

05

О возможности определения размера когерентного нановключения и параметра несоответствия кристаллических решеток по темнопольному изображению в просвечивающем электронном микроскопе

© Д.А. Кириленко, С.А. Руколайне, А.А. Ситникова

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

E-mail: zumsisai@gmail.com

В окончательной редакции 24 июля 2007 г.

Идентификация наноразмерных включений по электронно-микроскопическим снимкам, кристаллическая структура которых совпадает со структурой окружающей матрицы, сопряжена со значительными трудностями. Анализ изображений электронной микроскопии высокого разрешения требует весьма значительного объема вычислений и точного знания множества параметров. Известный же способ определения характеристик когерентного включения по его темнопольному изображению применим лишь к относительно крупным выделениям. В настоящей работе описывается возможный способ определения по темнопольному изображению размера и параметра несоответствия кристаллических решеток для включений размером несколько нанометров.

PACS: 61.46.-w, 68.37.Lp, 68.65.Hb, 81.07.Ta

Значительную трудность в диагностике материалов, в том числе и для просвечивающей электронной микроскопии (ТЕМ), представляет определение параметров когерентных нановключений. В силу малого размера включения и согласованности кристаллических структур, появление контраста на изображении обусловлено лишь полем деформаций кристаллической решетки, и, таким образом, на изображении столь малого объекта отсутствуют достаточно четкие контуры, позволяющие очевидным образом определить его размер (рис. 1). В то же время наиболее важной задачей является определение параметра несоответствия кристаллических решеток включения и матрицы, так как он связан с

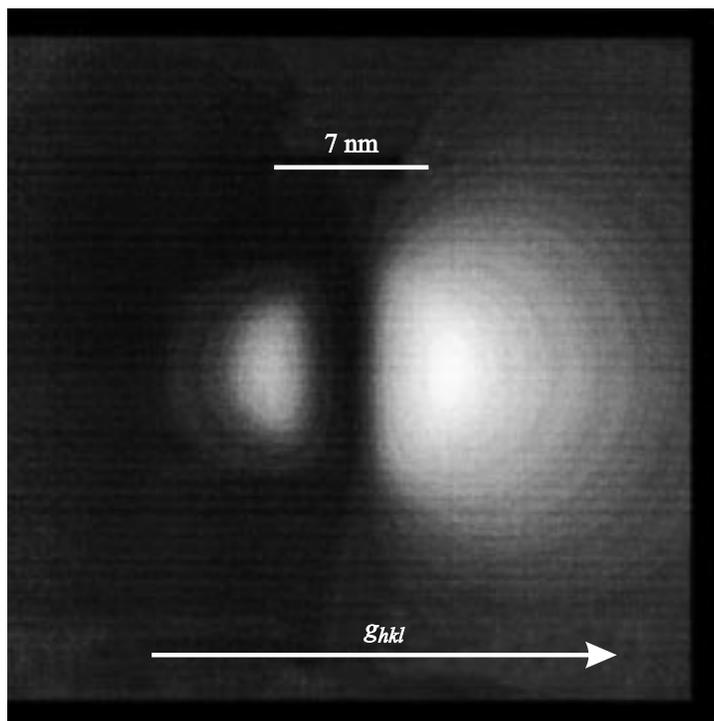


Рис. 1. Расчетное темнопольное ТЕМ-изображение когерентного включения диаметром 7 нм и параметром несоответствия 4%.

разницей в их элементных составах. Способ определения параметра несоответствия, предложенный в [1,2], применим лишь к включениям достаточно большого диаметра — несколько десятков нанометров. В принципе, изображение, полученное для одного дифрагированного пучка (дифракционный контраст), может дать информацию о структуре в нанометровой шкале [3]. Кроме того, моделирование изображений, возникающих при условии возбуждения только одного дифракционного пучка, требует существенно меньшего вычислительного времени, что позволяет анализировать влияние различных параметров на изображение в более широких и в большей степени детализированных

диапазонах их значений. В настоящей работе предлагается способ определения характеристик когерентного включения малого размера (до 10 nm в случае включений Ge в Si) по его темнопольному ТЕМ-изображению, основанный на анализе изображений, построенных с помощью численного моделирования.

