльная отражающая способность $R(\beta, \lambda)$ при любом угле β первого кристалла относительно второго получается из формулы [11]:

$$R(\beta, \lambda) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} R_1(\alpha, \lambda) R_2[(\alpha - \beta), \lambda] d\alpha}{\int_{-\infty}^{\infty} R_1(\alpha, \lambda) d\alpha}. \quad (5.18)$$

Знаменателем (постоянной нормализации) является интегральная отражающая способность первого кристалла, и зависимость от λ учитывает спектральное распределение источника (смотри следующий раздел). Строго говоря, интегралы берутся от минус бесконечности до плюс бесконечности, но их следует ограничить до разумного значения, которое согласуется с требуемой точностью.

Вторым свойством системы, коллимирующей пучок, является волновая дисперсия. В случае, когда коллиматор пучка — это другой кристалл, чем образец, используемый в бездисперсионной геометрии, мы наблюдаем уширение кривой качания, как было показано в гл. 2. Каждая длина волны будет иметь свою независимую кривую качания. В бездисперсионной

($+n, -n$)-геометрии или если полоса пропускания коллиматора пучка очень узкая, в учете этого эффекта нет необходимости. В общем случае мы должны интегрировать отражающую способность в каждой точке на кривой качания по всем длинам волн:

$$R(\beta) = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} R(\beta, \lambda) d\lambda. \quad (5.19)$$

Фактор нормализации отсутствует, так как все $R(\lambda)$ независимы. Обычным проявлением дисперсии является прохождение двух K_α -линий в дисперсионной ($+n, -m$)-геометрии. Если углы Брэгга образца и эталона сильно отличаются, то линии $K_{\alpha 2}$ и $K_{\alpha 1}$ разделяются и все пики становятся дублетами с отношением высот 1 : 2. Для моделирования этого эффекта достаточно рассчитать две кривые качания для длин волн, соответствующих линиям $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$, и сложить результаты в отношении 1 : 2.

Однако если дисперсия мала, как в случае, например, кристаллов GaAs и InP, дающих смешанные вклады в отражение 004 в качестве кристалла-коллиматора и образца, то кривая качания просто уширяется. Моделирование такого уширения до разумного приближения можно выполнить, увеличивая кривизну, которая равна угловому разделению углов Брэгга линий $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$.

5.3.2. Влияние шума детектора

Малый вклад в логарифмическую кривую будет очевиден у нижнего конца кривой и фактически незаметен у вершины. Для хорошего совпадения с экспериментальными кривыми, построенными в логарифмическом

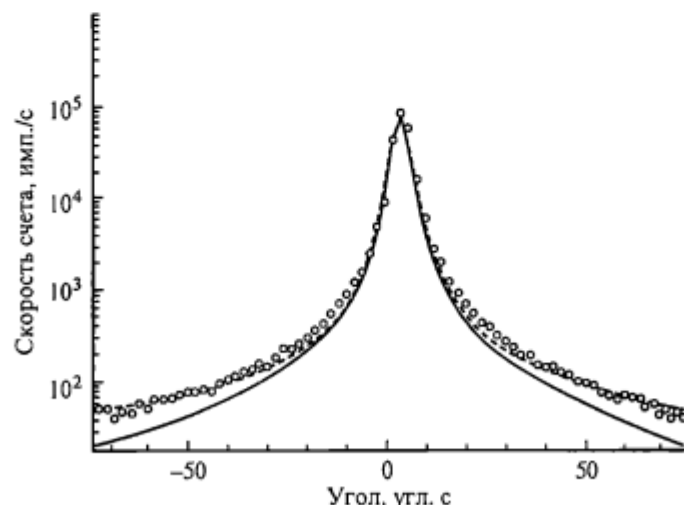


Рис. 5.1. Сравнение между экспериментальной и расчетными кривыми качания с учетом и без учета фона. (Образец Si; 004 отражение; $\text{Cu } K_\alpha$ -излучение).

Расчетные кривые: сплошная — без учета фона, штриховая — с учетом фона; точки — экспериментальная кривая.

масштабе (чтобы видеть слабые пики), необходимо добавить фоновый шум. В случае хорошо настроенной системы шум — это главным образом фон детектора, который можно измерить при угле, далеком от пика подложки. Кроме того, можно применить автоматическую нормализацию расчетной кривой к величине пика подложки и к наименьшему уровню интенсивности на хвостах экспериментальной кривой. Рис. 5.1 показывает этот эффект.

5.3.3. Эффект кривизны образца

Если образец или эталон изогнуты, а это легко происходит, когда вы укрепляете пластины на держателе образца при помощи слишком большого количества клеящего вещества, то кривая качания уширяется. Уширение имеет место потому, что разные части образца удовлетворяют дифракционным условиям под разными углами. При моделировании этот эффект можно учесть путем корреляции кривой качания с прямоугольником (в пространстве углов), ширина которого равна изменению в угле падения от одной

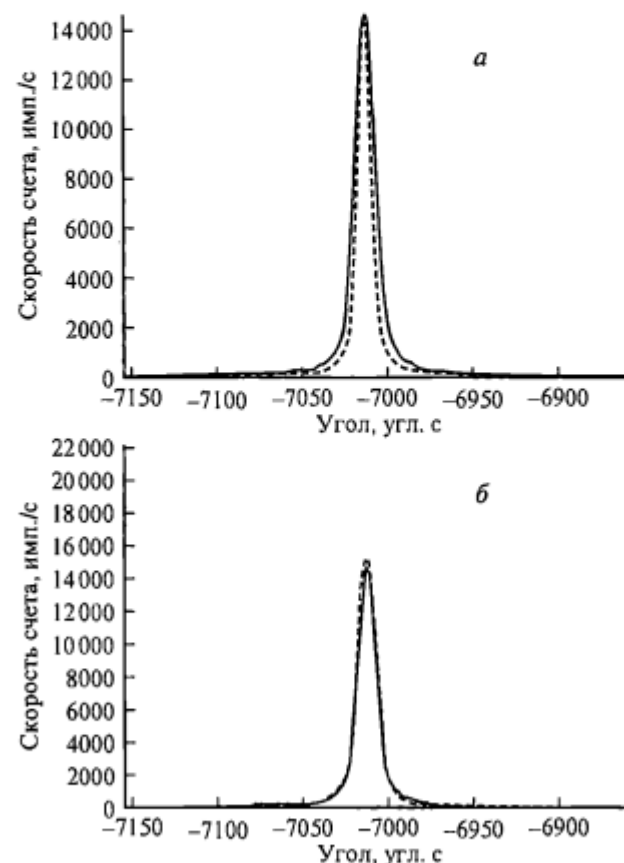


Рис. 5.2. Сравнение (нормализованное) между экспериментальной и расчетной кривыми качания образца InP в 004 отражении, $\text{Cu } K_\alpha$ -излучении.

a — сравнение без учета кривизны; *б* — сравнение с учетом кривизны величиной $10''$.

стороны пучка до другой. Ошибка, которая вносится предположением, что интенсивность падающего пучка является прямоугольной функцией угла, пренебрежимо мала. Рис. 5.2 показывает этот эффект.

5.4. Ограничения подхода, основанного на моделировании

Конечная цель проведения эксперимента по рассеянию рентгеновских лучей состоит в том, чтобы суметь извлечь микроскопические деформации из рассеянной интенсивности. Однако, за исключением нескольких специальных случаев, фазовая информация теряется из-за того, что мы можем измерять только интенсивность, а не амплитуду рассеянной волны. Поэтому прямое определение структуры с использованием преобразования типа Фурье невозможно. Вместо этого мы должны применять метод, в котором распределение интенсивности рентгеновского рассеяния рассчитывается, исходя из модели структуры, и расчетное распределение сравнивается с экспериментальным. Путем последовательного изменения структурных параметров добиваемся наилучшего совпадения с экспериментальными данными и делаем вывод, что структура исследуемого материала является структурой нашей модели. Заметьте, что этот метод применим как для анализа данных высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии, так и для расчета рентгеновских дифракционных топограмм.

В данном методе имеется ряд неудовлетворительных особенностей, о которых следует знать. Во-первых, это единственность решения. Теоретически мы можем верить в то, что, согласно теореме единственности в электромагнетизме, фактически существует только одно идеальное совпадение между экспериментом и результатом моделирования. Тем не менее, даже если это и так, мы никогда не имеем достаточно идеальных данных, для того чтобы обеспечить выполнимость этого строгого условия. Все экспериментальные данные имеют статистический разброс, ненулевой фон и охватывают конечную область волновых векторов. На практике вообще может не быть единственного решения в истинном смысле слова, и это тотчас же приводит нас ко второй проблеме — проблеме локальных минимумов.

Чтобы получить соответствие между экспериментом и результатом моделирования, сначала находится глобальный минимум в разности между двумя массивами данных. Когда многие параметры являются переменными, как например в сверхрешетках, тогда в этой разности появляется большое число локальных минимумов. Многие из них могут быть достаточно мелкими и их трудно избежать, глобальный же минимум, наоборот, часто очень глубокий, но он имеет слишком ограниченную область в параметрическом пространстве. В таком случае в процессе работы необходимо сильно приблизиться к правильному решению перед тем, как результат моделирования сойдется с результатом эксперимента. В настоящее время использование алгоритмов автоматической подгонки, таких как «downhill Simplex», очень рискованно, и, хотя ведется поиск алгоритмов, которые будут распознавать локальные минимумы, кажется, что удовлетворительное решение проблемы еще не найдено.

Третьей проблемой, которая встает при моделировании данных, полученных дифракционными методами высокого разрешения, является отсутствие специфической инструментальной функции. В анализе дифракционных данных от поликристаллов инструментальную функцию можно определить, придав характерную форму всем дифракционным пикам. Разделение пиков поэтому возможно, и методы подгонки, такие как методика Рьетвелда, можно использовать, чтобы подогнать перекрывающиеся дифракционные пики. Никакой подобный метод невозможен в высокоразрешающей дифракции, так как форма профиля кривой качания очень сильно зависит от толщины образца и его структурного совершенства. Если вы не знаете ответа заранее, вы не сможете определить форму пика.

5.5. Примеры моделирования

5.5.1. Стратегия моделирования

Моделирование, охватывающее все детали, требует времени; типичный, умеренно сложный материал может потребовать нескольких миллионов сложных перемножений блуждающих точек! Чтобы сберечь время, стоит научиться некоторым стратегическим приемам, которые мы предлагаем.

1. До того как начать моделирование, решите, что является его целью. Необходимо ли полностью охарактеризовать структуру образца или достаточно убедиться в том, что его параметры не выходят за пределы контрольных значений?

2. Сначала приведите в соответствие основные характеристики кривой качания, используя плосковолновое приближение и одну σ -поляризацию. Вы должны иметь возможность согласовать все главные пики по расстоянию и приблизительно по интенсивности. Затем начните изменять параметры модели, чтобы привести в соответствие интенсивности и полуширины.

3. Добавьте инструментальную функцию. В случае если ее вклад велик, то инструментальная функция будет влиять на ширины и относительные пиковые интенсивности, но не на интегральные интенсивности.

4. Добавьте кривизну (если это физически целесообразно). Она имеет такой же эффект, как и инструментальная функция.

5. Добавьте другое состояние поляризации. Это изменяет интенсивности на 20—30 %, но почти не сказывается на полуширинах. Введение поляризации удваивает время компьютерной обработки.

6. Отметим, что поправки на инструментальную функцию и кривизну больше влияют на узкие пики (например, от подложки), чем на широкие.

7. Вначале не делайте шаг очень мелким. Компьютерная обработка плосковолновой кривой качания линейно зависит от количества шагов и от количества слоев. Корреляция с коллиматором пучка не зависит от количества слоев, но изменяется как число шагов *в квадрате* или, если используют метод интегрального преобразования, как логарифм количества шагов.

8. Отметим, что шаг, размер которого соизмерим с расстоянием между интерференционными осцилляциями, дает паразитные периодичности — эффект, хорошо известный в теории контроля (теорема Найквиста), поэтому завершающий этап моделирования должен быть выполнен с мелким шагом.

Чтобы получить общее представление об использовании моделирования в высокоразрешающей дифракции, смотрите работу Таннера [12]. Здесь мы даем пример моделирования, показывающий все промежуточные стадии и наши методические разработки, и применяем такую последовательность действий, которая улучшает скорость сходимости. Основопологающий принцип состоит в том, что в первую очередь должны быть выявлены и согласованы *характеристики кривых*, и только во вторую должны быть приведены в соответствие *параметры модели*.

Использование всех сведений, которые имеются под рукой у специалиста по выращиванию кристаллов

Это может показаться элементарным, но удивительно, как часто просят рассчитать рентгеновскую кривую качания для образца, о структуре которого почти ничего не известно. Поэтому правило первое: расспросите специалистов по выращиванию кристаллов, какая структура, по их мнению, выращена. Правило второе: не верьте им! Степень надежности их ответа можно оценить на нескольких уровнях. Мало вероятно, чтобы ростовик перепутал, например, InGaAs с AlGaAs, поэтому обычно можно быть уверенным в последовательности осажденных соединений. Составы можно уточнять в процессе моделирования; однако если имеются данные других методов, таких как фотолюминесценция или RHEED, то надежность сведений вашего коллеги-ростовика можно будет оценить через некоторое время. Аналогично этому приблизительную толщину различных слоев можно определить из других данных и использовать ее в качестве параметра для первого приближения. Однако никогда ни одно утверждение специалистов по выращиванию кристаллов нельзя принимать как абсолютную истину. Есть замечательный пример одной промышленной MBE-структуры, на которой компьютер не мог правильно сосчитать число слоев в многослойнике! Это было незадолго до того, как появилась возможность следить за процессом по экрану и принимать подтверждение дифракционных данных. Помимо этого, необходимо интересоваться у ростовика, не содержит ли структура случайных «крышек» или буферных слоев. Последние могут приводить к сложным интерференционным явлениям, и их осаждение желательно контролировать в той же мере, как и осаждение активных слоев. Позабывшись о том, чтобы установить хорошие рабочие отношения со своим коллегой-ростовиком, вы сможете получить начальные условия, близкие к реальности. Это избавит вас от многих локальных минимумов и значительно сократит время, затрачиваемое на моделирование.

Первичная обработка экспериментальных данных

В гл. 3 мы рассмотрели, как извлечь данные непосредственно из кривых качания. Теперь применение этих представлений и формул поможет нам получить нашу модельную структуру.

Перед тем как приступить к первому приближению, необходимо выделить те брэгговские пики, которые присутствуют на кривой качания. Для этого можно применить ряд критериев.

а) *Самый узкий пик почти всегда тот, который относится к подложке.* Это правило хорошо работает для полупроводниковых соединений, таких как AlGaAs на GaAs, CdHgTe на CdTe и InGaAsP на InP, где области отражения совершенного кристалла приблизительно одинаковы для полубесконечных кристаллов из материалов как подложки, так и слоя. Там, где правило перестает работать, возникает ситуация, при которой подложка имеет структурный фактор больше, чем материал слоя. Например, теоретически возможно, чтобы слой Si толщиной 1 мкм, выращенный на GaAs, имел кривую, полуширина которой равна 5", тогда как полуширина подложки равна 12" для плосковолнового Cu K α -излучения и отражения 004. На практике слой Si релаксирует с образованием большого количества дислокаций и кривая качания будет уширена за счет деформаций. (Кроме того, маловероятно, чтобы кто-либо захотел вырастить Si на GaAs, а не наоборот, но этот пример приведен с целью предупреждения. Может быть, что в будущем появится возможность выращивания алмаза на кремнии).

б) *Посмотрите на параметры решетки, чтобы определить, больших или меньших углов Брэгга для слоя и подложки Вам следует ожидать.* За исключением тех случаев, когда слой AlGaAs покрывает сильно релаксированный деформированный слой [13], он всегда дает пики, находящиеся при меньших углах Брэгга, чем пики GaAs, так как параметр решетки AlAs больше, чем у GaAs. Там, где параметры решеток двойных соединений находятся с обеих сторон параметра подложки, например InAs и GaAs относительно InP, не существует способа, чтобы узнать *a priori*, будет ли пик слоя или подложки находиться при большем угле. Затем измеряется интегральная интенсивность под пиками. (Если ваша программа сбора данных не может выполнить это измерение, то большинство графических пакетов сделает это для вас). С помощью рис. 3.9 вычисляется толщина слоя из отношения интегральных интенсивностей. Если обычно используется другая эпитаксиальная система, то можно посоветовать получить такой же рисунок путем выполнения ряда этапов моделирования.

в) *Измеряется разделение пиков для разных пиков и составляется таблица.* Для определения предполагаемого состава слоев используются уравнения из третьей главы с учетом того, что некоторые пики могут возникнуть в результате сильных интерференционных эффектов, а не вследствие отражения от фактически существующих слоев.

г) *Если исследуемая структура — сверхрешетка, то выделяются равноотстоящие пики сателлитов сверхрешетки и измеряется расстояние между ними.* Если есть такая возможность, то определяется нулевой пик в ряду сателлитов. Он соответствует углу Брэгга для среднего состава многослойника. Выделив нулевой пик, можно получить еще одну порцию данных для первого приближения. В случае двойной сверхрешетки, например AlAs/GaAs, положение нулевого пика даст отношение толщины ямы к

барьеру. Наряду с периодом, который определяется из расстояния между пиками сверхрешетки, можно получить толщину обеих составляющих. Для тройных/бинарных систем, таких как AlGaAs/GaAs, ни толщина, ни состав не могут быть определены по отдельности.

В гл. 6 моделирование сверхрешеток рассматривается более подробно.

Определение периодов осцилляций

Вторая характеристика, которую нужно измерить до получения пробного решения, — это период всякой системы осцилляций, которая видна на кривой качания. Его измерение можно провести вручную из разделения соседних пиков или путем фурье-анализа соответствующим образом обработанных данных. Если следовать последнему способу, то брэгговские пики нужно исключить из данных путем обрезания углового интервала и полную форму дифракционного профиля привести в соответствие и затем вычесть, чтобы оставить периодическое изменение на почти нулевом фоне. В конце концов автокорреляция данных значительно уменьшает шум и заостряет фурье-спектр. Методы для проведения такого анализа можно найти в работе Хадсона с соавторами [14]. В применении такого сложного метода, как правило, нет необходимости, за исключением случая, когда на осцилляциях видны биения, предположительно указывающие на существование двух систем осцилляций с близкими периодами. Уравнения для периода интерференционных осцилляций даны в разд. 3.4.8.

5.5.3. Пример 1. Однослойная структура

Объединяя сделанные выводы с данными, полученными от специалиста по выращиванию кристаллов, приступим к получению нашей исходной структурной модели. В этом разделе мы используем вышеизложенную стратегию, для того чтобы осуществить моделирование кривой качания, показанной на рис. 5.3, которая, как мы считаем, принадлежит единственному слою AlGaAs на GaAs.

Отметим при этом, что:

- а) острый пик справа будет пиком GaAs;
- б) пик слоя отстоит от пика подложки на $120''$, тем самым давая возможность предположить, что слой имеет состав $\text{Al}_{0.31}\text{Ga}_{0.69}\text{As}$ при условии, что он полностью деформирован;
- в) отношение интегральных интенсивностей слой/подложка = 0.76 : 1 указывает на то, что толщина слоя равна 1.5 мкм;
- г) период интерференционных осцилляций, равный $12.5''$, также позволяет считать, что толщина слоя составляет 1.5 мкм. (Если бы полученные значения толщины не совпали, нам следовало бы полагать, что период осцилляций является более надежным показателем толщины слоя).

Рис. 5.4 показывает соответствие между экспериментом и расчетом, полученное после первого приближения.

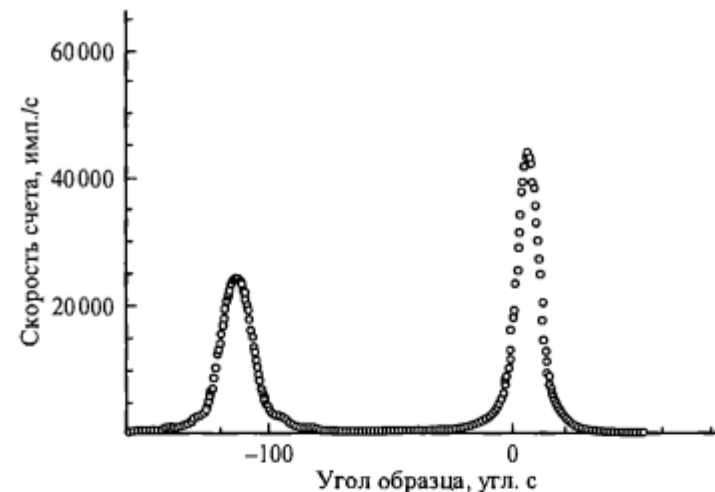


Рис. 5.3. Экспериментальная кривая образца, состоящего из единичного слоя AlGaAs на подложке GaAs.

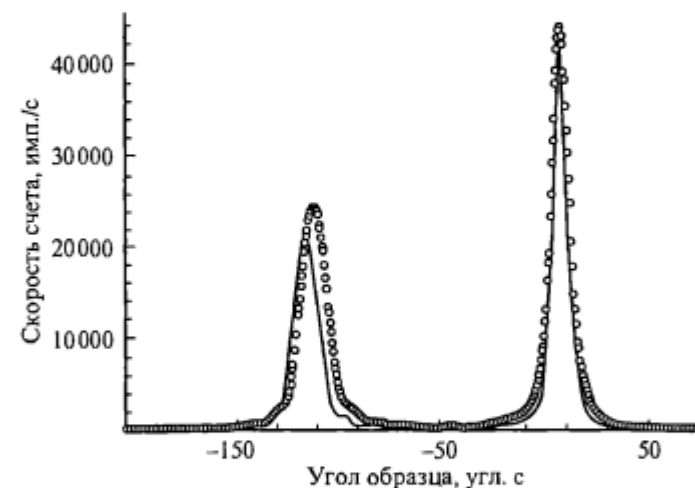


Рис. 5.4. Результаты расчета первого приближения с параметрами, полученными после первичной обработки кривой качания.

Сплошная кривая — расчетная; точки — экспериментальные данные.

Настройка параметров

Соответствие на рис. 5.4 нельзя считать удовлетворительным, вследствие того, что пик смещен на $4''$ при моделировании и в эксперименте. Это неудивительно, так как при определении состава мы приняли коэффициент Пуассона равным 0.33. Период осцилляций также слишком велик, больше чем на $\sim 10\%$. Нас не должны слишком огорчать небольшие расхождения типа этих: хорошо известно, что коэффициент Пуассона для GaAs составляет 0.281, о значении его для AlAs все еще идут споры. В связи с этим

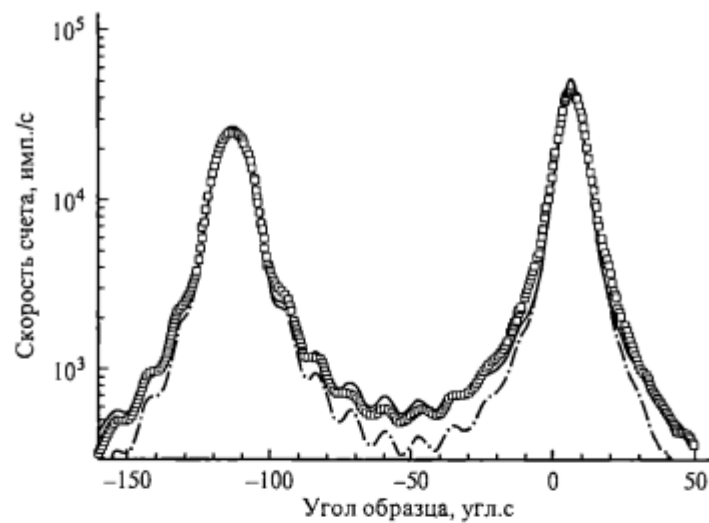


Рис. 5.5. Сравнение кривой качания (малые квадраты) с результатом второго приближения (штриховая линия).

Эффект учета диффузного рассеяния показан сплошной линией.

можно посоветовать проводить проверку базы данных любой коммерческой программы, чтобы увидеть, какое значение там находится (см. [15]—[17]).

Исходя из разделения пиков, изменим состав в масштабе отношения $120''/124''$ и увеличим толщину слоя до 1.6 мкм. Как видно из рис. 5.5, путем такой настройки мы получаем хорошее соответствие для расстояний как между пиками, так и между осцилляциями.

Главным различием между экспериментом и результатом моделирования теперь является широкий фон, максимальный в угле Брэгга подложки. Вероятно, что он вызван диффузным рассеянием от дислокаций и других дефектов в подложке (а может быть, и в слое тоже). Очень хорошее представление диффузного рассеяния дает функция Лоренца в виде, приведенном в уравнении (5.17). В данном примере, используя $k = 2.2 \cdot 10^3$, $A = 1.2 \cdot 10^9$ и $\Delta\theta$ в угловых секундах, мы получаем хорошее совпадение с экспериментальными данными.

5.5.4. Пример 2. Транзистор с высокой подвижностью электронов (НЕМТ-структура)

В качестве второго примера рассмотрим кривую качания от структуры, представляющей собой транзистор с высокой подвижностью электронов, и покажем в точности все стадии процесса моделирования. На рисунках приведены все кривые качания, которые были рассчитаны с того момента, когда мы впервые предприняли изменение параметров модели. Это пример в реальном времени!

Структура состоит из тонкого слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, выращенного эпитаксиально на подложке GaAs и прикрытого верхним слоем GaAs. Мы знаем,

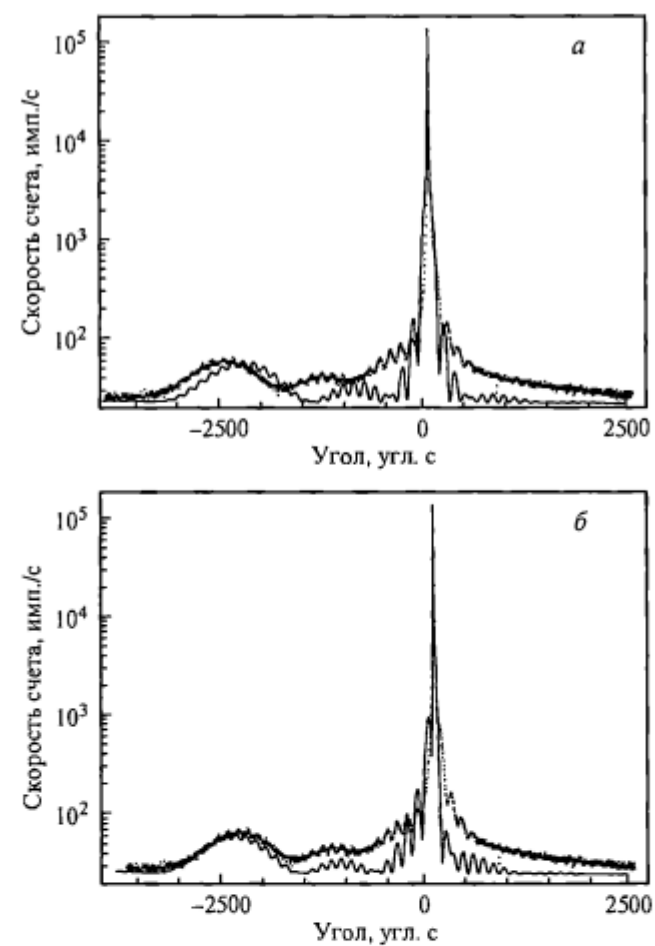


Рис. 5.6. Структура транзистора с высокой подвижностью электронов.

а—е — последовательность этапов моделирования, как описано в тексте.

Расчетные кривые: сплошные — с учетом диффузного рассеяния; штриховые — без учета диффузного рассеяния; точки — экспериментальные данные.

что верхний слой имеет толщину около 1000 Å и что толщина слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ~200 Å. Экспериментальная кривая качания была получена в симметричном отражении 004 $\text{CuK}_{\alpha 1}$, поэтому мы можем сразу оценить содержание In, предполагая, что слой $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ полностью упруго деформирован и не релаксирован. Это делается просто путем определения положения широкого пика слева на рис. 5.6, а по отношению к острому пику подложки справа. Из выражения

$$\Delta\theta = -\frac{\Delta d}{d} \operatorname{tg} \theta = -m^* \operatorname{tg} \theta \quad (5.20)$$

для значений $\Delta\theta = 9600''$ и $\theta = 33^\circ$ мы выводим эффективное несоответствие $m^* = 0.1432$. Принимая коэффициент Пуассона равным 0.333 и тем

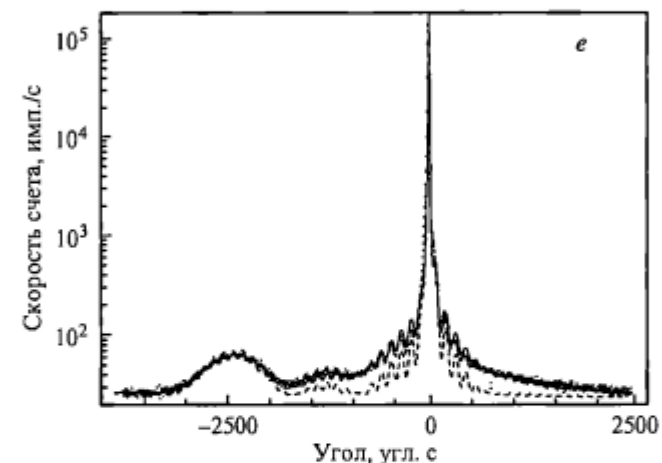
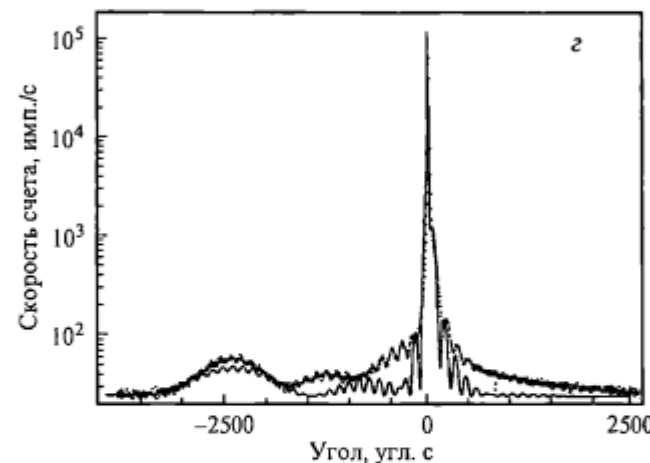
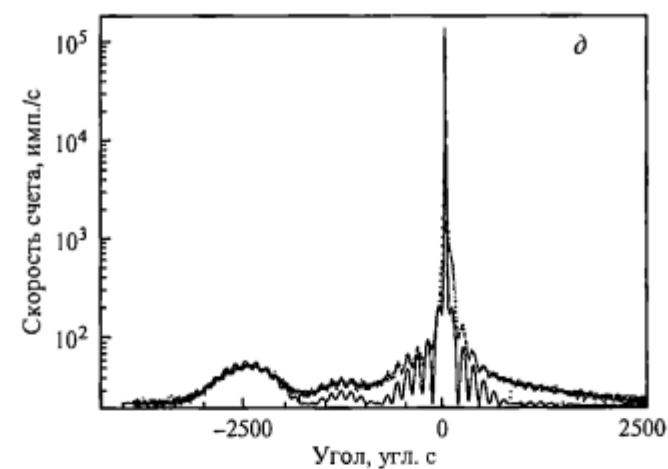
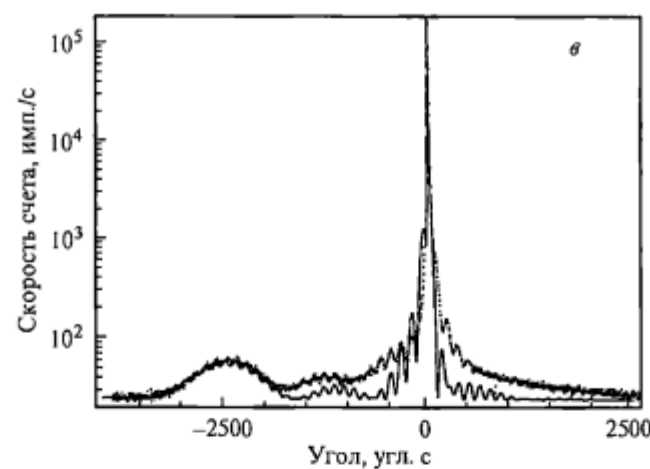


Рис. 5.6 (продолжение).

Рис. 5.6 (продолжение).

самым имея $m^* = 2m$, мы получаем действительное несоответствие $m = 0.0716$. При том что параметр решетки $a(\text{InAs}) = 6.0584 \text{ \AA}$ и $a(\text{GaAs}) = 5.65375 \text{ \AA}$, мы сразу приходим к предварительному значению $x = 0.13$.

Период высокочастотных осцилляций соответствует сумме толщин обоих слоев или, возможно, толщине верхнего слоя. Принимая последнее утверждение и подставляя измеренный период осцилляций $\Delta\theta_p = 120''$ в формулу

$$\Delta\theta_p = \frac{\lambda}{2t \cos \theta}, \quad (5.21)$$

получаем $t = 1580 \text{ \AA}$ для верхнего слоя GaAs. «Пик» на расстоянии $-946''$ от пика подложки — это на самом деле интерференционная осцилляция, соответствующая толщине слоя InGaAs. Используя ту же формулу, мы определяем, что исходная толщина для слоя InGaAs равна $200 \text{ \AA}$.

Расчетная кривая на рис. 5.6, а показывает результат использования этих параметров в процессе моделирования. Расчетные данные были нормализованы к $150\,000$ имп./с в пике подложки, чтобы учесть нелинейность детектора. Тотчас же становится ясно, что пик слоя занимает неправильное положение и это вызвано тем, что при выведении исходных параметров мы приняли коэффициент Пуассона равным 0.333 . При моделировании было использовано исправленное значение коэффициента Пуассона. Затем было проведено уточнение величины x на величину отношения расчетного и экспериментального расщеплений пиков, т. е. до значения $(2526/2267) \times 0.13 = 0.145$. Рис. 5.6, б показывает результат использования этого значения, и мы сразу же видим, что положения пиков теперь согласуются очень хорошо. Они отличаются на $45''$, и на рис. 5.6, в показано аналогичное небольшое уточнение тем же путем до $x = 0.1425$. Теперь достигнуто превосходное совпадение.

Однако расщепление интерференционного пика в положении $-946''$ слишком слабое на расчетной кривой, на $140''$ меньше, чем на эксперимен-

тальной, и это позволяет предположить, что исходная толщина слоя InGaAs была взята слишком большой. Рис. 5.6, *г* показывает результат уменьшения толщины слоя InGaAs до 170 Å и увеличения толщины верхнего слоя GaAs до 1410 Å для компенсации. Это было явной логической ошибкой, так как мы стремились придвинуть толщинную осцилляцию к пику подложки! Рис. 5.6, *д* показывает результат увеличения толщины InGaAs до 220 Å при неизменной общей толщине 1580 Å, так как период короткопериодных интерференционных осцилляций согласован очень хорошо. Это гораздо лучше!

Полученный результат достаточно хороший, для того чтобы на данном этапе осуществить свертку с первым кристаллом. Отметим, что предыдущие приближения были сделаны в условиях плоской волны, значительно сокращающих время компьютерной обработки. По результатам свертки не видно существенных изменений в качестве совпадения. Теперь необходимо настроить толщину слоя InGaAs, чтобы уточнить положение короткопериодных осцилляций. Снижение толщины до 215 Å ясно показывает, что этот путь неверен. Окончательное изменение толщины до 225 Å дает нам почти идеальное соответствие, показанное на рис. 5.6, *е*.

Добавка члена, описывающего лоренцевское диффузное рассеяние, в виде $1.5 \cdot 10^7 / (\Delta\theta^2 + 3 \cdot 10^5)$ приводит к превосходному соответствию, как видно на рис. 5.6, *е*. Итак, нам потребовалось всего восемь попыток, для того чтобы получить очень хорошее соответствие с экспериментальными данными.

5.6. Заключение

Мы увидели, что полную динамическую теорию можно применить в удобной форме для случая простых и многослойных материалов, которые однородны в плоскости слоя. Приближения при этом минимальны, и точность порядка 2—5 % является нормой. В некоторых случаях можно получить нанометровую чувствительность к толщине слоя. Высокая чувствительность и точность делают моделирование самым мощным методом подробного исследования. Было показано, что разумный подход к моделированию при использовании всех имеющихся данных дает быструю сходимость к модели, удовлетворительно описывающей исследуемую структуру.

Литература

1. Takagi S. // Acta Crystallogr. 1962. Vol. 15. P. 1311.
2. Takagi S. // J. Phys. Soc. Japan. 1969. Vol. 26. P. 1239.
3. Taupin D. // Bull. Soc. Franc. Mineral. Cristallogr. 1964. Vol. 87. P. 469.
4. Halliwell M. A. G., Juler J., Norman A. G. // Microscopy of semiconducting materials. Inst. Phys. Conf. Ser. 1983. Vol. 67. P. 365.
5. Pinsker Z. G. Dynamical scattering of X-rays. Berlin: Springer-Verlag. 1978; Пинскер З. Г. Динамическое рассеяние рентгеновских лучей в идеальных кристаллах. М.: Наука, 1974. 368 с.
6. Zaus R. // J. Appl. Crystallogr. 1993. Vol. 26. P. 801.

7. Landau L. D., Lifshitz E. M. Elasticity. Oxford: Pergamon, 1972. P. 13, 14, 55.
8. Vegard L. // Z. Phys. 1921. Vol. 5. P. 17.
9. Nikulin A. Y., Stevenson A. W., Hashizume H. // Phys. Rev. B. 1996. Vol. 53. P. 8277.
10. Tapfer L., Ploog K. // Phys. Rev. B. 1989. Vol. 40. P. 9802.
11. James R. W. The optical principles of the diffraction of X-rays. Connecticut: Ox Bow Press, 1982. P. 308; Джеймс Р. Оптические принципы дифракции рентгеновских лучей. М.: ИИЛ, 1950. 572 с. (Перевод 1-го изд.).
12. Tanner B. K. // J. Electrochem. Soc. 1989. Vol. 136. P. 3438.
13. Tanner B. K. // J. Phys. D.: Appl. Phys. 1993. Vol. 26. P. A151.
14. Hudson J. M., Tanner B. K., Blunt R. // Advan. X-ray Anal. 1994. Vol. 37. P. 135.
15. Tanner B. K., Turnbull A. G., Stanley C. R., Kean A. H., McElhinney M. // Appl. Phys. Lett. 1991. Vol. 59. P. 2272.
16. Goorsky M., Keuch T. F., Tischler M. A., Potemski R. M. // Appl. Phys. Lett. 1991. Vol. 59. P. 2269.
17. Bocchi C., Ferrari C., Franzosi P., Bosacchi A., Franchi S. // J. Cryst. Growth. 1993. Vol. 132. P. 427.

6. АНАЛИЗ ТОНКИХ ПЛЕНОК И МНОГОСЛОЙНЫХ СИСТЕМ

В этой главе рассматриваются двухосевые кривые качания тонких единичных слоев, эффекты тонких переходных слоев вблизи интерфейса и интерферометр в геометрии Брэгга. Рассматриваются кривые качания, характерные для сверхрешеток, и определяются их параметры. Показано, как кривые качания достраиваются по мере присоединения новых слоев, предлагается стратегия анализа и даются рекомендации, с чего начать моделирование.

6.1. Обзор кривых качания от толстых слоев

Когда эпитаксиальный слой весьма толстый, обычно ~ 1 мкм, тогда для определения его параметров из кривой качания применимы простые критерии, рассмотренные в гл. 3. Эффективное несоответствие можно определить путем прямого измерения углового разделения пиков подложки и слоя и дифференцирования закона Брэгга. Этот упрощенный анализ нельзя применять, когда слой становится тонким, обычно тоньше 0.25 мкм, и когда даже для единичного слоя интерференционные эффекты становятся чрезвычайно важными. Мы рассматриваем эти вопросы ниже, в разд. 6.2.

Если толстый слой можно считать совершенным, то, как показано в гл. 3, интегральную интенсивность можно использовать в качестве меры толщины слоя. Однако если слой толстый и несовершенный, то применение динамической теории может быть неоправданным. В этом случае интегральная интенсивность будет больше рассчитанной по динамической теории и при вычислении будет получено завышенное значение толщины слоя. Критерий, согласно которому слой ведет себя как совершенный кристалл, сводится главным образом к тому, что он не должен содержать неоднородной деформации, которая вызывает эффективную разориентацию, превышающую область отражения совершенного кристалла. Такие разориентации или дилатации приведут к уширению кривой качания. Пример уширенной кривой качания от эпитаксиального слоя CdTe, выращенного на GaAs, показан на рис. 6.1. Расчетная кривая качания от идеально совершенного слоя имеет ширину порядка $10''$, тогда как ширина экспериментальной кривой составляет несколько сотен угловых секунд. Один из подходов состоит в том, чтобы считать слой идеально несовершенным кристаллом, состоящим из множества тонких слоев, разориентированных по отношению друг к другу. Кривую качания в этом случае можно построить путем сложения интенсивностей от таких слоев, проинтегрированных с функцией распределения разориентации, в данном случае с функцией Гаусса. Тогда можно ожидать, что интегральная интенсивность будет линейно изменяться с толщиной, и, используя калибровочную таблицу для интенсивности слоя по отношению к пику подложки при очень малой толщине слоя (рис. 6.2), можно определить толщину слоя. Трудно указать точную величину ушире-

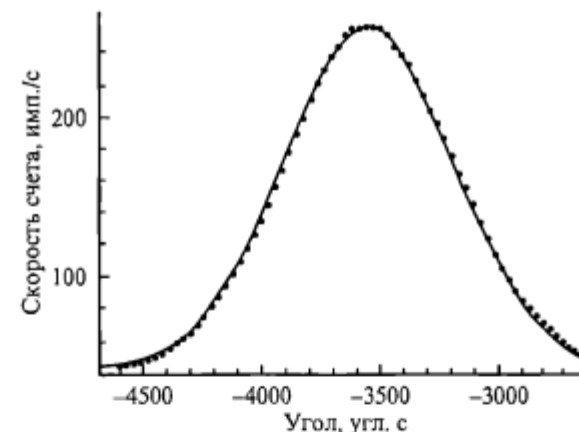


Рис. 6.1. Двухосевая кривая качания CdTe на подложке GaAs, показывающая уширение, обусловленное очень высокой плотностью дислокаций в слое. (С разрешения Р. И. Порты. Университет в г. Дареме).

Ширина кривой качания в таких толстых сильно рассогласованных слоях уменьшается с увеличением толщины слоя [1, 2].

Сплошная кривая — свертка с функцией Гаусса; точки — экспериментальная кривая.

ния кривой качания, необходимую для того чтобы оправдать применение этой кинематической модели, так как уширение зависит от распределения деформации по толщине слоя.

В такой ситуации более надежный путь состоит в том, чтобы измерить абсолютную интегральную интенсивность пика подложки и сравнить ее с интегральной интенсивностью такого же кристалла из материала подложки, на котором эпитаксиальный слой не выращивался. В угловом положении, отвечающем дифракции от подложки, слой не будет давать вклад в отражение и интенсивность пика подложки будет просто уменьшена на величину нормального фотоэлектрического поглощения. Легко видеть, что для сим-

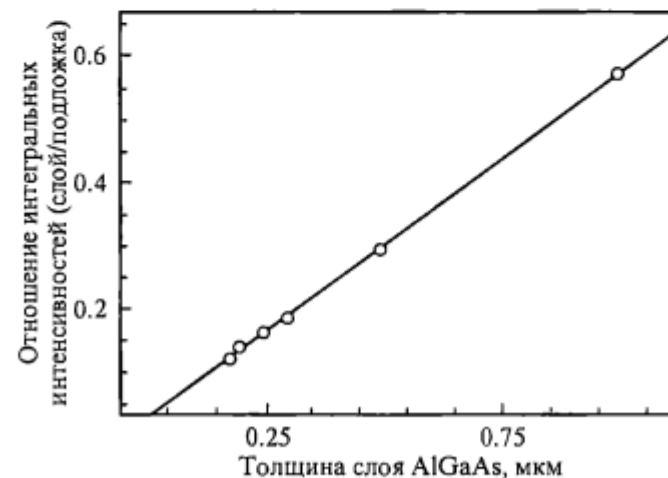


Рис. 6.2. Зависимость отношения интегральных интенсивностей пика слоя к пику подложки от толщины тонкого слоя AlGaAs на подложке GaAs.

метричного отражения интегральная интенсивность I_s пика подложки со слоем толщиной t связана с интегральной интенсивностью голой подложки I_0 соотношением

$$I_s = I_0 \exp \left[-\mu t / (2 \sin \theta_B) \right], \quad (6.1)$$

где μ — линейный коэффициент поглощения, θ_B — угол Брэгга. При условии, что состав слоя известен, можно рассчитать μ . Отметим поэтому, что для тройных растворов разделение брэгговских пиков следует использовать для определения состава слоя и, исходя из этого, μ . Когда отражение несимметрично и брэгговские плоскости образуют с поверхностью угол φ , уравнение (6.1) принимает более общий вид

$$I_s = I_0 \exp \left\{ -\mu t / [\sin(\theta_B + \varphi) + \sin(\theta_B - \varphi)] \right\} \quad (6.2)$$

вследствие различий в длине пути первичного и дифрагированного пучков. Этот подход обоснован независимо от степени совершенства слоя.

6.2. Тонкий единичный слой

Мы уже имели возможность убедиться в том, что присутствие нескольких тонких слоев делает форму кривой качания сложной и плохо поддающейся анализу. Ее можно понять исходя из вкладов от отдельных тонких слоев, и поэтому важно иметь четкое представление об эффектах, которые вносят тонкие единичные слои.

Когда слой достаточно тонкий, чтобы удовлетворять условиям кинематической дифракции, его интегральная интенсивность изменяется с толщиной линейно. И снова, это имеет силу безотносительно к тому, совершенен слой или несовершенен. Может оказаться, что более удобно измерять отношение пиков слоя и подложки, которое тоже линейно изменяется с толщиной, при условии, что слой остается достаточно тонким, чтобы поглощением в нем можно было пренебречь (рис. 6.2).

В гл. 3 было показано, что интерференционные (толщинные) осцилляции можно использовать в качестве самого прямого способа измерения толщины слоя. Напомним, что период связан с толщиной (уравнение (3.32)) только через геометрические параметры и не зависит от структурного фактора. Поэтому мы могли бы ожидать, что для слоя одного состава с подложкой, но с другим параметром решетки будут иметь место интерференционные осцилляции. Этот эффект проявляется особенно отчетливо на кривых качания легированных и ионно-имплантированных слоев. Что не столь очевидно, так это то, что интерференционные осцилляции будут видны, когда слои имеют разный состав, но точно согласованы по параметру решетки.

Этот эффект показан на рис. 6.3, который изображает кривую качания от слоя Ge с параметром решетки 5.43 Å на подложке Si. Хотя приведенный пример несколько искусственный, такая ситуация действительно встречается в тройных растворах, которые в точности согласованы с подложкой.

Когда эпитаксиальный слой тонкий, обычно тоньше 0.25 мкм, дифференциальный закон Брэгга больше не может быть использован для опреде-

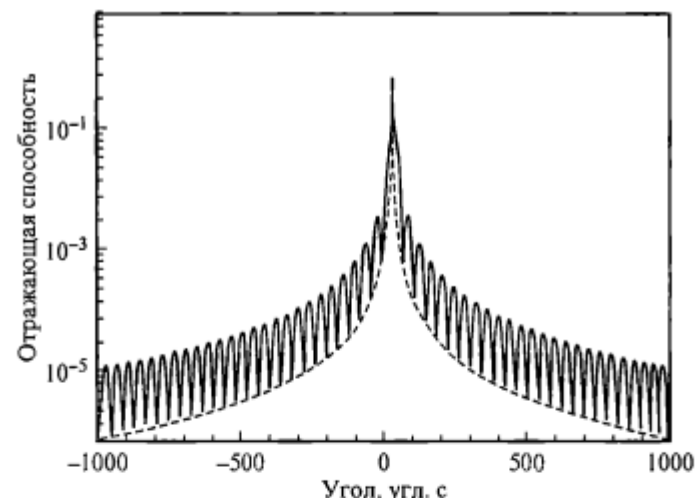


Рис. 6.3. Кривая качания слоя «германия» с параметром решетки 5.43 Å, идеально сопряженного с кремниевой подложкой.

Видны интерференционные осцилляции.

ления эффективного несоответствия. Как впервые показано Фьюстером и Курлингом [3] и впоследствии подробно изучено Ваем [4], разделение пиков для данного состава изменяется как функция толщины слоя. Как показано на рис. 6.4, для слоев толще 0.25 мкм этим эффектом можно пренебречь, но при толщинах меньше 0.1 мкм изменение становится очень быстрым. Сдвиг пика слоя зависит от несоответствия и не связан с релаксацией никоим образом. Он возникает в результате присутствия интерференционных членов в выражении для интенсивности, рассеянной от тонкого слоя, но прямое физическое объяснение до сих пор ускользает от авто-

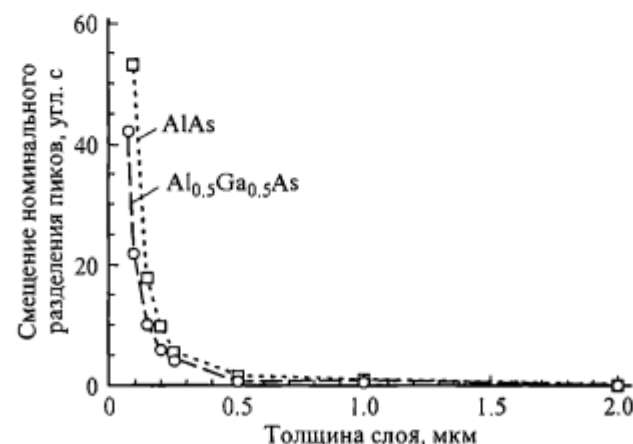


Рис. 6.4. Зависимость изменения расщепления пиков «подложка—эпитаксиальный слой» от толщины слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ постоянного состава ($x = 0.5$ и 1) на GaAs.

Отметим, что абсолютное разделение с уменьшением толщины становится меньше. Отражение 004, Cu K α -излучение.

ров данной работы. Этот эффект был учтен в формализме динамической теории при написании программ для моделирования кривых качания, основанных на решении уравнений Такаги—Топэна, и данные на рис. 6.4 представляют собой расщепление пиков, которое было рассчитано при помощи программ «Bede Scientific» RADS [5]. Таким образом, для того чтобы определить несоответствие тонкого слоя, необходимо использовать метод моделирования или в самом крайнем случае калибровочную кривую. Эта проблема неактуальна в тех случаях, когда несоответствие большое, и ею часто пренебрегают.

6.3. Толстые слои с градиентом состава

Если состав изменяется по толщине слоя, то пик слоя на кривой качания уширяется характерным образом. Профиль кривой можно рассчитать, разбивая слой на серию тонких ламелей с постоянным параметром решетки и предполагая, что они рассеивают когерентно (рис. 6.5). С хорошим приближением рассеяние от каждой ламели сначала считается кинематическим и кривую качания моделируют путем сложения амплитуд и фаз отдельных тонких слоев.

Коммерческие программные продукты всех видов дают возможность моделировать тонкие слои переменного состава таким путем, и, хотя моделирование осуществляется в формализме динамической теории, результаты часто не отличаются от тех, которые получены с помощью кинематической теории.

