

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СТРУКТУРНЫХ ПАРАМЕТРОВ ТОНКИХ ПЛЕНОК $YBaCuO$ МЕТОДАМИ ВЫСОКОРАЗРЕШАЮЩЕЙ РЕНТГЕНОВСКОЙ ДИФРАКТОМЕТРИИ

© Р.Н.Кютт, Т.С.Аргунова

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия
(Поступила в Редакцию 16 мая 1995 г.)

Комплексом методов одно-, двух- и трехкристальной дифрактометрии проведено исследование структурного совершенства тонких пленок $YBaCuO$, выращенных на подложках $SrTiO_3$, MgO и сапфира методом магнетронного распыления. При помощи однокристалльных измерений идентифицировались c - и a -ориентированные фазы, малоугловые границы и наклон плоскостей пленки относительно подложки. Из двумерного анализа зависимости полуширин трехкристалльных кривых от угла Брэгга путем соответствующего построения были извлечены следующие структурные параметры: разориентация зерен, их размер, микродеформация внутри них. Показано, что преимущественный вклад в уширение кривых дифракционного отражения вносили разориентация зерен и микродеформация. В трехкристальной схеме произведено измерение параметра c и установлено, что он был неизменно больше параметра монокристаллов такого же состава. Из интегральных интенсивностей серии рефлексов 001-007, измеренных в двухкристальной схеме, получены толщины слоев и осуществлена оценка содержания кислорода в пленках.

Кристаллы $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ с нестехиометрией по кислороду, характеризующейся параметром x , обладают сверхпроводящими свойствами при $x < 0.35$. Структурное качество данных соединений успешно контролируется методами рентгеновской дифрактометрии. При этом, однако, следует иметь в виду, что параметры a , b , c их элементарной ячейки зависят от x [1]. Кроме того, координаты катионов вдоль оси c также существенно зависят от содержания кислорода, и, таким образом, величина x влияет на структурные факторы отражений типа $00L$.

До сих пор рентгенодифрактометрическое исследование пленок $YBaCuO$ сводилось в основном к извлечению следующей структурной информации: 1) оценка монокристалличности и монофазности; 2) анализ разориентаций кристаллитов; 3) характеристика структурного совершенства по ширине двухкристалльных кривых дифракционного отражения.

Перечисленные характеристики извлекались из дифрактограмм, измеренных от плоскостей, параллельных границе раздела слой-подложка, и из асимметричных отражений. Для анализа разориентаций вдоль трех некомпланарных осей применялось не только

θ -сканирование, но и φ - (вращение вокруг оси, перпендикулярной поверхности) и χ -сканирование (вращение вокруг оси, параллельной поверхности и лежащей в плоскости рассеяния) [2,3]. Ширина двухкристалльных кривых обычно измерялась для 005-отражений [4,5].

В настоящей работе представлены результаты исследования структурного совершенства пленок YBaCuO комплексом методов рентгеновской дифрактометрии в одно-, двух- и трехкристалльных схемах. Комплексный подход позволил существенно расширить область наблюдаемых структурных параметров. Были определены следующие характеристики: средняя разориентация кристаллитов в пленках, их размер, деформация кристаллитов, величина параметра c , толщина пленок, величина x (проведено также ее сравнение с данными независимого метода).

1. Экспериментальная процедура

Известно, что к основным дефектам слоев $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ относятся малоугловые границы, смесь c - и a -ориентированных фаз, что приводит к одновременному присутствию на рентгеновских кривых максимумов как $00L$ -, так и $H00$ -типов.

Кроме того, источниками нарушений, влияющих на ширину максимумов рентгеновского дифракционного отражения, являются размер когерентно рассеивающих областей или зерен, их разориентация, напряжения внутри них.

Из структурного исследования мозаичных кристаллов известно, что перечисленные типы нарушений могут быть разделены при помощи специальных мод сканирования: малоугловые границы легко выявляются θ -сканированием в однокристалльной схеме; однокристалльная $\theta-2\theta$ -мода традиционно применяется для идентификации фаз; кривые $\theta-2\theta$ -сканирования способны дать оценку величины деформации; θ - и $\theta-2\theta$ -моды несут информацию о размере зерен в двух направлениях.