Изображения рассчитывались в колонковом приближении для двухлучевого случая с учетом поглощения. Рассматривался только случай точного брэгговского положения, так как в случае малых включений ширина изображения не связана с величиной эффективной экстинкционной длины, что было показано в том числе численными расчетами. То есть параметр отклонения от точного брэгговского положения во всех расчетах полагался равным нулю. Таким образом, интенсивность на нижней поверхности тонкого кристалла, которая проецируется на фотопленку, определяется следующими уравнениями [4]:

$$\begin{cases} \frac{d\Phi_0}{dz} = -\frac{\pi}{\xi_0'} \Phi_0 + \pi \left(\frac{i}{\xi_g} - \frac{1}{\xi_g'} \right) \Phi_g e^{2\pi i \mathbf{g} \mathbf{R}}, \\ \frac{d\Phi_g}{dz} = -\frac{\pi}{\xi_g'} \Phi_g + \pi \left(\frac{i}{\xi_g} - \frac{1}{\xi_g'} \right) \Phi_0 e^{-2\pi i \mathbf{g} \mathbf{R}}, \end{cases} \quad \begin{cases} \Phi_0(0) = 1, \\ \Phi_g(0) = 0, \end{cases} \quad (1)$$

где Φ_0 — амплитуда прошедшего пучка, Φ_g — амплитуда дифрагированного пучка, ξ_g — экстинкционная длина, ξ_g' и ξ_0' — длины поглощения, \mathbf{g} — вектор дифракции, \mathbf{R} — поле смещений атомов кристаллической решетки, обусловленное включением, ось z параллельна пучку. Интересующая нас интенсивность темнопольного изображения есть $|\Phi_g(t)|^2$, где t — толщина просвечиваемой пленки.

Поле смещений полагалось соответствующим модели сферического включения в изотропной сплошной упругой среде:

$$\mathbf{R} = \begin{cases} \delta \mathbf{r}; & |\mathbf{r}| \leq \frac{D}{2}, \\ \delta \left(\frac{D}{2|\mathbf{r}|} \right)^3 \mathbf{r}; & |\mathbf{r}| > \frac{D}{2}, \end{cases} \quad (2)$$

$$\delta \approx \frac{2}{3} \varepsilon, \quad (3)$$

где \mathbf{r} — радиус-вектор, откладываемый от центра включения, который находится на расстоянии h от верхней границы тонкого кристалла; D — диаметр включения; ε — параметр несоответствия. Коэффициент

δ зависит от соотношения упругих констант материала включения и матрицы, но обычно мало отличается от $2/3\varepsilon$. Это приближение вносит лишь незначительную погрешность в результат определения параметра несоответствия, что не существенно на фоне допущения непрерывной изотропной среды.

Изображение включения зависит от множества параметров. Особенно важна зависимость от глубины его залегания в тонком кристалле и его толщины. Из характеристик когерентного нановключения определяющую роль в формировании изображения играют его диаметр и параметр несоответствия кристаллических решеток, т.е. изображение содержит в себе информацию об этих параметрах.

Стоит отметить, что наиболее сильный контраст возникает при толщинах тонкого кристалла, кратных половине экстинкционной длины. Это отличает случай нановключений, когда контраст определяется деформациями, от случая достаточно больших включений, в котором существенное влияние на контраст оказывает различие структурных факторов рассеяния.

Определение размера является первичной задачей, так как оно, как будет показано, и в случае нановключений не требует знания параметра несоответствия.

Рассмотрим профили интенсивности, рассчитанные по (1) вдоль линии, проходящей через центр включения на изображении и параллельной вектору дифракции того брэгговского отражения, в котором получено данное темнопольное изображение. На рис. 2 представлены характерные профили, построенные для двух различных размеров включения и двух различных толщин просвечиваемого кристалла. Пространственные величины выражены в единицах экстинкционной длины ξ_g матрицы, которая, например, в случае Si для отражения $\{111\}$ при ускоряющем напряжении 100 kV составляет 60 nm. Из профилей видно, что включение представлено либо провалами интенсивности на общем фоне, либо пиками, в зависимости от толщины просвечиваемого кристалла t . Изменение глубины залегания включения в пленке h не влияет ни на характер контраста, ни на положение пиков/провалов, а влияет лишь на величину их интенсивности. Видно, что минимумы интенсивности совпадают по положению с максимумами, т.е. толщина t также не влияет на них. Существенно, что координаты максимумов/минимумов практически равны радиусу включения (0.05 для $D = 0.1\xi_g$ и 0.08 для $D = 0.16\xi_g$), т.е. расстояние между ними