Когда между верхом и низом эпитаксиального слоя несоответствие решетки изменяется линейно, тогда кривая качания имеет характерную клинообразную форму, как на рис. 6.6, а. Для квадратичной зависимости от толщины кривая становится сильно асимметричной и более равномерно спадает до нуля на одной из сторон пика (рис. 6.6, б). Интерференционные осцилляции могут быть весьма сложными и с трудом поддаются качественному анализу. Период как не связан с толщиной, выбранной для отдельной ламели, так и не характерен для полной толщины. Как видно из рис. 6.6, в, расстояние между интерференционными осцилляциями изменяется при переходе от линейно-градиентной структуры к квадратично-градиентной. Несмотря на то что конечные точки одинаковы, т. е. в данном примере содержание Al в слое $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ варьируется от 0 до 100 %, изменяется не только форма кривой, но и характер интерференционных осцилляций. Эти осцилляции истинные и не являются артефактами процедуры моделирования. Примеры экспериментальных данных можно найти в литературе.

Такие кривые качания наблюдались очень часто на заре развития

Рис. 6.5. Приближительное представление непрерывного изменения параметра решетки в виде последовательности ламелей (X_0 — X_7) с постоянным параметром решетки.

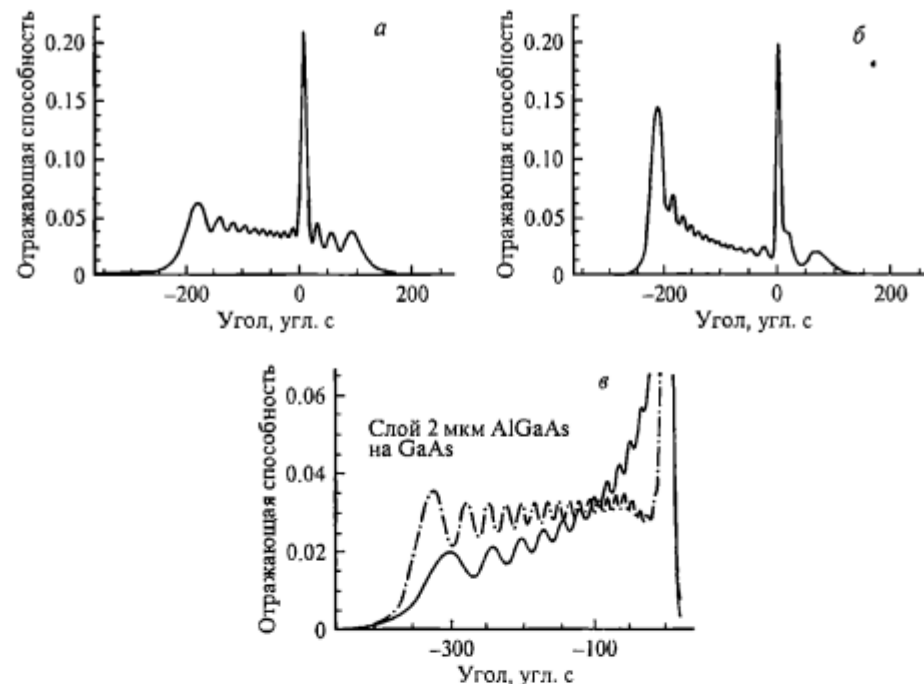


Рис. 6.6. Кривые качания $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ на подложке InP, полученные в результате моделирования.

а — моделирование линейного изменения состава с расстоянием $x = 0.0067t + 0.525$, где t — расстояние в микронметрах от интерфейса с подложкой; б — моделирование изменения состава с расстоянием от подложки, имеющего вид квадратичной зависимости $x = -0.022t^2 + 0.0133t + 0.525$ (полная толщина слоя 3 мкм, отражение 004, $\text{Cu K}\alpha$ -излучение, InP в качестве первого кристалла); в — 2-микронный слой $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ на подложке GaAs, состав которого изменяется линейно (штрихпунктирная кривая) и квадратично (сплошная кривая), от $x = 0$ до $x = 1$.

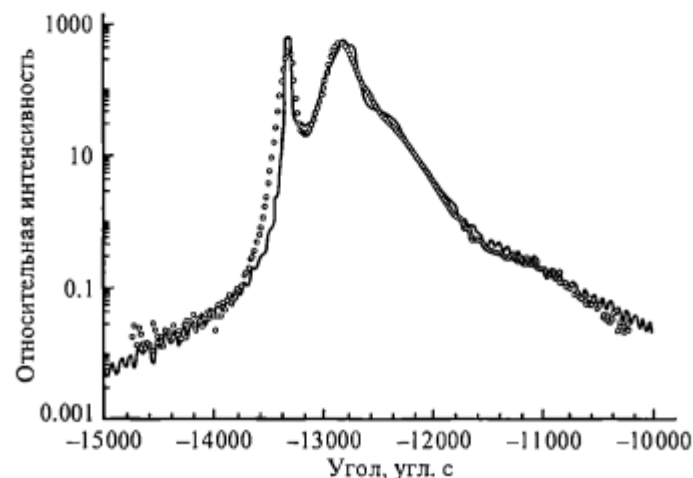


Рис. 6.7. Экспериментальная (точки) и расчетная кривые качания слоя $\text{Mn}_2\text{Hg}_{1-x}\text{Te}$, выращенного на буферном слое CdTe на подложке GaAs. θ — 2θ -сканирование со щелевым коллиматором. (С разрешения С. Д. Моор [7]).

четверных систем для линий дальней связи, а эпитаксиальные слои, выращенные химическим осаждением из паровой фазы (CVD), демонстрировали подобные эффекты особенно хорошо [6]. Современные слои соединений A^3B^5 нечасто демонстрируют подобные эффекты, чего нельзя сказать о композициях A^2B^6 , содержащих ртуть, и о таком материале, как $Hg_xCd_{1-x}Te$, имеющем важное значение для изготовления инфракрасных детекторов. На рис. 6.7 показан пример кривой качания от толстого слоя другого ртутьсодержащего соединения $Mn_xHg_{1-x}Te$, выращенного металлоорганическим осаждением из паровой фазы на буферном слое $CdTe$ на $GaAs$ [7]. При моделировании кривой качания предполагалось, что слой разбит на 20 ламелей, в каждой из которых концентрация Hg изменяется на $x = 0.05$. Такая сегрегация Hg была обнаружена также в $Hg_xCd_{1-x}Te$ -приборах, используемых для инфракрасных датчиков.

В литературе есть примеры описания случайных флуктуаций состава по толщине слоев. Такие кривые почти не поддаются детальному моделированию, но типовые характеристики были рассчитаны Льюисом [8].

6.4. Интерферометры в геометрии Брэгга

В гл. 5 мы уже видели пример кривой качания от транзистора с высокой подвижностью электронов, где тонкий сильно рассогласованный слой был расположен между двумя идентичными слоями. Рис. 6.8 показывает другую такую кривую качания, на этот раз для слоя $Al_{0.6}Ga_{0.4}As$, находящегося между двумя слоями $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ на подложке $GaAs$. Хотя пик от тонкого слоя $Al_{0.6}Ga_{0.4}As$ сам по себе имеет слабую интенсивность, присутствие этого слоя оказывает очень сильное влияние на два других слоя $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$. Пик слоя $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ модулируется очень сильно и кажется почти расщепляющимся. Когда толщина среднего слоя $Al_{0.6}Ga_{0.4}As$ изменяется, положение пиков изменяется вместе с относительной высотой основных и побочных пиков от слоев $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$. Этот пример представляет собой частный случай общего класса эпитаксиальных систем, которые ведут себя как интерферометры в геометрии Брэгга.

Рентгеновский интерферометр в геометрии Лауэ (прохождение) был изобретен и детально изучен Бонзе и Хартом в середине 1960-х годов [9]. Последние применения интерферометров подробно рассмотрены одним из авторов данной книги в сборнике работ научной школы в Эрис [10], опубликованном в 1996 г. Осознание того, что эпитаксиальная структура типа АВА ведет себя как рентгеновский интерферометр в геометрии Брэгга, привело к очень простой физической картине зарождения интерференционных осцилляций на кривых качания [11]. В своем анализе Холлоуэй указал, что если слой B имеет тот же параметр решетки, что и слои A , то при условии, что слой B тонкий, профиль кривой качания не будет зависеть от толщины слоя B , так как последний просто вносит в структуру целое число брэгговских плоскостей. Разность фаз между волнами, рассеянными от верхней и нижней части слоев типа A , изменяется в этом случае только на кратное 2π , и кривая качания остается неизменной. Если между слоями A и B типа было несоответствие m^* , в этом случае фаза изменялась на дополнительную

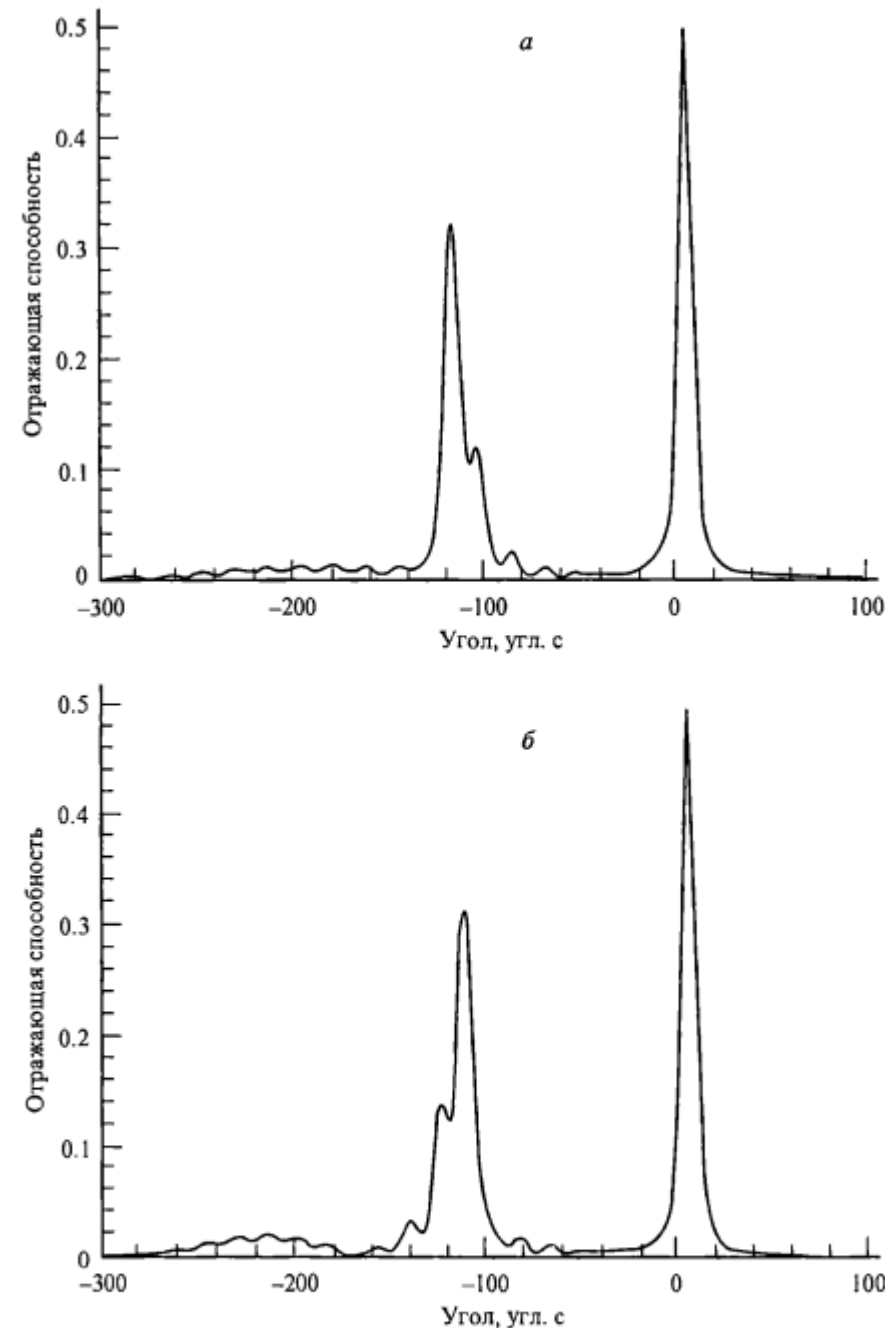


Рис. 6.8. Кривая качания слоя $Al_{0.6}Ga_{0.4}As$, расположенного между двумя слоями $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ толщиной 1 мкм каждый на подложке $GaAs$.

Отметим интерференционные осцилляции и изменение фазы осцилляций относительно пика слоя, когда толщина слоя $AlGaAs$ изменяется. Толщина слоя $Al_{0.6}Ga_{0.4}As$: a — 0.2 мкм; b — 0.3 мкм.

величину, которая получалась из $2\pi m^*t/d$, где t — это толщина слоя B и d — межплоскостное расстояние. Для слоя толщиной d/m^* интерференционные осцилляции на кривой качания сдвигаются вдоль оси углов на один период. Кривые качания для слоев, толщина которых увеличивается на целое кратное d/m^* , в первом приближении идентичны.

Таким образом, чувствительность кривой качания к присутствию тонких внутренних слоев может быть очень большой, если несоответствие большое. Тапфер и Плуг [12], Грин с соавторами [13] и совсем недавно Ли с соавторами [14] использовали это явление, чтобы обнаружить тонкий слой вблизи интерфейса при большом несоответствии. Для большого несоответствия (например, $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ и GaAs) чувствительность находится на уровне одного атомного слоя. Отметим, однако, что если несоответствие мало, как на рис. 6.8, то чувствительность к толщине низкая, и для наблюдения эффектов может потребоваться изменение толщины на несколько сотен ангстрем.

6.5. Сверхрешетки

Современные высокоскоростные и оптоэлектронные приборы, как правило, содержат периодические последовательности слоев изменяющегося состава. Путем использования такой периодической сверхрешетки с повторяющимися слоями малой толщины можно очень сильно изменять зонную структуру полупроводников, и такие многослойные квантовые структуры способны продемонстрировать широкий спектр новых явлений. Так как эффективные значения ширины запрещенной зоны можно выбирать, изменяя толщину квантовых ям, инженер получает очень гибкий инструмент для конструирования электронных приборов. Кроме того, было обнаружено, что структуры со сверхрешетками можно использовать для локализации дислокаций несоответствия, тем самым обеспечивая средство, предотвращающее релаксацию, которая приводила бы к присутствию дефектов, способных отрицательно воздействовать на время жизни светоизлучающих приборов.

Кривые качания от таких одномерных «искусственных кристаллов» выглядят весьма необычно, как на типичном примере, показанном на рис. 6.9, где видна последовательность разделенных равными промежутками пиков-сателлитов, соответствующих сверхрешетке AlGaAs на подложке GaAs . Можно понять зарождение сателлитов сверхрешетки, отмечая, что искусственная периодическая структура будет иметь соответствующую систему узлов в обратном пространстве. Период в реальном пространстве большой, и поэтому расстояние между узлами обратной решетки в обратном пространстве очень маленькое. Помимо этого, узлы расположены только в одном измерении, и поэтому имеется линия узлов обратной решетки, такая как показана на рис. 6.10. Важно подчеркнуть, что все узлы обратной решетки основного кристалла, включая и узел 000 (который соответствует измерениям при скользющем падении), модулируются сверхрешеткой. Происхождение сателлитов тогда становится понятным, и структура обратного пространства особенно хорошо видна на картах обратного пространства, полученных методом трехосевой дифрактометрии (гл. 7).

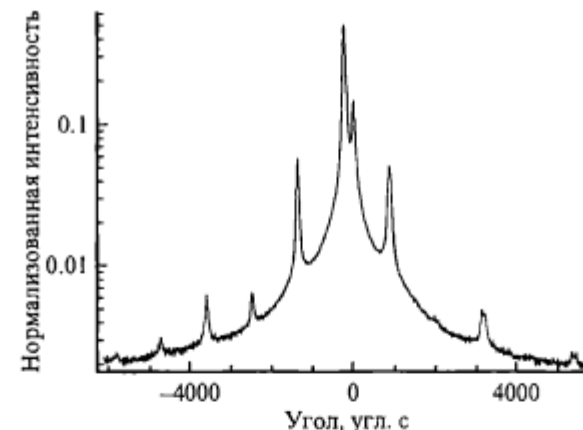


Рис. 6.9. Двухосевая кривая качания от сверхрешетки $\text{AlGaAs}/\text{GaAs}$. (Cu K_α -излучение; отражение 004).

Может оказаться, что структуры со сверхрешетками, содержащими всего несколько периодов, с трудом поддаются анализу и приводят к весьма неожиданным эффектам. Рассмотрим, к примеру, эпитаксиальный слой общей толщиной 1 мкм, состоящий из двух слоев L и M , толщиной 0.5 мкм каждый, рассогласованных с подложкой на $-600 \cdot 10^{-6}$ и $-1200 \cdot 10^{-6}$ соответственно. Кривая качания (рис. 6.11) содержит два четко разделяющихся слоевых пика, причем каждый пик соответствует своему слою. Однако если, оставляя общую толщину без изменения, разделить эпитаксиальный слой на четыре подслоя по 0.25 мкм каждый, то в этом случае мы получаем уже шесть пиков. Хотя два самых сильных пика близки, на кривой нет пика, соответствующего составу слоя! Дифференцирование уравнения Брэгга дало бы возможность предположить, что в структуре присутствует шесть слоев, каждый — с другим составом. Дальнейшее деление приведет к появлению пяти пиков для шести слоев, и, после того как мы разделим слой на 10 подслоев толщиной 0.1 мкм, мы обнаружим главный пик, положение которого соответствует среднему составу структуры. Это так называемый нулевой пик.

Положения вторичных пиков можно узнать, так как они определяются толщиной слоев или в другой форме — периодом сверхрешетки. Они являются пиками-сателлитами, которые мы описали ранее. Сателлиты лучше всего видны на рис. 6.12, где аналогичный пример, но с большим несоответствием между слоями построен в логарифмическом масштабе. Здесь показаны расчетные кривые для структуры $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ на InP с общей толщиной эпитаксиального слоя 1 мкм. Сначала слой $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ состоит из

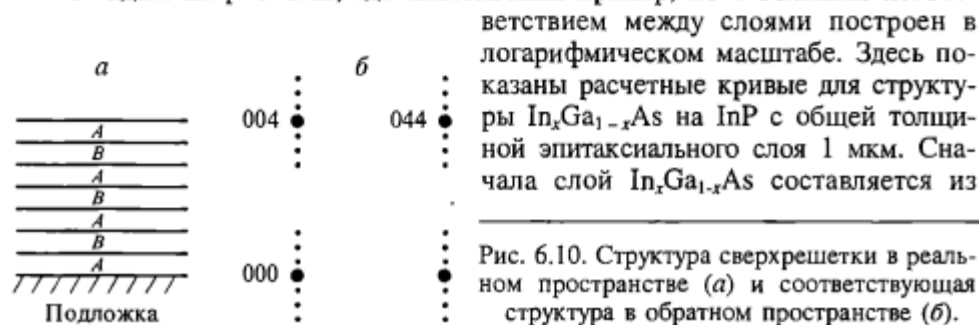


Рис. 6.10. Структура сверхрешетки в реальном пространстве (а) и соответствующая структура в обратном пространстве (б).

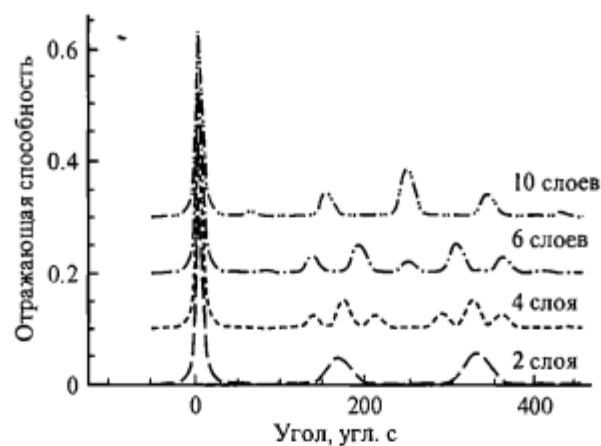


Рис. 6.11. Кривые качания эпитаксиального слоя общей толщиной 1 мкм, полученные в результате моделирования при разделении слоя на 2, 4, 6 и 10 подслоев чередующегося состава. (Кривые смещены для ясности).

двух подслоев с составом $x = 0.5$ и $x = 0.43$ и толщиной 0.5 мкм каждый. После разделения на четыре чередующихся слоя с составом $x = 0.5, 0.43, 0.5, 0.43$ и толщиной 0.25 мкм каждый видно, что пики слоя сильно модулируются толщинными осцилляциями. Отметим, что это модулирование расщепляет пики, оставляя минимум в положении, соответствующем дифференцированию закона Брэгга. Также отметим из средней кривой на рис. 6.12, что чередующиеся осцилляции выросли по интенсивности. Разделение на восемь слоев (четыре периода из слоев $x = 0.5$ и $x = 0.43$) приводит к появлению четких пиков-спутников, расстояние между которыми определяется суммой пары слоев $x = 0.5$ и $x = 0.43$. Хотя в линейном масштабе

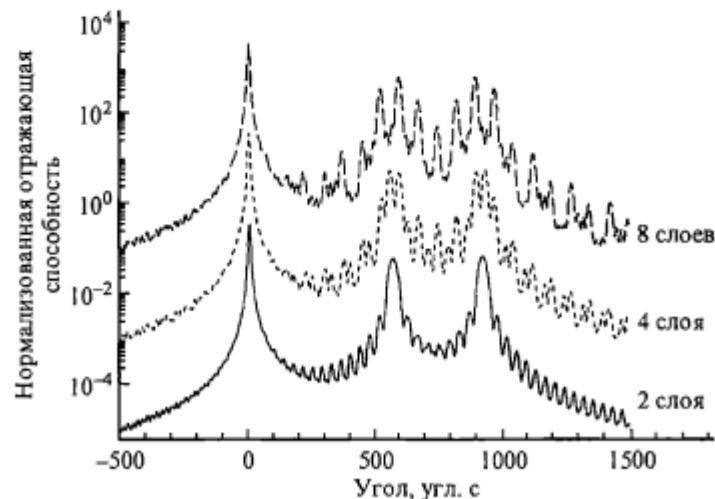


Рис. 6.12. Кривые качания, полученные в результате моделирования последовательности слоев общей толщиной 1 мкм, которые содержат 2, 4 и 8 подслоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с составом $x = 0.5$ и $x = 0.43$. (Кривые смещены для ясности).

спутники выделяются плохо, изучение данных в логарифмическом масштабе ясно показывает зарождение индивидуальных особенностей.

Следует отметить, что для сверхрешеток, две составляющие которых отличаются только заменой позиции одного элемента в решетке со структурой типа цинковой обманки (например, $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$), может быть полезным использование квазизапрещенных отражений, таких как 002. Интенсивность таких отражений определяется разностью атомных факторов рассеяния атомов, занимающих две позиции в решетке типа цинковой обманки, например разностью $|f_{\text{Ga}} - f_{\text{As}}|$ в случае GaAs. Для $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ интенсивность становится равной $|(1-x)f_{\text{Ga}} + xf_{\text{Al}} - f_{\text{As}}|$. Таким образом, имеется большое изменение фактора рассеяния между двумя компонентами и спутники сверхрешетки получаются с превосходным контрастом. Однако за это приходится платить понижением общей интенсивности, и в зависимости от отношения сигнал/шум, характерного для экспериментального оборудования, может быть лучше использовать менее контрастное, но более интенсивное отражение 004, а не более высококонтрастное, но слабое квазизапрещенное отражение 002.

6.6. Общие характеристики сверхрешеток с большим числом периодов

Инженеры-конструкторы приборов и специалисты по выращиванию кристаллов заинтересованы в определении таких параметров структуры сверхрешетки, как

- период структуры;
- толщины чередующихся слоев;
- состав слоев;
- дисперсия периода;
- шероховатость интерфейса;
- резкость интерфейса.

Эти параметры можно найти из кривых качания, за исключением шероховатости, которую в настоящее время нельзя отличить от градиента состава вблизи интерфейса, если использовать только двухосевую дифракцию.

Хотя кривая качания от сверхрешетки или многослойной квантовой структуры (МКС) может быть достаточно сложной, существует ряд общих черт, которые можно использовать для анализа. Если предположить, что мы имеем подложку из материала A (например, GaAs) и сверхрешетку или МКС, упакованную из слоев AB , где B — это раствор (например, $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$), как показано на рис. 6.9, то кривая качания будет иметь следующие характерные особенности:

- 1) пик от подложки A ;
- 2) пик, вызванный сложением брэгговских отражений от A и B элементов МКС. Это будет нулевой пик или пик среднего несоответствия, из которого можно определить средний состав $A + B$ -слоев путем дифференцирования закона Брэгга;
- 3) набор вторичных пиков-«спутников», симметрично окружающих нулевой пик, период которых определяется периодичностью МКС (общей

толщиной повторяющихся слоев). Их также можно считать суммой интерференционных осцилляций, или осцилляций зазора, возникающих в результате интерференции между слоями, составляющими МКС.

Анализ этих пиков позволяет получить много сведений, полезных для специалиста по выращиванию кристаллов. Методы анализов были разработаны Сегмюллером с соавторами [15], Керваресом с соавторами [16] и Фьюстером [17, 18], трактовку которого мы здесь используем.

Сначала мы проведем качественное рассмотрение влияния многослойных систем на дифракцию. Как мы отметили выше, термин «сверхрешетка» можно понимать буквально: мы имеем длиннопериодную решетку с регулярно повторяющимся периодом из элементов, образующих сверхрешетку. Если период равен $200 \text{ \AA}$, что является типичной величиной для сверхрешетки, мы могли бы использовать его как расстояние между «брэгговскими» плоскостями, применить закон Брэгга и в случае Cu K_α -излучения при угле $\theta_B = 0.221$ обнаружить брэгговский пик первого порядка. Такие пики действительно можно видеть при помощи рефлектометрии скользящего падения.

В условиях стандартного отражения число элементов МКС, охватываемых рентгеновским пучком, будет ограничено в более узком интервале, чем число атомных плоскостей. Интенсивность будет низкой, а, кроме того, МКС будет вести себя как «тонкий кристалл»: узлы обратной решетки вытянутся в стержни, перпендикулярные поверхности кристалла. Это вызовет уширение отражения; и, таким образом, ширина каждого пика-сателлита будет определяться количеством элементов в МКС. Путем тщательного анализа можно даже сосчитать число элементов более точно, чем предсказывают специалисты по выращиванию кристаллов.

Число сателлитов будет зависеть от формы интерфейса между элементами сверхрешетки. Дифракционную картину в кинематическом приближении удобно рассматривать как преобразование Фурье от структуры. Если слои в элементах сверхрешетки будут иметь градиент состава, так что изменение общего структурного фактора станет синусоидальным, то преобразование Фурье будет иметь только одну фурье-составляющую и поэтому только одну пару сателлитов. Если интерфейс резкий, то это эквивалентно преобразованию фурье-волны, описываемой квадратичной функцией, которое состоит из бесконечного количества нечетных гармоник; соответствующая дифракционная картина также содержит бесконечное количество нечетных сателлитов. Поэтому интенсивности сателлитов содержат сведения о резкости и плавности интерфейса.

Если период изменяется (дисперсия периода), это фактически означает, что внутри сверхрешетки имеются разные периоды. Пик нулевого порядка для каждого из них должен быть одним и тем же, потому что он определяется средним несоответствием в системе, но распределение интенсивности в различных интерференционных осцилляциях будет немного разным. Дисперсия периода будет иметь тенденцию влиять на сателлиты более высокого порядка сильнее, чем на низкие порядки, и при измерении на приборе низкого разрешения может показаться, что ширина пиков сателлитов увеличивается с порядком сателлита за вычетом любых инструментальных функций.

6.6.1. Среднее несоответствие

Приняв к сведению, что положение пика может испытывать существенный сдвиг, когда общая толщина слоев становится меньше 1 мкм , можно определить средний состав МКС, используя пик нулевого порядка или пик среднего несоответствия. Часто применяют асимметричные отражения, как для того, чтобы определить релаксацию, так и для того, чтобы усилить дифракцию от тонких слоев. Пусть период сверхрешетки в прямом пространстве равен Λ и толщины слоев $A_x B_{1-x} C$ с составом x_1 и x_2 равны D_1 и D_2 соответственно. Тогда

$$\Lambda = D_1 + D_2 \quad (6.3)$$

и

$$D_1 x_1 + D_2 x_2 = x_{\text{ср}} \Lambda, \quad (6.4)$$

где $x_1 + x_2 = 1$. Поэтому

$$D_2 = \Lambda (x_{\text{ср}} - x_1) / (1 - 2x_1), \quad (6.5a)$$

$$D_1 = \Lambda (x_{\text{ср}} - x_2) / (1 - 2x_2). \quad (6.5b)$$

Если общая толщина элемента $A + B$ в МКС больше чем $\sim 0.25 \text{ мкм}$, то в этом случае пик нулевого порядка не появляется, и чтобы определить средний состав, следует использовать моделирование на основе динамической теории.

6.6.2. Периодичность

Для рентгеновской длины волны λ пусть L_i и L_j — порядки отражения (например, 5-й и 7-й), а θ_i и θ_j — углы, под которыми эти порядки отражают; тогда верно следующее соотношение:

$$\Lambda = (L_i - L_j) \lambda / [2 (\sin \theta_i - \sin \theta_j)]. \quad (6.6)$$

Здесь Λ получается из измерения положений двух любых сателлитов или лучше из измерения и усреднения положений нескольких сателлитов.

Иногда необходимо знать отдельно среднюю толщину каждой части элемента МКС (квантовой ямы и барьера); изменение этого отношения без изменения общего периода не повлияет на положения сателлитов, а только приведет к изменению их интенсивности. Фактически мы имеем большую элементарную ячейку, элемент сверхрешетки или МКС, и изменяем структурный фактор в пределах этой ячейки. Затем методика состоит в том, чтобы рассчитать структурные факторы всех наблюдаемых сателлитов элемента сверхрешетки, используя обычную формулу для суммирования по атомам в элементарной ячейке, и затем сравнить их с интегральными интенсивностями, действительно измеренными и скорректированными на

любые инструментальные искажения. Расчет повторяется до тех пор, пока разность между рассчитанными и измеренными интенсивностями не минимизируется как функция отношения ямы к барьеру. Разность выражается как обычный R -фактор:

$$R = \sum \{ |F_0| - |F_c| \text{right} \} / |F_0|, \quad (6.7)$$

где F_0 и F_c — наблюдаемые (интегральные интенсивности) и рассчитанные структурные факторы.

Эта методика подробно описана в работе Фьюстера [18], который утверждает, что она точна до $\sim 5\%$ монослоя и что ее можно использовать для определения несоизмеримой ширины квантовых ям (т. е. такой ширины, которая не равна целому числу атомных плоскостей, а содержит доли монослоя).

Есть смысл выделить два особенно полезных случая с резкими интерфейсами.

1. Если отношение ямы к барьеру 1 : 1, то спутники четного порядка отсутствуют. Это соответствует преобразованию фурье-волны, описываемой квадратичной функцией, которое содержит только нечетные гармоники.

2. Если отношение ямы к барьеру составляет 2 : 1 или 1 : 2, то третья, шестая, девятая... гармоники отсутствуют.

6.6.3. Дисперсия толщины или периода

Фьюстер получает ее из увеличения ширины спутников как функцию порядка спутника. Сначала находят истинные интегральные ширины или значения ширин на половине высоты максимума. При помощи двух- или многокристального дифрактометра это измерение проводится легко, а для порошкового дифрактометра сначала следует найти инструментальную функцию (путем измерения интегральной ширины пика нулевого порядка и вычитания) [19].

Уравнение (6.6) можно упростить до выражения

$$\Lambda = (L_i - L_j) \lambda / 2 \cos \theta (\Delta \theta), \quad (6.8)$$

исходя из предположения, что пики спутников находятся около брэгговского пика и что в пределах этой области $\cos \theta$ не меняется заметным образом. Можно провести дифференцирование уравнения (6.8), чтобы получить

$$\Delta \Lambda = (L_i - L_j) \lambda d(\Delta \theta) / \cos \theta (\Delta \theta)^2. \quad (6.9)$$

Величина $d(\Delta \theta)$ характеризует изменение углов внутри спутника, т. е. это уширение спутника при изменении периода на $\Delta \Lambda$. Полуширина на половине высоты пика гауссова распределения периодов получается из выражения

$$\sigma(\Lambda) = (L_i - L_j) \lambda b_s / \cos \theta (\Delta \theta)^2, \quad (6.10)$$

где b_s равно статистическому среднему для всех измеренных спутников.

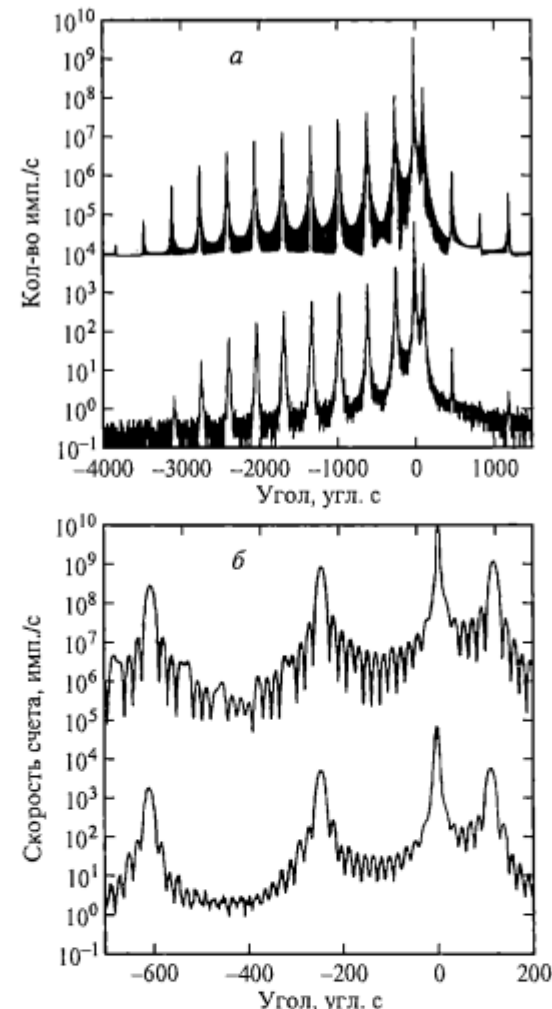


Рис. 6.13. Экспериментальная и расчетная кривые для сверхрешетки Si—Ge, содержащей 20 периодов (а).

б — увеличенное изображение толщинных осцилляций между спутниками -2 и $+1$. Верхняя кривая, полученная в результате моделирования структуры сверхрешетки при введении 2%-ной дисперсии периода, показывает нерегулярные изменения в амплитуде толщинных осцилляций, но очень малое изменение ширины спутника или вторичных осцилляций (программное обеспечение RADS фирмы «Bede Scientific»). (С разрешения доктора А. Р. Пауэла).

Этот подход действительно дает правдоподобные результаты, но его физический механизм не убедителен, так как ширины отдельных пиков, как спутников, так и промежуточных толщинных осцилляций, должны определяться общей толщиной сверхрешетки. Отражения сверхрешетки можно представить как положительную интерференцию между толщинными осцилляциями от последовательных элементов сверхрешетки, которая хорошо видна при компьютерном моделировании серии сверхрешеток с возрастающим числом повторяющихся элементов. Такое моделирование показывает, что ширина отдельного отражения почти не изменяется с введением

дисперсии периода, но относительные интенсивности различных максимум в толщинных осцилляциях очень чувствительны к нерегулярностям периода. Часто небольшая дисперсия периода переносит интенсивность от пика сверхрешетки к толщинным осцилляциям, расположенным в непосредственной близости от него, что производит впечатление увеличения ширины пика, если разрешение недостаточно хорошее. Поэтому именно путем изучения и моделирования интенсивностей этих осцилляций, расположенных между отражениями сателлитов, мы можем определить дисперсию периода. Рис. 6.13 демонстрирует пример такого определения для сверхрешетки Si—Ge, показывая детали распределения интенсивности между сателлитами -2 и $+1$. При расчете кривой с 2%-ной дисперсией мы не имели в виду получение идеального соответствия, но намеревались представить ее более нерегулярной и имеющей большую дисперсию периода, чем экспериментальная кривая. Отметим регулярный характер осцилляций на экспериментальной кривой и узкие пики отражений сателлитов как на экспериментальной, так и на расчетной кривых.

6.6.4. Шероховатость интерфейса и градиент состава

Шероховатость и градиент состава вблизи интерфейса нельзя различить при анализе двухосевой кривой качания. Рассмотрение Фьюстера заключается в том, чтобы предположить, что шероховатость заключена в пределах менее одного монослоя (по всей ширине когерентности пучка), и заполнить оставшуюся часть комбинированного параметра градиентом состава. Введение шероховатости на уровне субмонослоя дает возможность ввести несомнимую ширину ямы, которую находят так, как было описано выше. Шероховатость вводят путем когерентного сложения структурных факторов двух соизмеримых периодов, при значениях ширины ямы по обе стороны от среднего значения. Затем периоды приводят к одному масштабу с ранее определенной гауссовой дисперсией периодов (уравнение (6.10)) и складывают, чтобы получить общий структурный фактор для сателлита. Структурный фактор каждого сателлита рассчитывают на компьютере и сравнивают с экспериментальными интенсивностями, и в этом случае тоже при использовании R -факторов, причем переменной является градиент состава за пределами интерфейса, который изменяют на один слой за один раз. Очевидно, что этот градиент состава может быть сколь угодно сложным при условии неограниченного компьютерного времени, но линейного градиента на протяжении нескольких слоев обычно вполне достаточно. Такой градиент состава может иметь очень значительное влияние на относительные высоты последовательных сателлитов. Он может, например, привести к очень существенной асимметрии в пиковых интенсивностях положительных и отрицательных сателлитов. Экстремальный пример такого рода показан на рис. 6.14. Пример, который был рассчитан посредством моделирования, показан на рис. 6.15, представляющем серию расчетных кривых качания, которые были получены Мюллером [20] при учете градиента состава у стенок ямы. Несомненно, что такое изменение в профиле параметра решетки необходимо для того, чтобы получить хорошее соответствие между расчетными и экспериментальными данными.

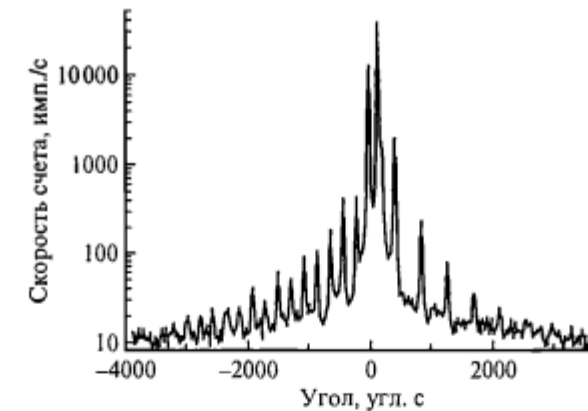


Рис. 6.14. Кривая качания сверхрешетки, показывающая очень существенную асимметрию между $+n$ и $-n$ пиками сателлитов. Каждый следующий $+n$ сателлит отсутствует.

Очень хорошее исследование кривых качания от сверхрешеток было сделано на Si/GaAs Гиллеспи с соавторами [21]. Анализ данных показал, что превосходное соответствие между результатами моделирования и эксперимента можно было получить, если предположить, что толщина слоев кремния будет равна нецелому числу монослоев. Эту ситуацию, лишенную физического смысла, можно было разрешить, предполагая, что вблизи интерфейсов находится монослой, состоящий из смеси атомов Si и Ga или As. Фазовый сдвиг, который вносил слой такого раствора в волны рентгеновского излучения, приводил к хорошему соответствию между расчетом и экспериментом по всей кривой качания.

Совсем недавно Холи с соавторами [22] развил теорию, которая рассматривает шероховатость надлежащим образом, и показал, что действительная шероховатость приводит к уширению пиков сателлитов сверхрешетки на двухосевых кривых качания. Уширение изменяется как n^2 , где n — это порядок сателлита. Поэтому шероховатость не уширяет пик нулевого порядка. Однако данные, полученные Холи с соавторами, позволяют предположить, что уширение не изменяется с порядком сателлита и что уширение обусловлено мозаичностью в основной структуре кристалла.

6.6.5. Моделирование структур со сверхрешетками

При моделировании структуры со сверхрешеткой необходимо установить исходные параметры для первого приближения. Следующая методика не претендует на исключительность, но именно ее разработали авторы данной работы.

1. Период сверхрешетки определяется из расстояния между соседними сателлитами.

2. Отношение ямы-к-барьеру рассчитывается из относительных интегральных интенсивностей последовательных сателлитов. При этом нужно вспомнить, что сателлиты соответствуют преобразованию Фурье периоди-

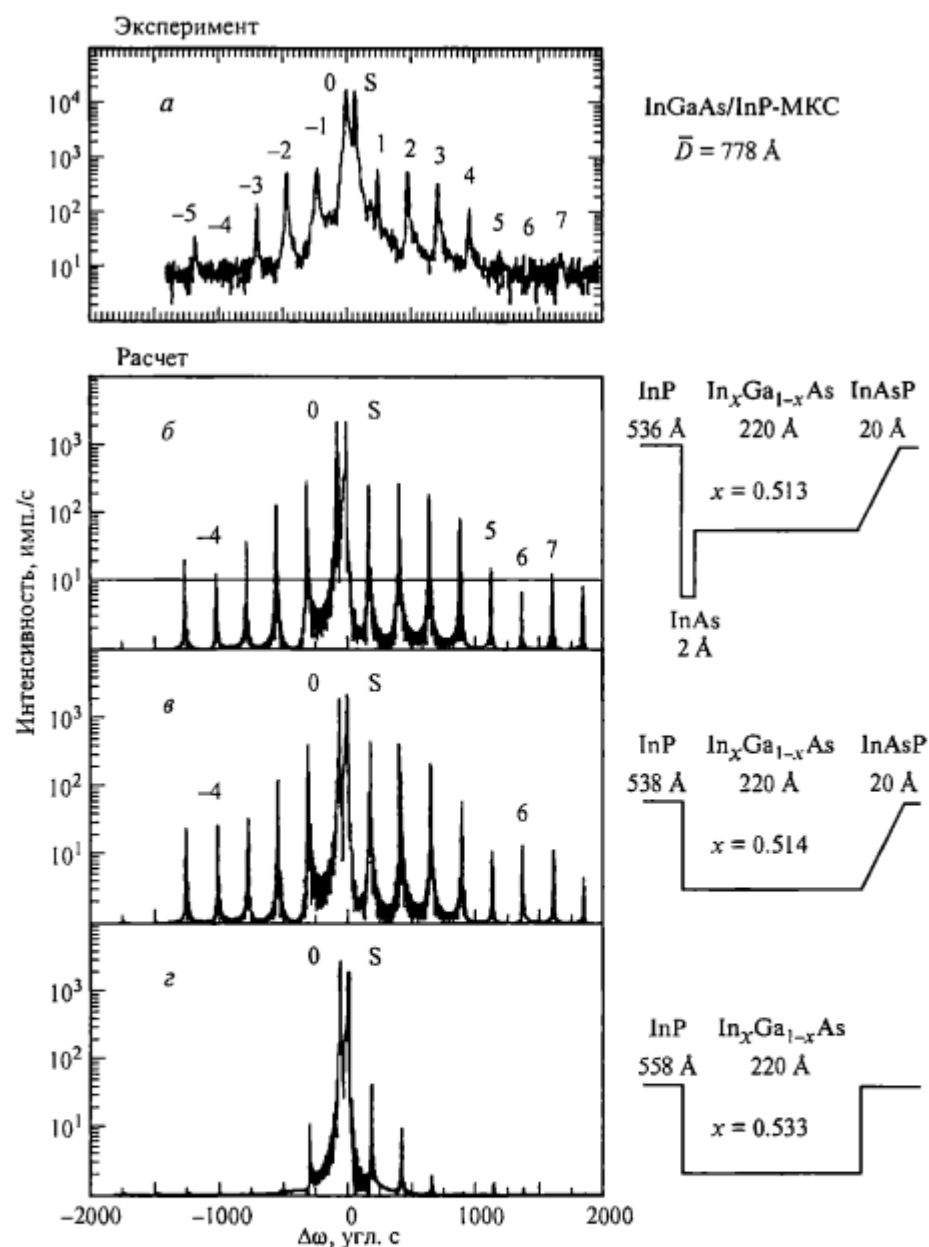


Рис. 6.15. Экспериментальная и расчетные кривые качания с различающимися профилями параметра решетки через стенку «яма—барьер».
(С разрешения Р. Мюллер. Университет Мюнхена).

ческой структуры. Сделав это, мы имеем входные параметры для толщины как ямы, так и барьера.

3. Средний состав $x_{\text{ср}}$ определяется из положения пика нулевого порядка.

4. Параметры, определенные выше, используются для расчета индивидуальных составов x_1 и x_2 сверхрешетки с помощью уравнений (6.5).

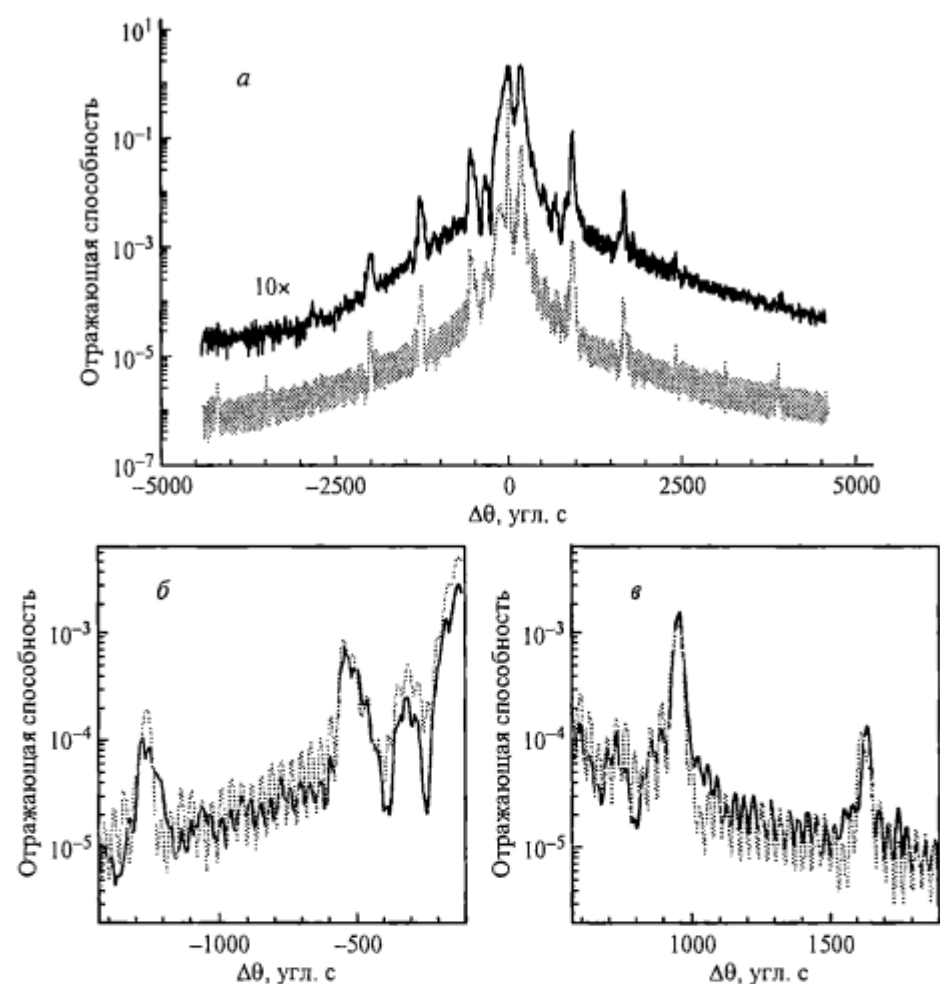


Рис. 6.16. Экспериментальная (сплошная) и расчетные (штриховые) кривые качания сверхрешетки $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}/\text{CdTe}$, выращенной на InSb (а). На рисунках б и в показаны увеличенные изображения области вокруг -1 и $+1$ сателлитов соответственно [23]. (С разрешения доктора С. Р. Лу).

5. Эти параметры вносятся в программу моделирования, и начинается приближение к наилучшему соответствию.

Пример успешного осуществления такой методики поиска соответствия дан на рис. 6.16, который показывает экспериментальные и расчетные кривые качания сверхрешетки $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}/\text{CdTe}$, выращенной молекулярно-лучевой эпитаксией на InSb . Воспроизвелись очень хорошо не только крупномасштабные особенности, но и для тонкой структуры осцилляций вокруг сателлитов [23] было достигнуто превосходное соответствие, после того как тонкий слой In_2Te_3 вблизи интерфейса был включен в модель структуры.

Тонкие слои демонстрируют богатое разнообразие рентгенооптических явлений, которые можно использовать для изучения структуры материалов. В частности, структуры со сверхрешетками демонстрируют кривые качания, которые чувствительны к напряжениям вблизи интерфейса. Эти явления дают нам уникальные методы исследования взаимосвязи структуры со свойствами для важного класса электронных материалов.

Литература

1. Avers J. E. // J. Cryst. Growth. 1995. Vol. 78. P. 3724.
2. Durose K., Tatsuoka H. // Inst. Phys. Conf. Ser. 1993. Vol. 134. P. 581.
3. Fewster P. F., Curling C. J. // J. Appl. Phys. 1987. Vol. 62. P. 4154.
4. Wie C. R. // J. Appl. Phys. 1989. Vol. 66. P. 985.
5. Bowen D. K., Loxley N., Tanner B. K., Cooke L., Capano M. A. // Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 1991. Vol. 208. P. 113.
6. Hill M. J., Tanner B. K., Halliwell M. A. G., Lyons M. H. // J. Appl. Cryst. 1985. Vol. 18. P. 446.
7. Moore C. D. PhD thesis. Durham University, 1997.
8. Lyons M. H. // J. Cryst. Growth. 1989. Vol. 96. P. 339.
9. Bonse U., Hart M. // Appl. Phys. Lett. 1965. Vol. 6. P. 155.
10. Bowen D. K. // X-ray and neutron dynamical diffraction: theory and applications / Eds A. Authier, S. Lagomarsino, B. K. Tanner. New York: Plenum Press, 1996. P. 381.
11. Holloway H. // J. Appl. Phys. 1990. Vol. 67. P. 6229.
12. Tapfer L., Ploog K. // Phys. Rev. B. 1989. Vol. 40. P. 9802; Tapfer L., Ospelt M., von Kanel H. // J. Appl. Phys. 1990. Vol. 67. P. 1298.
13. Green G. S., Tanner B. K., Kightley P. // Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 1991. Vol. 208. P. 315; Green G. S., Tanner B. K., Barnett S. J., Emeny M., Pitt A. D., Whitehouse C. R., Clark G. F. // Phil. Mag. Lett. 1990. Vol. 62. P. 131.
14. Li C. R., Möck P., Tanner B. K., Ashenford D., Hogg J. H. C., Lunn B. // Il Nuovo Cimento D. 1997. Vol. 19. P. 447.
15. Segmüller A., Krishna P., Esaki L. // J. Appl. Crystallog. 1977. Vol. 10. P. 1.
16. Kervarac J., Baudet M., Caulet J., Auvray P., Emery Y. Y., Regreny A. // J. Appl. Crystallog. 1984. Vol. 17. P. 196.
17. Fewster P. F. // Philips J. Research. 1986. Vol. 41. P. 268.
18. Fewster P. F. // Semicond. Sci. Tech. 1993. Vol. 8. P. 1915.
19. Fewster P. F. // Repts. Prog. Phys. 1996. Vol. 59. P. 1339.
20. Müller R. University of Munich. Private communication.
21. Gillespie H. J., Wade J. K., Crook G. E., Marty R. J. // J. Appl. Phys. 1992. Vol. 73. P. 95.
22. Holý V., Kubena J., Abramof E., Presek A., Koppensteiner E. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1993. Vol. 26. P. A146.
23. Li C. R., Tanner B. K., Ashenford D., Hogg C. H. J., Lunn B. // J. Appl. Phys. 1997. Vol. 82. P. 2281.