Две первые процедуры применялись в данной работе традиционным образом. При анализе блочности для определения угла отклонения отражающих плоскостей пленки от соответственных плоскостей подложки использовалось белое излучение. Что касается «разделения вкладов» от трех вышеперечисленных типов нарушений в зернах, то оно проводилось при помощи трехкристалльной дифрактометрии. Благодаря высокому разрешению данного метода появилась возможность измерять разориентацию зерен относительно друг друга, их размер и дилатацию. Мы применили интегрирование рефлексов в двухкристалльной схеме для оценки толщины эпитаксиальных слоев. Параметр слоя вдоль оси c измерялся относительно эталона в трехкристалльной схеме. Остановимся коротко на принципиальных особенностях измерения каждой структурной характеристики.

В процессе измерений в качестве монохроматора и анализатора нами использовались высокосовершенные кристаллы германия и отражение типа 111. Предварительные оценки показали, что как вдоль вектора дифракции, так и в перпендикулярном ему направлении обеспечиваемая схемой величина углового разрешения была существенно меньше, чем полуширина рентгеновских максимумов исследованных структур. Поскольку в трехкристалльной дифрактометрии инструментальное уширение является минимальным, пики каждой из двух

мод сканирования могут быть разложены на следующие компоненты. Ширина θ -максимума (W_{\perp}) может быть аппроксимирована сверткой двух составляющих: компоненты, описывающей разориентацию зерен (W_{ω}), и компоненты, соответствующей латеральному размеру зерен (W_g^1) (данная размерная составляющая параллельна границе раздела слой-подложка). θ - 2θ -пик с шириной W_{\parallel} можно представить в виде свертки компоненты микродеформаций с размером зерен вдоль нормали к поверхности пленки (W_{ε} и W_g^2 соответственно). Все вышеперечисленные компоненты по-разному зависят от угла Брегга и могут быть разделены при помощи соответствующего построения. Компонента микродеформаций линейно зависит от брэгговского угла θ_B

$$W_{\varepsilon} = 2\langle\varepsilon\rangle \operatorname{tg} \theta_B. \quad (1)$$

Размерные вклады меняются следующим образом:

$$W_g^1 = \frac{\lambda}{2\tau_1 \sin \theta_B}, \quad W_g^2 = \frac{\lambda}{2\tau_2 \cos \theta_B}, \quad (2)$$

где τ_1 и τ_2 — размеры когерентно рассеивающих областей в направлениях, параллельном и перпендикулярном поверхности соответственно. Давая возможность извлечь средний размер зерен, формулы (2) не позволяют сказать что-либо относительно распределений по размерам. Из формул видно, что изменение полуширин, обусловленное размерным вкладом, будет заметнее для тех рефлексов, брэгговские углы которых меньше.

Измерение параметра c относительно эталона производилось следующим образом. Настроив падающий пучок при помощи кристалла-эталона (Si 220 для 006 YBaCuO и InSb 111 для 003 YBaCuO), мы заменили эталон на исследуемый кристалл, сдвигая при этом анализатор в положение нового максимума отражения. Величина сдвига пересчитывалась в разницу межплоскостных расстояний образца и эталона. Положение пиков в данной схеме фиксируется с точностью не хуже чем 5 – $10''$, и соответственно ошибка в величине параметра $\delta c/c$ не превышает 10^{-4} .

Для определения толщины слоев измеренные величины интегральной интенсивности подставлялись в известное выражение кинематической теории [6]

$$r_i = \frac{\pi^2 |\chi_h|^2 e^{-2M}}{\lambda \sin 2\theta_B} [1 - \exp(-2\mu_0 t / \sin \theta_B)]. \quad (3)$$

Исследованные пленки YBa₂Cu₃O_{7-x} толщиной от 100 до 600 нм были выращены на подложках SrTiO₃, MgO и сапфира методом магнетронного распыления. Для оценки структурного качества выбирались только те образцы, плотность критических токов которых была не меньше 10^7 А·см⁻². Предварительные результаты получены на однофазных пленках. Структурные дефекты подложек (малоугловые границы, дислокации и их ансамбли, а также поверхностные нарушения) выявлялись методами рентгеновской дифракционной топографии.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