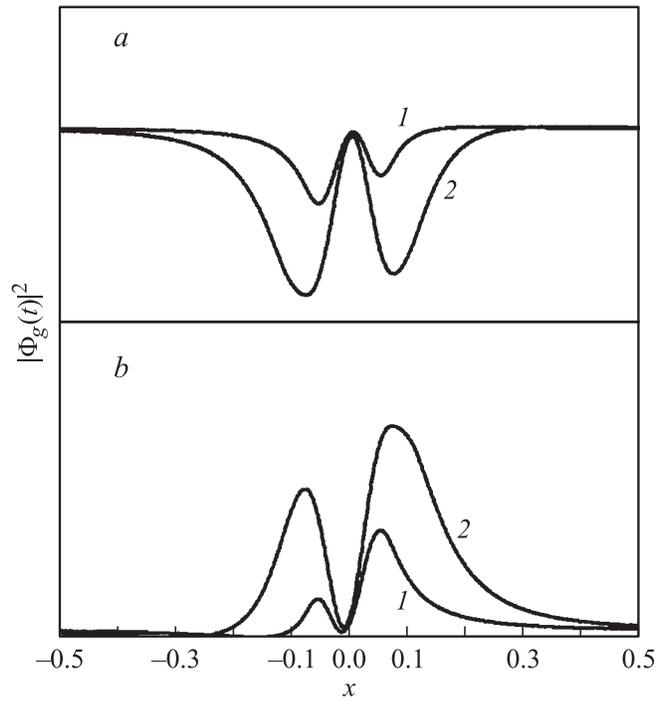


Рис. 2. Профили интенсивности темнопольных ТЕМ-изображений включений для различных диаметров (1 — $D = 0.08 \xi_g$ и 2 — $D = 0.16 \xi_g$) и толщин тонкого кристалла: *a* — $t = 1.5$, $h = 0.5$; *b* — $t = 1$, $h = 0.5$.

совпадает с его диаметром. Таким образом, положение максимума контраста на изображении соответствует положению границы включения. Из этого рассмотрения следует, что размер включения будет определяться по расстоянию между центрами пятен, а не между их краями.

Это соответствие имеет место практически независимо от параметра несоответствия (будет показано далее) и диаметра вплоть до некоторого предельного размера включения (10 nm в случае изображений включений чистого Ge в Si, полученных в отражении {111}). В целом размер включений, для которых выполняется данное соответствие,

определяется следующим неравенством:

$$\varepsilon gD < 1. \quad (4)$$

Это неравенство вытекает из простой оценки влияния этих параметров на характер изображения и подтверждается численными расчетами. Таким образом, для меньших параметров несоответствия, чем в случае Ge в матрице Si, допустимый размер включений будет больше и может достигать десятков нанометров, например, для других материалов.

С увеличением размера экстремумы контраста начинают раздвигаться и изображение начинает приобретать „полосчатый“ вид, характерный для включений достаточно большого диаметра [1,2]. В этом случае положение максимума контраста перестает соответствовать границе.

Таким образом, измеряя расстояние между экстремумами на изображении нановключения, мы, фактически, измеряем его диаметр. Основное достоинство данного способа заключается в его безразличии к параметру несоответствия и к расположению включения по толщине тонкого кристалла.