7. ТРЕХОСЕВАЯ ДИФРАКТОМЕТРИЯ

В этой главе показано, как ограничение приемного угла детектора добавляет еще одно измерение в данные, которые можно получить при помощи высокоразрешающих дифракционных методов, поскольку это ограничение делает возможным разделение деформаций и разориентаций в образце. Объясняется, как строить карты трехосевой дифракции в обратном пространстве. Приведены несколько примеров их применения для исследования материалов.

7.1. Введение

Двухосевая система с монохроматором или без него использует открытый детектор и поэтому интегрирует рассеяние от образца по всем углам в пределах апертуры детектора. Хотя это относительно быстро и удобно, интегрирование рассеяния приводит к потере данных; в частности, рассеяние от изогнутых и мозаичных кристаллов имеет место при различных установках образца для данного межплоскостного расстояния d и такие детали, как толщинные осцилляции или узкие пики, могут быть потеряны или смазаны. В некоторых случаях, как на рис. 7.1, ширина щели перед детектором определяет кажущееся несовершенство материала. Эту неоднозначность

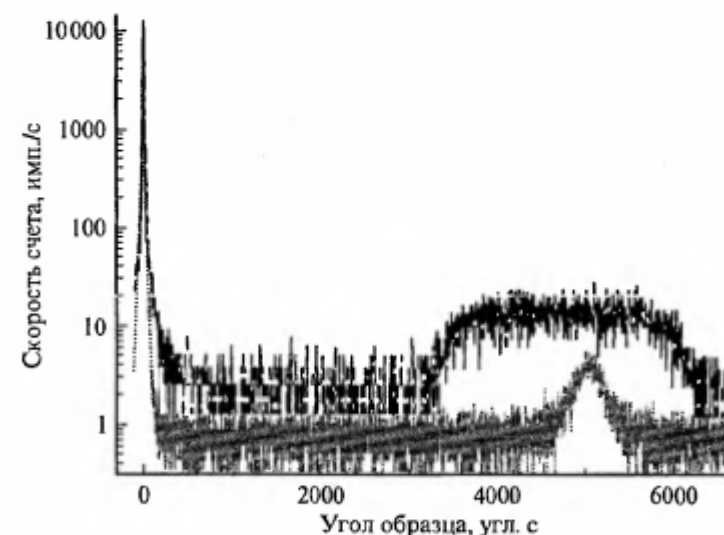


Рис. 7.1. Двухосевые кривые качания от эпитаксиального слоя GaN на подложке GaAs с ориентацией (111). Измеренная ширина кривых качания определяется апертурой детектора.

Сплошные линии — щель перед детектором 0.5 мм; штриховые — открытый детектор.

можно устранить путем анализа направлений рентгеновских лучей, рассеянных от кристалла, установленного в трехосевой схеме.

В трехосевой схеме кристалл-анализатор расположен после образца и перед детектором. Он устанавливается на оси, концентричной с образцом, и сканируется независимо от образца. Экспериментатор может таким образом построить карту распределения интенсивности по направлениям излучения, рассеянного образцом. Это не только устраняет проблемы, связанные с исследованием изогнутых и мозаичных кристаллов, но и позволяет различать рассеяние, вызванное разными источниками. Например, рассеяние, вызванное дефектами, имеет место в другом направлении в пространстве, чем рассеяние от совершенного кристалла, и исходя из карты рассеяния, построенной при вращении как анализатора, так и образца, его можно количественно оценить. Рассеяние от шероховатой поверхности можно отделить от рассеяния совершенного кристалла и, что особенно важно, деформацию и несоответствие можно отличить от разориентации и мозаичности.

7.2 Экспериментальная процедура

На рис. 7.2 показана схема трехосевого дифракционного эксперимента. Три оси предназначены для управления коллиматором пучка (и соответственно пучком, падающим на образец), образцом и анализатором соответственно. Хотя термин «трехкристальный» иногда употребляют для обозначения этой схемы, лучше этого не делать, так как можно ошибиться, думая, что он относится к многокристалльным коллиматорам пучка в обычном (т. е. двухосевом) высокоразрешающем эксперименте. Единственным различием между трех- и двухосевыми методами является наличие средства для ограничения по углу приемной апертуры детектора в первом из них.

7.2.1. Механическая точность

Требуемая точность отсчета углов имеет существенное значение. Наиболее важный фактор заключается в том, что ось детектора должна следовать за осью образца точно и непрерывно, с точностью лучше чем $1''$ при работе с большинством полупроводниковых материалов, что соответствует разрешению в обратном пространстве $5 \cdot 10^{-6} \text{ \AA}^{-1}$. Случайные ошибки при сканировании приводят к «шуму» в обратном пространстве, в то время как систематические ошибки вносят систематические искажения в карты обратного пространства. Артефакты, обусловленные люфтом и эксцентриситетом зубчатых передач, заметно сказываются на результатах, и прямые конверторы осей гораздо предпочтительнее. Абсолютная точность имеет менее важное значение, так как карты обратного пространства обычно рассматривают, а не измеряют, и маловероятно, чтобы ошибки $\sim 1\%$ были заметны.

7.2.2. Коллиматор пучка

Коллиматор пучка служит двум целям: он ограничивает пучок по углу и длине волны. Ограничение по углу можно улучшить путем применения кристаллов с прорезными каналами [1], которые уменьшают полосу про-

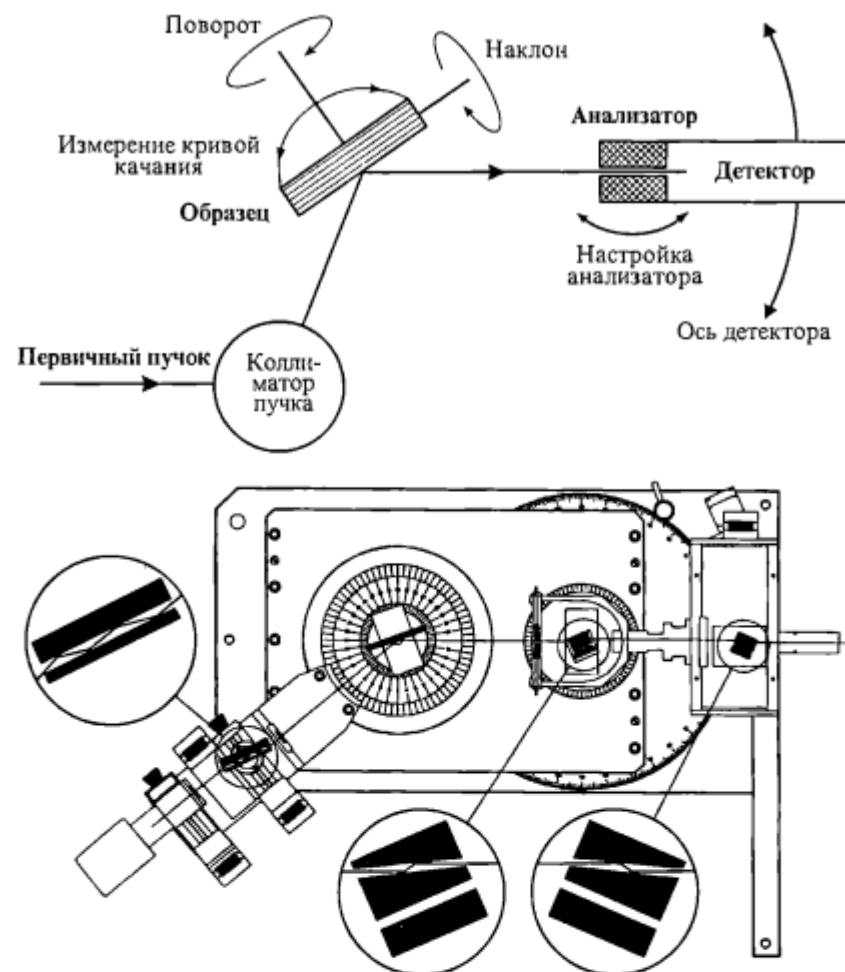


Рис. 7.2. Диаграмма высокоразрешающего трехосевого прибора.

пускания в обратном пространстве, как будет рассмотрено в разд. 7.7. На практике требуется четыре отражения, чтобы сделать полосу пропускания едва заметной. Кроме того, изменение длины волны влияет на разрешение, так как все важные параметры пропорциональны $1/\lambda$. Для нормальной работы достаточно исключить K_{a2} -составляющую, что можно сделать при помощи щели после коллиматора пучка, но можно использовать любое из монохроматизирующих устройств, описанных в гл. 2, если интенсивности достаточно.

7.2.3. Анализатор и детектор

Ограничение по углу можно осуществить разными способами: путем использования щели, щелей Соллера, кристалла с однократным отражением или кристалла с прорезным каналом, а также двухкоординатного детектора. В случае если интенсивности достаточно, кристалл-анализатор с про-

резным каналом имеет два преимущества. Как и в случае кристаллического коллиматора пучка, он уменьшает инструментальное искажение в обратном пространстве. Кроме того, он сохраняет направление пучка, рассеянного от образца, чем упрощает процедуру настройки. Если требуется только грубое разрешение (например, чтобы устранить большинство эффектов, обусловленных мозаичностью, при анализе кристаллов низкого качества), то достаточно поставить щель. Кристалл-анализатор из германия с однократным отражением дает высокую общую интенсивность.

Для быстрой работы в условиях низкого разрешения двухкоординатный детектор дает возможность как получить достаточное угловое разрешение, так и быстро провести измерения [2, 3]. В противном случае подходит, в принципе, любой детектор, но детектор с широким динамическим диапазоном и хорошей шумовой характеристикой в области слабых сигналов особенно желателен, так как такие эффекты, как диффузное рассеяние, являются слабыми, а рентгенооптические устройства неизбежно уменьшают интенсивность.

7.3. Настройка трехосевого эксперимента

На первый взгляд, сложность, вызванная появлением еще одного брэгговского отражения, кажется пугающей. Однако это не так в том случае, когда вы работаете на современном оборудовании, настройкой которого управляет компьютер. При некотором опыте трехосевые измерения покажутся вам не труднее, чем большинство двухосевых измерений. Хотя детали настройки будут зависеть от конкретной схемы, ее основные принципы остаются теми же, что и для всех систем, использующих кристаллы-анализаторы. Перечислим их.

1. Монохроматор падающего пучка настраивается так, чтобы он давал пучок, проходящий точно через вторую ось (ось образца). Эта методика настройки такая же, как и в случае высокоразрешающей двухосевой дифракции.

2. Убирается образец, и ось детектора (несущая анализатор) поворачивается в положение нулевого угла. Затем кристалл-анализатор независимо ориентируется под его приблизительным углом Брэгга. Кристалл-анализатор независимо от оси детектора поворачивается так, чтобы найти брэгговский пик.

3. Настройка наклона анализатора выполняется так, чтобы вывести интенсивность брэгговского пика в максимум. Это нужно делать путем последовательных повторений, наклоняя анализатор и переустанавливая положение брэгговского пика. Когда максимум достигнут, анализатор установлен в точное положение, при котором его брэгговские плоскости параллельны брэгговским плоскостям коллиматора пучка и монохроматора. Анализатор выводится на вершину брэгговского максимума.

4. Анализатор отодвигается (или отворачивается) от детектора таким образом, чтобы схема стала двухкристальной. Очень важно, чтобы это движение было обратимым, так чтобы анализатор можно было вернуть в прежнее положение с точностью до одной угловой секунды.

5. Образец помещается на вторую ось, ось детектора поворачивается на двойной угол Брэгга образца и положение брэгговского пика образца находится так же, как в двухосевом эксперименте. Все необходимые настройки

наклона образца совершаются точно так же, как в случае двухосевой дифракции. (При желании можно осуществить двухосевой эксперимент на этом этапе.) Все кристаллы устанавливаются в максимум брэгговского пика.

6. В заключение анализатор смещается назад в положение перед детектором и, если требуется, делается окончательная небольшая регулировка поворота анализатора, чтобы получить максимальный сигнал еще раз. Теперь ваша схема настроена для проведения одного из нескольких типов трехосевых экспериментов.

При проведении трехосевых измерений обычно принимают это положение — «все в максимуме» — за «нулевую» установку для карт обратного пространства. Здесь нужно сделать два пояснения. Нулевое положение будет, конечно, не началом координат обратного пространства, а узлом обратной решетки, соответствующим используемому отражению. Во-вторых, в обычной брэгговской геометрии «нулевое положение» будет смещено на несколько угловых секунд в сторону больших углов за счет влияния преломления на динамическое рассеяние.

7.4. Разделение разориентаций и деформаций решетки

Трехосевое рассеяние дает возможность провести различие между разориентациями и дилатациями. В этом можно убедиться, рассмотрев образец, показанный на рис. 7.3, который содержит области, разориентированные по отношению друг к другу, т. е. субзерна, и области, деформированные или рассогласованные, например тройные слои. Согласно закону Брэгга угол рассеяния определяет межплоскостное расстояние d , которое мы исследуем. Когда мы поворачиваем образец, области с разной разориентацией будут последовательно удовлетворять дифракционному условию и рассеянная интенсивность даст нам критерий распределения разориентаций. Области кристалла, для которых межплоскостные расстояния различаются, никогда не вызовут появления сильного рассеяния в случае, если поворачивается только один образец.

Представим, что теперь осуществляется дифракционный эксперимент, в котором образец и анализатор сканируются синхронно. В частности, анализатор сканируется со скоростью, вдвое большей, чем образец (θ — 2θ -сканирование), и оба начинают движение от нулевого положения. Предположим, что область образца с параметром решетки d установлена в отражающее положение; тогда, так как анализатор установлен под двойным значением угла отражения, детектор зафиксирует интенсивность отражения. Теперь, если мы осуществим связанное θ — 2θ -сканирование, то ни одна из областей образца, которая также имеет параметр решетки d , но разориентирована относительно первоначальной области, никогда не даст рассеяния, которое попадает в детектор; положение анализатора никогда не будет точным (в отличие от предыдущего примера). Однако другая область образца с параметром решетки d' может попасть в положение, где удовлетворяется угол Брэгга. Теперь анализатор находится под двойным значением этого угла и интенсивность попадает в детектор. В этом варианте регистрируется интенсивность только от определенных частей кристалла, но для сильнонарушен-

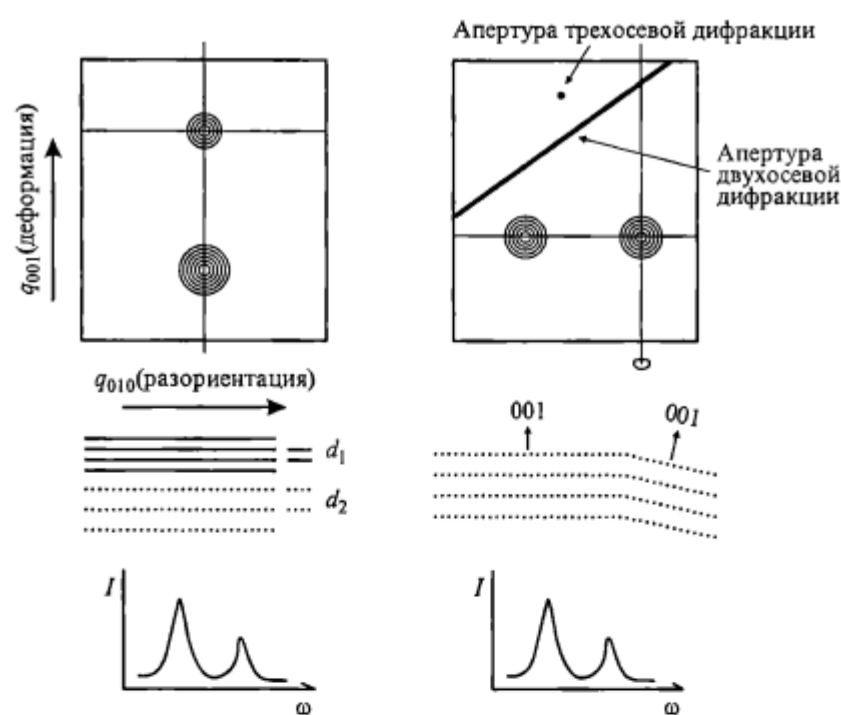


Рис. 7.3. Трехосевые измерения; представления в реальном и обратном пространстве.

ных материалов, таких как галлий арсенид на кремнии или узкозонные соединения $A^{\text{III}}B^{\text{VI}}$, это дает возможность получить нужный критерий для оценки области параметров решетки, которые присутствуют в образце. В случае тройных соединений, таких как кадмий-ртуть-теллур, это позволяет получить критерий для оценки области изменения состава независимо от области разориентаций.

Отметим также функции разрешения в обратном пространстве для двух- и трехосевых измерений. На двухосевых кривых качания (как было показано) нельзя провести различия между разориентациями и дилатациями, хотя они представляют собой очень разные типы дефектов. Трехосевая функция разрешения в плоскости дисперсии представляет собой пересечение двух векторов (падающего и дифрагированного пучков), растянутых на угловую ширину монохроматора и анализатора соответственно. Дальнейшее ухудшение разрешения возникает в плоскости, нормальной к рисунку, и обусловлено вертикальной расходимостью, а последняя составляющая функции разрешения — это распределение по длинам волн; оно изменяет длины векторов падающего и дифрагированного пучков.

7.5. Измерение кинематического рассеяния от нарушенной поверхности

Рассеяние от нарушенной приповерхностной области больше не подчиняется законам динамического рассеяния в объеме кристалла. В объемном материале из-за процессов множественного рассеяния коэффициент пре-

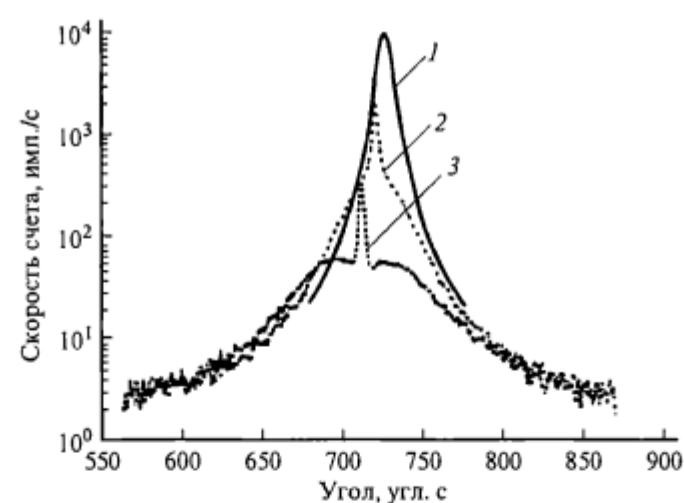


Рис. 7.4. Пик от дефектов в GaAs, вызванных нарушением при полировке (004 отражение в $\text{Cu } K_{\alpha}$ -излучении).

Трехосевое θ — 2θ -сканирование со смещениями образца от брэгговского положения: 1 — смещение 10° ; 2 — смещение 20° ; 3 — смещение 30° .

ломления не совсем равен единице и в результате положение брэгговского пика сдвинуто на несколько угловых секунд по отношению к величине, вычисленной из уравнения Брэгга. Кинематическое рассеяние от дефектной поверхности, однако, не сдвинуто, но и не имеет той же симметрии, и, в принципе, эти эффекты можно различить.

В двухосевой геометрии кинематическое рассеяние включено в рассеяние от совершенного кристалла и его невозможно выделить. Тем не менее если образец немного отведен от брэгговского положения, то вращение анализатора соберет это рассеяние. Интенсивность очень чувствительна к обработке поверхности. Рис. 7.4 показывает широкий диффузный пик, вызванный нарушениями после полировки арсенида галлия и совмещенный с острым брэгговским пиком.

7.6. Измерение дефектных образцов

Если образец содержит большое количество дислокаций, то может быть, что отдельные пики на двухкристалльных кривых качания не разрешаются. Рис. 7.5 показывает пятислойную структуру Si—Ge, выращенную так, что толщина каждого слоя была равна 0.5 мкм и содержание Ge в каждом слое составляло 10, 20, 30, 40 и 50 % соответственно, причем цель выращивания сводилась к тому, чтобы получить умеренное количество релаксации в каждом слое так, чтобы верхний слой с 50%-ным содержанием Ge был полностью релаксированным, но не имел очень большой плотности прорастающих дислокаций. Цель была достигнута: плотность дислокаций составила $\sim 10^6 \text{ см}^{-2}$, но выявить картину развития процесса при помощи только двухкристалльной дифракции было невозможно даже в случае коллиматора с

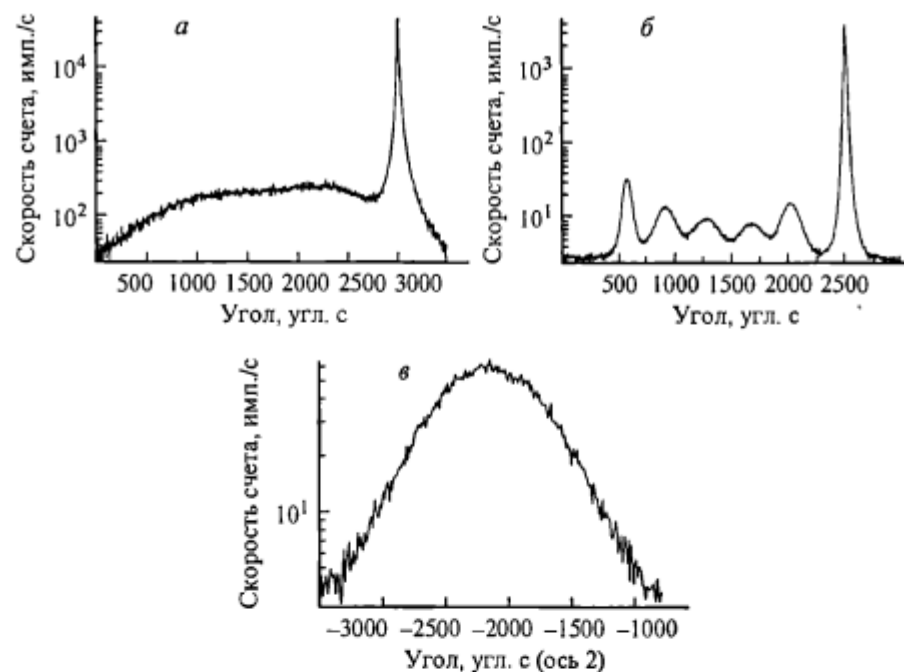


Рис. 7.5. Двухкристальная кривая качания пятислойной структуры Si—Ge (а). Трехосевое θ — 2θ продольное сканирование той же структуры (б); сканирование одного образца (кривая качания) с анализатором, установленным на пике слева на трехосевой кривой (в). 004 отражение в Si K_α -излучении, Ge с однократным отражением используется в качестве анализатора для случаев б и в.

прорезным каналом, как показано на рис. 7.5, а. Область широкого пика покрыла диапазон состава от 0 до 50 % Ge, но никаких деталей при этом не видно. В трехкристальной установке тем не менее отдельные слои хорошо видны при θ — 2θ -сканировании (рис. 7.5, б). Для наблюдения этих слабых сигналов монокристалл германия был использован в качестве анализатора.

Как только в нашем распоряжении оказалась такая детальная картина, появилась возможность осуществить сканирование в перпендикулярном направлении в обратном пространстве при помощи θ -сканирования, чтобы измерить влияние разориентации независимо от деформации. Это показано на рис. 7.5, в, где анализатор установлен на самом заметном пике, слева на трехкристальной кривой. Видно, что изменение разориентации в этом слое составляет около $1500''$. Аналогичные измерения для других пиков и корреляция с параметрами выращивания слоев могут обеспечить превосходную обратную связь со специалистом по выращиванию кристаллов.

Трехосевая кривая с вращением только одного образца измеряет разориентацию очень эффективно, и она сама по себе очень узкая; ее можно измерить быстрее, чем двухосевую кривую качания, и ее ширина примерно в четыре раза меньше ширины двухосевой кривой. Кривую качания только от образца можно использовать, к примеру, чтобы оценить общее качество пластины. Рис. 7.6 показывает карты, построенные для ширины трехосевой

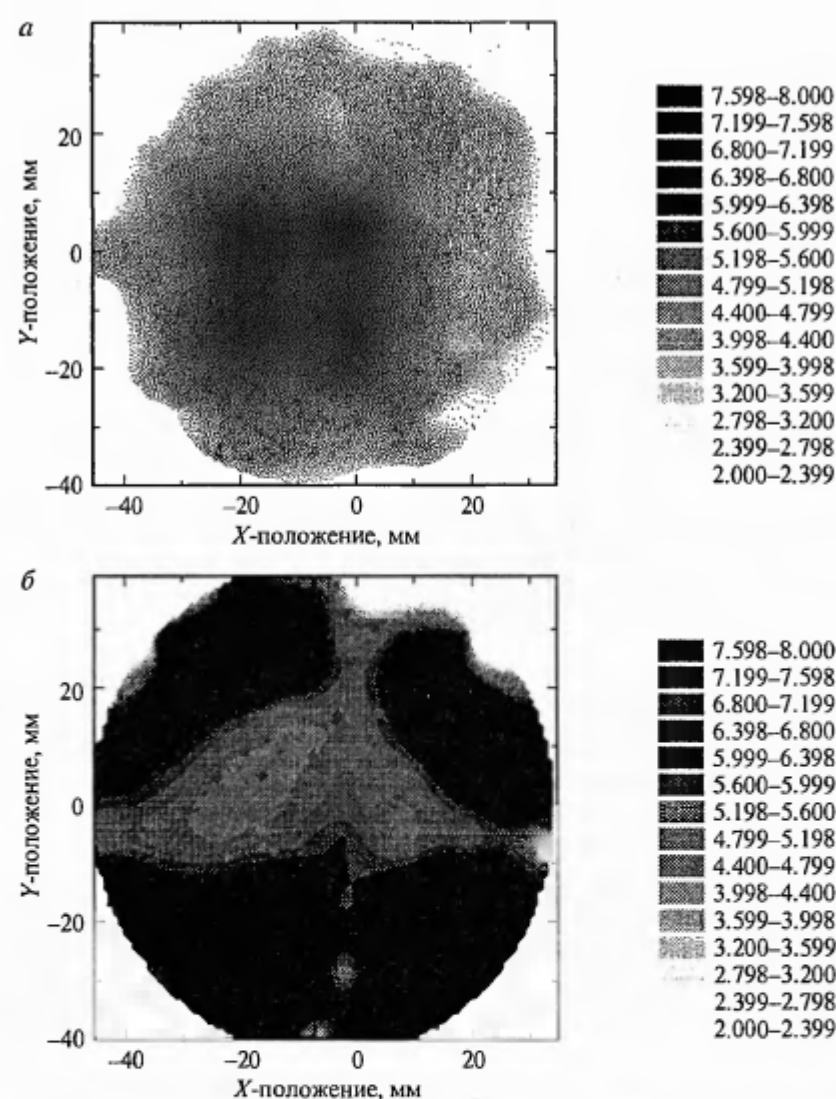


Рис. 7.6. Карты распределения значений ширины трехосевых кривых качания (θ -сканирование образца) по площади пластин GaAs, выращенного различными методами.

а — пластина GaAs, выращенного по методу Чохральского; б — VGZ пластина GaAs.

кривой качания только от образца как функции положения на пластине. Ясно видно различие между двумя классами пластин GaAs.

Для толстых слоев сильно рассогласованных систем двухосевые кривые качания часто оказываются подвержены определяющему влиянию разориентаций. Таковы материалы группы $A^{II}B^{VI}$ —CdTe и $Hg_xMn_{1-x}Te$, выращенные на GaAs [4], и GaN на сапфире [5], показанный на рис. 7.7. Распределение разориентаций можно получить в результате моделирования, предполагая, что имеется случайное распределение нормальных к поверхности краевых компонент дислокаций несоответствия. Это приводит к распределению Га-

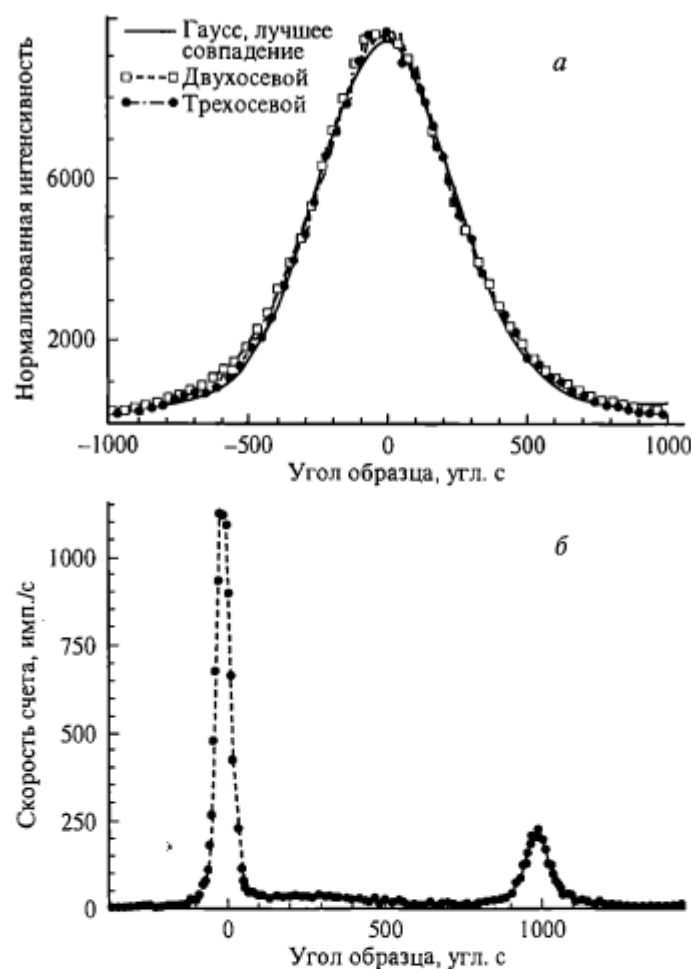


Рис. 7.7, а. Двух- и трехосевые кривые качания (θ -сканирование образца) эпитаксиального слоя GaN на сапфире с ориентацией (0001). 0002 отражение в Si K_α -излучении;

б — связанное сканирование образец/анализатор в отношении 1 : 2. Коллиматоры пучка — 022 Si (асимметричный срез под углом 17.65°) и кремниевый анализатор дю Монда в симметричном отражении 111.

усса, которое очень хорошо представлено на кривых рис. 7.7, а. Отметим, что кривые, полученные при связанном θ — 2θ -сканировании, очень узкие по сравнению с кривой сканирования образца. Это показывает, что в эпитаксиальном слое имеется слабая деформация, но разориентации распределены в большом угловом интервале.

7.7. Построение полных карт рассеяния в обратном пространстве

Полную карту рассеяния от образца можно построить путем регистрации интенсивности от набора несвязанных положений образца и анализатора, которые должны сочетаться таким образом, чтобы образовать сетку в

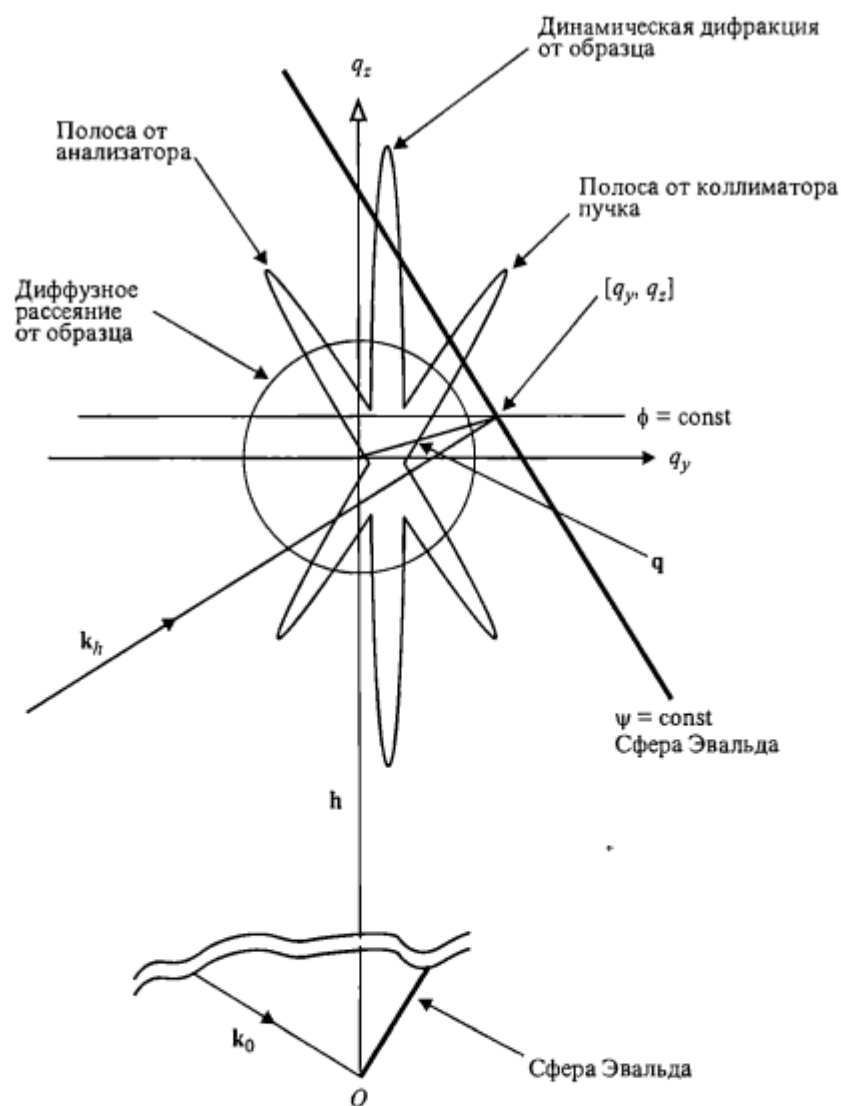


Рис. 7.8. Карта рассеяния в обратном пространстве.

Схематически показаны контуры равной интенсивности. Сфера Эвальда представлена в виде плоскости около точек обратной решетки O и h . Динамическая дифракция от образца слегка смещена от ТОРа и центра диффузного рассеяния за счет влияния преломления.

обратном пространстве. Такая контурная карта схематически показана на рис. 7.8, взятом из работы Ииды и Кори [6]. Что измеряется в трехосевом эксперименте, можно понять с помощью этого рисунка. Угловые положения падающего пучка и анализатора определяют два вектора, которые в свою очередь определяют вектор рассеяния и, следовательно, угол рассеяния. Угловое положение образца определяет положение отражающих плоскостей, рассеяние от которых измеряется под этим углом рассеяния. На рис. 7.8 центральной точкой является узел обратной решетки, соответствующий отражающим плоскостям, например 004. В этом случае рассеяние

измеряется от малого объема $[q_y, q_z]$, окружающего эту точку. Вектор рассеяния $\mathbf{Q}$ (не показанный прямо на рис. 7.8) можно рассматривать как сумму «идеального» вектора рассеяния, направленного из начала координат в точку h , и вектора отклонения $\mathbf{q}$; поэтому

$$\mathbf{Q} = \mathbf{h} + \mathbf{q}. \quad (7.1)$$

Вектор отклонения $\mathbf{q}$, начало которого совпадает с концом вектора обратной решетки $\mathbf{h}$, имеет две составляющие: q_y — горизонтальную составляющую, направленную положительным концом вправо, и q_z — вертикальную составляющую, направленную положительным концом вверх. Для симметричного отражения эти составляющие связаны с отклонениями образца ($\Delta\psi$) и анализатора ($\Delta\phi$) от их нулевых положений в номинальном угле Брэгга следующими уравнениями:

$$q_z = \Delta\phi \cos \theta_B / \lambda, \quad (7.2)$$

$$q_y = (2\Delta\psi - \Delta\phi) \sin \theta_B / \lambda. \quad (7.3)$$

Таким образом, сканирование оси образца вдоль $\Delta\psi$ влияет только на q_y и обеспечивает сканирование слева направо в обратном пространстве. Сканирование анализатора влияет как на q_z , так и на q_y и фактически скользит вдоль сферы Эвальда. Изменение только одного q_z можно достичь путем установки

$$(2\Delta\psi - \Delta\phi) = 0, \quad (7.4)$$

т. е. сканированием анализатора со скоростью вдвое большей скорости образца, которое обычно называют θ — 2θ -сканированием (обозначение, которое следовало бы изменить, чтобы избежать вышеописанной путаницы между осями).

Можно изобразить вышеприведенные типы сканирования при помощи следующего геометрического построения. Сканирование только образца эквивалентно повороту обратной решетки вокруг начала координат; поэтому конец вектора $\mathbf{k}_h$ описывает дугу вокруг O , которая в масштабе рисунка представляет собой прямую горизонтальную линию. Сканирование только детектора эквивалентно изменению угла между $\mathbf{k}_0$ и $\mathbf{k}_h$ и описывает таким образом сканирование вдоль сферы Эвальда. Сканирование $2\Delta\psi - \Delta\phi$ представляет собой движение в вертикальном направлении в обратном пространстве, возникающее потому, что $\Delta\phi$ и $\Delta\psi$ — это углы с вершинами в центре и на окружности сферы Эвальда соответственно, опирающиеся на одну и ту же дугу; следовательно, из простой геометрии круга имеем $2\Delta\psi = \Delta\phi$.

Общий случай асимметричного отражения несколько сложнее и обычно не приводится; нижеследующий вывод разработан Вормингтоном [7]. Отклонение вектора рассеяния $\mathbf{q}$ от узла обратной решетки $\mathbf{h}$ можно вычислить, исходя из рассмотрения построения Эвальда, показанного на рис. 7.9. На рис. 7.9, *a* изображен случай, когда угол образца ψ и угол анализа

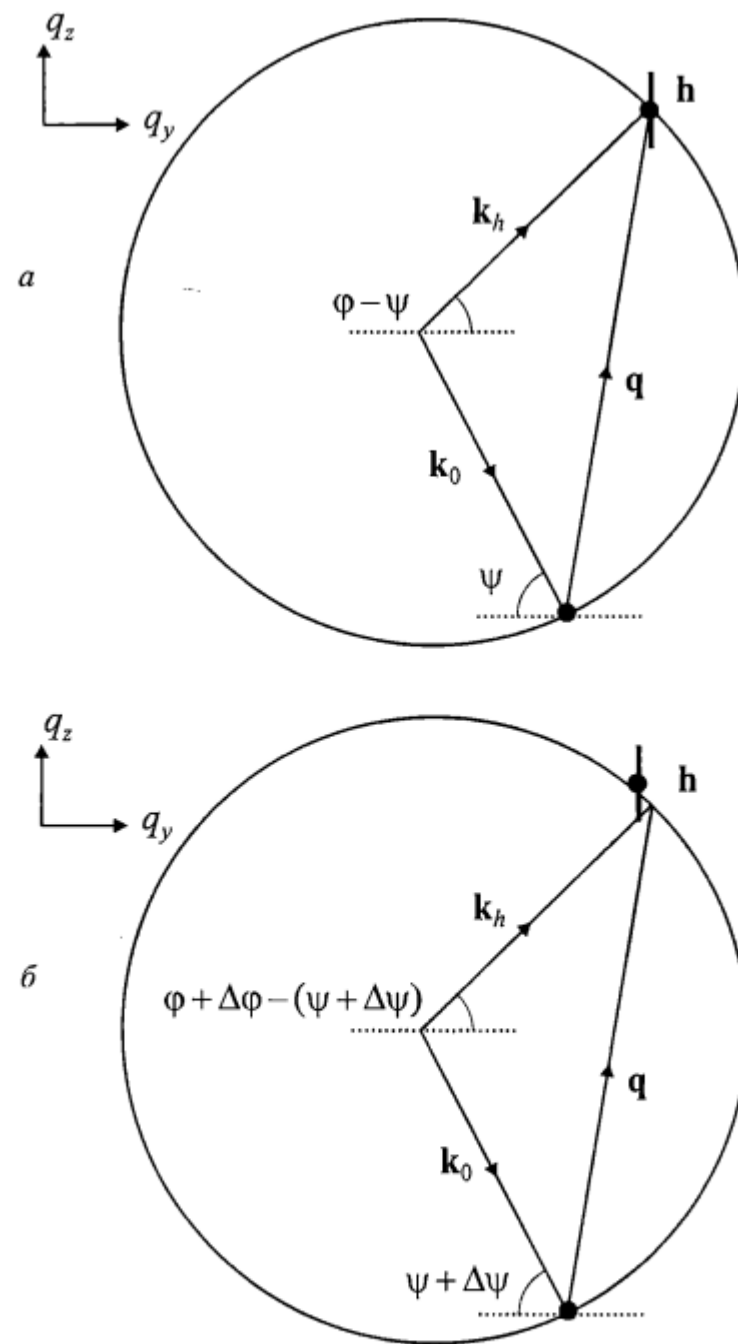


Рис. 7.9. Построения Эвальда: в брэгговском положении (*a*) и около брэгговского положения (*б*).

тора φ установлены так, чтобы удовлетворять условию Брэгга $2d \sin \theta_B = \lambda$. Рис. 7.9, б показывает построение Эвальда после того, как углы образца и анализатора были изменены на $\Delta\psi$ и $\Delta\varphi$ соответственно.

Из уравнения (7.1), мы имеем

$$\mathbf{q} = \mathbf{h} - \mathbf{Q}. \quad (7.5)$$

Из геометрии построения Эвальда, показанного на рис. 7.7, б, мы можем выразить $\Delta\mathbf{q}$ через его декартовы составляющие (q_y, q_z):

$$q_y = 1/\lambda \left\{ \cos [\varphi + \Delta\varphi - (\psi + \Delta\psi)] - \cos (\psi + \Delta\psi) \right\} - 1/\lambda [\cos (\varphi - \psi) - \cos \psi] \quad (7.6)$$

и

$$q_z = 1/\lambda \left\{ \sin (\psi + \Delta\psi) + \sin [\varphi + \Delta\varphi - (\psi + \Delta\psi)] \right\} - 1/\lambda [\sin \psi + \sin (\varphi - \psi)]. \quad (7.7)$$

Раскрывая тригонометрические члены, мы можем переписать уравнения (7.6) и (7.7) в виде:

$$q_y = 1/\lambda \left\{ [\cos (\varphi - \psi) \cos (\Delta\varphi - \Delta\psi) - \sin (\varphi - \psi) \sin (\Delta\varphi - \Delta\psi)] - (\cos \psi \cos \Delta\psi - \sin \psi \sin \Delta\psi) \right\} - 1/\lambda [\cos (\varphi - \psi) - \cos \psi], \quad (7.8)$$

$$q_z = 1/\lambda \left\{ (\sin \psi \cos \Delta\psi + \cos \psi \sin \Delta\psi) + [\sin (\varphi - \psi) \cos (\Delta\varphi - \Delta\psi) + \cos (\varphi - \psi) \sin (\Delta\varphi - \Delta\psi)] \right\} - 1/\lambda [\sin \psi + \sin (\varphi - \psi)]. \quad (7.9)$$

Если $\Delta\psi$ и $\Delta\varphi$ малы, то уравнения (7.8) и (7.9) можно упростить путем использования приближений малых углов: $\sin (\Delta\alpha) \approx \alpha$ и $\cos (\Delta\alpha) = 1$. Наконец, мы имеем:

$$q_y \approx 1/\lambda [\sin \psi \Delta\psi - \sin (\varphi - \psi) (\Delta\varphi - \Delta\psi)], \quad (7.10)$$

$$q_z \approx 1/\lambda [\cos \psi \Delta\psi + \cos (\varphi - \psi) (\Delta\varphi - \Delta\psi)], \quad (7.11)$$

где:

— для симметричного отражения

$$\psi = \theta_B, \quad \varphi - \psi = \theta_B;$$

— для асимметричного отражения при скользящем падении

$$\psi = \theta_B - \phi, \quad \varphi - \psi = \theta_B + \phi;$$

— для асимметричного отражения при скользящем отражении

$$\psi = \theta_B + \phi, \quad \varphi - \psi = \theta_B - \phi.$$

Здесь ϕ — это величина угла между отражающими плоскостями и нормалью к поверхности.

Из рис. 7.8 возникает несколько соображений. Основное динамическое рассеяние от образца вытянуто вдоль вертикального направления q_z , и в кристалле хорошего качества оно имеет очень малую ширину в направлении q_y . Это рассеяние сдвинуто от узла обратной решетки на величину поправки на коэффициент преломления. Однако диффузное рассеяние не сдвинуто, и оно появляется как слабая, но широкая область рассеяния приблизительно сферической формы с центром в узле обратной решетки.

При углах $\pm\theta_B$ на вертикальной оси появляются вытянутые области, обусловленные ограниченным угловым разрешением кристаллов коллиматора и анализатора. Эти области отсутствовали бы, если бы на кривых качания от этих кристаллов не было хвостов. Они возникают потому, что при этих положениях анализатора и образца помимо истинного сигнала от «рабочей области» обратного пространства проходит небольшое количество интенсивных сигналов от главного пика сквозь хвосты функции анализатора. Поэтому направления вытянутости этих областей указывают на главный пик, и направления находят путем представления слабого изменения векторов $\mathbf{k}_0$ вокруг начала координат и $\mathbf{k}_h$ вокруг центра сферы Эвальда. В системе с высоким разрешением и очень широким динамическим диапазоном похожие области при очень низких уровнях интенсивности можно иногда видеть из-за рассеяния на воздухе в этой системе, как например на рис. 7.11, что также вызывает ухудшение угловой точности [8].

Наконец отметим, что стандартная двухкристалльная или высокоразрешающая кривая качания, на которой мы не имеем контроля над $\Delta\varphi$, есть в сущности горизонтальное сканирование через обратное пространство, интегрирующее все интенсивности вдоль сферы Эвальда. Поэтому легко видеть, каким образом трехосевая схема может дать нам гораздо больше сведений.

7.8. Применения карт рассеяния в обратном пространстве

Для проведения этих исследований нам далеко не всегда нужен синхротрон или рентгеновская установка с вращающимся анодом. Требуемое разрешение определяет отражение, используемое для анализатора. Для измерений с низким разрешением можно использовать щель или кристалл-анализатор из графита. Анализаторы Si 022 или Ge 022, вырезанные асимметрично, дают среднее разрешение, и для большинства систем это разумный компромисс между интенсивностью и разрешением в обратном пространстве. Анализаторы Si 111 или 022 с четырьмя симметричными отражениями дают высокое разрешение, необходимое для полупроводниковых систем $A^{III}B^V$ или $A^{IV}B^{IV}$. Все показанные здесь карты обратного прост-

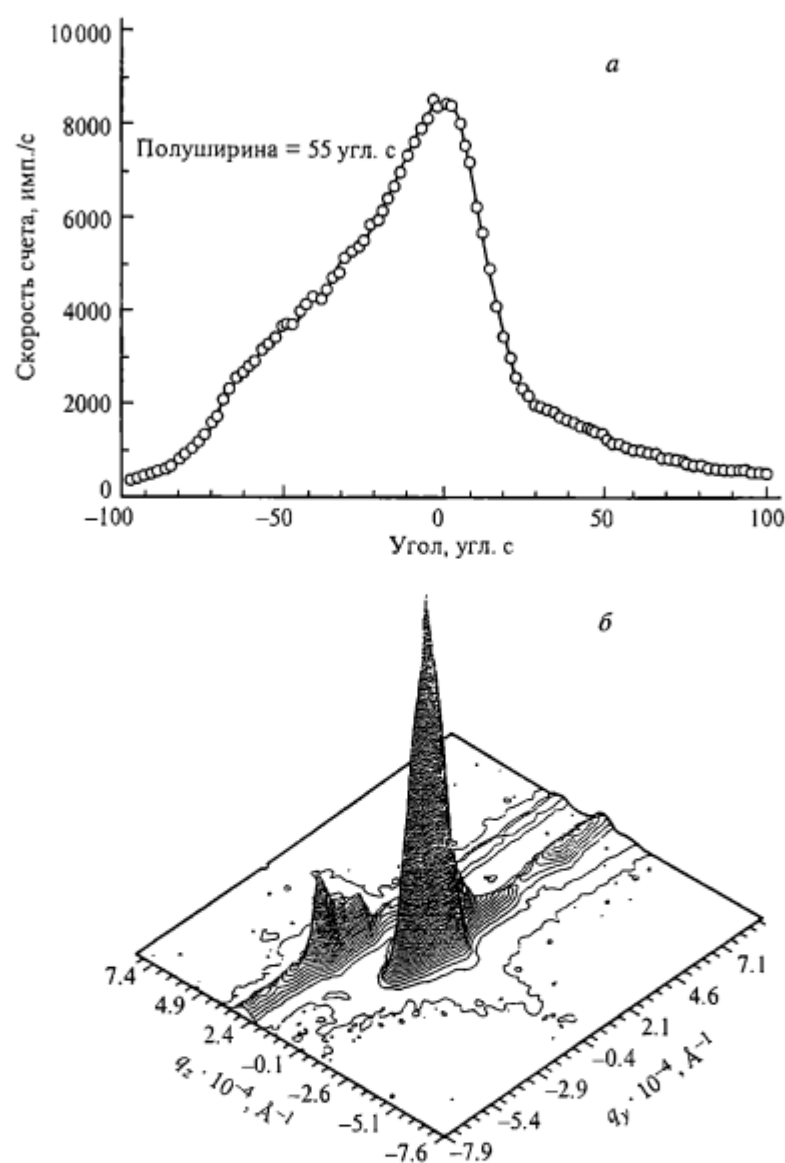


Рис. 7.10. Двухосевая кривая качания кристалла GaAs, выращенного в условиях микрогравитации после того, как в нагревателе произошел сбой (а); эквивалентная трехосевая карта обратного пространства $\text{Cu K}\alpha$ 004 (б).

ранства были получены на рентгеновских источниках с отпаянными трубками в течение нескольких часов в лучшем случае.