1) Использование однокристалльной схемы. Прежде всего однокристалльная схема использовалась для определения монокристалличности и монофазности исследуемых пленок. На рис. 1 в качестве примера представлена дифрактограмма, измеренная для образца YBaCuO/MgO . Пленка монокристаллическая, о чем свидетельствует наличие на кривых только максимумов типа $00L$. Однако присутствуют также отражения 100 и 200 от a -ориентированной фазы. Однокристалльная схема легко выявляет крупноблочную структуру. Блоки в пленке являются причиной расщепления θ -максимума на несколько пиков. Рис. 2 демонстрирует искажение рефлекса 005; все другие порядки отражения данной пленки были искажены аналогичным образом. Для структур $\text{YBaCuO}/\text{SrTiO}_3$ расщепление θ -пиков наблюдалось как для слоев, так и для подложек, и было установлено соответствие между положениями их максимумов, что говорит о наследовании пленками малоугловых границ, локализованных в подложках. Для данных структур, характеризовавшихся наименьшей величиной несоответствия параметров решеток, ось c пленок «выстраивалась» параллельно c -направлению в подложке.

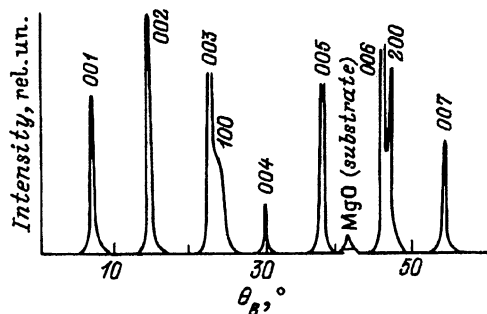


Рис. 1. Дифрактограмма образца YBaCuO/MgO , измеренная в однокристалльной схеме при помощи излучения $\text{CuK}\alpha$.

Кроме $00L$ -рефлексов от c -ориентированной фазы на кривой видны отражения 100 и 200 от a -фазы.

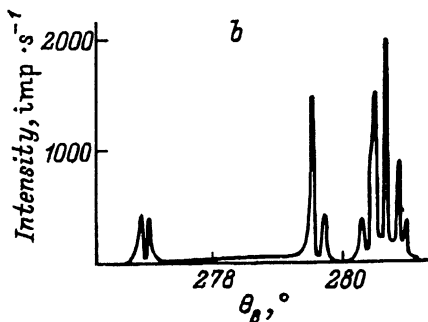
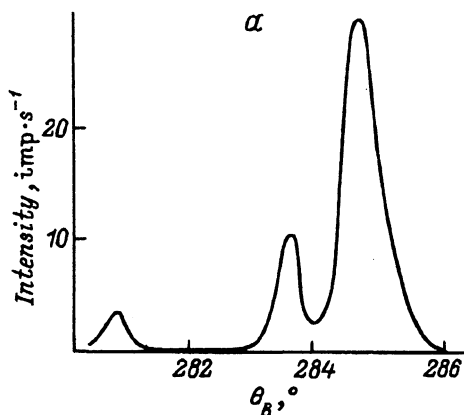


Рис. 2. Однокристалльные кривые θ -сканирования, измеренные для структуры $\text{YBaCuO}/\text{SrTiO}_3$.

a — $005 \text{ CuK}\alpha$ -отражение от слоя YBaCuO , b — $002 \text{ CuK}\alpha$ -отражение от подложки SrTiO_3 . Горизонтальная ось показывает угловые положения исследуемого образца.

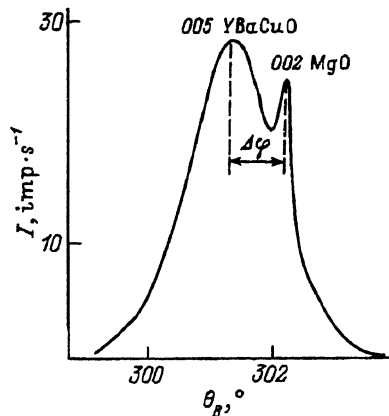


Рис. 3. Однокристалльная θ -кривая для структуры YBaCuO/MgO, демонстрирующая использование белого излучения для анализа блочности.