На рис. 3 представлены профили интенсивности для включения фиксированного размера, рассчитанные для двух различных значений параметра несоответствия ε . Видно, что с увеличением ε изображение качественно не меняется, лишь увеличивается пропорционально ему интенсивность пиков относительно фона, т.е. контраст изображения. Этим случай нановключений отличается от случая включений достаточно большого размера, когда с ростом параметра несоответствия происходит значительное уширение изображения, и, таким образом, ширина может использоваться для определения [1]. В случае нановключений параметр несоответствия можно определить лишь по величине интенсивности, сравнивая измеренные профили с расчетными. Определение ε требует, кроме знания размера включения, также предварительного определения глубины его залегания и толщины пленки, так как величина контраста существенно зависит в том числе и от них.

Таким образом, размер включения можно определить по расстоянию между точками максимального контраста на его изображении, поскольку их положение соответствует его границе. Это соответствие имеет место независимо от всех прочих параметров вплоть до

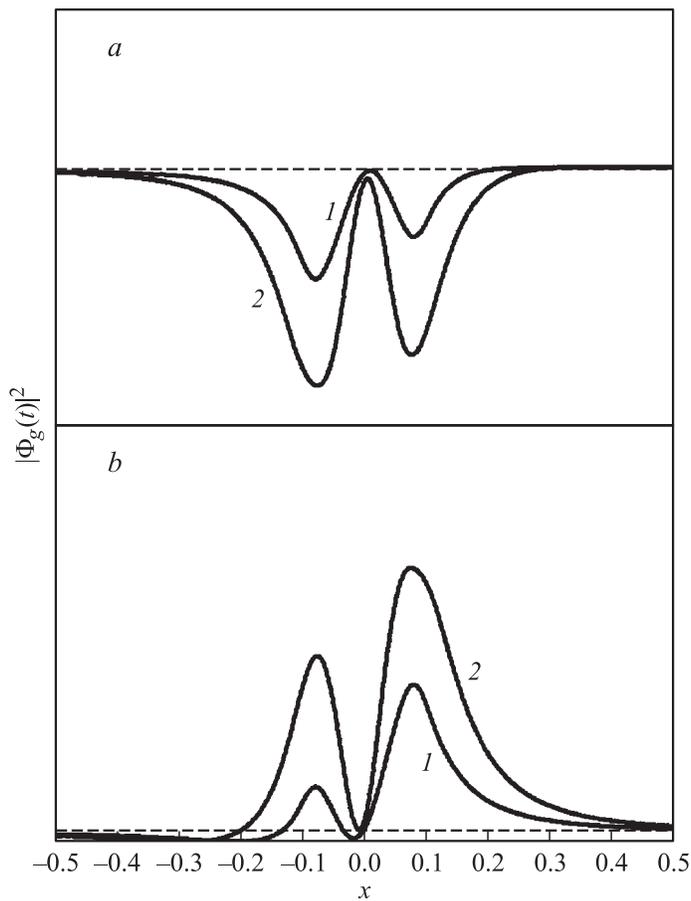


Рис. 3. Профили интенсивности темнопольных ТЕМ-изображений включения диаметром $D = 0.16 \xi_g$ для двух параметров несоответствия ($1 - 2\%$, $2 - 4\%$): $a - t = 1.5, h = 0.5$; $b - t = 1, h = 0.5$.

некоторого максимального размера, который определяется простым соотношением ($\varepsilon g D < 1$). В случае включений Ge в Si ($\varepsilon = 4.2\%$) для отражения $\{111\}$ ($g = 3.2 \text{ nm}^{-1}$) согласно соотношению диаметр включения D должен быть меньше 10 nm.

Определение параметра несоответствия кристаллических решеток возможно лишь по величине интенсивности путем сравнения с результатами численных расчетов, выполненных с учетом всех параметров, влияющих на изображение. Задача облегчается тем, что контраст изображения прямо пропорционален параметру несоответствия.

Список литературы

- [1] *Ashby M.F., Brown L.M.* // *Phil. Mag.* 1963. N 8. P. 1083.
- [2] *Ashby M.F., Brown L.M.* // *Phil. Mag.* 1963. N 8. P. 1649.
- [3] *Janssens K.G.F., Vanhellemount J., Maes H.E.* et al. // *Microsc. Semicond. Mater. Conf.* 1995. P. 579.
- [4] *Hirsh P.B., Howie A., Nicholson R.B.* et al. *Electron Microscopy of thin crystals.* London, Butterworths, 1965.