Удобная стратегия измерений состоит в осуществлении цикла сканирований, при котором образец установлен под конкретным углом, после чего осуществляют θ — 2θ -сканирование. После этого образец устанавливают в следующее угловое положение и осуществляют другое θ — 2θ - или продольное сканирование. Таким способом собирают данные в квадратной сетке точек в обратном пространстве. Затем соответствующее программное обес-

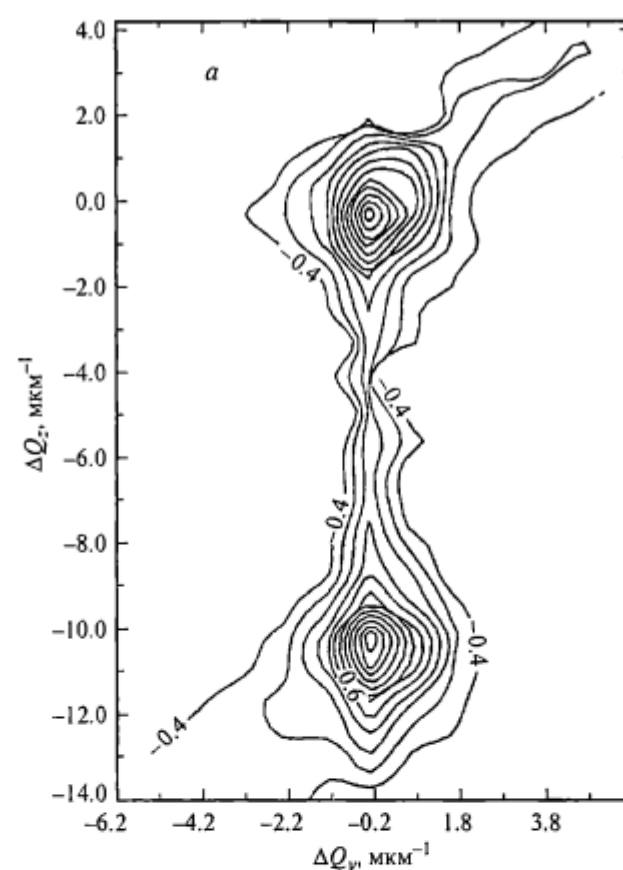


Рис. 7.11. Карта обратного пространства вокруг узла 004, построенная для эпитаксиального слоя GaAs, выращенного при низкой температуре на GaAs.

а — после выращивания; б — после высокотемпературного отжига [10].

печение конвертирует данные в координаты обратного пространства по уравнениям, приведенным в последнем разделе.

Первый пример, который мы показываем, — это пример с дефектной областью в монокристалле GaAs, выращенном в космосе в условиях микрогравитации [9]. Основная область кристалла имела хорошее качество, на что указывали кривые качания шириной $12''$, но вторая область, выросшая после того как в нагревателе произошел сбой, демонстрировала широкие, асимметричные кривые качания, как показано на рис. 7.10, а. Качество явно низкое, но причина этого непонятна. Карта рассеяния в обратном пространстве (рис. 7.10, б) показывает, что имеется две области рассеяния. Эта особенность не выявляется в двухосевом эксперименте! Внутри каждой области есть распределение областей, разориентированных в широком угловом интервале, т. е. мозаичная структура. Две области кажутся сдвинутыми в направлении q_z , и они, возможно, связаны с двойниковыми ламелями, которые не вполне когерентны.

Выращивание тонкой эпитаксиальной пленки GaAs при низкой температуре приводит к захвату точечных дефектов, которые вызывают увеличе-

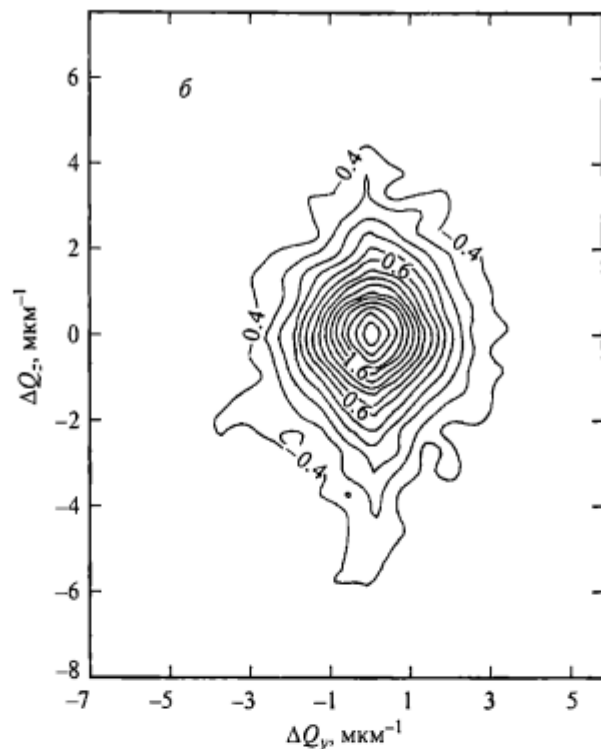


Рис. 7.11 (продолжение).

ние параметра решетки пленки по сравнению с пластиной. Оно обусловлено тем, что в слое содержится избыток мышьяка, приводящий к расширению основной решетки GaAs. Карта обратного пространства показывает, что эпитаксиальный слой имеет другой параметр решетки (рис. 7.11) и что между слоем и подложкой нет разориентации. Это видно из того факта, что пики 004 слоя и подложки расположены вертикально один над другим в обратном пространстве. Как для слоя, так и для подложки пики имеют одинаковое уширение в направлении q_y . Это уширение вызвано общей кривизной пластины, обусловленной деформацией от эпитаксиального слоя. (Отметим, что ширина пиков на половине высоты максимума для продольного сканирования была равна $15''$, тогда как двухкристалльные кривые качания имели ширину $60''$).

На рис. 7.11, б показана карта обратного пространства после высокотемпературного отжига пленки. Воздействие отжига привело к выделению мышьяка, и в результате параметр решетки матрицы, ставшей стехиометричной, возвратился к параметру подложки. Рассеяние вокруг пика слоя, которое вызывается выделениями, имеет круговую симметрию, и оно гораздо шире, чем в подложке.

В соединениях $A^{II}-B^{VI}$ и нитридах элементов III группы эпитаксиальные слои часто довольно несовершенны. На рис. 7.7 мы видели, что двухосевая кривая от эпитаксиального слоя GaN на сапфире, зарегистрированная с открытым детектором, была почти идентична трехосевому θ -сканиро-

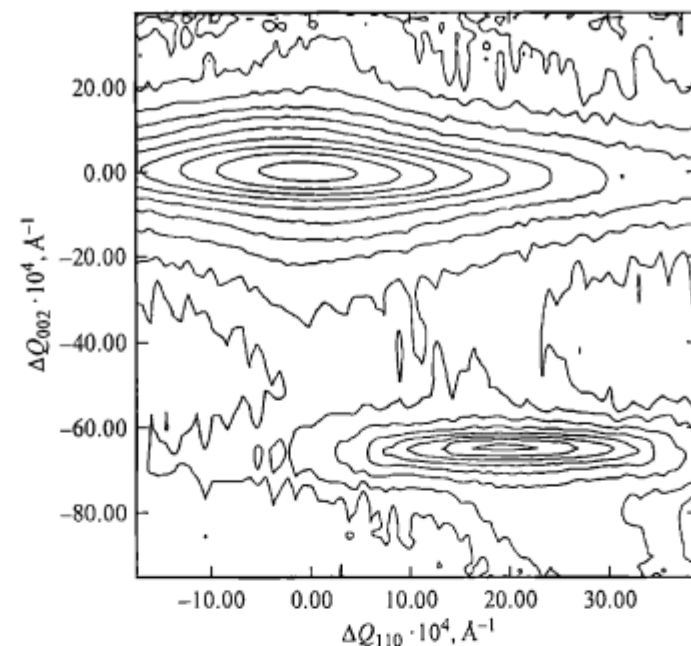


Рис. 7.12. Карта обратного пространства для образца GaN, показанного на рис. 7.7.

ванию. Это означает, что распределение деформации вызвано преимущественно разориентациями, а не дилатациями; и кривая $\theta-2\theta$ -сканирования в противоположность этому очень узкая. Карта рассеяния в обратном пространстве (рис. 7.12) для образца, представленного на рис. 7.7, четко показывает, что уширение двухкристалльных кривых качания обусловлено преимущественно разориентациями, а не дилатациями. Вытянутость распределения рассеяния в обратном пространстве вызвана тем, что кривые, полученные при сканировании одного образца, намного шире, чем кривые $\theta-2\theta$ -сканирования. Отметим, что пик слоя не лежит точно в направлении q_z относительно пика подложки. Простое $\theta-2\theta$ -сканирование, таким образом, проходит через плечо слоевого пика, давая неточное представление о его высоте и ширине. Как подложка, так и слой показывают мозаичную структуру, хотя распределение в слое шире, чем в подложке.

Рис. 7.13 показывает карту обратного пространства типичной структуры транзистора с высокой подвижностью электронов (HEMT), которая содержит слой InGaAs толщиной ~ 10 нм на подложке GaAs наряду с верхним слоем GaAs. Отметим, что осцилляции, относящиеся к тонкому слою, в обратном пространстве представлены контурами интенсивности, максимумы которых расположены вдоль линии, перпендикулярной к поверхности образца. Из рис. 7.13 сразу видно, что поверхность подложки имела наклон по отношению к направлению [001], так как линия интерференционных максимумов не совпадает с направлением q_z . По мере увеличения отклонения в направлении q_z существенного уширения интерференционных максимумов в этом направлении не возникает. Однако на карте есть большая область сильного диффузного рассеяния, окружающая узел обратной ре-

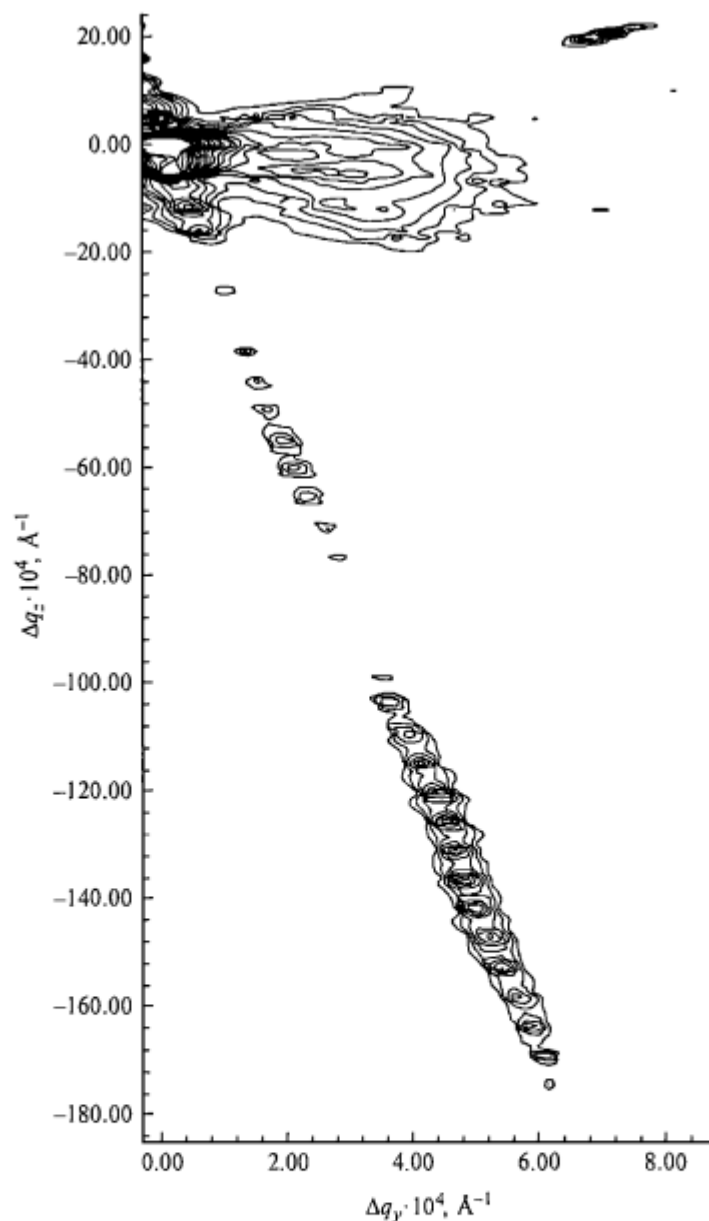


Рис. 7.13. Карта обратного пространства, построенная для НЕМТ структуры, которая содержит квантовую яму InGaAs толщиной приблизительно 10 нм и толстый верхний слой GaAs. Подложка GaAs (001).

шетки подложки, которое гораздо сильнее того, которое обычно обнаруживают при исследовании подложечных пластин. Поэтому можно было приписать это рассеяние дефектам внутри верхнего слоя.

Последний пример (рис. 7.14 и 7.15) призван продемонстрировать сложность структурных деталей, которые можно разрешить путем использования карт рассеяния в обратном пространстве; он взят из работы группы Гурско-

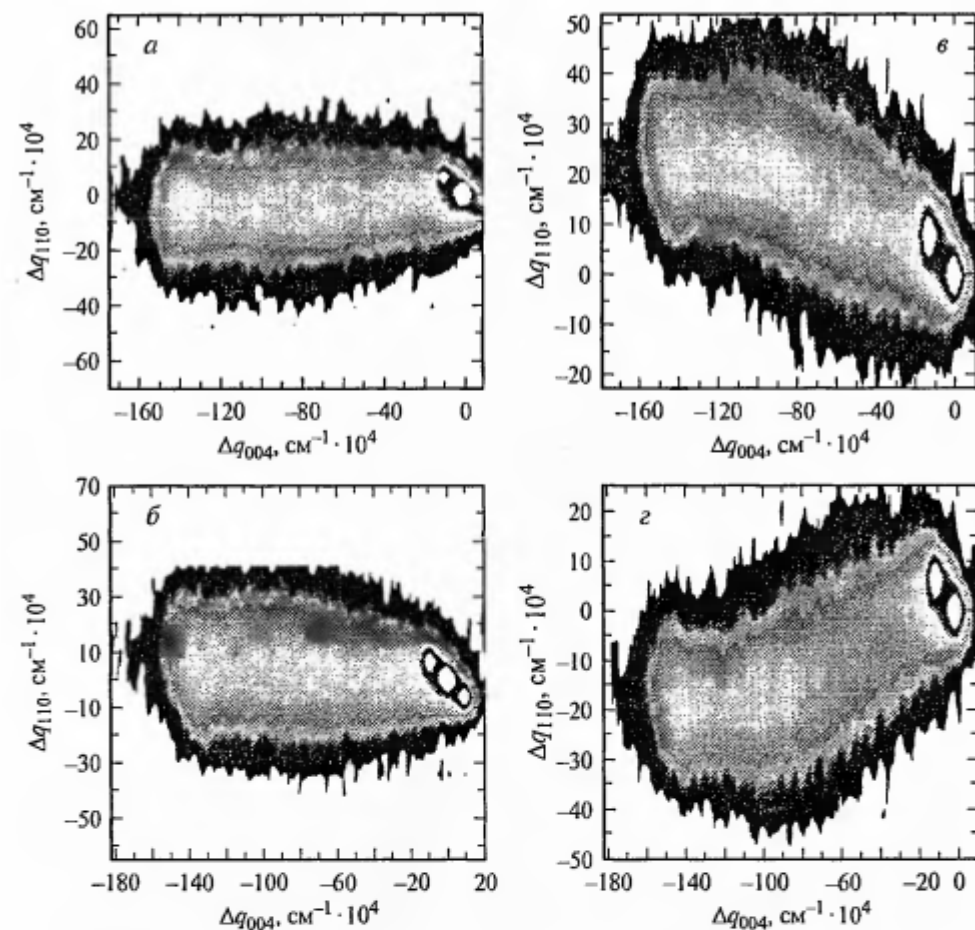


Рис. 7.14. Карты обратного пространства для образца GaAs с градиентом состава в буферном слое InGaAs, построенные вокруг узла 004 при различных направлениях падающего пучка.

а — вдоль [110]; *б* — вдоль $[\bar{1}\bar{1}0]$; *в* — вдоль $[\bar{1}\bar{1}0]$; *г* — вдоль $[\bar{1}\bar{1}0]$. На этом и на следующем рисунке ориентация такова, что начало координат находится с левой стороны карт (не внизу), следовательно, горизонтальное направление представляет деформацию, а вертикальное направление — разориентацию.

го (Элдридж и др.) [11] из UCLA. Образец был подложкой GaAs, прикрытой буферным слоем, в котором содержание In в растворе InGaAs возрастало от 0 до 25 % по толщине чуть меньше двух микрометров, для того чтобы получить подложку с новым параметром решетки, на которой впоследствии была выращена сверхрешетка с (+, -)деформацией. Это аналогично пяти-слойной структуре Si—Ge, рассмотренной нами в разд. 7.6, но с непрерывным градиентом вместо ступенчатого. Цель исследования состояла в том, чтобы установить степень релаксации и измерить остаточные деформации в буферном слое, чтобы убедиться в решении технологической задачи. Дополнительную сложность вносило то обстоятельство, что подложка была разориентирована на 2° в направлении $\langle 011 \rangle$ от точной ориентации (001).

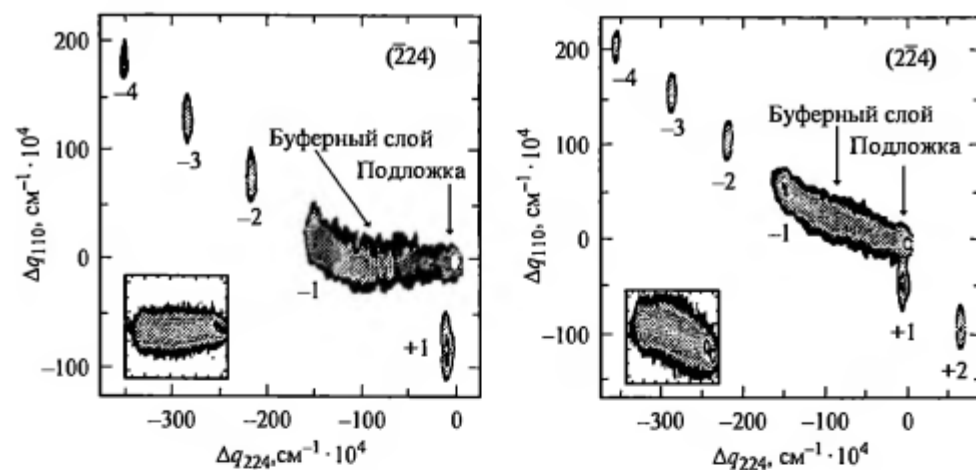


Рис. 7.15. Карты обратного пространства для образца GaAs с градиентом состава в буферном слое InGaAs, построенные вокруг узла обратной решетки 224.

а — направление [110]; б — направление [1 $\bar{1}$ 0]. Карты вокруг узла 004 в этих направлениях показаны на вставках.

Метод, который использовала эта группа, состоял в том, чтобы прежде всего определить направление разориентации подложки посредством построения карт обратного пространства в каждом из направлений $\langle 110 \rangle$, содержащихся в плоскости пластины. Они показаны на рис. 7.14. Вместо кристалла-анализатора использовалась узкая щель, поэтому «штрихи» от анализатора видны около пиков подложки (начало координат, расположенное справа на каждой карте, в этом случае находится слева). Видно, что на рисунках а и б пучок ориентирован перпендикулярно к оси разориентации подложки, так как эти карты показывают только деформацию. На рисунках в и г можно видеть эффект градиента состава, поскольку как разориентация, так и деформация изменяются, но этих карт недостаточно, чтобы сделать полный анализ. Для него необходимо асимметричное отражение, такое как 224. Соответствующие карты показаны для направлений 110 и $1\bar{1}0$ на рис. 7.15, где карты для отражения 004 присутствуют в виде вставок, и на этот раз пики от сверхрешетки также видны.

Объяснение результатов состоит в следующем. Вытянутое по диагонали распределение интенсивности в отражении 224 малоинформативно, так как оно просто показывает нам, что в буферном слое присутствуют как разориентация, так и деформация и мы не знаем, вызвана ли разориентация отклонением поверхности подложки или особенностями роста. Однако карта для отражения 224 была получена в направлении, нечувствительном к разориентации, возникающей по вине подложки, и мы можем быть уверены в интерпретации. Область интенсивности, распространяющаяся радиально от пика подложки к началу координат, должна иметь кубическую структуру изменяющегося параметра решетки, т. е. структура полностью релаксирована. Та часть интенсивности, которая распространяется в диагональном направлении и сливается с отражениями от сверхрешетки, должна представлять тетрагонально деформированную область, т. е. структура не релаксиро-

вана. Тот факт, что эта деформированная область сливается с отражениями от сверхрешетки, означает, что сверхрешетка модулирует деформированную область буферного слоя, а не релаксированную область. Так как сверхрешетка может быть когерентна только с поверхностью, на которой выращена, а не с нижележащей поверхностью, то в этом случае можно сделать вывод, что буферный слой сначала релаксируется (возможно, вследствие слишком резкого градиента состава), вплоть до 20 % In, а затем становится деформированным и когерентным. Поэтому цель выращивания — получение полностью когерентного буферного слоя — не была достигнута, но путем этого тщательно проведенного измерения были обнаружены точные ориентиры в проблемах процесса роста.

7.9. Заключение

В этой главе мы увидели новое измерение, которое трехосевая дифрактометрия и карты рассеяния в обратном пространстве вносят в исследование сложных материалов. С одной стороны, они дают возможность по-новому взглянуть на материалы, качество которых недостаточно высокое, чтобы использовать для их исследования двухосевые методы, а с другой — они показывают, насколько сложные структурные проблемы можно разрешить при помощи этого дополнительного измерения.

Литература

1. Zaumseil P., Winter U. // Phys. Stat. Sol. (a). 1982. Vol. 70. P. 497.
2. Thompson L. R., Collins G. J., Doyle B. L., Knapp J. A. // J. Appl. Phys. 1991. Vol. 70. P. 760.
3. Lee S. R., Doyle B. L., Drummond T. J., Medernach J. W., Schneider R. P., jr. // Advan. X-ray Anal. 1995. Vol. 38. P. 201.
4. Hallam T. D., Halder S. K., Hudson J. M., Li C. R., Funaki M., Lewis J. E., Brinkman A. W., Tanner B. K. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1993. Vol. 26. P. A161.
5. Lafford T., Loxley N., Tanner B. K. // Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 1997. Vol. 449. P. 483.
6. Iida A., Kohra K. // Phys. Stat. Sol. (a). 1979. Vol. 51. P. 533—542.
7. Wormington M. B. Scientific Instruments. Private communication.
8. Matyi R. // Rev. Sci. Instrum. 1992. Vol. 63. P. 5591.
9. Loxley N., Moore C. D., Safa M., Tanner B. K., Clark G. F., Hermann F. M., Mueller G. // Advan. X-ray Anal. 1995. Vol. 38. P. 195.
10. Hudson J. M. PhD thesis. Durham University, 1993.
11. Eldredge J. W., Matney K. M., Goorsky M. S., Chui H. C., Harris J. S., jr. // J. Vac. Sci. Technol. 1995. Vol. B13. P. 689.

8. ОДНОКРИСТАЛЬНАЯ РЕНТГЕНОВСКАЯ ТОПОГРАФИЯ

В этой главе рассматриваются основные механизмы формирования контраста на рентгеновских топограммах и описываются методы Берга—Баретта, секционной и проекционной топографии. Акцентируется внимание на детали методик получения и регистрации топограмм. Обсуждаются ограничения топографии реального времени и характеристики детекторов. В обширной части, посвященной контрасту плоских и линейных дефектов в различных дифракционных условиях, даются некоторые добавочные теоретические средства, помогающие в интерпретации изображений.

8.1. Введение

До сих пор мы занимались только измерением интегральной интенсивности, попадающей в детектор, как функции углового положения различных кристаллов, не учитывая пространственного распределения этой интенсивности. В самом деле, первые статьи, посвященные изучению изменения дифрагированной интенсивности как функции положения в кристалле, появились только через 20 лет после открытия дифракции рентгеновских лучей. В таких экспериментах изменение интенсивности по ширине дифрагированного пучка обычно регистрируется фотографическим способом и тем самым карта рассеянной мощности регистрируется в функции положения в кристалле. Такие дифракционные топограммы аналогичны трансмиссионным электронограммам. Несмотря на название, данный метод *не является* чувствительным преимущественно к топографии *поверхности*; изучается именно топография плоскостей кристаллической решетки.

Как это бывает во многих областях науки, трудно точно определить, когда и кем была изобретена рентгеновская топография. Ранние методы Шульца [1] и Гинье и Тенневэна [2], которые регистрировали распределение интенсивности в лауэпятнах, были неспособны разрешить изображения отдельных дислокаций. Пространственное разрешение в направлении, нормальном к плоскости падения (т. е. к плоскости, содержащей падающий и дифрагированный пучки), определяется просто размером проекции фокуса рентгеновской трубки. Из-за большого размера фокуса и необходимости устанавливать фотопленку на значительном расстоянии от образца, для того чтобы разделить различные лауэпятна, разрешались только сильные деформации, такие как от царапин, вызванных механической полировкой. Однако, как мы увидим в гл. 10, теперь в связи со строительством источников синхротронного излучения стало возможно использовать эти простые методы для быстрых высокоразрешающих исследований.

Изображения отдельных дислокаций впервые наблюдались Лангом [3] путем использования его метода *секционной топографии* и почти одновременно Бонзе и Кэплером [4] с использованием *двухкристального* метода.

Последний метод будет подробно рассмотрен в гл. 9, а в этой главе сконцентрируем внимание на однокристалльных методах, которые используют характеристическое излучение рентгеновской трубки и способны дать изображения высокого разрешения.

8.2. Механизмы контраста

Целью всех топографических методов является получение картины распределения дефектов в кристалле. Считается, что рентгеновские изображения возникают при помощи двух механизмов.

Ориентационный контраст возникает, когда область кристалла разориентирована на величину, превышающую расходимость пучка (рис. 8.1). В этом случае для характеристической линии дифрагированная интенсивность от области А не регистрируется, когда брэгговское условие выполняется для остального кристалла. Поэтому на пленке появляется незачерненное пятно. Угол разориентации, спроектированный на плоскость падения, можно определить как угол, на который нужно повернуть образец, чтобы получить сильную интенсивность от области А. Это очень удобно делать в реальном времени, используя электронный детектор изображений, но при фотографическом способе регистрации измерение становится утомительным. Ориентационный контраст может возникать от присутствия двойников, субзерен и электрических и магнитных доменов, и его можно интерпретировать простым геометрическим способом без детальных расчетов на основе динамической теории. Большая часть контраста в двухкристалльной топографии относится именно к этому типу контраста (см. гл. 9) вследствие очень малой расходимости пучка, падающего на образец.

Другой тип ориентационного контраста, который рассматривается в гл. 10, возникает, когда используется непрерывное излучение. Этот контраст часто встречается на топограммах, полученных в синхротронном излучении, но иногда его можно видеть на однокристалльных топограммах в лабораторных условиях. В этом случае две области А и Б удовлетворяют условиям Брэгга для различных длин волн. Тогда дифрагированные пучки имеют разные направления в пространстве и могут либо перекрываться, либо расходиться в зависимости от относительной разориентации областей А и Б. Простые изображения возникают там, где кристалл содержит дискретные блоки мозаики, но когда дисторсия решетки непрерывна, контраст может быть очень сложным и трудным для интерпретации.

Экстинкционный контраст — это второй основной механизм контраста. Здесь дисторсия решетки вокруг дефекта приводит к мощности рассеяния, отличной от мощности рассеяния окружающей матрицы. Во всех случаях конт-



Рис. 8.1. Ориентационный контраст в условиях монохроматизированного коллимированного рентгеновского пучка.

Дифракция в области А имеет место только для конкретного углового положения образца.

раст вызывается нарушением или изменением динамической дифракции в совершенном кристалле. В классическом структурном анализе термин «экстинкция» использовался в том случае, когда наблюдаемая интегральная интенсивность была меньше, чем предсказанная кинематической теорией. Вокруг дефекта наблюдалось увеличение рассеяния, и этот «недостаток экстинкции» лег в основу термина. Точную природу изображений можно объяснить только на основе динамической теории дифракции, и мы вернемся к ней в одном из следующих разделов.

8.3. Метод Берга—Баретта

Этот метод для геометрии Брэгга (отражение), разработанный в 1945 г. Бареттом [5] вслед за более ранней работой Берга [6], является самым простым методом высокого разрешения, который можно реализовать в лаборатории. В нем используется протяженный фокус рентгеновской трубки и образец настраивается таким образом, чтобы дифракционные условия удовлетворялись для характеристической K_α -линии от выбранной системы брэгговских плоскостей. Используя рез кристалла, при котором дифракционные плоскости располагаются так, что падающий пучок составляет очень малый угол с поверхностью образца (рис. 8.2), можно поместить фотопленку на расстоянии 1 мм от поверхности образца. Наилучшие результаты получаются для плоскостей, угол Брэгга которых для характеристической K_α -линии близок к 45° , так что дифрагированный пучок выходит почти нормально к поверхности образца. Эта конфигурация удобна тем, что она практически нечувствительна к ориентационному контрасту. Кроме того, она имеет два важных следствия для пространственного разрешения.

Характеристическая K_α -линия состоит из слабо разделяющегося дублета с отношением интенсивностей 2:1 между $K_{\alpha 1}$ - и $K_{\alpha 2}$ -линиями. Проблем нет, если для регистрации используется среда с низким пространственным разрешением типа флуоресцентного экрана или усилителя изображения; проблема возникает, когда используются фотопластинки высокого разрешения с эмульсией для ядерных исследований. Тогда изображения отдельных дислокаций раздваиваются, потому что дифрагированные пучки от двух линий образуют разные направления в пространстве, что приводит к контрасту ориентационного типа. Однако если расстояние «образец—пленка» мало, то расходимость пучков пренебрежимо мала и можно получить резкие изображения отдельных дислокаций (рис. 8.3).

Второй момент касается пространственного разрешения, достигаемого в этом методе. С хорошим приближением пространственное разрешение δ в направлении, нормальном плоскости падения, связано с расстоянием «обра-

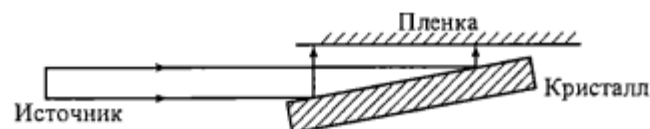


Рис. 8.2. Схема метода Берга—Баретта.

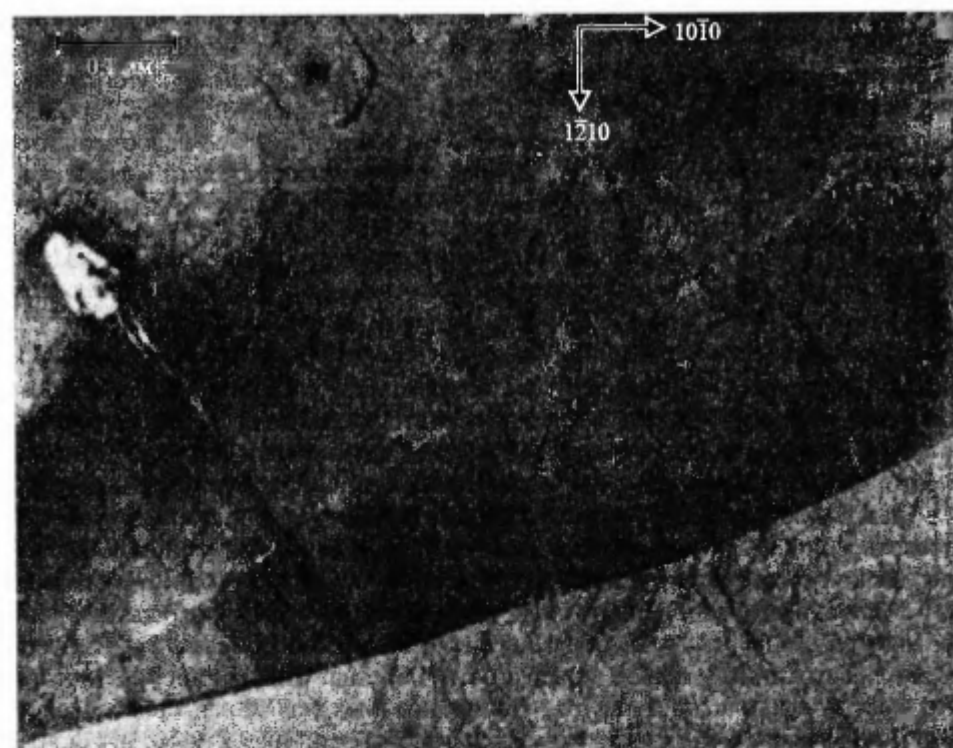


Рис. 8.3. Топограмма, полученная по методу Берга—Баретта, показывающая изображения отдельных дислокаций в монокристалле цинка. (С разрешения Б. Ресслера).

зец—источник» D , расстоянием «образец—фотопластинка» L и вертикальной проекцией фокуса H простым геометрическим соотношением

$$\delta = HL/D.$$

Это показано на рис. 8.4. Сразу ясно, что фотопластинку выгодно помещать очень близко к образцу. Например, при вертикальной проекции фокуса 0.04 мм, расположенного на расстоянии 160 мм от образца, пространственное разрешение в 1.25 мкм можно получить для расстояния «образец—фотопластинка» 5 мм. Несмотря на солидный возраст и простоту, метод Берга—Баретта используется до сих пор, в частности для предварительной оценки качества кристаллов новых материалов в тех случаях, когда их структурное совершенство относительно низкое.

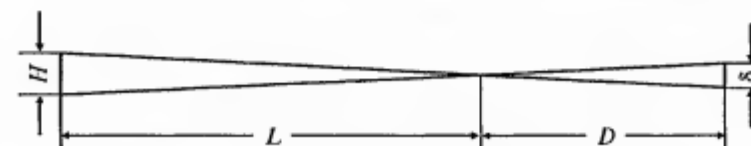


Рис. 8.4. Схема, показывающая предел геометрического разрешения, установленный проекцией высоты фокуса в направлении, нормальном к плоскости падения.

Если брэгговские плоскости или рез кристалла не могут быть выбраны так, чтобы дифрагированный пучок выходил почти нормально к поверхности образца, то дифрагированный пучок будет проходить сквозь регистрирующую фотопленку под углом. Обусловленную этим потерю разрешения можно свести к минимуму за счет использования очень тонкой эмульсии (например, 10 мкм толщиной), но тогда следует использовать мягкое излучение типа $C\alpha$, чтобы быть уверенным, что существенная доля излучения задерживается фотопленкой. Применение мягкого излучения часто оказывается удобным еще и потому, что большие углы Брэгга, встречающиеся в этом случае, облегчают поиск асимметричных скользящих отражений низких порядков с углом рассеяния почти 90° .

Важной особенностью использования мягкого излучения является тот факт, что экстинкционная длина и глубина поглощения при этом малы и поэтому рентгеновские лучи проникают в кристалл на очень маленькое расстояние. Поэтому исследуется только тонкий слой кристалла, расположенный вблизи поверхности. Поля деформаций от дислокаций, распространяющиеся в кристалл глубже, не дают значительного вклада в изображения, а в трансмиссионных методах перекрытие изображений приводит к изображениям отдельных дефектов к верхнему пределу плотности дислокаций на уровне 10^4 см^{-2} . В методе Берга—Баретта его можно раздвинуть до $\sim 10^6 \text{ см}^{-2}$.

Большая ширина кривой качания, обусловленная протяженным фокусом рентгеновской трубки, облегчает получение топограмм по методу Берга—Баретта. Это можно делать с помощью счетчика, но еще легче — с помощью флуоресцентного экрана или ТВ-камеры. Интенсивность отражений такова, что требуется только небольшое усиление, из-за чего оборудование может стоить довольно дешево. Раньше исследователи имели обыкновение в условиях затемненного помещения искать отражение на куске флуоресцентной бумаги, прикрепленной к держателю, который находился у них в руке. Теперь такая практика в большинстве стран считается незаконной из-за значительной дозы радиации, получаемой при таком способе настройки.

8.4. Топография Ланга

8.4.1. Секционная топография

Этот трансмиссионный метод [3] дает изображение сечения кристалла и как таковой позволяет экспериментатору исследовать трехмерное распределение дефектов. Перед монокристаллическим образцом пучок от пятна острофокусного или микрофокусного источника ограничивается лентообразным пучком шириной $\sim 10 \text{ мкм}$. Это формирует падающий пучок, ширина которого мала по сравнению с шириной основания веера Бормана, образованного крайними из дифрагированных и прошедших пучков с поверхностью кристалла. (Другими словами, ширина пучка должна быть много меньше, чем $t \sin 2\theta_B$, где t — толщина образца и θ_B — угол Брэгга.) Образец настраивают до тех пор, пока не получают сильный дифракционный

пучок для характеристической $K_{\alpha 1}$ -линии и для выбранных дифракционных плоскостей, и затем помещают фотопластинку позади образца. Из-за высокой коллимации одновременная дифракция $K_{\alpha 1}$ - и $K_{\alpha 2}$ -линий невозможна и поэтому нет проблемы раздвоения изображений. Дифрагированный пучок пропускается через щель, и это не позволяет прямо прошедшему пучку попасть на фотопластинку. Геометрическое расположение таково, что пластинку можно поместить в пределах 10 мм от образца. В этом случае для расстояния «источник—образец» 1 м и вертикальной проекции фокуса 0.3 мм геометрическое разрешение равно 3 мкм. Ланг использовал микрофокусный источник, чтобы улучшить его разрешение до 1 мкм.

8.4.2. Проекционная топография

Секционная топография дает изображение только узкой полосы в кристалле, и, для того чтобы получить изображение целого кристалла и при этом сохранить высокое пространственное разрешение, Ланг изобрел гониометр, в котором кристалл и пленка совершали одновременное возвратнопоступательное перемещение поперек пучка [7] (рис. 8.5). Камеры Ланга (которые можно купить) представляют собой двукружные гониометры, оборудованные устройством для точного перемещения образца и кассеты и регулируемые (или взаимозаменяемые) щелями падающего пучка. Этот метод стал наиболее распространенным лабораторным методом рентгеновской топографии. Секционную и проекционную топографию можно осуществлять на одной и той же установке, однако при получении проекционных топограмм рекомендуется заменять очень узкие щели, необходимые для секционной топографии, более широкими щелями. Это значительно уменьшает время экспозиции.



Рис. 8.5. Схема установки для проекционной топографии.

Для получения проекционных топограмм образец и пленка перемещаются поперек пучка. Отметим, что в секционной топографии используются очень узкие щели ($\sim 10 \text{ мкм}$), в то время как в проекционной топографии ширина их обычно составляет 0.25 мм.

8.5. Экспериментальный опыт получения топограмм Ланга

В экспериментальном исследовании личный опыт незаменим, но если применять уже известные наработки, то большинства ловушек можно избежать. Последующие разделы написаны в помощь новичкам в топографии, так как эта область относительно не известна практикантам в дифракционных исследованиях. В то время как большую часть изложенного здесь материала уже можно найти в литературе [8, 9], именно эти вопросы в печати не освещены и существуют только как фольклор.

8.5.1. Установка кристалла

Важной особенностью, которой часто пренебрегают, является методика крепления кристалла. Методы рентгеновской топографии очень чувствительны к деформации, и грубое крепление будет вызывать проблемы. Когда кристалл маленький, полезно закрепить его внутри подходящего металлического кольца, которое фиксируется на гониометре и позволяет получить большое число отражений простым поворотом держателя. В пластичные кристаллы можно ввести много дислокаций, а в хрупких материалах радиус кривизны вплоть до 2 м будет препятствовать возникновению брэгговского отражения одновременно от всего образца шириной 1 см. Для многих целей мягкий воск является подходящим крепежным материалом при условии, что его используют в минимальном количестве, необходимом для закрепления кристалла. (Мягкий изолирующий воск «Сенко», расплавленный умеренным нагреванием маленького паяльника, очень хорошо скрепляет холодные предметы). Для всех цементов основным является фиксирование образца только в одной точке. Быстро высыхающих клеев, которые дают усадку, следует избегать. Эпоксидная смола и цемент, применяемые в приборах, измеряющих деформацию, могут быть успешно использованы для длительного крепления, так как они дают очень малую усадку. Общее правило заключается в том, чтобы наносить закрепляющее вещество на образец как можно дальше от изучаемой области. При низких температурах хорошо работает маленькое количество лака. Цианоакрилатные клеи (суперклеи), используемые в случае хрупких материалов, таких как кремний, можно удалить посредством термошока при погружении в кипящую воду или жидкий азот.

8.5.2. Выведение дифракционного вектора в горизонтальную плоскость

Это действие эквивалентно регулировке наклона образца в высокоразрешающем дифракционном эксперименте. Однако такая настройка менее критична и часто может быть сделана на глаз, например в том случае, когда кристаллы имеют огранку или ребра, ориентированные в определенных кристаллографических направлениях. (Чертежный угольник с изменяемым углом — очень полезный инструмент в таких случаях.) Для топографии Ланга будет вполне достаточно настройки с точностью до $\sim 0.5^\circ$, поскольку точную юстировку можно сделать после того, как брэгговское отражение

уже найдено. Если кристалл не имеет кристаллографически ориентированных граней, то всю гониометрическую головку следует перенести в камеру обратного отражения по Лауэ и определить кристаллографическую ориентацию образца. Соответствующий поворот приведет нужные дифракционные плоскости в вертикальную ориентацию.

8.5.3. Нахождение брэгговского отражения

Вначале, при настройке камеры для получения пучка под углом $4.5\text{—}6^\circ$ к источнику, рекомендуется использовать низкую рентгеновскую мощность и обязательно установить поглотитель пучка. Большинство сцинтилляционных и пропорциональных счетчиков насыщается значительно ниже 10^6 имп./с. Поэтому при настройке на неколлимированном излучении легко поверить, что рентгеновских лучей нет. В процессе работы условия «высокое напряжение — низкий ток» дают хорошую интенсивность характеристической линии, но следует убедиться в том, что критическое напряжение превышено. (Брэгговское отражение не будет найдено для $\text{Ag } K_\alpha$ -излучения при напряжении на трубке 20 кВ, поскольку потенциал возбуждения $\text{Ag } K_\alpha$ -линии выше.)

Нужно позаботиться о том, чтобы центр кристалла был расположен на оси камеры, но в любом случае для начала лучше уменьшить расстояние между образцом и сцинтиллятором. С нецентрированным образцом эффективный угол счетчика 2θ не будет равен значению $2\theta_B$, считываемому со шкалы счетчика. Широкая угловая апертура облегчает настройку, но увеличивает фон. Как только отражение найдено, угол приема должен быть уменьшен, а сцинтиллятор отодвинут подальше от образца. Это исключает возможность обнаружения случайного отражения от невертикальных дифракционных плоскостей. Даже при компьютерном контроле и автоматическом поиске отражения «в иные дни все получается легко, а в иные — нет» [8].

Должны быть видны два пика, причем интенсивность пика $K_{\alpha 2}$ должна составлять половину интенсивности пика $K_{\alpha 1}$. Если отношение интенсивностей не 2 : 1, из этого следует, что брэгговские плоскости не вертикальны и ориентация кристалла в плоскости, нормальной к падающему пучку, должна быть отрегулирована.

Когда проводится изучение аномального прохождения рентгеновских лучей в материалах, дающих заметную флуоресценцию, иногда в толстом кристалле трудно заметить брэгговское отражение на высоком фоне. В этой ситуации высокоинтенсивное поверхностное отражение от ребра кристалла может быть очень полезным. Кристалл следует перемещать до тех пор, пока он точно не разрежет рентгеновский пучок. Как только отражение от ребра найдено, кристалл можно сместить в толстую область и там будет виден слабый брэгговский пик. В случае, если пик не наблюдается, можно совершенно определенно заключить, что аномальное прохождение не возникает и кристалл является несовершенным.

Когда отражение найдено, можно вставить щели для дифрагированного пучка. При низкой флуоресценции вполне достаточно только ровного края экрана, чтобы перекрыть прямой пучок, но в большинстве случаев лучше

использовать щель. Широкая кривая качания, в которой невозможно различить $K_{\alpha 1}$ - и $K_{\alpha 2}$ -компоненты, явно указывает на то, что кристалл сильно деформирован и полученные в итоге топограммы не будут произведениями искусства. Тем не менее они могут все же быть научно-информативными. Аналогично этому быстрое изменение интенсивности при перемещении кристалла, дающее сильный сигнал на протяжении только короткой области, часто служит признаком изгиба кристалла. В последнем случае при условии, что кривизна не слишком велика и используется жесткое излучение, можно получить хорошие топограммы путем непрерывной подстройки углового положения кристалла для удержания его в точном брэгговском отражении. Это легко реализовать при помощи простого алгоритма в камере с компьютерным контролем.

8.5.4. Регистрация топограмм

Как станет ясно далее, очень важно устанавливать фотопластинку как можно ближе к образцу. В случае источников с вращающимся анодом следует позаботиться о том, чтобы не допустить попадания пучка полной мощности на фотопластинку в стационарном положении, так как это приведет к появлению на топограмме переэкспонированной вертикальной линии. Горизонтальная полоса на топограмме часто обусловлена присутствием второго узла обратной решетки, лежащего на сфере Эвальда. Полосу можно убрать малым поворотом кристалла вокруг дифракционного вектора, как при съемке стереопары.

8.6. Топографическое разрешение

Поскольку для горизонтального и вертикального направлений критерии отличаются, они будут рассмотрены отдельно.

8.6.1. Фотографическое разрешение

В отличие от электронной микроскопии качество рентгеновских зеркал недостаточно высокое для увеличения рентгенотопографических изображений. Топограмма должна быть снята без увеличения и впоследствии увеличена оптическим способом. Поскольку изображения дислокаций имеют ширину вплоть до микрометра, необходимо, чтобы и регистрирующая среда имела сравнимое разрешение. Многие считают, что фотопластинки с эмульсией для ядерных исследований «Илфорд L4» (с размером не проявленного зерна 0.14 мкм) имеют блестящие характеристики для регистрации рентгеновских топограмм. Зубоврачебная или стандартная рентгеновская пленка работает быстро и может быть использована для получения изображений большой площади, но ее пространственное разрешение низкое. Выбор пленки типа «Агфа D2» (D7) с размером зерна 2 и 7 мкм часто является неплохим компромиссом между хорошими быстродействием и разрешением и приемлемой ценой. Для топограмм больших площадей полупроводниковых пластин они подходят очень хорошо. Для высокоразрешающих опти-

Таблица 8.1
Время обработки эмульсий «Илфорд L4» разной толщины

Операция обработки фотопластики	Время, мин	
	50 мкм	25 мкм
Замачивание в профильтрованной деионизованной воде	10	5
Проявление (1 : 3 D19b по отношению к деионизованной воде)	15—60	12—30
Стоп-ванна (1 % ледяной уксусной кислоты в деионизованной воде)	10	5
Фиксирование (300 г тиосульфата натрия и 30 г бисульфита в 1 л деионизованной воды)	60	30
Промывка под краном профильтрованной водой	Свыше 120	Свыше 120

ческих изображений следует выбирать очень тонкие эмульсии, чтобы получить высокое разрешение, но из-за относительно слабого поглощения рентгеновских лучей их минимальная толщина имеет предельно допустимое значение. Для более жестких излучений, например $Mo K_{\alpha}$ и $Ag K_{\alpha}$, используют эмульсию толщиной 50 мкм, в то время как для более мягкого излучения толщина в 25 мкм вполне удовлетворительна. Этими толщинами достигается компромисс между эффективностью и разрешением. Чтобы получить разрешение в 1 мкм, ширина проекции луча в эмульсии не должна превосходить этого значения; поэтому в случае, например, эмульсии толщиной 25 мкм ошибка установки в 2° может быть приемлемой. Тонкие эмульсии дают более высокую статистическую флуктуацию в количестве проявленных зерен на единицу площади и нуждаются в более длительных экспозициях.

Из-за плотной упаковки зерен в ядерных эмульсиях трудно получить равномерное проявление, и поэтому, для того чтобы уменьшить скорость проявления до величины, сравнимой со скоростью диффузии проявителя в эмульсию, проявление для высокоразрешающих экспериментов следует проводить при температуре льда. Удобно проводить проявление в основном отсеке домашнего холодильника, включая его на возможно больший холод. Перед проявлением эмульсию следует размягчить размачиванием в воде. Проявитель «Кодак D19b» достаточно хорошо сохраняется в концентрированном виде, но быстро портится в разбавленном, и поэтому проявитель следует менять ежедневно. Однако стоп-ванну и фиксаж можно использовать многократно. Пластины следует промывать в холодной профильтрованной проточной воде в течение нескольких часов и затем осторожно протирать в текущей воде хлопчатобумажной тканью, чтобы убрать оставшиеся частицы. Для получения хороших результатов нужно проявить особую заботу о том, чтобы сохранять растворы чистыми. Пластины следует сушить на воздухе, прикрыв их от пыли, и не ускорять сушку. Время обработки фотопластинок с эмульсией «Илфорд L4» указано в табл. 8.1.

Плотности эмульсии «Илфорд» линейны на протяжении значительной области, и поэтому неправильную экспозицию можно скомпенсировать при проявлении. В то время как лучше иметь переэкспонированную и недопро-

явленную пластинку, чем наоборот, недостаточную экспозицию можно неплохо скомпенсировать, хотя область, на протяжении которой это возможно, ограничена. Следует стремиться к тому, чтобы основная фотографическая плотность отражения от тонкого совершенного кристалла была равна единице, и тогда черные «прямые» изображения дают плотности вплоть до 2 или 3. На топограммах аномального прохождения в толстых кристаллах основная плотность порядка 2 от совершенного кристалла дает хороший контраст (белых) динамических изображений, но все еще позволяет наблюдать усиления интенсивности. Общее эмпирическое правило состоит в том, чтобы проявлять до тех пор, пока четкое изображение на обратной стороне пластинки не станет видно под красным светом.

При проявлении зёрна эмульсии L4 набухают до 0.25 мкм. Однако грануляция, наблюдаемая на топограмме при рассмотрении под микроскопом, не связана с зерном пленки, а представляет собой «дробный шум» — статистический эффект, возникающий из-за статистического изменения в количестве проявленных зерен на единице площади. Эту грануляцию можно уменьшить путем увеличения экспозиции, но такая стратегия имеет ограниченное применение вследствие короткой динамической области этих эмульсий. Ланг в деталях рассмотрел влияние этого эффекта на разрешение [10].

При использовании жестких излучений ($\text{Mo } K_\alpha$ и $\text{Ag } K_\alpha$) разрешение будет ограничиваться также длиной треков фотоэлектронов в эмульсии, которая равна ~ 2 мкм в случае этих излучений. Таким образом, в ограничении топографического разрешения между 1 и 2 мкм суммируется множество факторов.

Для топограмм высокого разрешения увеличение фотографическим способом, как правило, не дает удовлетворительного результата. Рассеяние света уменьшает контраст дислокаций, и при необходимом увеличении глубина резкости изображений мала. Опыт показывает, что лучшие топограммы можно получить на лучших (и наиболее дорогих) микроскопах, которые имеют макроприставки для работы с низким разрешением. Увеличение свыше $500\times$ почти никогда не используется, в то время как область ($30—60\times$) дает широко используемое увеличение. Фотографирование следует осуществлять с помощью микроскопа, а печатать топограммы принято как позитивы.

8.6.2. Разрешение в топографии реального времени

Фотографический метод, хотя и обеспечивает прекрасное разрешение и контраст, является трудоемким и неудобным для использования методом, например при контроле качества в технологии полупроводниковых материалов. Он также не применим для динамических экспериментов, в которых конфигурация дефектов изменяется. Детекторы для топографии реального времени делятся на две категории — те, в которых происходит прямое преобразование рентгеновских лучей в электрические сигналы, и те, которые используют оптический преобразователь рентгеновских лучей.

Первый подход был применен в системах прямого наблюдения самого высокого разрешения. В разработке Чикавы и коллег [11] дифрагированный

рентгеновский пучок проходил сквозь бериллиевое окно и попадал на тонкий PbO фотокатод чувствительного видикона телевизионной (ТВ) трубки. Чувствительность прибора в конце концов ограничивается толщиной мишени, так как тонкая мишень поглощает только малую долю рентгеновских лучей, а в толстых мишенях только тонкий слой со стороны поверхности входа рентгеновских лучей становится фотопроводящим. Сначала Чикава получил разрешение 30 мкм, но последующие усовершенствования в электронике такой камеры дали разрешение 8 мкм [12]. К сожалению, трубка чувствительна к радиационному повреждению и ее высокоразрешающая модификация не производится промышленно. Кроме того, из-за ограниченного количества ТВ-линий поле зрения камеры при высоком разрешении очень мало.

Были описаны случаи сравнимого пространственного разрешения [13] приборов непрямого преобразования, основой которых служит тонкий флуоресцентный экран, имеющий форму объективной линзы микроскопа. Он тоже имеет маленькое поле зрения и слабую эффективность из-за низкой стопорной мощности флуоресцентного экрана. Промышленные приборы, основанные на канальном плоском усилителе в сочетании с камерой обратной зарядовой связи (CCD-камера), обычно дают пространственное разрешение около 25 мкм, которого достаточно для многих промышленных применений там, где нужен контроль качества подложек. Однако в последние десять лет удалось достичь небольшого прогресса в разрешении конфликта между требованиями высокого пространственного разрешения, большого поля зрения и высокой эффективности.

Для того чтобы увидеть, почему этот конфликт возникает, мы рассмотрим поток I рентгеновских фотонов на единицу площади за единицу времени, попадающий в детектор с эффективностью η . Количество фотонов N , обнаруженных за время интегрирования τ в квадратном элементе картины со стороной ϵ , выражается как

$$N = I \eta \epsilon^2 \tau. \quad (8.1)$$

Если два элемента на топограмме имеют различие в интенсивности ΔI , то разность фотонов в сигналах ΔN составит

$$\Delta N = \Delta I \eta \epsilon^2 \tau. \quad (8.2)$$

Переписанная в терминах контраста C , определяемого как $C = \Delta I / (2I + \Delta I)$, она становится равной

$$\Delta N = \eta \epsilon^2 \tau 2 IC / (1 - C). \quad (8.3)$$

Теперь среднеквадратичная величина отношения шума к сигналу равна $(2N + \Delta N)^{1/2}$ и отношение сигнал/шум R определяется как

$$R = \Delta N (2N + \Delta N)^{-1/2} = (C \Delta N)^{1/2}. \quad (8.4)$$

Поэтому

$$\epsilon = \frac{R}{C} \left(\frac{1 - C}{2\eta \tau I} \right)^{1/2}. \quad (8.5)$$

Это форма уравнения Розе де Врие, и мы видим, что это уравнение устанавливает основной предел пространственного разрешения квантово-ограниченных систем. Пространственное разрешение улучшается с увеличением падающей интенсивности I , эффективности детектора η и времени интегрирования τ . Интенсивность стала существенно выше с использованием синхротронного излучения, но улучшение эффективности остается по-прежнему фундаментальной проблемой. Чтобы поддерживать высокое пространственное разрешение, рабочие области ТВ-мишеней, или фосфоров, должны быть тонкими, тогда они задерживают только малую долю рентгеновских лучей. Использование тяжелых фосфоров на основе редких земель или фосфоров, осажженных на протравленные волоконно-оптические пластины, дает некоторые возможности для примирения этих фундаментальных противоречий. Отметим, что для применений, связанных с подтверждением качества продукции, время интегрирования порядка нескольких минут может быть вполне приемлемым, и с помощью компьютерно-совместимых электронных устройств захвата кадра и программ его обработки можно реконструировать изображения очень высокого качества путем цифрового интегрирования.

8.6.3. Оптимальный контраст и скорость

Интенсивность dI , которая попадает на кристалл от малой площадки dX , dY фокуса рентгеновской трубки, определяется как

$$dI = P dX dY / HVD^2, \quad (8.6)$$

где P — полная мощность рентгеновской трубки; H — размер проекции фокуса в плоскости падения; V — размер (вертикальной) проекции фокуса в направлении, нормальном к плоскости падения; D — расстояние от источника до образца. В плоскости падения осуществляется дифракция только части области отражения $\Delta\theta_B$ и полная дифрагированная интенсивность становится

$$I \propto (P/HVD^2) \int_0^V dX \int_0^{D\Delta\theta_B} dY = P \Delta\theta_B / HD. \quad (8.7)$$

Предполагая, что реакция пленки на интенсивность является линейной, получаем время экспозиции t для стационарной топограммы:

$$t = (k \Delta\theta_B P / HD)^{-1}, \quad (8.8)$$

где k — коэффициент пропорциональности.

Для топограммы со сканированием

$$T = [k \Delta\theta_B (P/HD) (M/R \cos \theta_B)]^{-1}, \quad (8.9)$$

где R — длина сканирования; M — ширина щели.

Для того чтобы минимизировать время экспозиции, выбираем $M = H$, т. е. используем всю проекцию фокуса. Затем, в пренебрежении расстоянием от коллимирующей щели до образца, требуем для монохроматизации выполнения условия

$$H = M < D \Delta\theta_{\lambda 1 \lambda 2} \quad (8.10)$$

где $\Delta\theta_{\lambda 1 \lambda 2}$ — угловое разделение соседних рентгеновских линий. Поэтому — для стационарной топограммы имеем

$$t = (C \Delta\theta_B \Delta\theta_{\lambda 1 \lambda 2} P / H^2)^{-1} \quad (8.11a)$$

— и для топограммы со сканированием

$$T = (C \Delta\theta_B \Delta\theta_{\lambda 1 \lambda 2} P / HR \cos \theta_B)^{-1}. \quad (8.11b)$$

Эти уравнения дают оптимальные условия для быстрого получения топограмм высокого разрешения в тех случаях, когда рассматривается разрешение только в плоскости падения. Однако необходимо рассмотреть также и разрешение в направлении, нормальном плоскости падения (рис. 8.4), которое определяется геометрическим соотношением

$$\delta = VL/D. \quad (8.12)$$

Для того чтобы разделить прямопроходящий и дифрагированный пучки, необходимо, чтобы

$$L > M / \operatorname{tg} 2\theta_B, \quad (8.13)$$

т. е.

$$\delta_L = VL \Delta\theta_{\alpha 1 \alpha 2} / H. \quad (8.14)$$

В оптимальных условиях разрешение топограммы Ланга в направлении, нормальном к плоскости падения, будет

$$\delta > V \Delta\theta_{\alpha 1 \alpha 2} / \operatorname{tg} 2\theta_B. \quad (8.15)$$

Убедительно доказано, что очень важно всегда помещать пластинку как можно ближе к образцу. Подстановка типичных значений ($V = H$ и $\Delta\theta_{\alpha 1 \alpha 2} = 2 \cdot 10^{-4}$) дает разрешение 2 мкм, когда $L = 1$ см. Поскольку значение $\Delta\theta_{\alpha 1 \alpha 2}$ — это нижний предел, соответствующий углу $\theta_B = 6^\circ$, мы отмечаем, что пределов разрешения можно достичь только при очень тщательной работе.

8.7. Контраст на рентгеновских топограммах

8.7.1. Кристаллы, кажущиеся совершенными

В результате относительно плохого пространственного разрешения рентгеновских топограмм могут возникнуть сомнения относительно того, обусловлен ли однородный контраст высокосоввершенным или очень несовер-

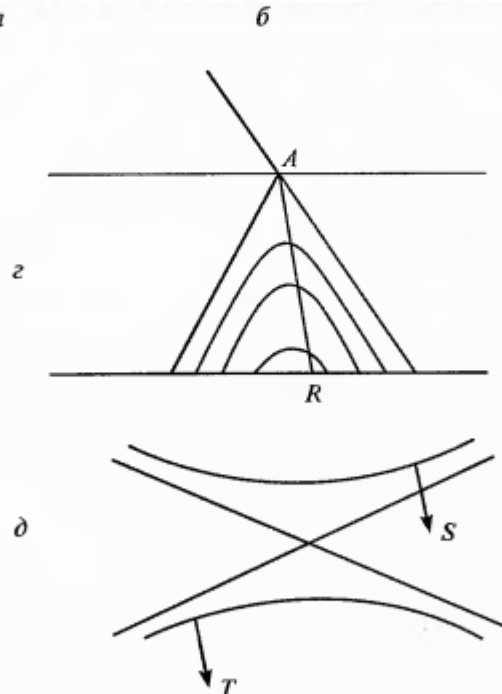
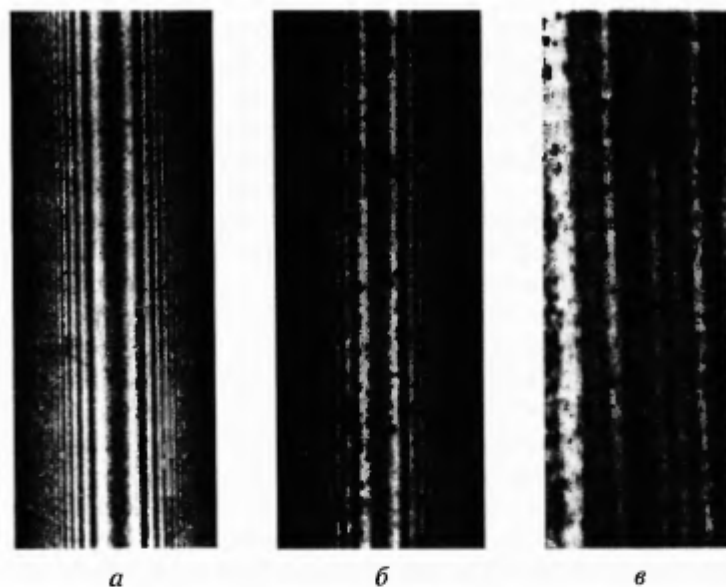


Рис. 8.6. Сферически-волновые толщинные полосы, или полосы Като, на секционной топограмме совершенного плоскопараллельного кристалла кремния (а); экспериментальная секционная топограмма того же самого кристалла, что и в а, демонстрирующая потерю видимости полос Като после отжига и выделения кислорода (б); полная потеря видимости полос Като после дальнейшего отжига (в). Схема геометрии секционной топограммы, на которой показаны поверхности постоянной фазы и путь AR волновых полей, соответствующих связанным точкам S и T дисперсионной поверхности (з); построение дисперсионной поверхности, показывающее связанные точки S и T (д). (С разрешения Дж. Р. Патела) [19].

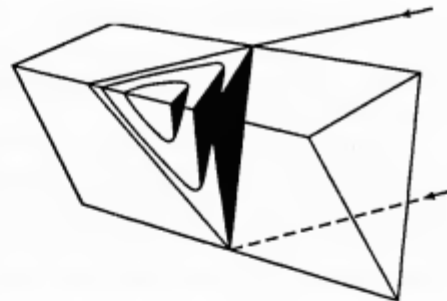
шенным кристаллом. Однако существуют очень важные контрольные опыты, которые можно применить; они основаны на секционной топографии, где контраст от совершенного кристалла далек от однородного.

Не в пример проекционным топограммам (или топограммам сканирования), на секционных топограммах плоскопараллельных пластин наблюдаются интерференционные, или толщинные, полосы (рис. 8.6, а). Они возникают вследствие динамической интерференции между волнами, распространяющимися внутри веера Бормана (рис. 8.6, з). Как мы видели выше, секционная топограмма получается, когда узкий лентообразный пучок входит в кристалл и на фотопластинке за кристаллом регистрируется дифрагированная интенсивность в виде полосы. Поскольку расходимость падающего излучения намного больше области отражения совершенного кристалла, мы не можем считать, что падающий пучок является плоской волной. Это отличается от ситуации в трансмиссионной электронной микроскопии, где сильное рассеяние получается в очень широкой области отражения и приближение плоской волны обычно справедливо. При условии, что ширина падающего пучка мала в сравнении с шириной веера Бормана, в первом приближении волну на входной поверхности кристалла можно рассматривать как сферическую. В то время как плоская волна на выходе из кристалла возбуждает две блоховские волны на противоположных ветвях дисперсионной поверхности, сферическая волна возбуждает всю дисперсионную поверхность и волновые поля распространяются во всех направлениях внутри веера Бормана (рис. 8.6, з). Так как они возбуждаются когерентно, они сохраняют свою относительную фазу и будут поэтому интерферировать. В точку R на выходной поверхности приходят два волновых поля: одно из точки S на ветви 2 и другое из точки T на ветви 1 дисперсионной поверхности (рис. 8.6, д). Когда эти волновые поля принадлежат разным ветвям дисперсионной поверхности, они имеют разные волновые векторы и на выходной поверхности между ними появится разность фаз. Эта разность фаз определенным образом изменяется вдоль основания веера Бормана, и на секционной топограмме совершенного плоскопараллельного кристалла можно видеть серию интерференционных полос (рис. 8.6, а).

Эти полосы известны как «полосы Като» [14, 15], они дают важную информацию о форме дисперсионной поверхности. Плотность полос мала в центре картины, что вызвано угловым усилением углового отклонения падающих лучей, рассмотренным Отье [16]. Плотность полос увеличивается к краям секционной топограммы, так как здесь разница между волновыми векторами становится больше при меньшем изменении по нормали к дисперсионной поверхности. С увеличением поглощения контраст полос слабеет, так как только волновое поле ветви 2 достигает поверхности выхода и в очень толстых кристаллах секционная топограмма становится узкой, при этом только волновое поле ветви 2 в центре дисперсионной поверхности достигает выхода и поэтому полос не видно.

Так как это явление является эффектом «совершенного кристалла», то присутствие мелких дефектов, которые могут быть слишком малы или иметь слишком большую плотность, чтобы давать отдельные изображения, можно обнаружить вследствие нарушения фазовых соотношений и исчезновения полос Като. В облученных или внутренне окисленных кристаллах

Рис. 8.7. Схема поверхностей постоянной фазы в клиновидном кристалле.



появляются кластеры мелких точечных дефектов, о существовании которых можно судить по потере видимости маятниковых «Pendellösung» полос на секционной топограмме (рис. 8.6, б и в). Разрешение по глубине позволяет использовать секционную топографию для контроля ширины зоны, свободной от дефектов в кремнии, который подвергался внутреннему геттерированию для удаления кислорода из приповерхностной области, применяющемуся при изготовлении приборов [17, 18].

Как схематически показано на рис. 8.6, д, поверхности постоянной фазы находятся на гиперболических цилиндрах, и поэтому в плоскопараллельной пластине выходная поверхность разрезает эти цилиндры по прямым линиям. Следовательно, наблюдаются параллельные полосы. Когда кристалл имеет клиновидную форму, выходная поверхность разрезает гиперболические цилиндры вдоль гипербол (рис. 8.7) и поэтому на топограмме видны гиперболические полосы.

При умеренно большом угле Брэгга и обычном источнике рентгеновских лучей полосы Като демонстрируют периодическое затухание и изменения периода, что обусловлено двумя состояниями поляризации, которые имеют разные волновые векторы и, следовательно, разные экстинкционные длины (рис. 8.8). Толщинные полосы на секционных топограммах были

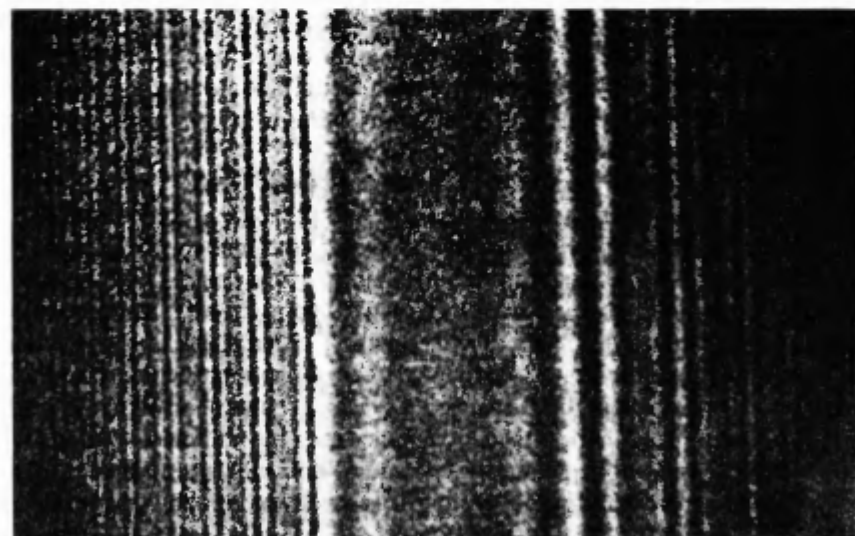


Рис. 8.8. Биеение полос Като, обусловленное присутствием двух состояний поляризации, на секционной топограмме кристалла алмаза. $\text{Cu } K_{\alpha}$ -излучение. (С разрешения С. С. Джанга. Университет Нанджинга).

использованы для чрезвычайно точных измерений структурных факторов [20—22]. В этих измерениях дальнедействующая деформация является наиболее серьезной потенциальной причиной ошибки, поскольку она вызывает сжатие полос.

Секционные топограммы дают ценную информацию о направлении потока энергии в кристалле. Хотя можно показать, что лучи в центре веера Бормана имеют более высокую интенсивность, чем на краях, это не приводит к усреднению интенсивности по ширине секционной топограммы. Угловое усиление A определяется как

$$A = d\theta/d(\Delta\theta), \quad (8.16)$$

где $d(\Delta\theta)$ — угловая расходимость падающего волнового пакета; $d\theta$ — соответствующая угловая расходимость волновых полей внутри кристалла. Напоминаем, что направление распространения волнового поля перпендикулярно дисперсионной поверхности в лежащей на ней связанной точке. Обозначив радиус кривизны дисперсионной поверхности через R , можно прямо показать, что

$$A = k \cos \theta_s / R \cos \theta. \quad (8.17)$$

Мы видим, что вблизи условия Брэгга, где дисперсионная поверхность сильно искривлена ($R \ll k$) и кристалл действует как мощный угловой усилитель, A достигает величины $3.5 \cdot 10^4$ в центре дисперсионной поверхности для кремния в отражении 220 в $\text{Mo } K_{\alpha}$ -излучении. Вдали от центра дисперсионная поверхность превращается в асимптоты к сферам с центром в точках обратной решетки и A приближается к единице. Таким образом, когда вся дисперсионная поверхность возбуждается сферической волной, из-за усиления вблизи брэгговского условия плотность волновых полей будет очень низкой в центре веера Бормана и очень высокой — на краях. Расчеты интенсивности, усредненной по толщинным осцилляциям сферических волн, составляющим интенсивность и плотность волновых полей, были осуществлены Като [23].

В условиях слабого поглощения очень важной особенностью, которая видна на экспериментальной топограмме на рис. 8.6, а, является то, что интенсивность дифрагированного пучка очень резко возрастает на краях секционной картины. Возрастание интенсивности вызвано очень высокой плотностью волновых полей в этих областях, и оно служит хорошим указанием на то, что кристалл высоко совершенен. Кластеры точечных дефектов, например от радиационного повреждения, будут расстраивать фазовые соотношения и расстроят этот краевой эффект. Однако в условиях умеренного поглощения ($\mu t \approx 2$) профиль совершенного кристалла очень похож на профиль кристалла, содержащего большое количество нарушений, и в таких условиях интерпретацию топограмм следует проводить с осторожностью.

8.7.2. Толщинные полосы на проекционных топограммах

Такаги [24] показал, что интенсивность на проекционной топограмме задается интегральной интенсивностью и не зависит от точной формы волнового фронта. Фазовые соотношения потеряны, и для расчета интенсивности дифрагированного пучка мы можем использовать интегральную интенсивность плоской волны. Для совершенного кристалла с нулевым поглощением интегральная дифрагированная интенсивность I_g^T определяется выражением

$$I_g^T = (g \xi_g)^{-1} \int_{-\infty}^{\infty} \sin^2 \left\{ \pi t (1 + \eta^2)^{1/2} / \xi_g \right\} / (1 + \eta^2) d\eta =$$

$$= (\pi/2g \xi_g) \int_0^{2\pi t/\xi_g} J_0(\rho) d\rho, \quad (8.18)$$

где J_0 — функция Бесселя нулевого порядка. (Она построена на рис. 4.23 в гл. 4).

Член перед интегралом показывает, что отражения высокого порядка с большой экстинкционной длиной дают очень низкую интенсивность, в то время как интеграл определяет, как изменяется интенсивность в функции толщины. Можно отметить, что интенсивность осциллирует с псевдопериодом ξ_g , равным экстинкционной длине. Эти осцилляции являются толщинными осцилляциями, или полосами маятникового решения, которые можно наблюдать в клиновидном кристалле на топограммах Ланга и топограммах в белом пучке синхротронного излучения. С увеличением толщины амплитуда осцилляций уменьшается как $(\xi_g/t)^{1/2}$ и поэтому видимость осцилляций ухудшается. Учет поглощения приводит к уменьшению средней интенсивности с толщиной.

8.7.3. Кристаллы, содержащие субзерна и дислокации

Как рассмотрено выше, имеется два основных механизма для появления контраста на рентгеновских топограммах. Первый, ориентационный контраст, соответствует кристаллам, в которых дислокации образуют малоугловые субзерненные границы. На топограммах, полученных методами Ланга и Берга—Баретта, ориентационный контраст проявляется там, где часть кристалла разориентирована таким образом, что дифракция от нее не может возникнуть одновременно с дифракцией от остальной части кристалла. Нулевая интенсивность геометрически соответствует разориентированной области (рис. 8.1), когда разориентация превышает расходимость падающего рентгеновского пучка.

Второй тип контраста, экстинкционный, возникает вследствие того, что мощность рассеяния вокруг дефекта отличается от рассеяния в совершенном кристалле. По существу имеется три типа экстинкционного контраста, установленные Отье [25] и схематически изображенные на рис. 8.9, а. Три типа формирующихся изображений называются соответственно: *прямое*

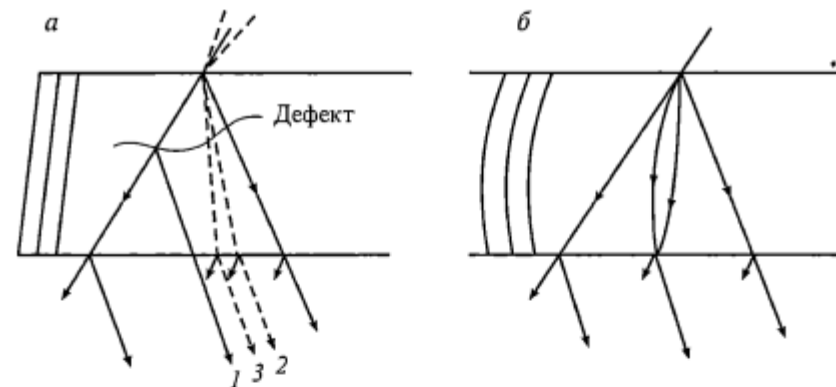


Рис. 8.9. Типы экстинкционного контраста.

а — дефект с большим градиентом деформации. Образуются три типа изображений: прямое 1, динамическое 2 и промежуточное 3; б — малый градиент деформации, когда пути лучей волнового поля искривляются.

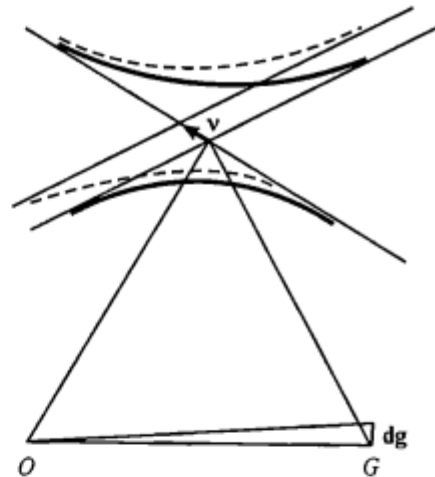
изображение 1, возникающее вследствие дифракции рентгеновских лучей, которые не удовлетворяют условию Брэгга в совершенном кристалле; *динамическое* изображение 2, которое образуется в результате изменений в интенсивности блоховских волновых полей, распространяющихся через совершенный кристалл; *промежуточное* изображение 3, сформированное в результате интерференции между этими волновыми полями и новыми волновыми полями, возникшими на дефекте. Эти типы изображений наблюдаются в тех случаях, когда градиент деформации большой, как например вокруг дислокации, и приводит к такому поведению области вокруг дислокации, как если бы эта область была поверхностью кристалла. Волновые поля разделяются на свои плосковолновые составляющие и создают новые блоховские волновые поля, когда поле деформации ниже дефекта вновь становится малым. Несколько иной тип динамического изображения образуется, когда градиенты деформации малы (рис. 8.9, б). В этом случае волновые поля не разделяются, но связанные точки мигрируют вдоль дисперсионной поверхности. Поскольку направление распространения, т. е. вектор Пойнтинга, всегда нормально к дисперсионной поверхности, то пути лучей искривлены в реальном пространстве. Эти два эффекта приводят к перераспределению энергии между прямым и дифрагированным пучками, которое дает контраст на топограмме.

8.8. Теоретические методы интерпретации контраста на рентгеновских топограммах

8.8.1. Слабые искажения

В условиях малой деформации сохраняется лучевая концепция и деформация кристалла описывается непрерывным изменением вектора обратной решетки. Это эквивалентно ситуации в оптике, когда свет распространяется

Рис. 8.10. Поворот вектора локальной обратной решетки в нарушенном кристалле, вызывающий смещение гипербол дисперсионной поверхности.



в среде с медленно изменяющимся показателем преломления. Исходные моды распространения в недеформированном кристалле сохраняют свою идентичность в случае рентгеновских лучей как блоховские волновые поля, но для того чтобы приспособиться к деформации, каждая мода претерпевает постепенную трансформацию. Эйкональная теория была развита Като [26] и Пеннингом и Полдером [27]. Здесь мы следуем представлению Таннера [8].

В нарушенном кристалле, где смещения атомов из их положений в совершенном кристалле задаются вектором $\mathbf{u}$, мы можем определить локальный вектор обратной решетки $\mathbf{g}'$ в виде

$$\mathbf{g}' = \mathbf{g} - \text{grad}(\mathbf{g} \cdot \mathbf{u}). \quad (8.19)$$

Рассмотрим (умозрительно) две точки F и G , между которыми локальная обратная решетка изменяется от вектора $\mathbf{g}'$ до вектора $\mathbf{g}' + d\mathbf{g}'$. Если деформация мала, то форма дисперсионной поверхности сохраняется и происходит только смещение гипербол, которые можно рассматривать как поворот вокруг начала координат обратного пространства. Затем дисперсионная поверхность сдвигается вдоль асимптоты (рис. 8.10) на вектор, задаваемый $\mathbf{v}$, где

$$\mathbf{v} \cdot \mathbf{K}_0 = 0 \quad \text{и} \quad \mathbf{v} \cdot \mathbf{K}_g = \mathbf{K}_g \cdot d\mathbf{g}'. \quad (8.20)$$

Движения дисперсионной поверхности не происходит, когда $\mathbf{K}_g \cdot d\mathbf{g}' = 0$, и поэтому для локальной обратной решетки, где векторы $d\mathbf{g}'$ всегда перпендикулярны вектору $\mathbf{K}_g$, волновые поля распространяются без изменений. Вообще говоря, геометрические места точек, где вектор $d\mathbf{g}'$ перпендикулярен вектору $\mathbf{K}_g$, образуют поверхности, вдоль которых дисперсионная поверхность остается неподвижной и связанные с нею волновые поля не изменяются. Эти поверхности, аналогичные поверхностям постоянного показателя преломления в оптике, разделяют кристалл на домены, которые можно рассматривать как совершенные. Так как каждый домен будет иметь разориентацию или дилатацию относительно соседнего, то волновой вектор $\mathbf{K}_0$ изменяется на $d\mathbf{K}_0$ при пересечении доменной границы. По аналогии с оптическим случаем он получается из

$$d\mathbf{K}_0 = \gamma \text{grad}(\mathbf{g}' \cdot \mathbf{K}_g) = -\gamma \text{grad}(\mathbf{K}_g \cdot \text{grad}(\mathbf{g} \cdot \mathbf{u})). \quad (8.21)$$

Поскольку фундаментальные уравнения дисперсионной поверхности имеют вид

$$K_0^2 = k^2(1 + \chi_0) + k^2 C \chi_g^- R, \quad (8.22)$$

$$K_g^2 = k^2(1 + \chi_0) + k^2 C \chi_g / R, \quad (8.23)$$

где $R = |\mathbf{D}_g|/|\mathbf{D}_0|$, мы получаем для $\chi_g = \chi_g^-$

$$d\mathbf{K}_0 \cdot (\mathbf{K}_0 + R^2 \mathbf{K}_g) = -R^2 \mathbf{K}_g \cdot d\mathbf{g}'. \quad (8.24)$$

Если $d\mathbf{r}$ — это вектор пути между точками F и G , то

$$d\mathbf{g}' = (d\mathbf{r} \cdot \text{grad}) \mathbf{g}'. \quad (8.25)$$

Определяя вектор $\mathbf{P}'$, параллельный вектору Пойнтинга, при помощи выражения

$$\mathbf{P}' = \mathbf{K}_0 + R^2 \mathbf{K}_g, \quad (8.26)$$

мы находим

$$\gamma = -R^2 dl / |\mathbf{P}'|, \quad (8.27)$$

где dl — длина пути вдоль траектории луча, которая получается из

$$d\mathbf{r} = \mathbf{P}' dl / |\mathbf{P}'|. \quad (8.28)$$

Тогда

$$dR = \left(2R^2 dl / (k^2 C \chi_g |\mathbf{P}'|) \right) (\mathbf{K}_0 \cdot \text{grad})(\mathbf{K}_g \cdot \text{grad})(\mathbf{g} \cdot \mathbf{u}), \quad (8.29)$$

которое может быть переписано как

$$dR = \frac{2R^2 dl}{C \chi_g |\mathbf{P}'|} \frac{\partial^2 (\mathbf{g} \cdot \mathbf{u})}{\partial s_0 \partial s_g}. \quad (8.30)$$

Вместо того чтобы рассматривать дисперсионную поверхность как переменную и обратную решетку как инвариантную, проще рассматривать обратную решетку как переменную. Тогда уравнение (8.30) будет определять изменение отношения амплитуд отраженной и прошедшей составляющих волнового поля при его распространении через кристалл. Отношение R характеризует частную связанную точку на дисперсионной поверхности, и если R изменяется, связанная точка должна мигрировать вдоль ветви дисперсионной поверхности. Это приводит к изменению интенсивности прошедшего и дифрагированного пучков. Далее, поскольку направление потока энергии, т. е. направление луча, везде нормально к дисперсионной поверхности, направление луча изменяется по мере того, как происходит миграция связанной точки. Поэтому лучи распространяются вдоль искривленных путей.

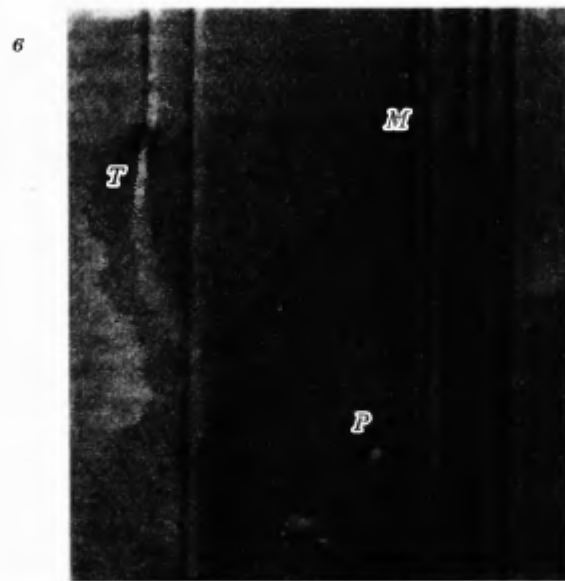
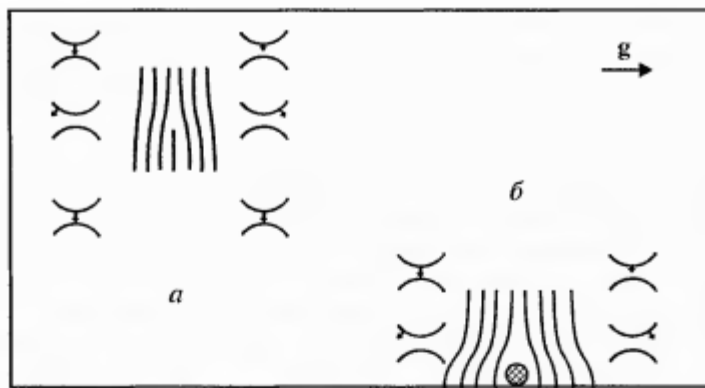


Рис. 8.11. Схема миграции связанных точек в дальнедействующем поле деформации дислокации в середине кристалла (а) и выделения вблизи выходной поверхности толстого кристалла (б). Черно-белый контраст от дислокаций несоответствия M и выделения P вблизи выходной поверхности толстого кристалла (в).

Отметим, что контраст прорастающей дислокации T белый (что соответствует динамическому изображению) и осциллирующий; промежуточное изображение видно только около выходной поверхности.

Важным параметром при определении контраста является интеграл вдоль пути луча от члена $\{\partial^2/\partial s_0 \partial s_g\}$. Параметр пути луча β определяется как

$$\beta = (k C \chi_g)^{-1} \left\{ \partial^2 / \partial s_0 \partial s_g \right\} (g \cdot u). \quad (8.31)$$

Из уравнения (8.30) мы видим, что знак изменения dR не зависит от знака R и зависит только от β . Знак R противоположен для двух ветвей дисперсионной поверхности, но на обеих ветвях R увеличивается с откло-

нением от точного условия Брэгга. Таким образом, для данной деформации связанные точки на обеих ветвях дисперсионной поверхности мигрируют в одном и том же направлении. Как было экспериментально подтверждено Хартом и Милном [28], кривизна лучей, соответствующих ветви 2, совпадает с кривизной отражающих плоскостей, в то время как кривизна лучей ветви 1 противоположна кривизне решетки.

Для того чтобы эйкональная теория выполнялась, нарушения должны быть достаточно слабыми, чтобы сохранялась лучевая концепция. Критерий заключается в том, что радиус кривизны отражающих плоскостей не превышает критической величины R_c , приблизительно эквивалентной угловому повороту брэгговских плоскостей на половину ширины кривой отражения на экстинкционной длине. Критический радиус кривизны поэтому равен

$$R_c \approx g \xi_g^2. \quad (8.32)$$

Хотя Като [29] показал, что лучевая теория перестает работать на расстоянии примерно 10 мкм от ядра дислокации и ее нельзя применить для количественного расчета контраста дислокации, из нее можно получить, однако, много информации качественного характера.

В толстом кристалле вследствие эффекта Бормана только волновые поля ветви 2 существуют вблизи точного условия Брэгга и поток энергии параллелен отражающим плоскостям решетки. Рассмотрим сначала дефект типа выделения в центре толстого кристалла и посмотрим на контраст вдали от дефекта (рис. 8.11, а). С одной стороны дефекта кривизна сначала положительная, а затем отрицательная, в то время как на противоположной стороне дефекта наблюдается обратная картина. Поэтому миграция связанных точек имеет противоположный знак с разных сторон дислокационной линии, но при условии, что нарушение мало, так что связанные точки сохраняют свою идентичность и миграция выше и ниже дефекта точно компенсируется с обеих сторон дефекта. Вблизи точного условия Брэгга (что соответствует нашей ветви 2 anomalно прошедшего волнового поля) угловое усиление чрезвычайно сильное (уравнение (8.17)) и, следовательно, очень слабые искажения брэгговских плоскостей приводят к заметным изменениям в направлении потока энергии. Лучи, отклоняющиеся таким образом, испытывают дополнительное поглощение, поскольку эффективный коэффициент поглощения чувствителен к отклонению от точного условия Брэгга. Таким образом, имеет место потеря в интенсивности для лучей, приходящих от обеих сторон дислокации, и удаленное от дефекта изображение выглядит белым. Белый контраст обычно наблюдается от дислокаций на топограммах anomalного прохождения; хорошим примером является изображение прорастающей дислокации T на рис. 8.11, б.

Однако, когда дефект расположен близко к поверхности толстого кристалла, можно наблюдать противоположный контраст с каждой стороны дефекта. Рассмотрим сначала правую сторону выделения на рис. 8.11, а. Параметр пути лучей β сначала отрицательный, и связанная точка волнового поля на ветви 2 мигрирует вправо в соответствии с кривизной плоскостей решетки. На поверхность кристалла плоскости решетки выходят пер-

пендикулярно, и когда дефект находится близко к поверхности, плоскости решетки должны повернуться очень быстро. Таким образом, кривизна очень большая (слишком большая для применения эйконоальной теории) и лучи выходят из кристалла без дальнейшей дифракции. Качественный вывод, к которому мы приходим из уравнений (8.30) и (8.31), состоит в том, что миграция вызывает увеличение интенсивности дифрагированного пучка. Напротив, с левой стороны дефекта мы обнаруживаем уменьшение интенсивности. Выделение вблизи поверхности имеет черно-белый контраст, который усиливается со стороны положительного вектора $\mathbf{g}$, когда окружающая решетка сжата. Пример черно-белого контраста, обусловленного разными знаками кривизны решетки вокруг дислокаций несоответствия и выделения вблизи выходной поверхности сильно поглощающего кристалла GaAs, показан на рис. 8.11, б.

Черно-белый контраст изменяется на противоположный с изменением направления дифракционного вектора, а также знака деформации решетки. Это дает нам полезное средство определения природы выделения с помощью удобного эмпирического правила. Со стороны положительного вектора $\mathbf{g}$, если контраст усиливается, то решетка сжата, а если ослабляется — то растянута.

8.8.2. Сильные нарушения

При сильных нарушениях можно достичь понимания на более высоком качественном уровне, сохраняя представления совершенного кристалла и рассматривая дефектную область в виде границы кристалла. Это приводит к представлению о связанных точках, перепрыгивающих с одной ветви дисперсионной поверхности на другую, когда мы согласовываем волновые поля через границу раздела. Однако для количественных вычислений и расчета изображений дислокаций необходимо перейти к обобщенной форме динамической теории, развитой Такаги [21].

В нарушенном кристалле волновой вектор $\mathbf{K}'_g$ отличается от волнового вектора в идеальном кристалле на величину $\Delta\mathbf{g}$, где

$$\Delta\mathbf{g} = -\text{grad}(\mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) \quad (8.33)$$

и $\mathbf{u}$ — атомное смещение. Параметр β'_g в этом случае является функцией положения в кристалле. Электрическое смещение в кристалле имеет вид

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} \mathbf{D}'_g(\mathbf{r}) \exp(-2\pi i (\mathbf{K}_g \cdot \mathbf{r} - \mathbf{g} \cdot \mathbf{u})). \quad (8.34)$$

Уравнения Такаги в этом случае запишется как

$$\begin{aligned} \partial D'_0 / \partial s_0 &= -i \pi k C \chi_g D'_g, \\ \partial D'_g / \partial s_g &= -i \pi k C \chi_g D'_0 + i 2 \pi k \beta'_g D'_g. \end{aligned} \quad (8.35)$$

Эти уравнения могут быть скомбинированы для получения двух уравнений вида:

$$\begin{aligned} \partial^2 D'_0 / \partial s_0 \partial s_g - i 2 \pi k \beta'_g \partial D'_0 / \partial s_0 + \pi^2 k^2 C^2 \chi_g \chi_g D'_0 &= 0, \\ \partial^2 D'_g / \partial s_0 \partial s_g - i 2 \pi k \beta'_g \partial D'_g / \partial s_0 + \\ + (\pi^2 k^2 C^2 \chi_g \chi_g - i 2 \pi k \partial \beta'_g / \partial s_0) D'_g &= 0. \end{aligned} \quad (8.36)$$

Они имеют гиперболическую форму и в совершенном кристалле могут быть решены аналитически. Однако в нарушенном кристалле они должны быть решены численным интегрированием. Отъе с соавторами [30] первыми разработали алгоритм решения по сетке точек. Если на рис. 8.12 точка M — это точка, в которой мы ищем амплитуду волны, а P и Q — соседние точки, в которых амплитуды известны, то

$$\begin{aligned} D_0(M) &= D_0(P) + p(-i \pi k C \chi_g) D_g(P), \\ D_g(M) &= D_g(Q) + q(-i \pi k C \chi_g) D_0(Q) + q(2 \pi i k \beta_g) D_g(Q), \end{aligned} \quad (8.37)$$

где $p = PM$ и $q = QM$, как видно на рис. 8.12. Поэтому определение амплитуд в любой точке кристалла непосредственно следует из пошаговых вычислений.

Несмотря на то что такой расчет занимает гораздо больше времени, чем эквивалентные расчеты изображений в электронной микроскопии, секционные топограммы в наши дни можно рассчитать за считанные секунды на быстродействующих персональных компьютерах. Точно так же как расчет кривых качания является средством определения микроскопических деформаций из рассеянной интенсивности, так и расчет топографических изображений может быть использован для определения поля микроскопической деформации вокруг дефекта и, следовательно, его идентификации. Согласие между расчетом и экспериментом исключительно хорошее, несмотря на то что положение дефекта в кристалле оказывает сильное влияние на его контраст на секционной топограмме (рис. 8.13). Во всех случаях очень простое поле деформации вида

$$\mathbf{u}(\mathbf{r}) = C \mathbf{r} / r^3 \quad (8.38)$$

было использовано для моделирования поля деформации вокруг выделения. Обнаружено, что это радиальное поле деформации, основанное на

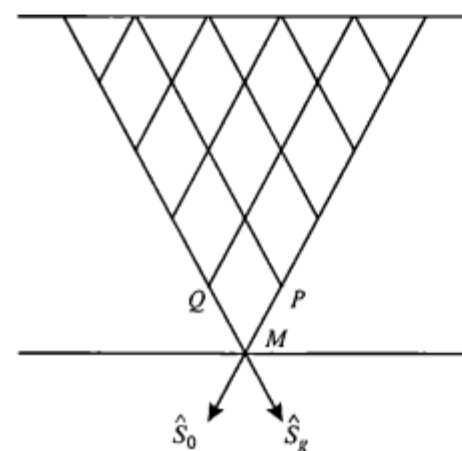


Рис. 8.12. Сетка, заполняющая перевернутый веер Бормана, по которой может быть выполнено численное интегрирование уравнений Такаги.



Рис. 8.13. Экспериментальные и рассчитанные изображения водородных выделений в кремнии на секционных топограммах.

Все расчеты были проведены при использовании одного и того же поля микродеформации, но различное положение дефектов внутри кристалла проявляется в существенно различающихся деталях изображений.

изотропной теории упругости, очень хорошо описывает выделения в кремнии.

Эпельбуа [31] дал блестящий обзор методик для расчета изображений на секционных топограммах и позднее описал алгоритм переменного шага, с помощью которого можно регулировать размер сетки, когда деформация вблизи дефекта увеличивается [32]. Аналогичный подход был применен Спирклом с соавторами [33] при расчете двухкристалльных топограмм для случая Брэгга. Сравнительно недавно Эпельбуа дал алгоритмы для параллельного расчета [34]. Так как дифракционный процесс имеет место исключительно в плоскости падения, на машинах с параллельной архитектурой можно добиться очень высокой скорости счета, обрабатывая каждый слой независимо и параллельно.

Уравнения волновой теории по существу имеют форму уравнений, относящихся к теории многократного рассеяния, основанной на плоских волнах. В пределе для малых углов Брэгга уравнения Такаги упрощаются до уравнений Хови—Уэлана, хорошо известных в электронной микроскопии.

8.9. Изображения дислокаций и дефектов упаковки на рентгеновских топограммах

Контраст дефектов на рентгеновских топограммах недавно был рассмотрен в обзоре одного из авторов [35], к которому мы отсылаем читателя за подробностями и библиографией. В этой же главе ограничимся обсуждением изображений дислокаций и дефектов упаковки как наиболее типичных примеров линейных и двумерных дефектов.

8.9.1. Изображения дислокаций

Изображения дислокаций на однокристалльных рентгеновских топограммах отличаются от их изображений на микроэлектронотопограммах прежде всего потому, что падающий рентгеновский пучок не может считаться плоской волной. Из трех типов изображений, которые определил Отье, на проекционных топограммах и топограммах в белом синхротронном излучении наиболее часто наблюдается прямое изображение. На топограмме оно выглядит, как темное изображение на фоне рассеяния совершенным кристаллом (рис. 8.14). Усиление интенсивности вызвано рентгеновскими лучами, которые находятся вне области дифракции совершенного кристалла. Хотя эти лучи и не участвуют в рассеянии совершенным кристаллом, они отвечают дифракции в деформированной области вокруг дислокации. Поэтому они не ослабляются за счет первичной экстинкции и так называемое прямое изображение появляется на секционной топограмме как интенсивное темное пятно. В толстых кристаллах лучи, далекие от угла Брэгга и дающие вклад в прямое изображение, испытывают обычное поглощение; по этой причине прямое изображение не появляется.

Мы можем приступить к рассмотрению механизма контраста, представив кристалл состоящим из трех отдельных областей, а именно: совершенного кристалла выше дефекта, совершенного кристалла ниже дефекта и деформированной области вокруг дефекта (рис. 8.15, а). Деформированная область определяется нами как область, в которой эффективная разориентация вокруг дефекта $\delta(\Delta\theta)$ превышает область отражения совершенного кристалла:

$$\delta(\Delta\theta) = -(k \sin 2\theta_B)^{-1} \partial(\mathbf{g} \cdot \mathbf{u}) / \partial s_g. \quad (8.39)$$

Предполагается, что область вокруг дефекта дифрагирует как малый мозаичный кристалл толщиной Δ , так что рентгеновские лучи, участвующие в дифракции в этой области, не удовлетворяют условию дифракционного отражения в совершенном кристалле. Любыми динамическими эффектами, связанными с согласованием волнового поля выше и ниже дефекта, в этом анализе пренебрегают. Интегральная интенсивность в случае Лауэ (рис. 8.15, б) линейно изменяется с толщиной для малых значений толщины, но при увеличении толщины, т. е. при уменьшении градиента, она осциллирует около постоянной величины, когда поглощение отсутствует. (Учет поглощения добавляет постепенное уменьшение интенсивности с тол-

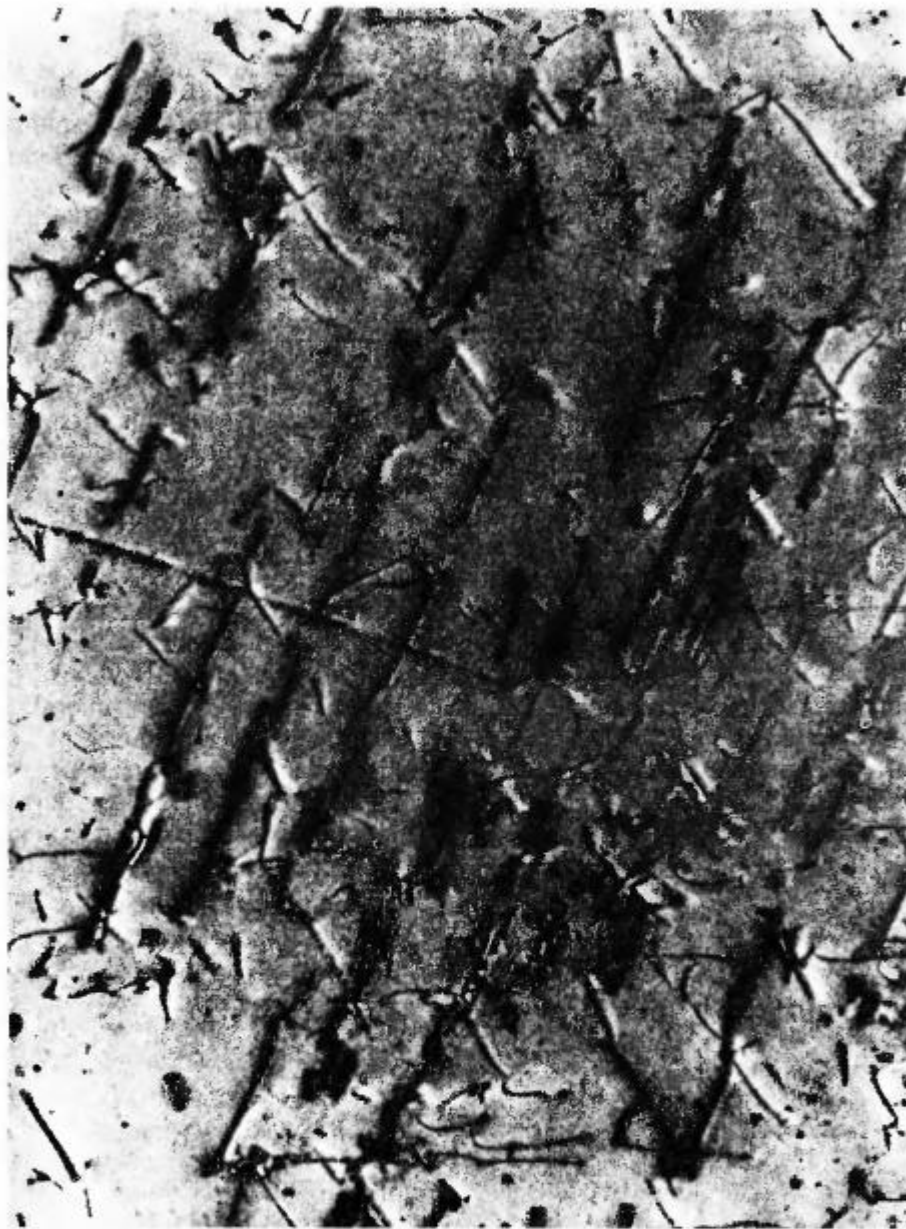


Рис. 8.14. Изображение дислокаций в кремнии в условиях слабого поглощения. $\text{Ag } K_\alpha$ -излучение.
Темные изображения — это прямые изображения; светлые изображения — динамические.

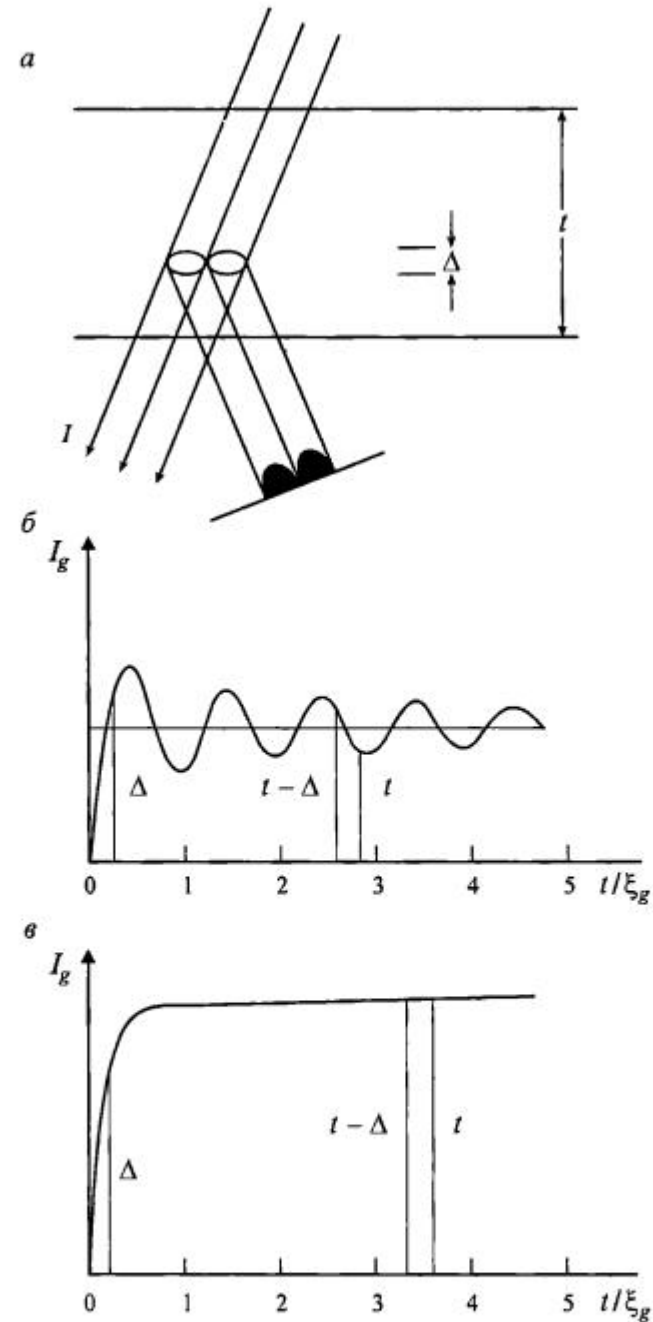


Рис. 8.15. Диаграмма, показывающая разделение кристалла на совершенный материал выше и ниже дефекта и нарушенный материал вблизи дефекта (а); интегральная интенсивность — случай Лауэ (б); интегральная интенсивность — случай Брэгга (в).

щиной). Так как градиент повсюду на кривой, изображающей зависимость I от t , меньше, чем в начале, то интенсивность I_r , рассеянная материалом толщиной t , всегда меньше, чем сумма I_Δ и $I_{t-\Delta}$ от отдельных областей с толщинами Δ и $t - \Delta$. Из рис. 8.15, б, где $t/\xi_g \approx 3$ соответствует третьему толщинному минимуму, совершенно очевидно, что

$$I_t < I_\Delta + I_{t-\Delta}. \quad (8.40)$$

Таким образом, всегда имеется увеличенная интенсивность вокруг дефекта, причем контраст дефекта максимален, когда толщина соответствует первому толщинному минимуму, $t/\xi_g \approx 0.88$. Для случая Брэгга в отсутствие поглощения (рис. 8.15, в) интенсивность не зависит от толщины за пределами толщины кристалла порядка экстинкционной длины ξ_g . Таким образом, снова видим, что для толщины кристалла, большей, чем эта величина, уравнение (8.40) справедливо и дефекту соответствует усиление интенсивности. В кристаллах с толщиной, меньшей, чем экстинкционная длина, уравнение (8.40) становится равенством и изображения дефектов не наблюдаются. Это имеет важные следствия для исследования белков, где экстинкционные длины могут быть очень большими. Опасность состоит в том, что однокристалльные топограммы могут казаться бездефектными, когда на самом деле образцы могут содержать дефекты.

Ширину изображения можно оценить на основе простого представления, согласно которому контраст возникает, когда разориентация вокруг дефекта превышает область отражения совершенного кристалла $\delta\omega$. Рассмотрим случай винтовой дислокации, идущей нормально к брэгговским плоскостям, когда направление линии l совпадает с дифракционным вектором g . Эффективная разориентация $\delta\theta$ на расстоянии r от ядра будет равна

$$\delta\theta = b/2\pi r. \quad (8.41)$$

Ширина изображения дислокации D есть удвоенная величина r , для которой $\delta\theta = \delta\omega$, и поэтому она составляет

$$D = b/(\pi\delta\omega). \quad (8.42)$$

Так как для симметричного отражения $\delta\omega = 2/g\xi_g$, то мы имеем $D = gb\xi_g/2\pi$. Этот результат можно обобщить:

— для винтовых дислокаций

$$D = g \cdot b \xi_g / 2\pi; \quad (8.43a)$$

— для краевых дислокаций

$$D = g \cdot b \xi_g / \pi. \quad (8.43b)$$

Прямые изображения краевых дислокаций приблизительно вдвое шире, чем прямые изображения винтовых дислокаций с той же величиной $g \cdot b$,

и это дает полезный метод проверки определения вектора Бюргерса. Так как экстинкционная длина составляет величину порядка нескольких микрометров, то ширина изображений дислокаций будет того же порядка. Тот факт, что она на несколько порядков больше, чем ширина изображений на трансмиссионных микроэлектронных изображениях, является основополагающим ограничением, которое устанавливается слабым рассеянием и, следовательно, высокой чувствительностью рентгеновских лучей к деформации кристаллической решетки. В терминах структурного фактора F_g мы имеем:

$$D \approx \text{const} [\lambda F_g]^{-1} \quad (8.44)$$

и ширина изображения дислокации уменьшается с увеличением длины волны λ и интенсивности отражения.

Уравнения (8.43) дают возможность предположить, что ширина изображения равна нулю, когда $g \cdot b = 0$. Это, конечно, классический критерий, первоначально нашедший применение в трансмиссионной электронной микроскопии, когда эффективная разориентация вокруг дислокации равна нулю. Пока брэгговские плоскости не искажены или не наклонены, дислокация невидима в этом отражении. Строго говоря, этот критерий состоит в выполнении двух равенств: $g \cdot b = 0$ и $g \cdot b \times l = 0$; и за исключением случая, когда дислокация проходит параллельно оси симметрии высокого порядка, он верен только в приближении изотропной теории упругости. Тем не менее контраст часто слабый уже для $g \cdot b = 0$, и это дает возможность определить b на чисто геометрической основе, находя два отражения, в которых дислокация невидима или имеет очень слабое изображение.

Миллат и Боуэн [36] показали, что прямые изображения можно представить цилиндрами разориентации, описанными вокруг дислокационной линии, используя континуальную теорию упругости. Полную ширину изображения можно вычислить из спроектированной ширины, описанной контуром, для которого $\delta(\Delta\theta)$ равно α , умноженному на область отражения при $\alpha = 1$. Интенсивность можно вычислить, зная объем мозаичного кристалла, вставленного внутрь цилиндра. К сожалению, величина α является функцией используемого отражения и эту методику нельзя применять для количественного расчета прямого изображения. Тем не менее она дает очень быстрый способ определения типа дефекта в сочетании с другой информацией. (Удовлетворительный расчет прямого изображения пока не получен даже в случае секционной топограммы.) Модель объясняет значение бимодального профиля дислокации, когда $g \cdot b > 2$, поскольку в этом случае округлые области противоположной разориентации по обеим сторонам дефекта вызывают появление двух (расходящихся и сходящихся) составляющих изображения. Такие двойные изображения легко видеть на топограммах, полученных при использовании источников синхротронного излучения, где эффект отклонения усиливается за счет большого расстояния «образец—фотопластинка».

Важной особенностью прямого изображения на секционной топограмме (рис. 8.16) является то, что его положение соответствует глубине залегания дефекта внутри кристалла. На секционной топограмме прямое изображение локализовано (рис. 8.16) в отличие от динамического и промежуточного изображений, которые в данном примере растянуты и имеют форму «банана».

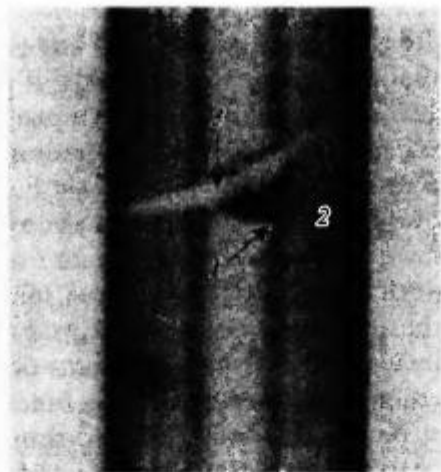


Рис. 8.16. Секционная топограмма дислокации в кремнии.

Дислокация разрезает веер Бормана наклонно, приводя к смещению прямого, промежуточного и динамического изображений. Отметим, что динамическое изображение в отличие от прямого изображения не локализовано. 1 — прямое изображение; 2 — промежуточное изображение; 3 — динамическое изображение [37].

Локализация прямого изображения имеет практическое применение при контроле внутреннего геттерирования примесей в кремнии. При проведении этого процесса формируется большая плотность выделений в центре пластины, но вблизи поверхности возникает высокосовершенная область. Так как современные приборы неглубокие, это крайне желательный для производства процесс. В условиях слабого поглощения секционную топографию можно использовать для неразрушающего контроля ширины этих свободных от дефектов зон у поверхности, так как положение прямого изображения поперек секционной топограммы прямо соответствует глубине выделения в кристалле.

Динамические изображения, хотя и заметные в тонких кристаллах, когда дислокации лежат близко к поверхности выхода и нормально к плоскости падения (рис. 8.14), имеют важное значение главным образом в толстых кристаллах или кристаллах, состоящих из элементов с высоким атомным номером, где произведение μt значительно больше единицы (рис. 8.17). Они менее интенсивные, чем фон, и выглядят белыми на фотопластинках. В толстых кристаллах, где остается только волновое поле ветви 2 в центре веера Бормана, присутствие дислокации вызывает рассеяние интенсивности из этого волнового поля во вновь образованные волновые поля. Они испытывают более сильное поглощение, и поэтому дислокация отбрасывает тень как в дифрагированном, так и в прошедшем пучках. Обычно динамическое изображение диффузное, за исключением места, где дислокация близка к поверхности выхода из кристалла. Это расширение изображения с увеличением расстояния от поверхности выхода ясно видно на рис. 8.11, б. В условиях очень высокого поглощения динамические изображения становятся более резкими, так как только те волновые поля, которые распространяются параллельно брэгговским плоскостям, достигают выходной поверхности. Потеря интенсивности четко очерчивает деформированную область вокруг дефекта.



Рис. 8.17. Динамические изображения дислокаций в условиях высокого поглощения в GaAs.

Изображения выглядят светлыми вследствие потери интенсивности вокруг дефектов.

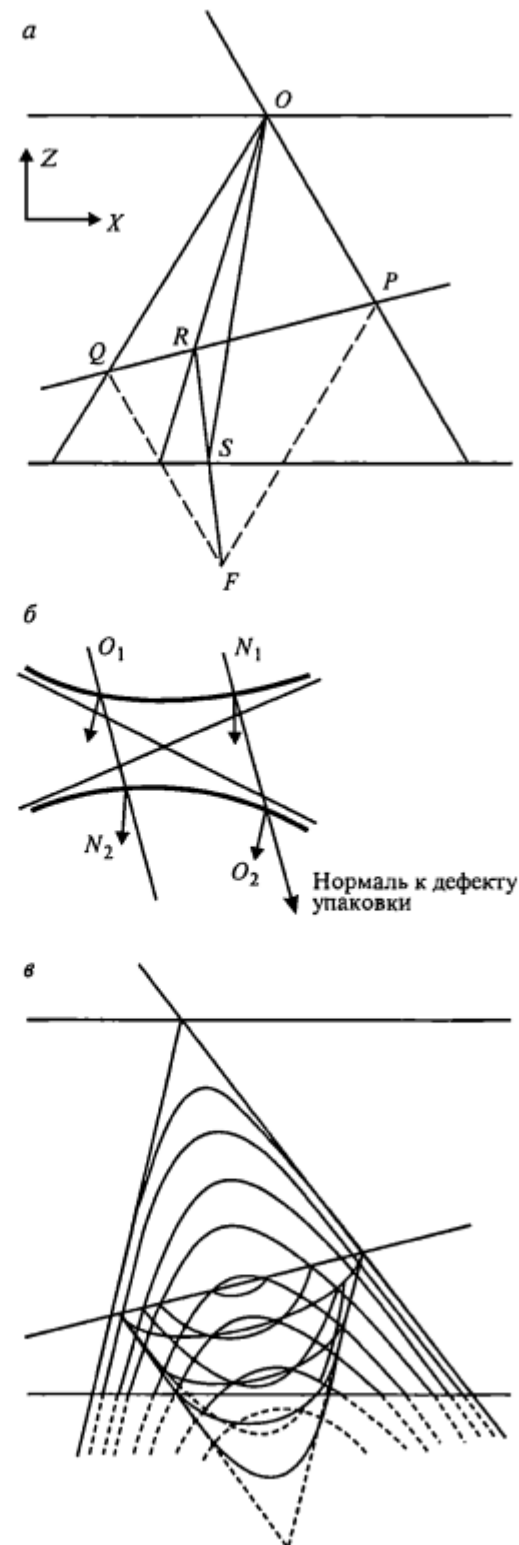
В некоторых случаях может наблюдаться интерференция между вновь возникшими волновыми полями, которая приводит к осциллирующему контрасту в области дислокации, расположенной близко к поверхности выхода (промежуточное изображение). Обычно такие эффекты можно наблюдать только в условиях короткой экстинкционной длины, поскольку аномальное поглощение быстро гасит волны ветви 2 в пределах короткого расстояния от выходной поверхности. Там, где они пересекают выходную поверхность, дислокации часто имеют черно-белый контраст, который обусловлен релаксацией напряжений на поверхности и может быть интерпретирован на основе теории Пеннинга—Полдера аналогично рассмотрению, проведенному в разд. 8.8.1. Из-за расходимости волновых полей в кристаллах динамические изображения имеют наилучший контраст, когда дислокация лежит близко к поверхности выхода.

Промежуточные изображения обычно размываются при сканировании, но часто они оказывают значительное влияние на форму прямого изображения, приводя к асимметрии его профиля. В благоприятных обстоятельствах промежуточное изображение хорошо отделяется и, так же как на секционной топограмме, имеет осциллирующий контраст. Великолепные промежуточные изображения Отье [23] редки, и гораздо чаще перекрытие прямого и промежуточного изображений приводит к осциллирующему контрасту наклонных дислокаций [32].

8.9.2. Контраст дефектов упаковки на секционных топограммах

Контраст дефектов упаковки на секционных топограммах можно легко понять, представляя падающую сферическую волну как ряд Фурье из плоских волн по методу Като. Кроме того, для расчета контраста можно использовать теорию Такаги, но физическое представление при этом теряется.

На рис. 8.18, а мы рассматриваем дефект упаковки, наклонный к граням кристалла. В плоскости падения дефект разрезает края веера Бормана в точках P и Q . Выше дефекта два волновых поля, соответствующих связанным точкам O_1 и O_2 на рис. 8.18, б, распространяются в направлении OR . При пересечении дефекта они разделяются на свои плоскороволновые составляющие, но при повторном входе в совершенный кристалл ниже дефекта они немедленно возбуждают новые волновые поля. К плоскороволновым составляющим можно применить граничные условия тем же способом, что и на границе с вакуумом, при условии, что учитывается разность фаз, введенная дефектом. Из рис. 8.18, б видно, что теперь в кристалле присутствует четыре волны. Две из них отвечают исходным связанным точкам O_1 и O_2 , а две другие — вновь возникшим блоховским волновым полям, соответствующим вновь возбужденным связанным точкам N_1 и N_2 . Из симметрии, вытекающей из непрерывности нормальных компонент волнового вектора, видно, что направление распространения новых волновых полей N_1 и N_2 то же самое. В точке S на выходной поверхности интенсивность составляется из вкладов вновь возникших волновых полей, распространяющихся в направлении OS . Ясно, что интенсивность включает три компоненты: I_1 , I_2 и I_3 , где I_1 представляет собой интерференцию между исходными волновыми



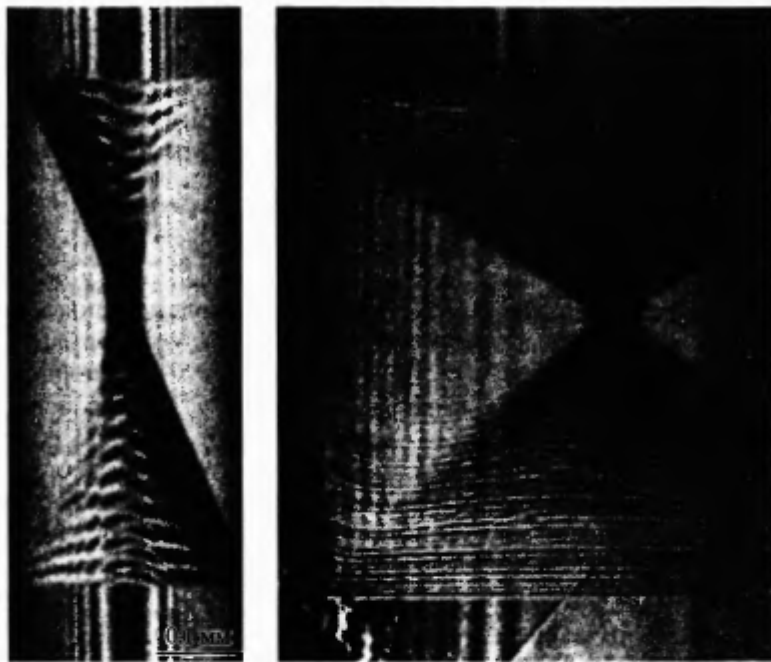


Рис. 8.18. Пути распространения исходных и новых волновых полей в кристалле, содержащем наклонный дефект упаковки (а); связанные точки O_1 и O_2 , соответствующие исходным волновым полям и связанные точки N_1 и N_2 , соответствующие новым волновым полям (б); поверхности постоянной фазы (в). Секционные топограммы (г) наклонного дефекта упаковки в алмазе, показывающие периодическое затухание, которое обусловлено двумя состояниями поляризации: слева — $\text{Ag } K_\alpha$ -излучение; справа — $\text{Cu } K_\alpha$ -излучение; отражение 111; высота изображения 0.85 мм. (С разрешения С. С. Джаанга. Университет Нанджинга).

полями, которая вызывает появление толщинных полос (или полос Като) на секционной топограмме; I_2 соответствует интерференции между новыми волновыми полями и вклад I_3 обусловлен интерференцией между исходными и новыми волновыми полями. В случае сильно поглощающего кристалла выражение для I_3 доминирует, поскольку контраст вызывается интерференцией волн, соответствующих связанным точкам O_1 и N_1 . Они обе лежат на ветви I и поэтому слабо поглощаются.

В области OPR имеет место интерференция исходных волновых полей и фронты равной фазы на рис. 8.18, в являются гиперболическими. В треугольнике QPF распространяются вновь созданные волновые поля и фазовые фронты также представляют собой гиперболы, эквивалентные фазовым фронтам в треугольнике OPQ , с плоскостью отражения PQ . Кроме того, плоские негиперболические фазовые фронты, обусловленные интерференцией двух систем, имеют место в треугольнике QPF . Они показаны как дополнительный контур на рис. 8.18, в. Вновь созданные волновые поля сходятся в фокусе F , и мы отмечаем, что $QF = OP$ и $PF = OQ$. Так как линия пересечения PQ проходит через кристалл, положение фокуса F изменяется. В частном случае, когда плоскость PQ параллельна поверхно-

сти кристалла, легко видеть, что F находится на выходной поверхности, когда PQ лежит точно посередине кристалла. В самом общем случае существует положение, где не наблюдается полос от I_2 и I_3 и секционная топограмма наклонного дефекта упаковки имеет восхитительную форму «песочных часов», показанную на рис. 8.18, г. Прямые полосы, вызванные интерференцией между исходными и новыми волновыми полями, имеют удвоенную периодичность гиперболических полос.

В непоглощающих кристаллах «песочные часы» содержат две системы полос, каждая из которых имеет свою периодичность, но в более толстых кристаллах член I_2 становится исчезающе малым. Контраст полос I_3 всегда выше, чем контраст I_2 , и именно эти негиперболические полосы обычно наблюдаются экспериментально. В итоге обнаруживаются прямые t/ξ_g полосы. Затухание полос вызвано биениями между двумя состояниями поляризации — эффект, который не наблюдается при использовании синхротронного излучения [38].

По классификации Амелинкса дефекты упаковки создают α -полосы. Структура в области ниже дефекта выводится из области выше него простой трансляцией вектора $\mathbf{g}$ параллельно дефекту. В противоположность этому при переходе через двойниковую границу область ниже дефекта связана аналогичным вектором смещения $\mathbf{g}$, который линейно увеличивается от границы, и полосы, образованные таким образом, называются δ -полосами.

Член I_3 чувствителен к знаку разности фаз, и исследование контраста первой полосы от выходной поверхности позволяет установить знак α и, следовательно, определить природу дефекта: замещения или внедрения. Величину $\mathbf{g}$ можно определить из отражений, в которых дефект не виден. Это имеет место всякий раз, когда $\mathbf{g} \cdot \mathbf{r} = 0$ или n , где n — целое число [39, 40].

Полосы в изображениях дефектов упаковки видны на проекционных топограммах, но обычно их контраст слабее. Другие плоские дефекты, такие как границы магнитных доменов, границы ферроэлектрических и ферроупругих доменов, границы секторов роста и полос роста, всегда дают изображения на рентгеновских топограммах. Контраст может возникать либо из-за упругих деформаций на границе раздела, либо из-за разности фаз, которая вносится в волновые поля при пересечении границы. Во многих случаях контраст является сложным и может быть трудным для расчета.

Контраст полос роста, вызванных изменениями параметра решетки из-за флуктуаций в содержании примеси, особенно ценен при определении истории роста кристаллов. Контраст не наблюдается, когда $\mathbf{g} \cdot \mathbf{n} = 0$, где $\mathbf{n}$ — вектор, нормальный фронту роста.

8.10. Заключение

Рентгеновская топография является рентгеновским аналогом трансмиссионной электронной микроскопии и как таковая дает карту распределения деформации в кристалле. Теория формирования изображений хорошо разработана, и поэтому расчет изображений является мощным средством идентификации дефектов. Несмотря на репутацию медленного и трудного метода, при использовании современных детекторов и тщательном согласовании

пространственного разрешения детектора и эксперимента рентгеновская топография может быть действенным и экономичным инструментом контроля качества в полупроводниковой промышленности.

Л и т е р а т у р а

1. Schulz L. G. // Trans. A.I.M.E. 1954. Vol. 200. P. 1082.
2. Guinier A., Tennevin J. // Acta Crystallogr. 1949. Vol. 2. P. 133.
3. Lang A. R. // J. Appl. Phys. 1958. Vol. 29. P. 597.
4. Bonse U., Kappler E. // Z. Naturforsch. 1958. Bd 13a. S. 348.
5. Barrett C. S. // Trans. A.I.M.E. 1945. Vol. 161. P. 15.
6. Berg W. F. Naturwissenschaften. 1931. Bd 19. S. 391.
7. Lang A. R. // Acta Crystallogr. 1959. Vol. 12. P. 249.
8. Tanner B. K. X-ray diffraction topography. Oxford: Pergamon, 1976.
9. Bowen D. K., Hall C. R. Microscopy of materials. London: Macmillan, 1975.
10. Lang A. R. // Modern diffraction and imaging techniques in materials science / Eds S. Amelinckx, R. Gevers, J. van Landuyt. Vol. 2. Amsterdam: North-Holland, 1970. 623 p.; Ланг А. Р. // Дифракционные и микроскопические методы в материаловедении. М.: Металлургия, 1984. С. 364—446.
11. Chikawa J.-I., Fujimoto I., Abe T. // Appl. Phys. Lett. 1972. Vol. 21. P. 295.
12. Suzuki S., Ando M., Hayakawa K., Nittono O., Hahizume H., Kishino S., Kohra K. // Nucl. Instr. Meth. 1984. Vol. 227. P. 584.
13. Hartmann W. // X-ray optics. Topics in applied physics / Ed. H.-J. Queisser. Berlin: Springer-Verlag, 1977. Vol. 22. 191 p.
14. Kato N. // Crystallography and crystal perfection / Ed. Ramachandran. 1963. 153 p.
15. Kato N. // Introduction to X-ray diffraction / Eds L. G. Azaroff, R. Kaplow, N. Kato, R. J. Weiss, A. J. C. Wilson, R. A. Young. New York: McGraw Hill, 1974. 425 p.
16. Authier A. // Phys. Stat. Sol. 1968. Vol. 27. P. 77.
17. Tuomi T., Tilli M., Anttila O. // J. Appl. Phys. 1985. Vol. 57. P. 1384.
18. Holland A. J., Tanner B. K. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1995. Vol. 28. P. A27.
19. Patel J. R. // J. Appl. Phys. 1973. Vol. 44. P. 3903.
20. Hart M., Milne A. D. // Acta Crystallogr. 1969. Vol. A25. P. 134.
21. Kato N. // Acta Crystallogr. 1969. Vol. A25. P. 119.
22. Aldred P., Hart M. // Proc. R. Soc. Lond. 1973. Vol. A322. P. 233, 239.
23. Kato N. // Acta Crystallogr. 1960. Vol. 13. P. 349.
24. Takagi S. // J. Phys. Soc. Japan. 1969. Vol. 26. P. 1239.
25. Authier A. // Advan. X-ray Anal. 1967. Vol. 10. P. 9.
26. Kato N. // J. Phys. Soc. Japan. 1963. Vol. 18. P. 1785.
27. Penning P., Polder D. // Philips Res. Reports. 1961. Vol. 16. P. 419.
28. Hart M., Milne A. D. // Acta Crystallogr. 1971. Vol. A31. P. 419.
29. Kato N. // J. Phys. Soc. Japan. 1963. Vol. 18. P. 1785.
30. Authier A., Malgrange C., Tournarie M. // Acta Crystallogr. 1968. Vol. A24. P. 126.
31. Epelboin Y. // Mater. Sci. Eng. 1985. Vol. 73. P. 1.
32. Carvalho C. A. M., Epelboin Y. // Acta Crystallogr. 1993. Vol. A49. P. 467.
33. Spirkel W., Tanner B. K., Whitehouse C. R., Barnett S. J., Cullis A. G., Johnson A. D., Keir A., Usher B., Clark G. F., Hagston W., Hogg C. R., Lunn B. // Phil. Mag. A. 1994. Vol. 70. P. 531.
34. Epelboin Y. // J. Appl. Crystallogr. 1996. Vol. 29. P. 331.
35. Tanner B. K. X-ray and neutron dynamical diffraction: theory and applications / Eds. A. Authier, S. Lagomarsino, B. K. Tanner. New York: Plenum Press, 1996.
36. Militat J., Bowen D. K. // J. Appl. Crystallogr. 1975. Vol. 8. P. 657.
37. Green G. S., Loxley N., Tanner B. K. // J. Appl. Crystallogr. 1991. Vol. 24. P. 304.
38. Kowalski G., Lang A. R., Makepeace A. P. W., Moore M. // J. Appl. Crystallogr. 1989. Vol. 22. P. 410.
39. Authier A. // Phys. Stat. Sol. 1968. Vol. 27. P. 77.
40. Authier A., Patel J. R. // Phys. Stat. Sol. (a). 1975. Vol. 27. P. 213.

9. ДВУХКРИСТАЛЬНАЯ РЕНТГЕНОВСКАЯ ТОПОГРАФИЯ

В этой главе рассматривается двухкристалльная топография, при помощи которой получают карту дифракционной мощности образца, сравниваемую с картой кристалла-эталона. Сначала излагаются принципы и геометрии, механизмы контраста изображения и разрешение, а также использование лабораторных и синхротронных источников излучения. Затем рассматривается применение метода: контроль пластин, картографирование контуров деформации, топография изогнутых кристаллов.

9.1. Введение

Как видно из предыдущей главы, рентгеновская топограмма является двумерной картиной распределения рассеянной интенсивности по площади дифрагированного пучка. Таким образом, просто поместив кусок фотографической пленки или ТВ-детектор в пучок, отраженный образцом при проведении высокоразрешающего дифракционного эксперимента, можно прямо получить простейшую рентгеновскую топограмму. Для многих целей эта простая методика достаточно информативна. Например, полосы сильной интенсивности, расположенные под прямыми углами на топограмме, полученной от эпитаксиального слоя с ориентацией (001), немедленно указывают на присутствие релаксации (рис. 9.1). Во многих случаях снять топограмму намного легче, чем проводить анализ симметричных и асимметричных отражений в рентгеновской дифрактометрии, чтобы определить релаксацию количественно. На этом уровне разрешения быстродействующая пленка, пластинки цифрового изображения или ТВ-детектор прямого наблюдения вполне приемлемы. Однако, если требуется высокое пространственное разрешение или высокая чувствительность к деформации, необходимо проявить значительно большую заботу об организации эксперимента, для того чтобы оптимизировать эти параметры. В этой главе рассматриваются условия получения двухкристалльных топограмм высокого качества, а также интерпретация полученных изображений.

9.2. Принципы и экспериментальные схемы

Двухкристалльная топография была впервые осуществлена в конце 1950-х годов [1, 2], но никогда впоследствии она не достигала уровня популярности однокристалльных методов. Наиболее простой для понимания экспериментальной схемой является бездисперсионная схема (+n, -n), показанная на рис. 9.2, а. Хотя длина волны, дифрагируемая различными точками в кристалле, может изменяться, пучок, выходящий из первого кристалла (эталона), имеет очень малую угловую расходимость. Из гл. 2 видно, что

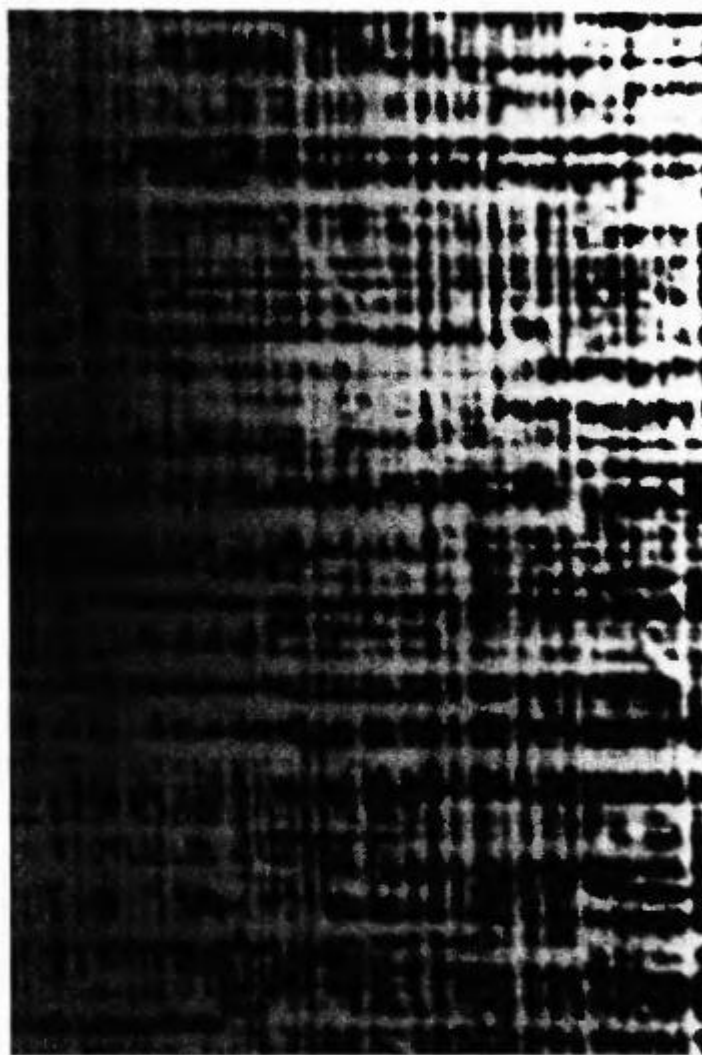


Рис. 9.1. Двухкристальная рентгеновская топограмма сильно релаксированного слоя GaAsSb с ориентацией (001) на GaAs, показывающая характерный «твидовый» контраст от двух систем дислокаций несоответствия, параллельных направлениям $\langle 110 \rangle$.

требуется очень малый поворот образца, чтобы пройти всю кривую качания. Поэтому любое локальное нарушение образца вокруг дефекта приведет к потере интенсивности и изображение дефекта появится на фотопластинке. Как было показано, ширины кривых качания очень узкие, и это означает, что чувствительность к деформации бездисперсионной схемы $(+n, -n)$ очень высокая. Следует отметить два важных момента по поводу этой схемы. Если используется точечный фокус обычного источника, то на топограмме наблюдаются две полосы интенсивности, соответствующие длинам волн $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$. Это не мешает получению вполне приемлемых изображений,

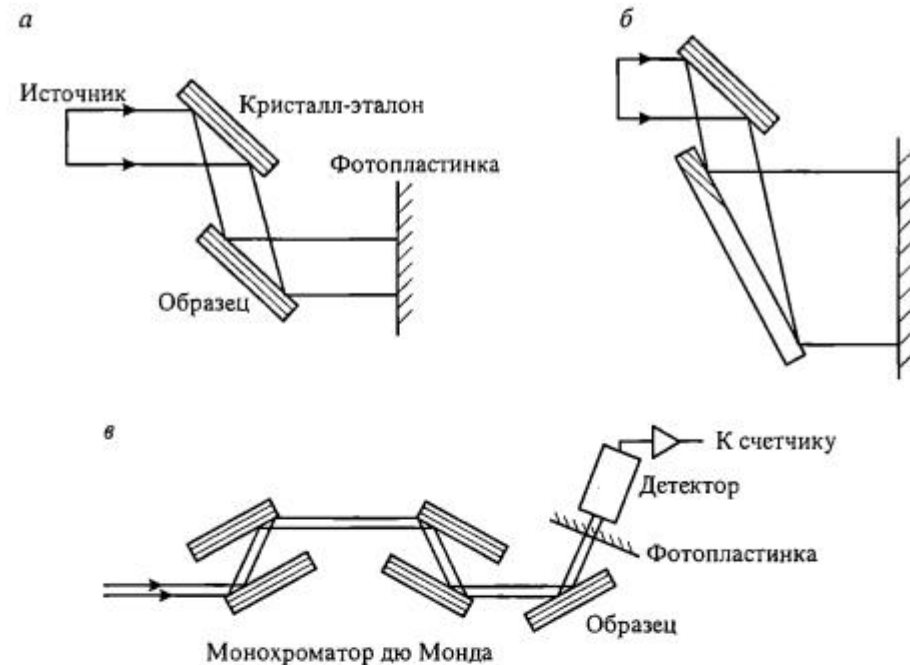


Рис. 9.2. Простая $(+n, -n)$ двухкристальная топографическая схема расположения кристаллов в параллельной установке (а); использование асимметричного отражения для расширения освещаемой площади и избавления от двойного изображения (б); схема двухкристальной топографии со стандартной монохроматизирующей системой дю Монда—Харта (в).

но не позволяет иметь топограмму большой площади с однородным освещением. Если используется линейный источник с линией фокуса, лежащей в дисперсионной плоскости, то однородная интенсивность будет регистрироваться в пределах полосы, соответствующей ширине источника. Однако, поскольку лучи $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$ образуют различные направления в пространстве, будут наблюдаться двойные изображения каждого дефекта. В принципе это не является проблемой, но затрудняет интерпретацию.

Чтобы обойти эту проблему, часто используют асимметричное отражение от образца, как показано на рис. 9.2, б. Это позволяет перекрыть $K_{\alpha 2}$ -пучок щелью, расположенной между образцом и первым кристаллом, но все же дает изображение образца большой площади. Эта схема целесообразна и тогда, когда используется коллимирующий монохроматор пучка типа дю Монда. Удобными отражениями с высоким фактором асимметрии для $\text{Cu } K_{\alpha}$ -излучения являются отражения 224 и 044 для GaAs и InP и отражение 113 для Si. Преимуществом этой схемы является то, что топографию высокого разрешения можно осуществлять без изменения стандартной дифракционной экспериментальной установки высокого разрешения (рис. 9.2, в). Отметим, что, используя асимметричное отражение, чтобы расширить пучок от первого кристалла, так же как и от образца, можно получить расширение в несколько сотен раз. Это дает способ получения двухкристальных топограмм пластин очень большой площади. С помощью

этого метода Хунг Лиу в «Texas Instruments» в Далласе зарегистрировал топограммы 5-дюймовых пластин кремния целиком.

Другой метод, использующийся для исключения двойных изображений, состоит в применении дисперсионной схемы, где первый и второй кристаллы из разных материалов. Например, использование отражения 004 от первого кремниевых кристалла и отражения 004 от образца InP будет давать большую дисперсию, чем для дифракции только $K_{\alpha 1}$ -линии. Это добавление (увеличение) дисперсии уменьшит также ширину изображения дефектов, так как дисперсия уменьшает чувствительность к деформации.

9.3. Контраст дефектов на двухкристалльных топограммах

Большинство особенностей, наблюдаемых на двухкристалльных топограммах, можно интерпретировать на основе простой геометрической теории, впервые предложенной Бонзе [3] в 1962 г. Допустим, что форма кривой качания треугольная и образец ориентирован таким образом, что его положение соответствует склону кривой качания. Тогда легко видеть, что малое изменение в интенсивности $\delta I/I$ определяется из выражения

$$\delta I/I = K [(\operatorname{tg} \theta_b) \delta d / d] \pm \mathbf{n}_i \cdot \mathbf{n}_g \delta \theta, \quad (9.1)$$

где K — наклон кривой качания; $\delta d/d$ — малое изменение расстояния между брэгговскими плоскостями; $\delta \theta$ — разориентация вокруг дефекта; $\mathbf{n}_i$ и $\mathbf{n}_g$ — единичные векторы, перпендикулярные к плоскости падения, и параллельные оси разориентации вокруг дефекта соответственно. Второй член в правой части является фактически составляющей разориентации в плоскости дисперсии. Изменение знака контраста зависит от угла, который образец составляет с кристаллом-эталон. Если образец установлен таким образом, что наклон кривой качания положителен (положение А на рис. 9.3), то положительная дилатация приведет к увеличению интенсивности. Если наклон K отрицателен (положение В на рис. 9.3), то имеется уменьшение интенсивности для положительной дилатации. Когда образец установлен в вершине кривой качания, интенсивность всегда уменьшается независимо от знака дилатации или разориентации. На рис. 9.4 показаны примеры топограмм дислокаций в кристалле InP, установленном в точках А и В соответственно на кривой качания. Взаимно дополнительный контраст дефектов на двух топограммах очень отчетливый. Длинные резкие изображения царапин и изображение царапины А не точно противоположны по контрасту, указывая на то, что деформации здесь так велики, что приводят к выходу за пределы грубо линейной области на склоне кривой качания.

Полный расчет изображения дефекта можно выполнить путем численного решения уравнений Такаги. Первыми, кто сделал его для двухкристалльной схемы в случае Брэгга, были Риглет с соавторами [5] и позднее Спайркл с соавторами [6]. В большинстве случаев расчет на основе полной динамической теории предсказывает обращение контраста тем же путем, что и простая геометрическая теория. Однако полная динамическая теория все же показывает, что бывают ситуации, когда, как и в случае эксперимен-

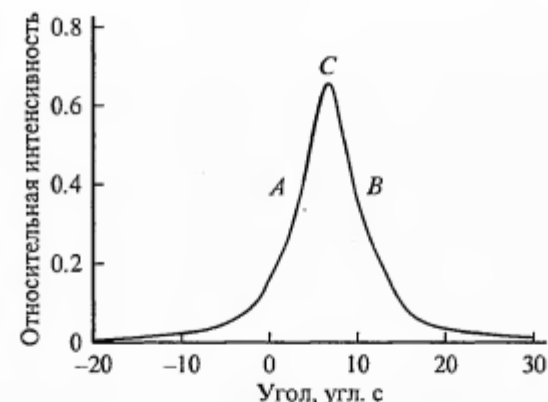


Рис. 9.3. Схематическая диаграмма положений положительного/отрицательного (А) и отрицательного/положительного (В) контраста на одном из склонов кривой качания.

В положении максимума кривой качания (С) дефект всегда приводит к потере интенсивности, т. е. к отрицательному контрасту.

та, контраст не просто обращается при движении по кривой качания. Рис. 9.5 демонстрирует один такой пример. Эта расчетная «топограмма вращения» является моделированием изображения дислокации несоответствия, параллельной поверхности кристалла, с отстройкой от положения Брэгга, изменяющейся в направлении линии дислокации. Когда мы движемся вдоль изображения снизу вверх, мы проходим кривую качания. Физически это соответствует закручиванию образца [7]. Отмечено обращение конт-



Рис. 9.4. Экспериментальные топограммы в геометрии Брэгга, полученные от объемного кристалла InP на одной из сторон кривой качания: малоугловой (а), большеугловой (б) [4].

9.4. Пространственное разрешение

Геометрическое разрешение в направлении, нормальном к плоскости дисперсии, в двухкристальной топографии определяют точно таким же способом, как и в однокристалльной топографии. Как и для однокристалльной топограммы, пространственное разрешение δ приблизительно равно

$$d = \frac{hb}{a}, \quad (9.2)$$

где h — размер источника; b — расстояние «образец—пленка»; a — расстояние «источник—образец». Поэтому для достижения высокого пространственного разрешения пленка (или детектор) должна быть размещена как можно ближе к образцу. В условиях лаборатории это устанавливает эффективное предельное значение пространственного разрешения на уровне нескольких микрон. Однако этого обычно более чем достаточно, потому что высокая чувствительность двухкристалльных методов к деформации приводит к очень широким изображениям отдельных дефектов. Из уравнения (9.1) видно, что, когда ширина кривой качания становится очень узкой, наклон кривой качания становится очень крутым. В этом случае большое изменение контраста наблюдается для малой разориентации или дилатации. Так как поле деформации вокруг дислокации спадает обратно пропорционально расстоянию, то чем выше чувствительность к деформации (больше величина K), тем больше расстояние от дефекта, при котором формируется значительный контраст. В высокосоввершенных кристаллах кремния, которые содержали очень малое количество дислокаций, была выявлена дальнедействующая природа поля деформации, показывающая, что поле деформации распространяется через весь образец.

Как видно из предыдущей главы, ширину изображения можно легко рассчитать для случая винтовой дислокации, когда дифракционный вектор параллелен линии дислокации. Вокруг винтовой дислокации разориентация $\delta\theta$ на расстоянии r от ядра получается из выражения

$$\delta\theta = \frac{b}{2\pi r}. \quad (9.3)$$

Ширина изображения $D = 2r_0$, где r_0 — это расстояние от ядра дислокации, соответствующее разориентации, эквивалентной полной ширине на половине высоты максимума кривой качания $\delta\omega$. Поэтому снова имеем

$$D = (b / 2\pi) / d\omega. \quad (9.4)$$

Отметим, что если кривая качания аппроксимируется треугольником, т. е. имеет постоянный наклон, то уравнение (9.1) можно использовать для вычисления интенсивности изображения дислокации на топограмме. Так как для случая $(+n, -n)$ -геометрии

$$\delta\omega = \text{const } \lambda^2 F_h / \sin 2\theta_B \quad (9.5)$$

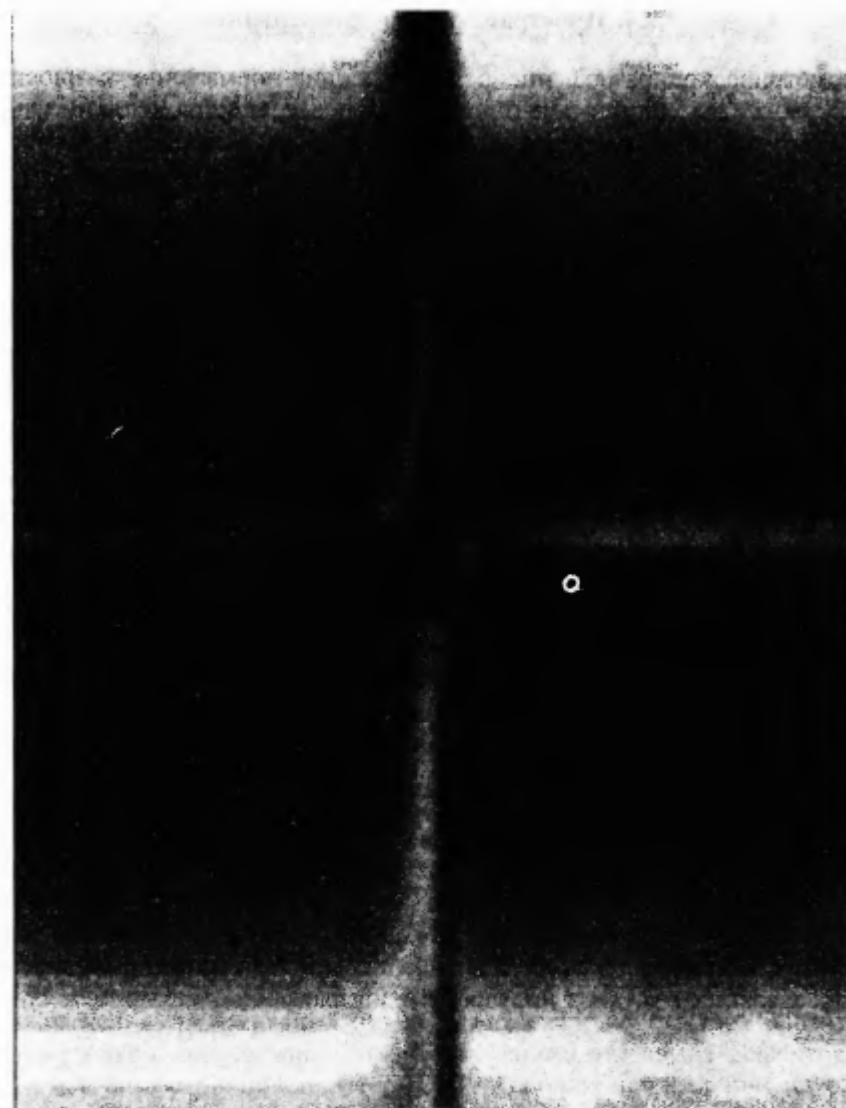


Рис. 9.5. Расчетная «топограмма вращения» дислокаций несоответствия, параллельных поверхности пластины GaAs с ориентацией (001).

Линия дислокации направлена вверх.

раста изображения по направлению сверху вниз. Этот расчетный случай отвечает дислокациям несоответствия на границе раздела между подложкой GaAs и эпитаксиальным слоем InGaAs, однако с толстым верхним слоем GaAs. Этот верхний слой приводит к интерференционному контрасту, который проявляется в сложном контрасте дислокаций. Хотя геометрическая теория позволяет сделать ценный первый шаг, но для детальной интерпретации поля микроскопической деформации необходима полная динамическая теория.

$$D \approx \text{const} (\lambda F_h)^{-1}. \quad (9.6)$$

Поэтому, так же как и для однокристалльной топограммы, для данного отражения ширина изображения дислокации растет с уменьшением длины волны и для данной длины волны ширина изображения дислокации растет с уменьшением структурного фактора. Поэтому изображения в квази-запрещенных отражениях или в отражениях высоких порядков широкие по своей сущности. Это рассмотрение показывает, что чем выше присущая методу чувствительность к деформации, тем шире изображения дефектов.

В вышеприведенном рассмотрении предполагалось, что эталон и образец были из одного и того же материала и находились в одних и тех же дифракционных условиях, т. е. в $(+n, -n)$ -геометрии. Но если первый кристалл и образец из разных материалов, то расстояние от образца, при котором формируется изображение, изменяется. Если область отражения пучка, выходящего из первого кристалла, очень большая по сравнению с областью отражения при падении на образец, то изображение формируется на расстоянии, определяемом шириной области отражения образца. Если же область отражения пучка, выходящего из первого кристалла мала по сравнению с областью отражения при падении на образец, то именно область отражения первого кристалла определяет ширину изображения. Поэтому изображения дислокаций несоответствия, наблюдаемые в отражении 224 от слоя InGaAs с ориентацией (001) на GaAs, более широкие и резкие, если используется отражение от кремниевого эталона 333, а не 111. В первом случае меньшая расходимость приводит к тому, что падающий пучок не удовлетворяет условию Брэгга в большем объеме кристалла вокруг дефекта и дает лучшее соотношение сигнал/шум в изображении.

Использование скользящего падения в одно и то же время улучшает контраст изображения и увеличивает площадь пучка. Если эталон находится в положении скользящего падения, то расходимость пучка на выходе уменьшается в $\sqrt{b}$ раз, т. е. корень квадратный из фактора асимметрии. Поэтому объем «дефектного» материала вокруг отдельных дефектов больше, чем в симметричной геометрии. При скользящем падении на образец как глубина поглощения, так и экстинкционная длина становятся малыми. Поэтому и внутри, и вне области брэгговского отражения рентгеновская волна не проникает глубоко в кристалл. Глубина «дефектного» материала вокруг дефекта становится сравнимой с глубиной проникновения рентгеновской волны, и от дефекта можно получить почти 100 %-ный контраст. Полистав литературу, можно убедиться, что это положение подтверждается экспериментально и асимметричные схемы, в которых эталон и образец — оба находятся в положениях скользящего падения, дают наилучший контраст дефектов.

Для получения двухкристалльных топограмм высокого пространственного разрешения в лабораторных условиях может потребоваться несколько дней. Высокая интенсивность источников синхротронного излучения делает их использование очень привлекательным: на источниках второго поколения экспозиции на ядерные фотопластины L4 обычно составляют 30 мин, а на источниках третьего поколения они еще меньше. Имеется несколько особенностей синхротронного эксперимента, который отличается от эксперимента в лаборатории.

1. Очень маленький размер источника и большое расстояние от источника до образца означает, что любая точка образца «видит» пучок с расходимостью, меньшей, чем одна или две угловые секунды. Поэтому имеется очень слабое различие между изображениями в $(+n, -n)$ - $(+n, +n)$ - и $(+n, \pm m)$ -схемах. Несоответствие между кристаллами вносит очень малую дисперсию, и поэтому высокосовременный кремний рекомендуется использовать в качестве кристалла-коллиматора.

2. Поскольку оба кристалла, первый и образец, находятся на большом расстоянии от источника, то геометрическое разрешение хорошее для обоих кристаллов. Поэтому любой дефект в первом кристалле изображается с резким контрастом, чего не бывает в лабораторных условиях. Это вторая причина, по которой целесообразно использовать кремний в качестве коллиматора рентгеновского пучка.

9.6. Применения двухкристалльной топографии

Применения двухкристалльной топографии в синхротронном излучении рассматриваются в следующей главе. Здесь ограничимся лабораторными применениями.

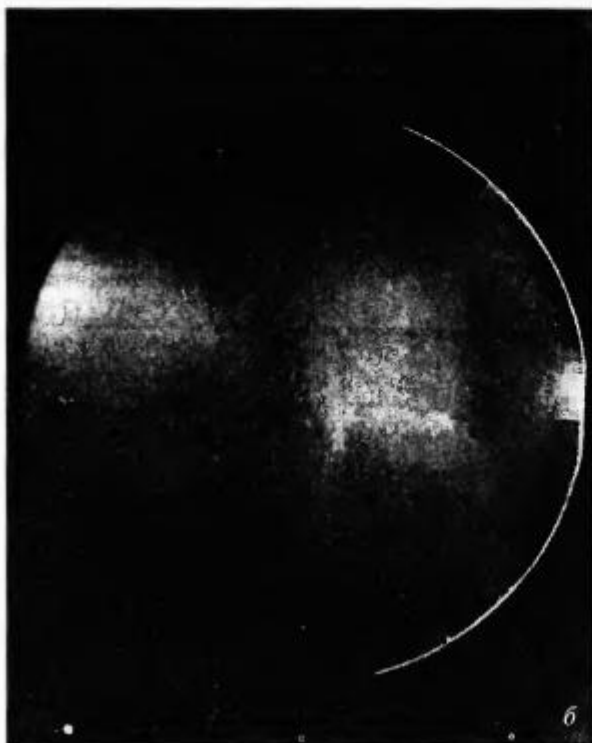
9.6.1. Входной контроль пластин

Двухкристалльная топография была успешно применена Бассиньяном с соавторами [8] для изучения пластин сложных полупроводников перед наращиванием эпитаксиальных слоев (рис. 9.6). Были использованы асимметричные отражения от первого кристалла и образца, так что расширение пучка было приблизительно в 20 раз и расходимость пучка на образце $\sim 1.3''$. Это дает высокочувствительный инструмент исследования дальнедействующей деформации. Чтобы поддерживать экспозиции на уровне 20—40 мин, была использована низкоразрешающая и, следовательно, быстро-

Рис. 9.6. Двухкристалльная топограмма в геометрии отражения (асимметричное отражение 422) с изображениями различных дефектов в кристаллах GaAs.

a — малоугловые границы в 3-дюймовой пластине полупроводникового GaAs, полученного из жидкой фазы в тигле методом LEC; *b* — ячеистая дислокационная структура в пластине GaAs, полученного методом вертикального градиентного замораживания.

(С разрешения доктора И. С. Бассиньяна, Nortel Inc., Оттава).



действующая рентгеновская пленка «Агфа D7». Это было настолько успешным, что двухкристальную топографию включили в виде отдельной части в процесс оценки качества пластин GaAs, приобретаемых компанией «Bell Northern Research», и это увеличило выход приборов [9]. Обнаружено, что пластины, вырезанные из слитков с высокой плотностью скоплений малых угловых границ, слишком хрупкие, чтобы выдержать все стадии, необходимые для изготовления приборов. Пластины из слитков, которые демонстрировали большие включения с мозаичной структурой, имели плохие или неустойчивые скалывающие характеристики, приводившие к потере многих приборов.

9.6.2. Получение изображений контуров деформации

Если исследуемая пластина искривлена, то вследствие малой угловой расходимости пучка будет получено изображение только части пластины. Угол падения изменяется с положением вдоль пластины, и получается изображение кривой качания! Рис. 9.7 показывает хороший пример изображения искривленного кристалла GaAs с несколькими выращенными на нем эпитаксиальными слоями AlGaAs различного состава. Кроме пика от подложки GaAs и пика от толстого буферного слоя AlGaAs можно видеть серию интерференционных полос, расположенных поперек образца. Они

исключительно хорошо согласуются с кривой качания, полученной от одной точки при угловом сканировании [10].

Если имеется только подложка, то изображение содержит одну полосу, которая очерчивает контур равной эффективной разориентации. Поэтому серия изображений с различным угловым разделением между первым кристаллом и образцом дает «зебру» полос, соответствующих различным контурам эффективной разориентации. На рис. 9.8 показана такая серия контуров от образца SI LEC GaAs. Путем вращения образца вокруг нормали к поверхности и регистрации второй серии топограмм можно разделить эффекты разориентаций и дилатаций. Разориентации будут проявляться как контуры смещений противоположных знаков на двух топограммах, на которых эффект дилатаций один и тот же. Браун с со-



Рис. 9.7. Двухкристальная топограмма, полученная для искривленной пластины GaAs с несколькими эпитаксиальными слоями AlGaAs, которая показывает развертку эффективной кривой качания в изображение [10].

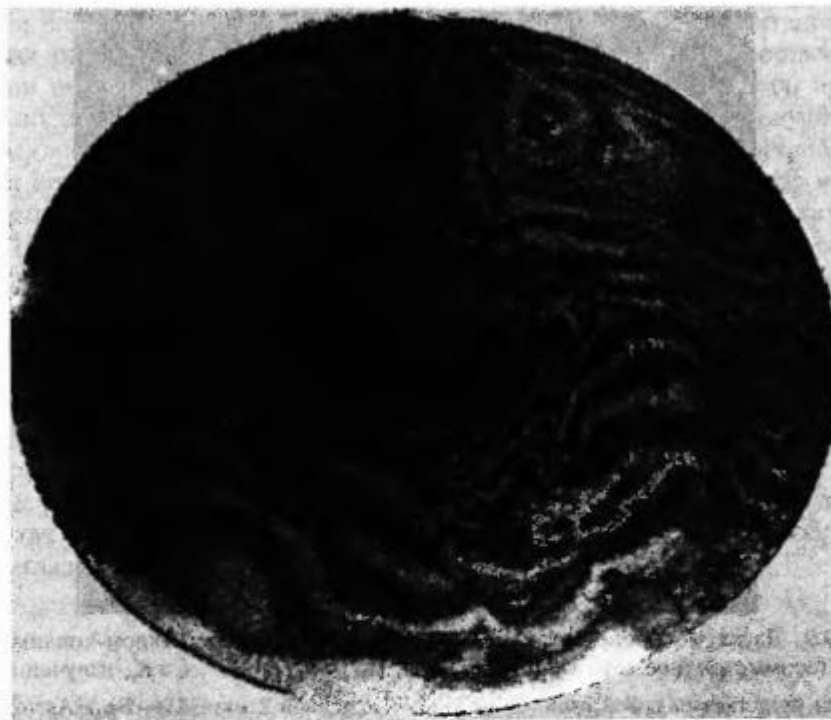


Рис. 9.8. Составное изображение серии двухкристалльных топограмм, зарегистрированных при различных углах падения на образец SI LEC GaAs. Изображение является системой контуров равной эффективной разориентации.
(С разрешения С. Дж. Барнетта) [13].

авторами [11] и Минато с соавторами [12] дали несколько блестящих примеров использования зебровидных полос для анализа дальнедействующей деформации.

9.6.3. Топография с применением изогнутого кристалла-коллиматора

Как мы только что видели, кривизну образца можно с успехом использовать, но во многих случаях кривизна чрезвычайно неудобна. При малой кривизне резкие контурные линии не возникают, но получается изображение только части образца. Для того чтобы получить изображение целого образца, приходится снимать несколько топограмм при различных углах падения. Их потребуется столько, сколько изображений отдельных частей образца составят его целое изображение. Йенихен, Кёлер и их коллеги в Берлине обошли это путем искусного изгиба кристалла-коллиматора, согласования его с кривизной образца [14, 15]. Можно видеть значительное улучшение топограммы, полученной с изогнутым кристаллом-коллиматором (рис. 9.9, б) по сравнению с топограммой, полученной с плоским коллиматором (рис. 9.9, а). Минимальный радиус кривизны кристалла-коллиматора устанавливается в несколько метров, исходя из совокупного рассмотрения необходимых геометрических условий, таких как расходимость первичного

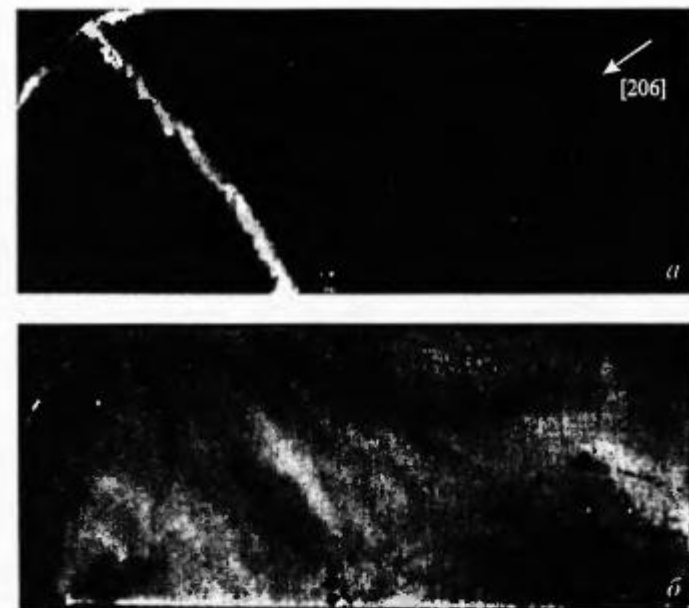


Рис. 9.9. Двухкристалльные топограммы с германиевым кристаллом-коллиматором (асимметричное отражение 206, угол скольжения 1.7° , Cu K_α -излучение).

Образец представляет собой слои $\text{Al}_{0.05}\text{Ga}_{0.95}\text{As}$ толщиной 2 мкм, $\text{Al}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}$ толщиной 2 мкм и GaAs толщиной 1 мкм на подложке из GaAs (001), отражение 206. а — плоский кристалл-коллиматор; б — кристалл-коллиматор изогнут до радиуса кривизны 12 м.
(С разрешения доктора Р. Кёлера) [16].

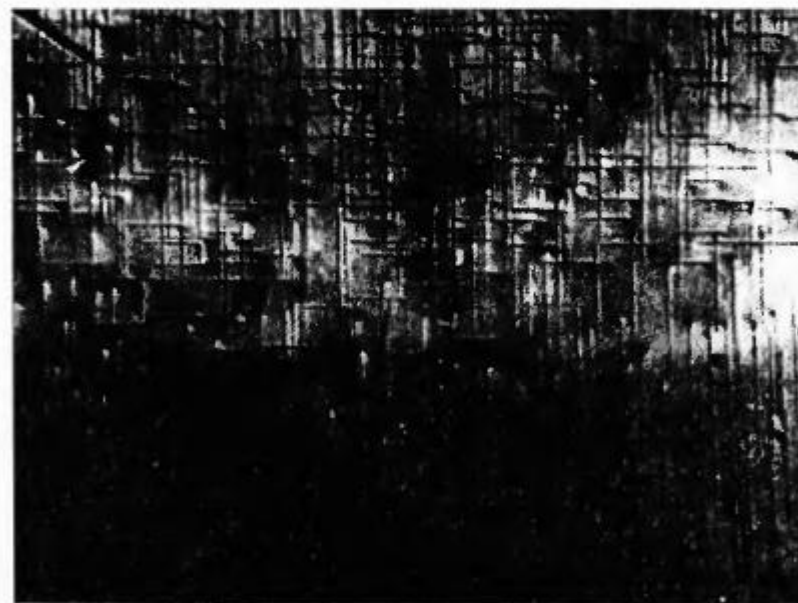


Рис. 9.10. Увеличенный фрагмент топограммы на рис. 9.9, б, показывающий прорастающие дислокации и дислокации несоответствия.
(С разрешения доктора Р. Кёлера) [16].

пучка и нарушение условий динамической дифракции, которые становятся жестким ограничением в работе. Оказывается, что сильно рассогласованные или очень толстые, почти согласованные эпитаксиальные слои имеют довольно однородный изгиб, который хорошо согласуется с принудительным механическим изгибом кристалла-коллиматора. В асимметричной геометрии контраст очень высокий из-за малой глубины проникновения и есть сообщения о получении топограмм исключительно высокого качества. На рис. 9.10 показан пример прорастающих дислокаций и дислокаций несоответствия на топограмме, показанной на рис. 9.9, б, но при большем увеличении. Отметим, что при получении топограмм дислокаций несоответствия обычно лучше использовать отражение от подложки, а не от слоя. Для очень тонких (обычно 20 нм) слоев InGaAs на GaAs это существенно, так как интенсивность пика слоя на несколько порядков величины меньше, чем пика подложки, и время экспонирования становится чрезмерно большим. Для толстых слоев однородность изображений подложки обычно лучше. Поля деформаций дислокаций несоответствия являются дальнедействующими, и так как упругие свойства слоя и подложки очень близки, изображения выглядят резкими и без потери контраста.

9.7. Заключение

Двухосевая топография может быть использована для двух предельных случаев кристаллического совершенства. С одной стороны, ее можно использовать для исследования дальнедействующих деформаций решетки в высокосовершенных кристаллах, а с другой — она может применяться для выявления контуров равной разориентации в гораздо менее совершенных материалах. Как мы увидим в гл. 10, двухкристальная топография широко используется на источниках синхротронного излучения и на источниках СИ третьего поколения с очень большой нагрузочной мощностью в белом пучке. Этот метод быстро становится стандартным топографическим методом для большинства электронных материалов.

Л и т е р а т у р а

1. Bond W. L., Andrus J. // *Amer. Mineralogist*. 1952. Vol. 37. P. 622.
2. Bonse U., Kappler E. // *Z. Naturforsch.* 1958. Bd 13a. S. 348.
3. Bonse U. // *Direct observation of imperfections in crystals* / Eds J. B. Newkirk, H. Wernick. New York: Wiley, 1962. P. 431; *Бонзе У. // Прямые методы исследования дефектов в кристаллах*. М.: Мир, 1965. С. 184—204.
4. Meriam Abdul Gani S. PhD thesis. Durham University, 1982.
5. Riglet P., Sauvage M., Petroff J.-F., Epelboin Y. // *Phil. Mag. A*. 1980. Vol. 42. P. 339.
6. Spirkel W., Tanner B. K., Whitehouse C., Barnett S. J., Cullis A. G., Johnson A. D., Keir A., Usher B., Clark G. F., Haggston W., Hogg C. R., Lunn B. // *Phil. Mag. A*. 1994. Vol. 70. P. 531.
7. Spirkel W., Tanner B. K., Whitehouse C., Barnett S. J., Cullis A. G., Johnson A. D., Keir A., Usher B., Clark G. F., Hogg C. R., Lunn B., Haggston W. // *Phil. Mag. A*. 1994. Vol. 69. P. 221.
8. Bassignana I. C., Macquistan D. A., Clark D. A. // *Adv. X-ray Anal.* 1991. Vol. 34. P. 507.

9. Bassignana I. C., Macquistan D. A. // 7th Intern. Conf. on III—V Semi-insulating materials. Ixtapa Mexico, 1992.
10. Cockerton S. PhD thesis. Durham University, 1991.
11. Brown G. T., Skolnick M. S., Jones G. R., Tanner B. K., Barnett S. J. // *Semi-insulating III—V compounds* / Eds D. C. Look, J. S. Blakemore. Shiva: Nantwich, 1984. P. 76.
12. Minato I., Hashizume H., Watanabe H., Matsui J. // *Japan. J. Appl. Phys.* 1986. Vol. 25. P. 1485.
13. Barnett S. J. PhD thesis. Durham University, 1987.
14. Jenichen B., Kohler R., Mohling W. // *Phys. Stat. Sol. (a)*. 1985. Vol. 89. P. 12.
15. Lenichen B., Kohler R., Mohling W. // *J. Phys. E: Sci. Inst.* 1988. Vol. 21. P. 1062.
16. Kohler R. // *Appl. Phys. A*. 1994. Vol. 58. P. 149.

10. ТОПОГРАФИЯ В СИНХРОТРОННОМ ИЗЛУЧЕНИИ

В этой главе рассматривается применение синхротронного излучения в рентгеновской топографии. Интенсивность и непрерывный спектр синхротронного излучения имеют особенно важное значение, но мы увидим, что временная структура и поляризация также находят полезное применение.

10.1. Введение

Даже постепенно превращаясь в стандартный метод исследования высококачественных кристаллов, рентгеновская топография все еще имеет репутацию медленного метода, когда она осуществляется на обычных рентгеновских лабораторных установках. Требование высокой коллимации накладывает ограничение на упругие деформации, которые могут присутствовать в кристалле, если нужно получить топограммы высокого разрешения, и делает постановку эксперимента нетривиальной. В 1974 г. Туоми с соавторами [1] показали, что синхротронное излучение можно использовать для рентгеновской топографии при применении очень простой экспериментальной схемы, которая, как впоследствии продемонстрировал Харт [2], способна давать изображения высокого разрешения. Это привело к настоящей революции в типе эксперимента, который можно было осуществить, и в природе собираемых данных. Тема рентгеновской топографии в синхротронном излучении была недавно рассмотрена авторами данной книги [3].

10.2. Источники синхротронного излучения

В обычной трубке рентгеновские лучи возникают, когда электроны большой энергии тормозятся при столкновении с металлической мишенью. Этот процесс считается неэффективным, а тепловые свойства твердых тел устанавливают верхний предел для яркости пучков рентгеновских лучей, которую можно достичь. (Отметим, что *яркость* — это поток излучения в единице телесного угла, и в то время как поток всегда можно увеличить путем увеличения площади мишени, используемой для электронного удара, яркость при этом не увеличивается).

Когда электроны удерживаются магнитным полем на круговой орбите в накопительном кольце, электромагнитное излучение испускается вследствие их центростремительного ускорения. При релятивистских скоростях эмиссия сильно заостряется в направлении движения электронов, тангенциальном к электронной орбите (рис. 10.1, а). В перпендикулярном к плоскости орбиты направлении угол эмиссии θ приблизительно равен

$$\theta = m_0 c^2 / E,$$

где m_0 — масса покоя электрона; c — скорость света; E — энергия электрона. При энергии 5 ГэВ находим, что угол вертикальной эмиссии естественным образом коллимирован до 0.1 мрад. В плоскости орбиты эмиссия интегрируется по всей области углов естественной коллимации, когда электрон обегает кольцо, и на практике расходимость в горизонтальной плоскости ограничена приемным углом станции.

Релятивистский переход от электронного рассмотрения к лабораторному дает спектр, который представляет собой непрерывную область, расширяющуюся от радиочастоты до рентгеновского диапазона (рис. 10.1, б). Он описывается «универсальной» кривой, приведенной к масштабу параметра, называемого критической длиной волны $\lambda_{кр}$. Спад со стороны коротких длин волн определяется энергией электронного пучка и радиусом кривизны в точке эмиссии. Так как здесь нет никаких материалов мишеней, чтобы расплавиться, то яркость, достигаемая на источниках синхротронного излучения, может быть в 10^3 – 10^8 раз выше, чем яркость стандартных источников рентгеновских лучей.

В накопительном кольце, сконструированном для производства синхротронного излучения (рис. 10.2), орбита не круговая, а состоит из дипольных поворотных магнитов, разделенных прямыми секциями. Пучок фокусируется квадрупольными магнитами, образующими сложную «решетку». После начального ускорения до нескольких десятков мегаэлектронвольт в линейном ускорителе электроны (или иногда позитроны) ускоряются до полной энергии 2–10 ГэВ предусилителем (бустером), либо им одним, либо в комбинации с ускорением в самом накопительном кольце. Когда полная энергия достигнута, магнитное поле удерживается на установившемся уровне (не считая настроек динамического контроля для сохранения стабильности орбиты); за один оборот энергия электрона поддерживается один или более раз с помощью резонатора радиочастотного ускорения. Ток электронного пучка экспоненциально затухает вследствие столкновения с молекулами остаточного газа в ультравысоком вакууме, и времена жизни для затухания до $1/e$ раз от первоначальной величины могут составлять до 70 ч.

Станции проектируются для того, чтобы извлекать пучок вдоль касательных к поворотным магнитам, или из вставных приборов внутри прямых секций. В последнем случае электронный пучок отклоняется при малом радиусе кривизны цепью дипольных магнитов чередующегося знака, которые могут быть двух типов: вигглеры с большой амплитудой колебания по отношению к конусу эмитированного излучения и ондуляторы — с малой амплитудой. Все современные приборы используют постоянные магниты из неодима, железа и бора для образования больших полей в малых зазорах, которые можно изменять в соответствии с проводимым экспериментом.

Спектр излучения, производимого вигглером, похож на спектр от поворотного магнита, но с длиной волны, сдвинутой в более коротковолновую область благодаря использованию более высоких магнитных полей. Применение многополярного прибора дает возможность увеличивать мощность в пучке пропорционально числу периодов в приборе. Большинство станций на источниках третьего поколения, таких как Европейский центр по использованию синхротронного излучения (ESRF) в Гренобле (Франция),

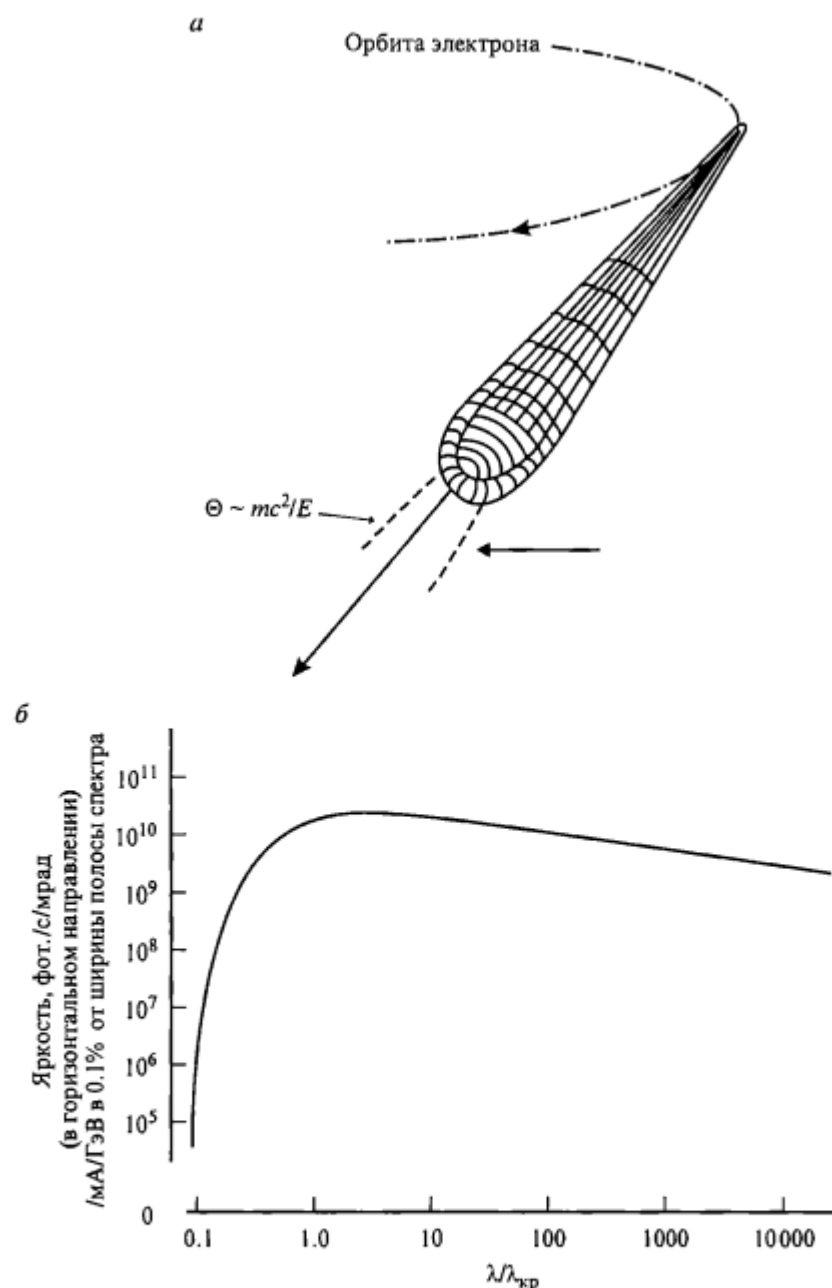


Рис. 10.1. Распределение излучения, эмитированного электроном, движущимся с релятивистской скоростью по круговой орбите (*а*); универсальный, проинтегрированный по вертикали спектр синхротронного излучения в функции приведенной длины волны (*б*).

Оси калиброваны для источника синхротронного излучения в Лаборатории в Daresbury.

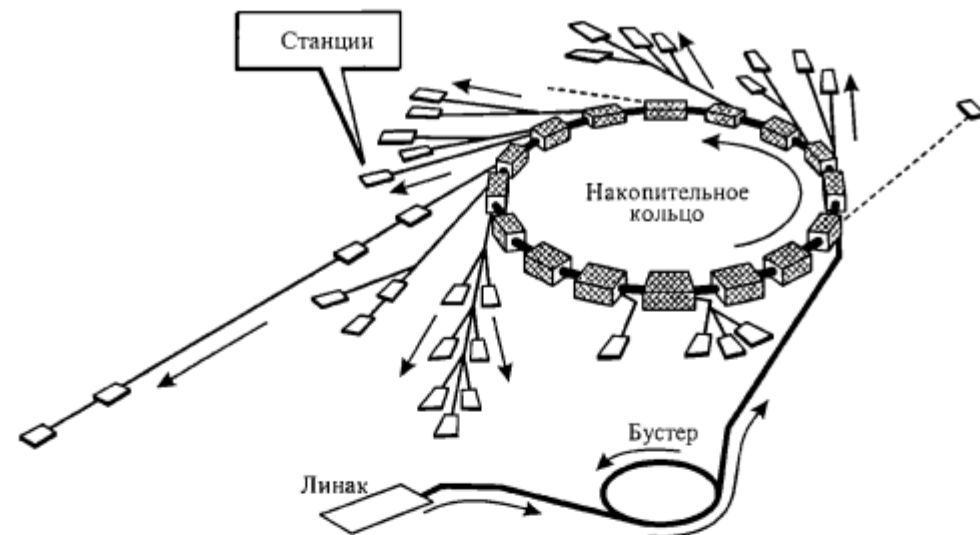


Рис. 10.2. Схематическая диаграмма накопительного кольца электронов, показывающая решетку магнитов и форму орбиты.

Синхротронные центры в Аргонне (APS) (США) и Spring-8 вблизи Кобе в Японии, обслуживаются такими вставными приборами, где пучок отклоняется и затем возвращается на свою первоначальную орбиту.

Спектр от ондулятора совсем другой, и его многочисленные пики являются результатом интерференционных эффектов внутри ондулятора. Когда ускорение электронов ограничено орбитальной плоскостью и угол эмиссии очень мал, излучение сильно эллиптически поляризовано и в самой плоскости орбиты излучение линейно поляризовано в пределах нескольких процентов. Использование цепи постоянных магнитов с намагничиванием, осуществляемым в спиральной последовательности, дает возможность извлекать циркулярно-поляризованное излучение из такого геликоидального ондулятора; это излучение особенно важно для магнитных исследований.

Электроны собираются в банчи (от англ. «bunch» — пучок) под действием радиочастотного ускоряющего резонатора, и поэтому эмиссия осуществляется в виде резких импульсов шириной только в десятки пикосекунд, с частотой, соответствующей периоду банчей. Чтобы получить максимальный ток пучка, используют много банчей, дающих частоту импульсов обычно ~ 500 МГц. Когда только один банч инжектируется в кольцо, частота падает до нескольких мегагерц, в то время как ширина импульса остается равной нескольким пикосекундам. Эта особенность широко используется для измерений времени жизни флуоресценции, и, кроме того, ее можно применять в стробоскопической топографии.

10.3. Требования к источнику для рентгеновской топографии в синхротронном излучении

В лаборатории рентгеновская топография обычно осуществляется при помощи характеристического излучения, и легко показать, что время экспозиции секционной топограммы имеет масштаб PS_x^{-2} , а проекционной — PS_x^{-1} , где P — мощность рентгеновской трубки, а S_x — размер источника в плоскости падения. Однако непрерывная природа спектра синхротронного излучения приводит к совсем иной зависимости от мощности и размеров источника. Интенсивность dI , которая попадает на кристалл от площадки источника dX , dY , равна

$$dI = CP(\lambda) \delta \lambda dX dY / S_x S_y D^2, \quad (10.1)$$

где C — константа; P — мощность; S_x — горизонтальный размер источника; S_y — вертикальный размер источника; D — расстояние от источника до образца. Допустим, что образец меньше, чем конус излучения. Предположим также, что угловая ширина источника, видимая из точки на образце, $\Delta\theta$, больше, чем собственная область брэгговского отражения $\delta\omega$. (Это верно для источников первого поколения и для слабых брэгговских отражений в излучении высоких энергий):

$$I = CP(\lambda) \delta \lambda \int_0^{D\delta\omega} dX \int_0^{S_y} dY / S_x S_y D^2, \quad (10.2)$$

где $\delta\omega = \text{const } |C| \lambda^2 b^{1/2} F_h / \sin 2\theta_B$. Поэтому

$$I = CP(\lambda) \delta \omega \delta \lambda / S_x D. \quad (10.3)$$

Принимая во внимание диаграмму дю Монда (рис. 10.3, а), мы видим, что

$$\delta \lambda = \lambda \text{ctg } \theta \Delta\theta, \quad (10.4)$$

где $\Delta\theta = S_x / D$ — угол, под которым виден источник из точки на образце. Интенсивность I_h получается из выражения

$$I_h = A |C| \lambda^3 P(\lambda) F_h b^{1/2} / D^2 \sin^2 \theta_B, \quad (10.5)$$

где $b = \gamma_0 / |\gamma_h|$, $C = 1$ или $\cos 2\theta_B$; F_h — структурный фактор; A — константа и θ_B — угол Брэгга; D — расстояние от образца до источника; $P(\lambda)$ — мощность источника на единичный интервал длин волн; $\gamma_0 = \mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{n}$ и $\gamma_h = \mathbf{K}_h \cdot \mathbf{n}$, где $\mathbf{n}$ — единичный вектор, параллельный внутренней нормали к поверхности образца; $\mathbf{K}_h$ и $\mathbf{K}_0$ — волновые векторы дифрагированного и падающего пучков.

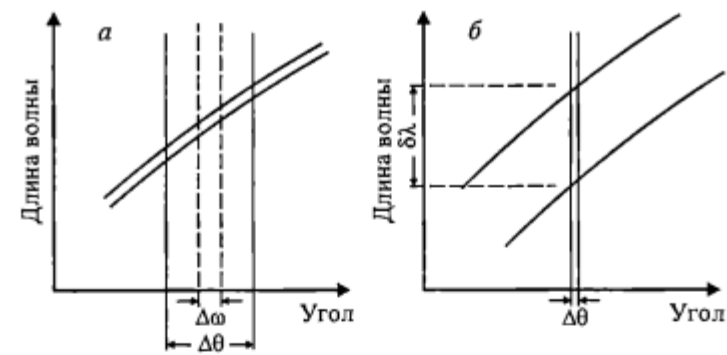


Рис. 10.3. Диаграмма дю Монда, соответствующая источнику синхротронного излучения, когда угловая ширина источника больше, чем область отражения совершенного кристалла (а); диаграмма дю Монда для случая, когда верно обратное утверждение (б).

Теперь допустим, что угол источника $\Delta\theta$ много меньше, чем область отражения кристалла $\delta\omega$. Это соответствует длинноволновым отражениям низкого порядка на источниках третьего поколения. Тогда

$$I = CP(\lambda) \delta \lambda \int_0^{S_x} dX \int_0^{S_y} dY / S_x S_y D^2 = CP(\lambda) \delta \lambda / D^2. \quad (10.6)$$

Теперь, как видно из рис. 10.3, б,

$$\delta \lambda = \lambda \text{ctg } \theta_B \delta\omega, \quad (10.7)$$

и снова мы имеем

$$I_h = A |C| \lambda^3 P(\lambda) F_h b^{1/2} / D^2 \sin^2 \theta_B. \quad (10.8)$$

Здесь, таким образом, нет никакого усложняющего фактора, который содержит размеры источника при переходе от первого ко второму критерию, использованному выше. Важно, что интенсивность зависит не от размера источника, а от общей мощности источника. Однако разрешение R_x на топограмме можно приблизительно оценить из соотношения

$$R_x = dS_x / D, \quad (10.9)$$

где d — расстояние от источника до детектора. Таким образом, имеется выигрыш в интенсивности при увеличении яркости, если D уменьшается, или выигрыш в разрешении, если D остается постоянным.

Пределом уменьшения D является высота пучка на образце. Требуется, чтобы изображение площадью приблизительно 10×10 мм получалось до половинной интенсивности поперек гауссова профиля интенсивности пучка. В этом случае, когда собственная расходимость для машины с энергией 6 ГэВ равна $m_0 c^2 / E = 8 \cdot 10^{-5}$, получаем $D = 100$ м для типичной

топографической станции. Разрешение отличное, и $R = 0.5$ мкм для расстояния «образец—детектор» 10 см при размере полуширины источника 0.5 мм.

Очевидно, что основное преимущество многополюсных вигглеров состоит в том, что увеличенная мощность становится доступной для топографических экспериментов, но тепловая нагрузка при этом является серьезной проблемой. Из-за неоднородного пучка, который имеет гауссовский профиль интенсивности, возникает неоднородный нагрев образца. Кристалл локально изгибается, и когда угловое отклонение Δ , вызванное деформацией решетки, превышает ширину кривой качания $\delta\theta$, наблюдается сильная полоса контраста. Баретт с сотрудниками [4] показал, что максимальное угловое изменение Δ от нагревания должно быть равно

$$\Delta = \sqrt{\pi} \alpha P_{\text{абс}} \sigma / 2K, \quad (10.10)$$

где α — линейный коэффициент термического расширения; K — теплопроводность; σ — среднеквадратичная ширина профиля пучка; $P_{\text{абс}}$ — поглощенная мощность. Из-за проблемы тепловой нагрузки маловероятно, чтобы ультракороткие времена экспозиции в микросекундном временном масштабе могли быть достижимы для топографии в белом излучении. Это особенно острая проблема для плохо проводящих изоляторов, таких как кварц и HgI_2 . При больших уровнях кривизны контраст прямого изображения падает, так как возрастает фон от «совершенного» кристалла и изображения дефектов становятся невидимыми. Проблему можно решить, если использовать прерыватель пучка перед образцом, чтобы сбросить ~90 % интенсивности и отфильтровать короткие длины волн с помощью поглотителя из алюминия толщиной от 0.5 до 1.5 мм. Дальнейшее уменьшение интенсивности достигается путем «охлаждения» пучка, пропуская его через ~50-миллиметровый слой воды. Этот способ решения вышеуказанной проблемы сопровождается непропорциональным уменьшением интенсивности излучения около края поглощения и работает очень хорошо.

Решение проблемы тепловой нагрузки состоит в использовании монохроматора с узкой полосой пропускания, для того чтобы отсечь большинство длин волн падающего излучения. Однако современные рентгеновские зеркала недостаточно однородны, чтобы их использовать, а искажение формы поверхности в синтетических многослойниках, выпускаемых промышленностью, слишком велико, что также недопустимо для их применения в топографии. Револ с соавторами [5] продемонстрировал возможность использования колеблющегося кристалла кремния в качестве широкополосного монохроматора, но в любом случае необходим вигглер с переменной шириной зазора. Для работы в области длинных волн зазор вигглера должен быть увеличен.

Спектр ондулятора, состоящий из серии пиков вследствие интерференции когерентного рентгеновского излучения, испускаемого электроном при последовательных сдвигах внутри магнита, на первый взгляд, идеально подходит для рентгеновской топографии в синхротронном излучении. Энергетическая ширина пиков ондулятора большая по сравнению с областью отражения совершенного кристалла, и топография в квазибелом пучке могла

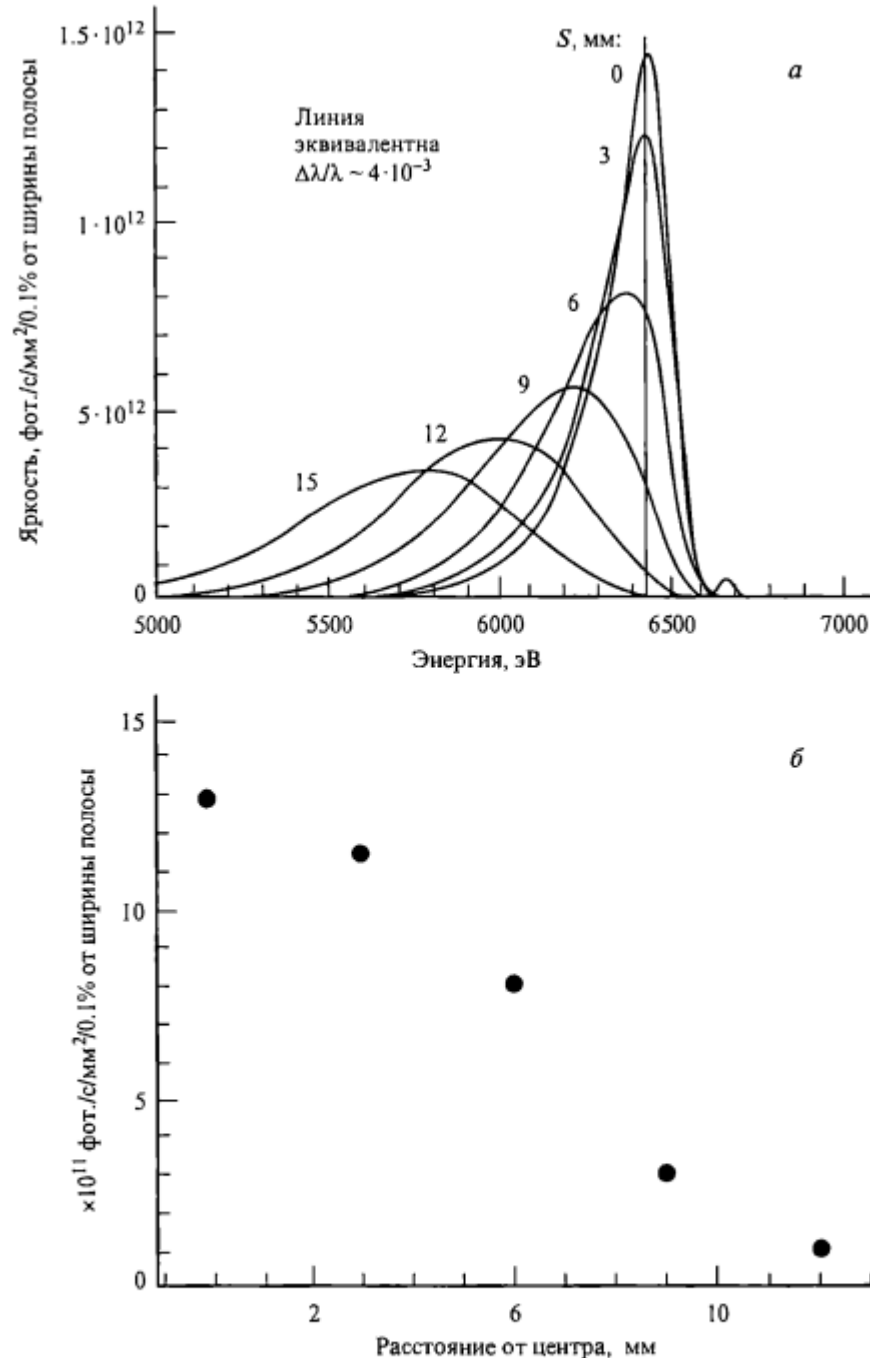


Рис. 10.4. Спектр на расстоянии 400 м от ондулятора на ESRF для различных положений поперек изображения (цифры у кривых — миллиметры) полосы длин волн, дифрагированной типичным кристаллом (а); дифрагированная интенсивность как функция положения поперек изображения (б).

бы осуществляться в отсутствие проблемы тепловой нагрузки многополюсного вигглера. Кроме того, когерентность излучения ондулятора приводит к тому, что это излучение на много порядков ярче, чем излучение многополюсного вигглера. Пучок имеет малую расходимость, но на расстоянии 400 м он еще достаточно широк, чтобы удовлетворять критерию размера пучка, полученному выше. Однако спектр от ондулятора изменяется весьма быстро как функция угла, и это означает, что пучок, падающий на образец, в каждой точке имеет другую спектральную характеристику. Как видно из рис. 10.4, *а*, для дифракции кристалл выбирает узкую полосу энергии и для данной установки интенсивность в дифрагированном пучке падает гораздо быстрее, чем можно было ожидать (рис. 10.4, *б*). Если только не появится станция длиной в 1 км, ондуляторы не кажутся идеально подходящими для рентгеновской топографии.

10.4. Применимость синхротронного излучения в рентгеновской топографии

Имеется пять особенностей, которые характеризуют синхротронное излучение и делают его настолько уникальным, что неудобства, сопряженные с поездками в удаленное место для проведения экспериментов, выглядят вполне оправданными.

10.4.1. Интенсивность

Для того чтобы получить рентгеновские топограммы высокого разрешения, должны использоваться медленно действующие фотографические эмульсии с очень малым размером зерна. Ядерные эмульсии «Илфорд L4» дают наилучшие результаты, и время экспозиции на обычных источниках излучения может колебаться от нескольких часов до нескольких дней. Использование синхротронного излучения уменьшает время экспозиции на эти эмульсии до нескольких секунд или меньше. Телевизионные детекторы прямого изображения, которые сильно ограничены в разрешении из-за квантового шума в случае обычных источников, имеют достаточно фотонов, чтобы давать изображения хорошего качества в реальном времени. В зависимости от площади изображения, потока, имеющегося в детекторе, и типа прибора было достигнуто разрешение в интервале 40—8 мкм. Рис. 10.5 показывает пример изображения малоугловых границ и магнитных доменов в кристалле сплава Fe—Si, полученных в реальном времени с помощью ТВ-камеры, чувствительной к рентгеновским лучам, в Синхротронном исследовательском центре в Daresbury. *Динамические эксперименты*, в которых изменения в материале исследуются как функции таких переменных, как время, температура, напряжение или электрическое или магнитное поле, могут поэтому осуществляться либо в реальном времени при небольшом разрешении, либо быстрым пошаговым способом при высоком разрешении. Кроме того, можно проводить *обзорные эксперименты*, в которых очень большое количество образцов изучается с целью получения статистически значимых данных.



Рис. 10.5. Изображение в реальном времени (без компьютерной обработки) магнитных доменов и малоугловых границ в кристалле Fe—Si-сплава, полученное с помощью детектора HI-RES (компания «Bede Scientific») в Лаборатории в Daresbury. Топограмма в белом излучении была получена при основной длине волны рентгеновских лучей 1 Å.

10.4.2. Непрерывный спектр

Накопительное кольцо, сконструированное для синхротронного излучения, эмитирует излучение в очень широком спектре (см. рис. 10.1, *б*), который на источниках третьего поколения простирается вплоть до 0.1 Å. Со стороны длинных волн край спектра обычно обрезается при 2.5 Å из-за поглощения бериллиевого окна. Эта широкая область длин волн позволяет независимо оптимизировать геометрию, условия поглощения и чувствительность к деформации. Непрерывный спектр дает возможность получать лауэ-топограммы высокого разрешения, которые чрезвычайно легко осуществляются и применимы к широкому кругу материалов. Кроме того, можно использовать дисперсию вблизи краев поглощения.

10.4.3. Коллимация

Вследствие низкой расходимости топографические эксперименты могут проводиться на большом расстоянии (50—1000 м) от источника. Это дает широкий пучок на образце, и образцы большой площади можно исследовать без сканирования.

10.4.4. Поляризация

Высокая степень поляризации рентгеновских лучей в плоскости электронной орбиты обеспечивает средства для управления как отношением сигнал/шум, так и глубиной проникновения рентгеновских лучей в образец. В зависимости от того, выбрана ли плоскость падения вертикально или горизонтально, можно выбрать σ - или π -поляризацию. Поэтому чувствительность к деформации и экстинкционную длину можно изменять, в то время как условия нормального фотоэлектрического поглощения остаются идентичными.

10.4.5. Временная структура

Импульсная временная структура, обычно мегагерцевого диапазона частот, позволяет осуществлять стробоскопическую топографию очень быстрых циклических явлений, таких как распространение акустических волн.

10.5. Методы топографии в синхротронном излучении

10.5.1. Топография в белом излучении

При съемке обычной лауэграммы, когда белое (т. е. непрерывное) излучение падает на монокристалл, каждая система плоскостей выбирает конкретный маленький участок спектра, для которого угол между брэгговскими плоскостями и падающим пучком удовлетворяет условию Брэгга. Поэтому множество дифрагированных пучков регистрируется на снимке, характерном для симметрии кристаллической структуры и ориентации кристалла относительно падающего пучка. Исходя из этого, Гинье и Тенневэн [6] и Шульц [7] на основе лабораторного оборудования разработали ранние топографические методы, использующие непрерывное излучение, но их разрешение оставалось низким. Значение этих простых методов стало очевидным лишь тогда, когда стало доступным синхротронное излучение. Когда источник находится на большом расстоянии от образца и ширина пучка на образце большая, каждое крупное «лауэпятно» становится высокоразрешающей картой рассеяния от различных точек кристалла. Подстановка типичных величин в уравнение (10.9) показывает, что высокое пространственное разрешение можно сохранить на этих дифракционных топограммах для большинства источников синхротронного излучения. На рис. 10.6 показана схема возникновения лауэтопограммы.

Рассеивающая способность вокруг дефектов отличается от рассеяния в совершенном кристалле, так как рентгеновские лучи, не удовлетворяющие условию Брэгга в совершенном кристалле, могут участвовать в дифракции в деформированной области вокруг дефекта. Так же как и в случае проекционной топограммы Ланга, эти области ведут себя как маленькие кристаллы, рассеивающие кинематически, и конечным результатом является увеличение интенсивности по сравнению с интенсивностью рассеяния совершенным кристаллом.

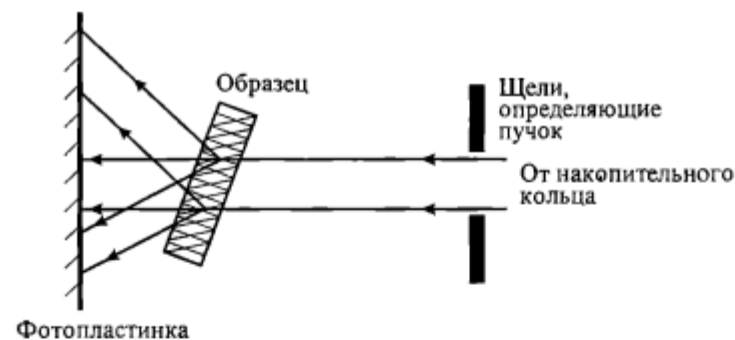


Рис. 10.6. Топография в белом излучении синхротронного источника.

Для данного отражения из уравнений (10.5) и (10.8) мы можем заключить следующие:

- поляризационный фактор, равный 1 для вертикальной дисперсии и $|\cos 2\theta_E|$ — для горизонтальной, имеет малое значение для коротких длин волн, и геометрию горизонтальной дисперсии можно использовать с малой потерей в интенсивности;

- падение интенсивности с уменьшением длины волны вызывается как λ , так и $P(\lambda)$.

Контраст дефектов на лауэтопограммах аналогичен контрасту на топограммах Ланга [8], но его отличают особенности, связанные с:

- присутствием более высоких гармоник, участвующих в дифракции одновременно;

- расходимостью пучков между кристаллом и пленкой;

- непрерывностью спектра излучения.

На синхротронных источниках первого и второго поколений вклад гармоник обычно небольшой, так как величина F_{hkl} быстро падает с увеличением дифракционного вектора. Основное исключение составляет использование слабых квазизапрещенных отражений, таких как 002 в соединениях III—V групп. Здесь 004 гармоника на $\lambda/2$ имеет крайне важное значение, так как $F_{002}(\lambda) \ll F_{004}(\lambda/2)$. Однако у источников третьего поколения, работающих при высоких энергиях, критическая длина волны, определяющая точку сворачивания спектра, очень короткая. Для основной длины волны $\sim 1.5 \text{ \AA}$ поток падающего излучения на гармониках вплоть до пятого порядка будет очень высоким. В трансмиссионной (Лауэ) геометрии низкие порядки ослабляются фотоэлектрическим поглощением сильнее, чем высокие, и это компенсирует потери в интенсивности более высоких гармоник, предсказанные уравнениями (10.5) и (10.8). Поэтому на ESRF, к примеру, вклад гармоник в изображение имеет крайне важное значение, тогда как на источнике второго поколения, таком как «Daresbury», эта проблема незначительна. В результате этого ширина изображения как функция длины волны может быть немонотонной и в некоторых случаях возрастает с увеличением длины волны (рис. 10.7). Это противоположно предсказанию, сделанному в гл. 8 о том, что ширина изображений дислокаций увеличивается с уменьшением длины волны [9, 10].

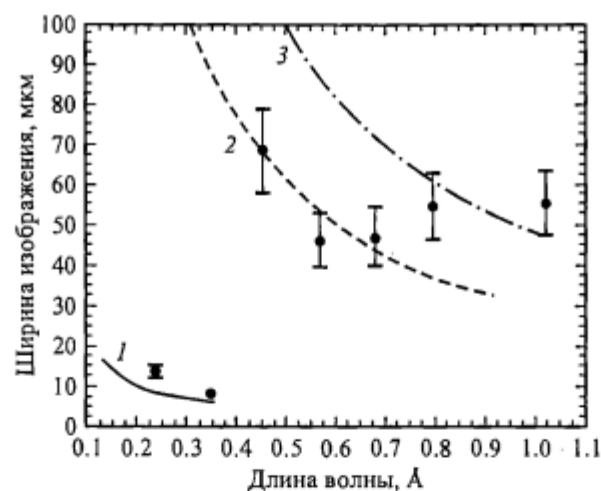


Рис. 10.7. Ширина изображения дислокации в условиях сильных гармоник, как на ESRF. (С разрешения Ф. Зонтона).

Расчетные кривые: 1 — для отражения 111 при длине волны λ ; 2 — для отражения 333 при $\lambda/3$; 3 — для отражения 444 при $\lambda/4$; точки — экспериментальные данные.

Второе отличие контраста возникает из-за большого расстояния «образец—фотопластинка», которое используется для того, чтобы разделить различные лауэтопограммы. В таком случае угловое отклонение пучков, дифрагированных областью вокруг дефекта [8], становится значительным. Пучки, дифрагированные кинематически от каждой стороны краевой дислокации (рис. 10.8), расходятся или сходятся в соответствии с эффективной разориентацией вокруг дефекта. Дислокации с краевой компонентой часто показывают бимодальный контраст, который в лаборатории виден только для больших величин произведения $g \cdot b$. Разделение мод линейно увеличивается с расстоянием от детектора до образца.

Третье отличие контраста лауэтопограмм вызывается непрерывной природой излучения, создающей ориентационный контраст только на границах

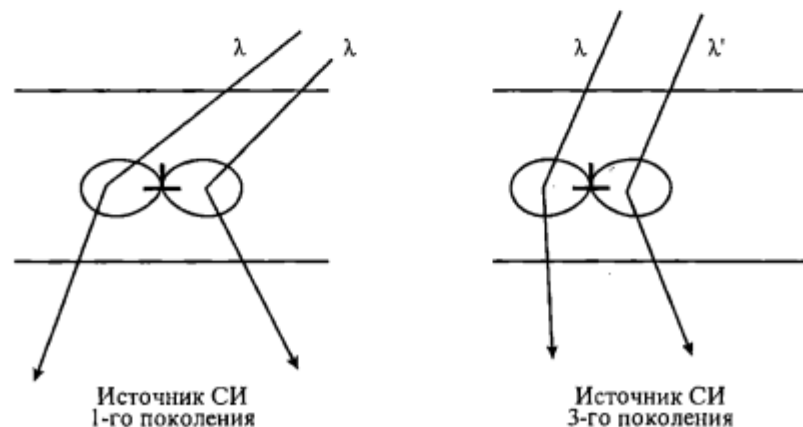


Рис. 10.8. Механизм образования бимодального изображения, наблюдаемого на многих топограммах в синхротронном излучении.

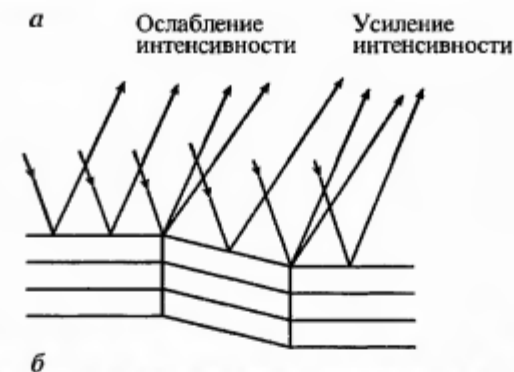


Рис. 10.9. Схема образования изображения деформации в ориентационном контрасте на топограмме, полученной в белом излучении (а); малоугловые границы в $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_2$, демонстрирующие расходящийся (белый) контраст (б).

между разориентированными областями. Здесь пучки перекрываются или расходятся в зависимости от знака разориентации по отношению к дифракционному вектору (рис. 10.9, а). Наилучший контраст имеет место, когда пучки расходятся там, где интенсивность, связанная с областью границы, полностью отсутствует. На рис. 10.9, б дан пример границ субзерен в $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_2$. Контраст магнитных доменов на рис. 10.9 возникает потому, что магнитострикция приводит к тетрагональному искажению решетки. На 90-градусной границе решетка когерентна вдоль плоскости (110), но плоскости {100} поворачиваются при пересечении границы. Эта разориентация приводит к ориентационному контрасту, аналогичному контрасту границ субзерен.

Топография в белом излучении имеет следующие специфические особенности:

- короткие экспозиции (от миллисекунд вплоть до минут в зависимости от источника и образца);
- множество отражений, регистрируемых сразу на одной пластинке;
- способность давать изображения дефектов в кристаллах, содержащих дальнедействующие упругие деформации, когда каждая точка на образце выбирает для дифракции свою собственную область длин волн;
- способность получать карты полной деформации образцов, слишком нарушенных, чтобы разрешались изображения отдельных дефектов;
- простая экспериментальная схема, хорошо подходящая для тех стадий эксперимента, на которых осуществляется *in situ*-контроль экспериментальных параметров.

Поэтому топография в белом излучении особенно хорошо адаптирована для исследований следующих типов:

- *динамические эксперименты*, включающие изучение изменений в материалах в реальном времени как функций, например температуры, напряжения или магнитного и электрического полей;
- *нарушенные кристаллы*, решетка которых имеет низкое кристаллическое совершенство, однако требуется получить данные о распределении деформации решетки кристалла;
- *обзорные эксперименты*, включающие быстрый контроль большого количества образцов или большого числа отражений, для того чтобы получить подробную статистическую информацию, связанную с методом выращивания или с детальным анализом трехмерного распределения деформации.

Большинство ранних работ по топографии в синхротронном излучении было выполнено на очень простых гониометрах, которые могли обеспечить основную ориентацию образца. Образец помещался в пучок, и фотопластинка или пленка использовалась для регистрации изображения. Однако, для того чтобы вывести отражение при произвольной длине волны, необходимы по крайней мере по две оси поворота для образца и для детектора, а чтобы контролировать поляризацию, нужно иметь возможность осуществить поворот, хотя, может быть, и не прямо вокруг падающего пучка. Для быстрого осуществления этих функций, для юстировки или для того чтобы проводить динамические эксперименты, в настоящее время нельзя обойтись без дистанционного компьютерного управления, включенного в процесс измерений. Блестящим примером является программа «Orient Express», действующая на ESRF. Компьютерная программа для расчета лауэграмм, полученных при произвольной ориентации образца и детектора [11], или для индексирования лауэграмм, исходя из расположения нескольких изображений, является важным добавлением к программному обеспечению, управляющему работой станции. Получение изображений в реальном времени с приемлемой динамической областью и разрешением теперь возможно при той высокой мощности потоков, которая существует на большинстве новых источников синхротронного излучения. Однако не вызывает сомнения, что главным ограничением для применения рентгеновской топографии в динамических *in situ*-экспериментах являются технические характеристики су-

ществующих детекторов. Характеристика квантово-ограниченного детектора определяется законом Розе де Врие

$$C^2 \delta^2 I \tau \xi / k^2 = 1, \quad (10.11)$$

где C — это контраст дефекта; δ — разрешение или размер пикселя; I — интенсивность; τ — время экспозиции; ξ — эффективность детектирования квантового детектора; k — отношение сигнал/шум системы. Тогда как улучшение пространственного разрешения несомненно желательно, экономически нереалистично делать что-то другое, чем использовать технологию, разработанную для альтернативных коммерческих целей. Весьма медленный прогресс, происходящий в этой области, остается критически важным для эффективного использования источников третьего поколения. В настоящее время на ESRF работает детектор с обратной зарядовой связью микронного разрешения со средней скоростью считывания.

Быстрое получение различных изображений необходимо главным образом для детального анализа деформации. В гл. 8 показано, что вектор Бюргера дислокаций можно определить, обнаруживая нулевой контраст для винтовой дислокации, когда $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$, и для краевой дислокации, когда еще и $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{l} = 0$, где $\mathbf{g}$ — вектор обратной решетки; $\mathbf{b}$ — вектор Бюргера; $\mathbf{l}$ — вектор направления линии дислокации. Набор достаточных отражений в таком случае дает возможность провести это определение, хотя на практике могут быть трудности, вызванные анизотропным характером упругости и поверхностной релаксацией. В случае топографии в белом излучении можно зарегистрировать несколько отражений одновременно, что дает громадную экономию времени по сравнению с лабораторными исследованиями. На рис. 10.10 зарегистрировано сразу множество отражений, что позволяет получить достаточное количество данных, для того чтобы охарактеризовать границы двойников. В случае обычных источников излучения это заняло бы около недели.

Полный тензор деформации в образце можно получить при помощи достаточного количества топографических изображений, используя узкую щель для определения направления, или очень чувствительного внутреннего маркера путем выбора области длин волн на изображениях, так, чтобы эта область проходила через край поглощения. Такая методология была разработана и применена к деформациям в металлах Стоком с коллегами [12].

10.5.2. Примеры применения топографии в белом излучении

В обзорной статье, цитированной выше [3], дано детальное описание работ в данной области вплоть до 1994 г. Поэтому здесь приведем только несколько примеров, показывающих степень и область применения этого метода.

Отметим, что с использованием секционной топографии в синхротронном излучении было выполнено относительно мало работ. Мачадо с коллегами [13] использовал секционную топографию для изучения толстых, очень совершенных кристаллов алмаза, где легкость выбора угла Брэгга для конкретного отражения на протяжении значительной области позволяет эк-

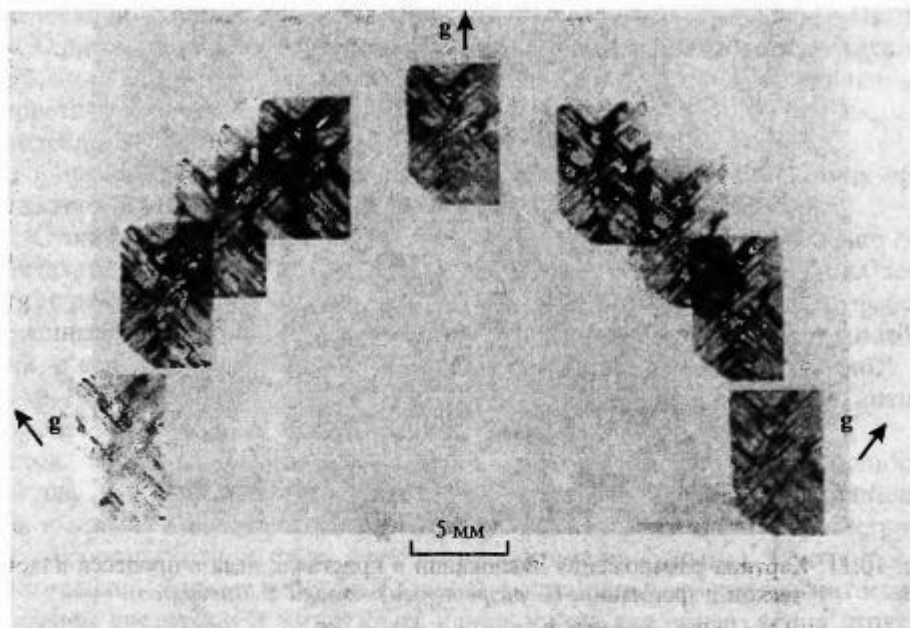


Рис. 10.10. Лауэтопограммы, полученные одновременно в течение одной экспозиции от кристалла NaBaNbO_3 .

спериментатору получать несколько различных проекций строения внутреннего объема кристалла, сохраняя дифракционный вектор одинаковым. Халфпенни также применил этот метод в Лаборатории в Daresbury для *in situ*-исследования роста из раствора.

Туоми с соавторами [14] на источнике в Станфорде (Stanford SSRL) изучал методом секционной топографии технологические дефекты в полупроводниках. В процессе исследования внутреннего и внешнего геттерирования в кремнии они наблюдали исчезновение картины интерференционных полос «совершенного кристалла» на секционных топограммах после начального окисления и восстановление этой картины после хорошо проведенного цикла термообработок при 1150°C в течение 18 ч. Это указывало на то, что микродефекты, образовавшиеся в течение начального окисления, растворялись в процессе термообработки. После окисления при 950°C в течение 10 ч возникло очень большое количество микродефектов, которые полностью расстроили интерференционные полосы (полосы Като). На секционных топограммах была ясно видна зона, свободная от дефектов, кроме того, этот метод дает неразрушающее средство для измерения ширины этой области. Была найдена связь между геттерированными дефектами, выявленными секционной топографией в синхротронном излучении, и выходом приборов. Лучший выход приборов наблюдался из средних частей пластин в случае, когда задняя поверхность пластин была покрыта слоем поликремния толщиной 2 мкм. Эти хорошо различимые преципитаты или дефекты упаковки не развиваются после полного термического цикла.

Исследования процессов пластической деформации в кристаллах льда представляют значительный интерес, так как они помогают пролить свет на

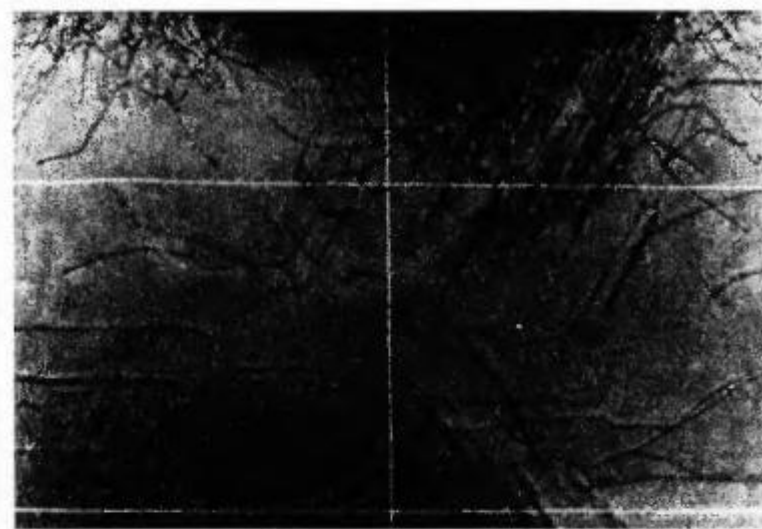


Рис. 10.11. Картина размножения дислокаций в кристалле льда в процессе пластической деформации. (С разрешения доктора Р. Витворса).

образование ледников и их распространение. Лед — почти идеальный материал для рентгеновской топографии в том смысле, что его поглощение очень мало и из-за низкого атомного номера структурные факторы F_h также малы, что приводит к большой ширине изображений дислокаций, которые можно зарегистрировать достаточно хорошо на пленке низкого разрешения типа «Kodak R» или даже на ТВ-детекторе. Хондо с соавторами [15] использовал рентгеновскую ТВ-камеру прямого преобразования [16], чтобы непосредственно измерить скорости перемещения дислокаций и тем самым получить коэффициент самодиффузии как функцию температуры. Много подробных исследований было проведено группой Хондо [15, 17, 18] на «Фотонной Фабрике» в Цукубо в Японии, Витворсом [19—22] в Daresbury в Великобритании и Дадли с коллегами в Брукхэвене в США. Нашли, что вклад скольжения в небазальные плоскости льда оказался неожиданно большим и что для этих плоскостей наблюдалось очень высокое отношение скоростей краевых и винтовых дислокаций [17, 20, 21]. Кроме того, силы изображения вблизи поверхностей кристаллов играли важную роль в размножении дислокаций.

При изучении зарождения и распространения дислокаций (рис. 10.11) от царапин в геометрии, выбранной так, чтобы вызвать скольжение в небазальных плоскостях, было обнаружено, что краевые дислокации скользят в небазальных плоскостях, но винтовые дислокации были полностью неподвижными всюду, за исключением базальной плоскости [21]. Подробные измерения скоростей дислокаций [17, 22] с использованием методов импульсного напряжения показали, что дислокации скользили в базальной плоскости как прямые сегменты винтовых и 60° -градусных дислокаций со скоростями, пропорциональными напряжению. Образование прямых скользящих сегментов в базальной плоскости служит доказательством того, что

дислокации скользят путем распространения перегибов через барьер Пайерлса. Однако энергии активации, определенные для этих двух типов дислокаций, показывают заметное несогласие по порядку величины с принятыми теоретическими моделями. Данные по энергии активации для небазальных дислокаций позволяют предполагать, что протонный беспорядок может ограничивать подвижность дислокаций, хотя имеется несогласие между предсказанной и наблюдаемой величинами для скоростей дислокаций.

Стонибрукская группа под руководством Дадли изучила поведение бикристаллов льда и показала, что в определенных условиях границы зерен могут действовать как источники дислокаций. Было замечено, что фасетированные участки границ зерен действуют как места зарождения дислокаций, а сами границы зерен — как барьеры для движения дислокаций.

В 1970-х годах был проявлен большой интерес к антиферромагнитным доменам. Так как в таких доменах нет чистого намагничивания, то ни метод декорирования, ни микроскопия Лоренца не могут быть использованы для их выявления. И только поляризованный свет можно использовать для выявления двулучепреломления, связанного с понижением симметрии в антиферромагнитной фазе, если магнитострикция большая. Рентгеновская топография обладает намного большей чувствительностью к магнитострикционной дисторсии и может быть использована для обнаружения структур антиферромагнитных доменов [23] в материалах, таких как KNiF_3 , где магнитострикция порядка долей на 10^5 . Синхротронные квазистатические исследования KNiF_3 и KCoF_3 [24] в средних магнитных полях, генерированных железным сдвоенным электромагнитом, и при температуре до 4.2 К дали первое экспериментальное подтверждение теоретических предсказаний Нила, касающихся поведения кубических антиферромагнетиков в приложенных полях. Доменные границы движутся таким образом, чтобы увеличить объем материала там, где субрешеточная намагниченность перпендикулярна к приложенному полю, тем самым уменьшая свободную энергию системы. Экспериментально наблюдаемое смещение как функция поля хорошо согласовалось с предсказаниями теории Нила. На рис. 10.12 показана серия топограмм, полученных при температуре 4.2 К в тех случаях, когда магнитное поле возрастает.

Рекристаллизация и рост зерен после деформации исследовались *in situ* рентгеновской топографией в синхротронном излучении Гастальди, Журденом и их коллегами в течение более чем десяти лет [25]. Рентгеновская топография не будет ничего обнаруживать до тех пор, пока размер новых зерен не станет больше нескольких микрон, и поэтому топография неприменима для исследований на стадии зарождения, но она отлично подходит для измерения общего распределения новых зерен, корреляции с другой микроструктурой, кинетических исследований и определения структуры дефектов после роста зерен. Кинетические *in situ*-исследования, например, дают возможность расширить область кинетики роста зерен до скоростей примерно в 10—100 раз больших, чем это возможно в случае прерывающихся экспериментов с отжигом.

Работы Гастальди и Журдена способствовали углубленному пониманию вопросов взаимодействия движущихся границ зерен и образования дефектов в тех случаях, когда они сталкиваются. Их ранние исследования проводи-

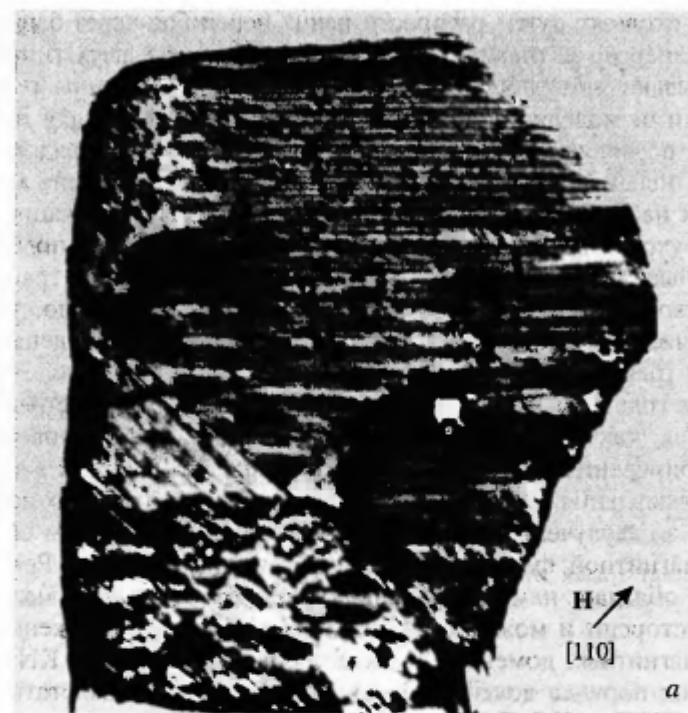


Рис. 10.12. Топограммы в белом излучении 90-градусных стенок антиферромагнитных доменов в KNiF_3 в условиях усиливающегося магнитного поля.

Величина магнитной индукции поля, Тл: a — 0.27; b — 0.46; c — 0.64.

лись только в высоком вакууме, но обновленная конструкция печи дала возможность работать в условиях ультравысокого вакуума. Были сделаны *in situ*-измерения смещений границ зерен при различных температурах [26] и было показано, как зерна, которые зарождаются на предварительно индентированных (от слова «индентор» — прибор, делающий уколы на поверхности и измеряющий следы от них) участках поверхности и потом растут внутри предварительно деформированной матрицы, постепенно превращаются из неупорядоченных конфигураций в фасетированные. Анализ скоростей миграции как функции температуры дал значение энергии активации в пять раз выше тех, что сообщались ранее. Эта особенность приписывается изменению подвижности границ зерен в случае наклона границы зерна вследствие ростового отбора. Было видно, что винтовые дислокации матрицы оставались позади движущихся границ зерен, и они внедрялись в сетку дислокаций, сформированную реакцией с дислокациями, зародившимися от ядер зерен. В противоположность прежним данным ученые пришли к выводу, что плотность дислокаций матрицы, которые остаются позади, не зависела от скорости миграции [25], что заставило предложить новый механизм генерации дислокаций.

Позднее эта группа предприняла исследования роста из расплава систем сплавов с непланарной поверхностью раздела «жидкость—твердое тело». На рис. 10.13 показана последовательность топограмм в белом излучении,



Рис. 10.12 (продолжение).

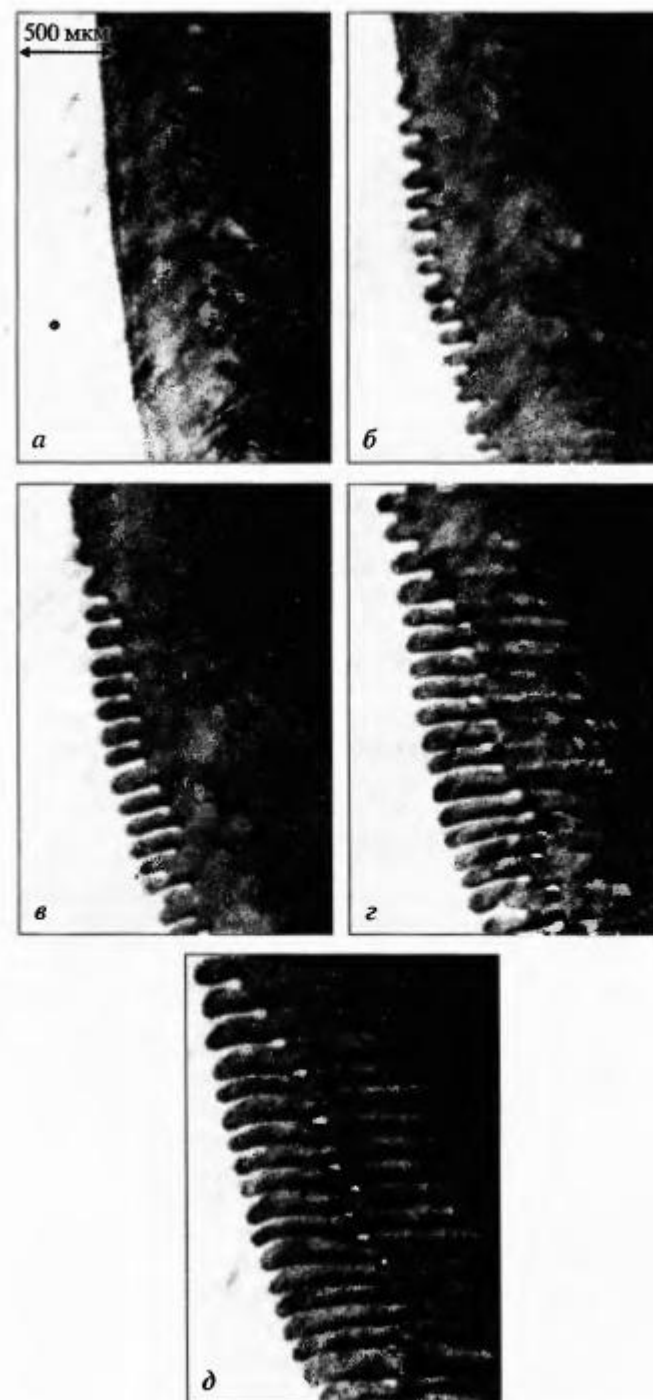


Рис. 10.13. *In situ*-рентгеновские топограммы в синхротронном излучении поверхности раздела между расплавленной и твердой частями в сплаве AlCu. (С разрешения Г. Гранжа и Ж. Гастальди).

полученных в процессе роста из расплава сплава AlCu. Когда поверхность раздела продвигается вперед, затвердевающий материал имеет относительно высокое совершенство и низкую плотность дислокаций. Однако при скорости роста на этом снимке 4.1 мкм/с поверхность раздела нестабильна, и это приводит к ячеистому росту. Расстояние между ячейками является непрерывной функцией скорости роста. В конце концов расплав оказывается захваченным в ловушки позади продвигающейся вперед поверхности раздела и из этих областей генерируются дислокации. Ключевым моментом является то, что дефекты генерируются далеко позади продвигающейся вперед поверхности раздела [27].

10.5.3. Стробоскопические исследования

Стандартные оптические методы с прерыванием пучка можно применить для стробоскопических исследований циклических динамических явлений вплоть до частот в несколько килогерц. В то время как этот метод использовался в многокристалльной топографии для изучения закрепления стенок доменов в кристаллах Fe—Si-сплавов [28], в топографии в белом излучении он не применялся. Однако временную структуру, присущую синхротронному излучению, можно использовать в высокочастотной стробоскопии. В одноканальном режиме в тех случаях, когда только один банчик электронов обегает кольцо, рентгеновские лучи испускаются импульсами обычно пикосекундной ширины, с интервалом в несколько микросекунд. Используя этот мегагерцевый сигнал, полученный от мониторов положения пучка в кольце, можно возбудить высокочастотный прибор, фаза которого привязана к эмиссии синхротронного излучения. Этот высокочастотный стробоскоп был впервые использован Вэтомором, Годдардом, Таннером и Кларком [29] при исследовании распространения поверхностных акустических волн в приборах ПАВ (фильтры промежуточной частоты и линии задержки) и Граеффом и Глюером [30—32] в приборах объемных волн. Пока не были проведены эти эксперименты, можно было большей частью наблюдать только смещение, усредненное по времени. Потеря передаваемой акустической мощности в линиях задержки поверхностной акустической волны (ПАВ) оставалась какое-то время нерешенной проблемой, и считалось, что она связана с дефектами решетки. Эксперименты по стробоскопической топографии вместе с другими данными убедительно показали, что главным дефектом, ответственным за рассеяние ПАВ, является область противоположной поляризации, известная как «ручеек». Эти противоположные ферроэлектрические домены связаны с малоугловыми границами зерен, причем их взаимодействие с границей мешает их удалению в течение процесса перезарядки. Показано, что эти дефекты становятся источниками новых объемных волновых мод, тем самым забирая мощность от поверхностной волны.

Картина распространения поверхностных волн, обнаруженных стробоскопической топографией в синхротронном излучении, показана на рис. 10.14. Здесь ясно видно взаимодействие волны с границей субзерна. Вносятся фазовое изменение, и на границе субзерна возбуждаются новые

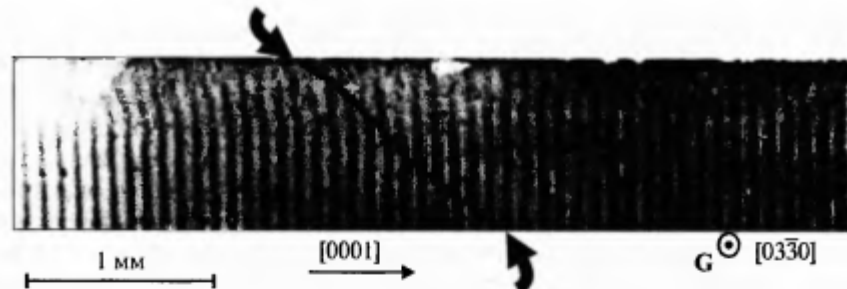


Рис. 10.14. Стробоскопическая топограмма поверхностных акустических волн, распространяющихся в инфракрасном фильтре из LiNbO_3 .

моды. Можно, в частности, определить гармоники второго и четвертого порядков. Таким образом, хотя дефект не поглощает акустическую мощность, он приводит к перераспределению мощности в нежелательные моды возбуждения: с инженерной точки зрения мощность теряется.

Приборы на объемных волнах имеют различные допуски, и недавно Капель, Зарка и их коллеги исследовали объемные волны в кварцевых резонаторах и использовали стробоскопию, чтобы определить нежелательные моды, связанные с дефектами [33]. Кроме того, они осуществили настоящую секционную топографию в стробоскопическом режиме, чтобы установить, можно ли описывать взаимодействие между дислокациями и акустическими волнами при помощи простой линейной пьезоэлектрической теории. Используя расчет секционных топограмм для анализа данных, они пришли к заключению, что вблизи дислокационной линии имеет место нелинейное взаимодействие, а линейная теория удовлетворительно работает в области, далекой от дефекта. Оказалось, что каналы травления имеют большее влияние на акустические волны, чем отдельные дислокации.

10.5.4. Многокристалльная топография

Белое излучение проявляется в высоком фоне и нечувствительности к дальнедействующим деформациям. Как ту, так и другую проблему можно преодолеть, используя кристалл перед образцом, который из-за малой собственной угловой расходимости пучка синхротронного излучения действует как монохроматор. Это изображено на диаграмме дю Монда на рис. 10.3, б. Площадь фазового пространства мала, и сразу же видно, что область отражения монохроматора определяет волновую дисперсию, в то время как угловая расходимость устанавливается характеристиками источника. Здесь в отличие от лабораторных условий можно считать первый кристалл истинным монохроматором. Как было показано в гл. 9, высокая коллимация и, следовательно, малая дисперсия приводят к тому, что схемы $(+n, -m)$ и $(+n, +m)$ дают почти одинаковые результаты. В случае синхротронного излучения часто удобно использовать кристалл с прорезным каналом или двухкристальное устройство Головченко—Граеффа, в котором прямо осуществляется двухкристальная геометрия. Пара отражений

возвращает пучок в первоначальное направление и сильно упрощает эксперимент.

Если (плоский) образец поворачивают в дисперсионной плоскости по отношению к кристаллическому коллиматору пучка, то кривая качания очень узкая и описывается корреляционной функцией областей отражения двух совершенных кристаллов; она обычно составляет несколько угловых секунд. Если образец или кристаллический коллиматор содержит область, разориентация которой превышает эту величину, никакой интенсивности, отраженной от этой области, не попадает в детектор. Поэтому на фотографической пластинке получается топограмма с очень высокой чувствительностью к деформации. Контраст на двухкристалльных топограммах в основном, ориентационный, и он был рассмотрен Бонзе [34] (см. гл. 9). Укажем основные моменты, которые отличают двухкристалльную топографию в синхротронном излучении, от двухкристалльной топографии в лабораторных условиях.

1. Из-за большого расстояния между источником и образцом расходимость пучка, нормальная к плоскости дисперсии, мала, и в случае синхротронного излучения не требуется дополнительной регулировки наклона, чтобы установить брэгговские плоскости образца и кристаллического коллиматора строго параллельно.

2. Из-за малой расходимости в дисперсионной плоскости область длин волн, отраженных от кристаллического коллиматора, всегда мала и дисперсионное уширение СИ кривой качания мало даже в том случае, когда брэгговские плоскости коллиматора и образца существенно отличаются.

3. Так как и образец, и коллиматор расположены далеко от источника СИ, дефекты в обоих кристаллах выявляются на топограмме при почти одинаково хорошем разрешении.

4. Благодаря очень высокой интенсивности СИ время экспозиции на ядерные фотопластинки обычно составляет десять минут, тогда как в условиях лаборатории экспозиции на такую медленную эмульсию могут длиться по нескольку дней. Это уменьшение времени важно, в частности, для получения топограмм деформированных кристаллов, регистрируемых путем многократных экспозиций.

Следующим важным следствием малого размера источника и низкой расходимости является возможность реализации топографии «слабого пучка». Получение изображений в слабом пучке — это стандартный метод в электронной микроскопии, когда образец устанавливается далеко от брэгговского пика. И тогда только та область, в которой плоскости решетки вокруг дефекта будут повернуты в точное брэгговское положение, создаст рассеянную интенсивность. Так как поле деформации спадает с увеличением расстояния, объем, участвующий в дифракции, быстро уменьшается и поэтому изображение быстро сужается. Топография в слабом пучке прежде широко не применялась, потому что ранние синхротронные установки имели большие размеры источников. Однако в случае источников третьего поколения этот метод работает хорошо, и его эффективность уже была продемонстрирована на ESRF [35]. Путем использования программы расчета [36], разработанной для брэгговской геометрии отражения, было исследовано изменение ширины изображения при отклонении от положения

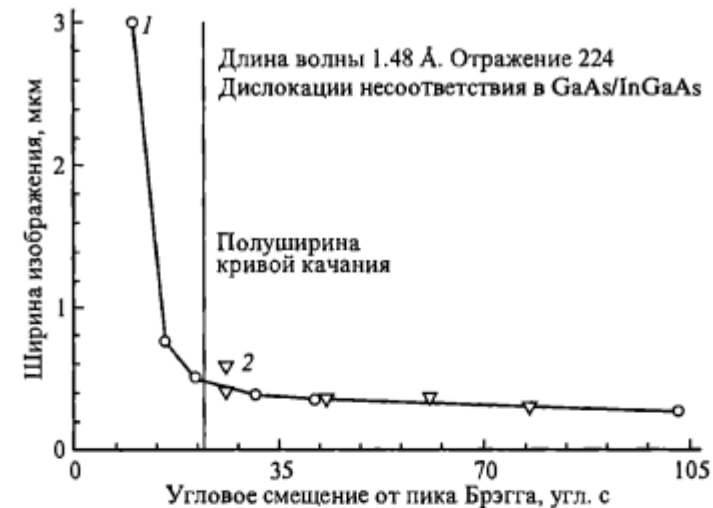


Рис. 10.15. Рассчитанная ширина изображения как функция параметра отклонения в случае Брэгга на топограммах в слабом пучке.

Здесь образец установлен за пределами брэгговского пика, и изображение дефекта появляется только тогда, когда плоскости решетки испытывают локальный поворот или дилатацию, возвращающие их назад в брэгговское положение. Так как это имеет место только поблизости от ядра дислокации, изображения заужены по сравнению с изображениями, отвечающими условиям сильного пучка.

1 — изображения, рассчитанные по уравнениям Такаги; 2 — данные из экспериментов с жестким излучением.

Брэгга. Видно, что изображение быстро сужается приблизительно до двух областей отражения совершенного кристалла, но после этого его ширина уменьшается довольно медленно. Интенсивность продолжает понижаться, и при больших отклонениях выигрыша почти нет (рис. 10.15).

10.5.5. Примеры применения синхротронного излучения в двухкристалльной топографии

Наиболее раннее применение синхронного излучения в двухкристалльной топографии имело место в Центре по использованию синхротронного излучения (LURE) в Орсе (Франция) и заключалось в исследовании дислокаций несоответствия в эпитаксиальных слоях GaAlAs на GaAs [37] при помощи сконструированного Хашицумой элегантного кристаллического коллиматора, фиксирующего длину волны и имеющего малую расходимость. Изображения дислокаций в брэгговской геометрии сравнивались с рассчитанными, и было обнаружено блестящее соответствие [38]. Двухкристалльная топография имеет то преимущество, что изображения подложки и эпитаксиального слоя могут быть получены отдельно и определение дефектов может быть проведено в каждом случае. Позднее в Daresbury в результате исследования тонких слоев InGaAs на GaAs было изучено, как зарождаются дислокации несоответствия в этой сильно деформированной системе. Этот результат имеет огромное технологическое значение. Значительная релакса-

ция напряжений делает оптоэлектронные приборы непригодными к работе, и поэтому чрезвычайно важно понять механизмы образования дислокаций несоответствия, которые ответственны за релаксацию. Начальная стадия релаксации может быть крайне анизотропной, как видно на рис. 10.16. Считалось, что это обусловлено различной подвижностью дислокаций в двух типах плоскостей скольжения в соединениях III—V групп.

Однако *in situ*-исследования показали, что дислокации несоответствия, которые зарождаются на начальной стадии, являются не только дислокациями 60-градусного типа с наклонными векторами Бюргерса, но также и быстрыми дислокациями α -типа [39]. Из этих исследований, проведенных на материале с очень низкой плотностью дислокаций, полученном методом вертикального градиента затвердевания, стало очевидно, что анизотропия дислокаций несоответствия возникает из-за анизотропии в распределении векторов Бюргерса в кристаллах, выращенных стандартным тигельным методом из расплава по Чохральскому. Эти измерения дали четкое подтверждение механизма генерации дислокаций несоответствия, предложенного Мэттьюзом и Блэксли [40]. Наблюдались две критические толщины, одна — для начальной стадии зарождения дислокаций несоответствия и другая (при существенно большей толщине слоя) — для размножения дислокаций несоответствия.

В свою очередь *in situ*-эксперименты по пластической деформации в полупроводниках были проведены в СИ-центре LURE Жоржем и коллегами. Эксперименты по растяжению под нагрузкой были выполнены на кристаллах InP, легированных серой [41], в температурном интервале 548—648 К. В этой области, где InP пластичен, были измерены скорости винтовых и 60-градусных дислокаций, причем из температурной зависимости была получена энергия активации 1.7 эВ. Оказалось, что скорость 60-градусных дислокаций существенно зависела от ориентации относительно поверхности кристалла. Эта особенность не нашла удовлетворительного объяснения до сих пор. Исследования GaAs и Si были посвящены изучению хрупкости, пластичности у вершины трещины и перехода из хрупкого состояния в пластическое. Приготовленные образцы содержали специальный желобок, который затем нагружался таким способом, что фактор интенсивности напряжения, приложенного к вершине трещины, увеличивался с постоянной скоростью. Было обнаружено, что переход из хрупкого состояния в пластическое чрезвычайно резкий [42], что можно связать с быстрым изменением в скоростях дислокаций.

Следует отметить важную особенность экспериментов в двухосевой топографии, заключающуюся в том, что в тех случаях, когда площадь пучка большая, измеренные ширины кривых качания необязательно собственные. Например, рассогласованные эпитаксиальные слои искривляют пластины подложек на величину, которая зависит от степени рассогласования и толщины слоя. На топограммах таких искривленных пластин присутствуют полосы дифрагированной интенсивности, и часто имеется возможность получить изображения в рефлексах как подложки, так и эпитаксиального слоя от различных частей образца на одной фотопластинке. Эти полосы интенсивности можно использовать, чтобы построить распределение дальности деформации в несовершенных кристаллах, делая много-

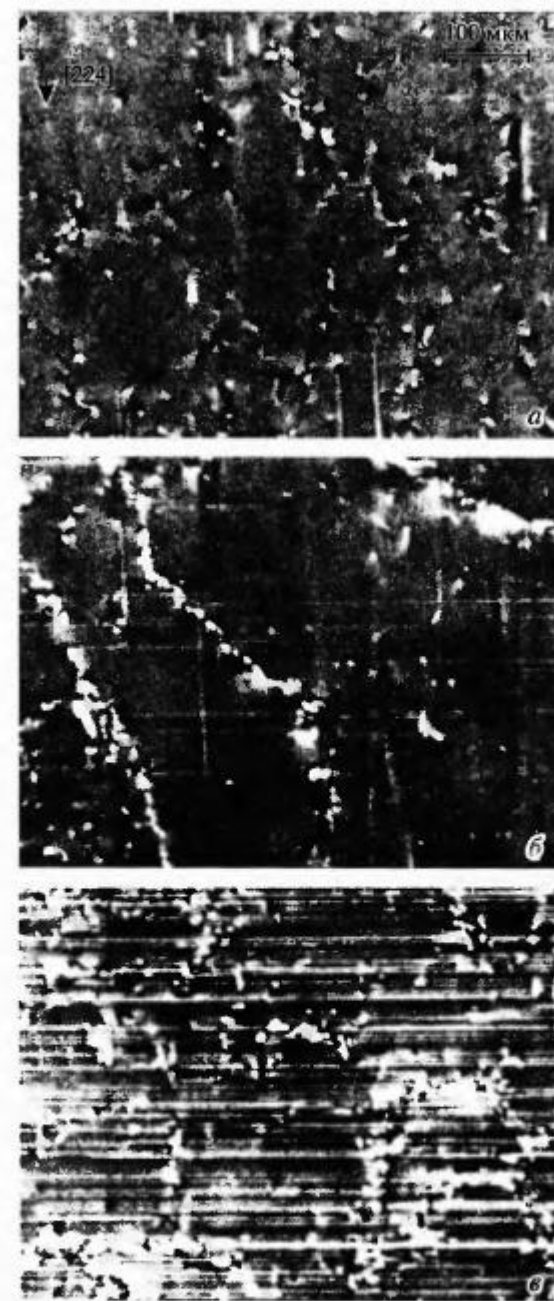


Рис. 10.16. Двухкристальные топограммы дислокаций несоответствия в InGaAs на подложке GaAs: ниже (а), при (б) и выше (в) критической толщины релаксации.

кратные экспозиции на одну фотопластинку при поворотах образца с постоянным угловым шагом между экспозициями.

Этот метод, впервые разработанный Реннингером [43] при использовании лабораторного оборудования, был применен для изучения связи между дефектами, соответствующими электрически активным глубоким уровням EL2, и совершенством решетки в полужолирующем GaAs [44]. Ишикава с соавторами [45] осуществили плоскостную топографию с разделенными монохроматором и коллиматором в (+, +)-установке, чтобы получить красивые «картины-зебры» полос, когда разные части кристалла участвуют в дифракции при последовательных угловых поворотах образца. В пластине GaAs с ориентацией (001) наблюдалась деформация двойной симметрии в случае, когда материал GaAs, легированный In, имел сильно деформированную область, возникшую вследствие сегрегации примеси. Для того чтобы различить разориентацию и дилатацию, требуется две серии картин-«зебр». Если только позволяет симметрия кристалла, простейшая схема заключается в том, чтобы повернуть кристалл на 180° вокруг нормали к поверхности. Тогда для одной системы контуров разориентации и дилатации будут складываться, для другой — вычитаться. Таким способом можно определить отдельные контуры для разориентации и дилатации. Билелло с соавторами [46] применили аналогичный метод на двухкристальной станции в NSLS, Брукхэвен, чтобы измерить деформации вокруг трещин в усталостных бикристаллах цинка. Путем использования нескольких систем брэгговских контуров в двухосевой геометрии им удалось восстановить полное поле тензора деформации вокруг трещин. Эти эксперименты доказывают, что рентгеновская топография, имеющая высокую угловую чувствительность, но низкое пространственное разрешение, может применяться вне границ высокосовершенных кристаллов. Их работа является блестящим примером того, как рентгеновская топография со свойственной ей очень высокой чувствительностью к деформации может быть применена к сильно деформированным материалам. Рентгеновская топография полезна не только для исследования высокосовершенных монокристаллов.

С другой стороны, важное значение высокосовершенных кристаллов для развития полупроводниковой промышленности Японии привело к тому, что значительные усилия были направлены на проведение исследований по повышению чувствительности к микродеформациям. Во всех этих экспериментах использовался один или более кристаллических коллиматоров для формирования псевдоплоской волны-пучка с угловой расходимостью, много меньшей, чем область отражения образца. Чикаура, Имаи и Ишикава [47] применили асимметрично вырезанный кристалл-коллиматор, чтобы получить пучок с расходимостью 0.59°, что меньше чем 0.3° от области отражения образца, но последующие эксперименты значительно ее улучшили [48]. В качестве примера применения оборудования на «Фотонной фабрике» («Photon Factory») сошлемся на работу Матсуи с коллегами [49] из NEC, которые измерили поля деформации, связанные с микродефектами D-типа. Эксперименты с такими высококоллимированными пучками, имеющими низкую дисперсию длин волн, используют только очень малую долю падающего рентгеновского потока, и поэтому, чтобы времена экспозиции были практически приемлемыми, необходимы источники СИ второго и третьего

поколений. Отметим, однако, что чрезвычайно малый размер источника, достигнутый теперь на ESRF, означает, что расходимость пучка на топографической станции всегда меньше одной угловой секунды.

10.5.6. Трехосевая топография

Разориентации и дилатации в двухкристальном варианте можно различить только при использовании более чем одного отражения с последующим построением поля деформации. Прямой метод получения карт разориентации и дилатации заключается в применении кристалла-анализатора после образца. В истинной трехосевой геометрии (рис. 10.17) анализатор выбирает рассеянную интенсивность из малого объема обратного пространства. Легко видеть, что если анализатор фиксирован и сканируется только образец, то уширение кривой качания возникает единственно из-за разориентаций решетки. Путем регистрации топограммы во время сканирования образца по всей кривой качания на топограмме получается полоса интенсивности, которая соответствует контуру *постоянной дилатации* плоскостей решетки [50]. Последовательные перемещения анализатора дают возможность построить полные контурные карты дилатации методом многократных экспозиций, описанным выше. Такие эксперименты практически невозможны в лаборатории из-за очень длительных экспозиций, но они вполне выполнимы на источниках СИ.

Китано с соавторами [51] применил метод трехосевой топографии для анализа разориентаций и дилатаций вокруг ростовых дислокаций в объемных кристаллах GaAs. Чтобы снять большую часть тепловой нагрузки, возникающей в эксперименте, было использовано отражение 111 от охлаждаемого водой кристалла кремния, причем два последующих асимметричных отражения 553 были выбраны потому, что их межплоскостное расстояние почти такое же, как для отражения 008 от образца GaAs. Анализатором был симметрично вырезанный кристалл кремния в отражении 553. При помощи этой схемы им удалось измерить изменения постоянной решетки в областях с различными дислокационными конфигурациями. Вблизи стенок ячеек межплоскостное расстояние уменьшалось, в то время как там, где дислокации взаимодействовали с поверхностью кристалла, межплоскостное расстояние увеличивалось. Причины этих изменений не вполне понятны, но можно полагать, что они обусловлены различной концентрацией точечных дефектов.

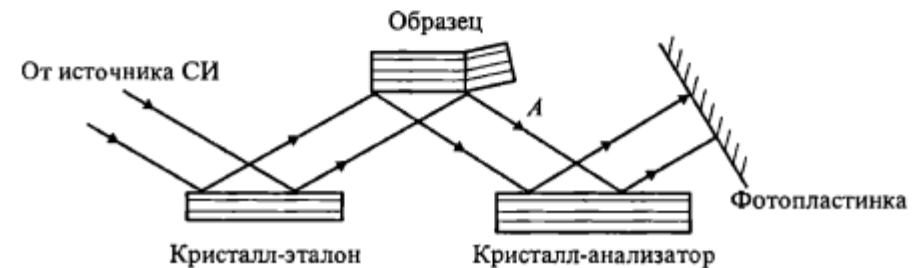


Рис. 10.17. Схематическая диаграмма расположения кристаллов в трехосевой топографии.

В настоящее время рентгеновская топография в синхротронном излучении является хорошо разработанным методом получения изображений и измерения деформаций в кристаллических материалах. Продолжающееся развитие источников на накопительных кольцах ведет к постоянному расширению их возможностей. Вполне вероятно, что наиболее значительные достижения в ближайшем будущем появятся в результате усовершенствования технологии производства детекторов излучения.

Литература

1. Tuomi T., Naukkarinen K., Rabe P. // *Phys. Stat. Sol. (a)*. 1974. Vol. 25. P. 93.
2. Hart M. // *J. Appl. Crystallogr.* 1975. Vol. 8. P. 436.
3. Bowen D. K., Tanner B. K. // *Materials Science Reports*. 1992. Vol. 8. P. 369.
4. Barrett R., Baruchel J., Härtwig J., Zontone F. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1995. Vol. 28. P. A250.
5. Revol C., Baruchel J., Bellet G., Marot G., Théveneau P., Zontone F. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1995. Vol. 28. P. A262.
6. Guinier A., Tennevin G. // *Acta Crystallogr.* 1949. Vol. 2. P. 133.
7. Schulz L. G. // *J. Metals*. 1954. Vol. 6. P. 1082.
8. Tanner B. K., Midgley D., Safa M. // *J. Appl. Crystallogr.* 1977. Vol. 10. P. 281.
9. Authier A. // *Adv. X-ray Analysis*. 1967. Vol. 10. P. 9.
10. Miltat J., Bowen D. K. // *J. Appl. Crystallogr.* 1975. Vol. 8. P. 657.
11. Miltat J., Dudley M. // *J. Appl. Crystallogr.* 1980. Vol. 13. P. 555.
12. Stock S. R., Chen H., Birnbaum H. // *Phil. Mag. A*. 1986. Vol. 53. P. 73.
13. Machado W. G., Moore M., Lang A. R. // *J. Crystal Growth*. 1985. Vol. 71. P. 718.
14. Tuomi T., Tilli M., Anttila O. // *J. Appl. Phys.* 1985. Vol. 57. P. 1384.
15. Hondoh T., Goto A., Hoshi R., Ono T., Anzai T., Kawase R., Pimienta P., Mae S. // *Rev. Sci. Instr.* 1989. Vol. 60. P. 2494.
16. Suzuki S., Ando M., Hayakawa K., Nittono O., Hashizume H., Kishino S., Kohra K. // *Nucl. Inst. Meths.* 1984. Vol. 227. P. 584.
17. Hondoh T., Iwamatsu H., Mae S. // *Phil. Mag. A*. 1990. Vol. 62. P. 89.
18. Higashi A., Fukuda T., Hondoh K., Goto K., Amaki S. // *Dislocations in solids* / Eds H. T. Suzuki, K. Ninomiya, K. Sumino, S. Takeuchi. University of Tokyo Press. 1985. P. 511.
19. Ahmad S., Ohtomo M., Whitworth R. // *Nature*. 1987. Vol. 319. P. 659.
20. Ahmad S., Whitworth R. // *Phil. Mag. A*. 1988. Vol. 57. P. 749.
21. Shearwood C., Whitworth R. W. // *J. Glaciology*. 1989. Vol. 35. P. 281.
22. Shearwood C., Whitworth R. W. // *Phil. Mag. A*. 1992. Vol. 65. P. 85.
23. Tanner B. K. // *Science Progress (Oxford)*. 1981. Vol. 67. P. 411.
24. Safa M., Tanner B. K. // *Phil. Mag. B*. 1978. Vol. 37. P. 739.
25. Gastaldi J., Jourdan C., Grange G., Bauer C. L. // *Phys. Stat. Sol. (a)*. 1988. Vol. 109. P. 403.
26. Gastaldi J., Jourdan C., Grange G. // *Phil. Mag. A*. 1988. Vol. 57. P. 971.
27. Grange G., Gastaldi J., Jourdan C., Billia B. // *J. Crystal Growth*. 1995. Vol. 151. P. 192.
28. Miltat J., Kleman M. // *J. Appl. Phys.* 1980. Vol. 50. P. 7695.
29. Whatmore R. W., Goddard P. A., Tanner B. K., Clark G. F. // *Nature*. 1989. Vol. 299. P. 44.
30. Gluer C.-C., Graeff W., Moller H. // *Nucl. Inst. Meths.* 1983. Vol. 208. P. 701.
31. Cerva H., Graeff W. // *Phys. Stat. Sol. (a)*. 1984. Vol. 82. P. 35.
32. Cerva H., Graeff W. // *Phys. Stat. Sol. (a)*. 1985. Vol. 87. P. 507.
33. Zarka A., Capelle B., Detaint J., Schwartzel J. // *J. Appl. Crystallogr.* 1988. Vol. 21. P. 967.
34. Bonse U. // *Direct observations of imperfections in crystals* / Eds J. B. Newkirk, H. Wernick. New York: Wiley, 1962. P. 431.
35. Zontone F. // *Thesis*. University of Grenoble, 1995.
36. Spirkel W., Tanner B. K., Whitehouse C., Barnett S. J., Cullis A. G., Johnson A. D., Keir A., Usher B., Clark G. F., Hogg C. R., Lunn B., Hagston W. // *Phil. Mag. A*. 1994. Vol. 69. P. 221.
37. Petroff J. F., Sauvage M., Riglet P., Hashizume H. // *Phil. Mag. A*. 1980. Vol. 42. P. 319.
38. Riglet P., Sauvage M., Petroff J. F., Epelboin Y. // *Phil. Mag. A*. 1980. Vol. 42. P. 339.
39. Barnett S. J., Keir A. M., Cullis A. G., Johnson A. D., Jefferson J., Smith G. W., Martin T., Whitehouse C. R., Lacey G., Clark G. F., Tanner B. K., Spirkel W., Lunn B., Hogg J. C. H., Hagston W. E., Castelli C. M. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1995. Vol. 28. P. A17.
40. Matthews J. W., Blakeslee A. E. // *J. Crystal Growth*. 1974. Vol. 27. P. 118.
41. George A., Jacques A., Coquille R. // *Inst. Phys. Conf. Ser.* 1985. Vol. 76. P. 439.
42. Michot G., George A. // *Inst. Phys. Conf. Ser.* 1989. Vol. 104. P. 385.
43. Renninger M. // *Z. Angew. Phys.* 1965. Vol. 19. P. 20.
44. Brown G. T., Skolnick M. S., Jones G. R., Tanner B. K., Barnett S. J. // *Semi-insulating III—V materials* // Eds D. C. Look, J. C. Blakemore // Nantwich: Shiva, 1984. P. 76.
45. Ishikawa T., Kitano T., Matsui J. // *Japan. J. Appl. Phys.* 1985. Vol. 24. P. L968.
46. Bilello J. C., Schmitz H. A., Dew-Hughes D. // *J. Appl. Phys.* 1989. Vol. 65. P. 2282.
47. Chikaura Y., Imai M., Ishikawa T. // *Japan. J. Appl. Phys.* 1987. Vol. 26. P. L889.
48. Chikaura Y., Imai M. // *Japan. J. Appl. Phys.* 1990. Vol. 29. P. 221.
49. Kimura S., Ishikawa T., Matsui J. // *Phil. Mag. A*. 1994. Vol. 69. P. 1179.
50. Ishikawa T., Kitano T., Matsui J. // *J. Appl. Cryst.* 1987. Vol. 20. P. 344.
51. Kitano T., Ishikawa T., Matsui J. // *Phil. Mag. A*. 1991. Vol. 63. P. 95.