Вместе с 005-отражением от пленки на ней присутствует 002-рефлекс подложки для волны сплошного спектра, соответствующей тому же брэгговскому углу. Угловое расстояние между пиками пересчитывается в компоненту разориентации блоков.

Для пленок, выращенных на подложках MgO, последнее было не всегда справедливо. Если поверхность MgO подложек была неточно ориентирована, т.е. наклонена по отношению к плоскости типа (001), то рентгеновские измерения демонстрировали параллельность оси с пленки направлению нормали к поверхности подложки; при этом направление типа (001) подложки составляло с осью с YBaCuO некоторый угол. Отражающие плоскости слоя и подложки оказывались разориентированными. Наглядно это можно было видеть на кривых θ -сканирования. На рис. 3 показано 005-отражение от пленки, измеренное с помощью θ -моды, и на этой же кривой присутствует максимум 002 подложки для длины волны сплошного спектра, соответствующей тому же брэгговскому углу. Угловое расстояние между пиками дает проекцию угла разориентации на плоскость рассеяния.

2) Трехкристалльные измерения: анализ полуширин брэгговских рефлексов. Разделение вкладов от различных типов нарушений проводилось путем анализа зависимости полуширины максимумов отражения от угла Брэгга. Анализировались рефлексы, измеренные в двух модах: θ - (W_{\perp}) и $\theta-2\theta$ -сканирования (W_{\parallel}). Экспериментально полученные значения полуширины для одного из образцов YBaCuO/MgO приведены на рис. 4, a, b. Ход их изменения с брэгговским углом показывает, во-первых, преобладающую роль разориентаций в уширении брэгговских рефлексов, а во-вторых, заметный вклад внутренних локальных деформаций, поскольку W_{\parallel} растет почти линейно с $\text{tg } \theta_B$. Однако видно, что в области малых углов Брэгга как для W_{\perp} , так и для W_{\parallel} наблюдается отклонение от линейных зависимостей. Выше было показано, что именно в этой области имеется максимальная чувствительность рефлексов к размеру зерен. Это позволило разложить каждую из величин W_{\perp} и W_{\parallel} на две составляющие и вычислить эффективные размеры зерен τ_1 и τ_2 .

Поскольку каждая из кривых θ - и $\theta-2\theta$ -сканирования представляет собой свертку двух функций, то важное значение имеет выбор закона, по которому осуществляется разделение полуширин W_{\parallel} и W_{\perp} на две компонентны. Ширина свертки двух кривых зависит от закона спада интенсивности на хвостах. Мы сравнили форму экспериментальных кривых с квадратичным и линейным сложением, которые явля-

ются сверткой, соответствующей функциям $1/\exp(-kx^2)$ и $1/(1+kx^2)$. В литературе чаще используется квадратичный закон сложения двух компонент [7,8]

$$(W_{\parallel})^2 = (W_{\varepsilon})^2 + (W_g^2)^2, \quad (W_{\perp})^2 = (W_{\omega})^2 + (W_g^1)^2, \quad (4)$$

хотя встречается и применение линейного. Проверка того или иного предположения может быть осуществлена путем построения зависимостей

$$(W_{\parallel})^2 \cos^2 \theta_B = (W_g^1)^2 + (W_{\varepsilon})^2 \sin^2 \theta_B, \quad (5)$$

$$(W_{\parallel}) \cos \theta_B = (W_g^1) + (W_{\varepsilon}) \sin \theta_B, \quad (6)$$

(и похожим образом для W_{\perp}).

В нашем случае экспериментальные значения как (W_{\parallel}) , так и (W_{\perp}) лучше ложатся на прямую типа (5), так что разделение на составляющие производилось по квадратичному закону, который описывает суммирование двух гауссовых функций. Изменение каждого извлеченного вклада обозначено на рис. 4, *a, b* штриховой линией, а результат их квадратичного сложения — сплошной линией.

В результате проведенного анализа были получены четыре структурных параметра: средняя величина разориентаций $\langle \omega \rangle$, средняя микродеформация $\sqrt{\langle \varepsilon \rangle^2}$ и средний размер зерен τ_1 и τ_2 . Извлеченные значения представлены в табл. 1. Для некоторых образцов размерный эффект был слабым, и размер зерен в них измерить не удалось.

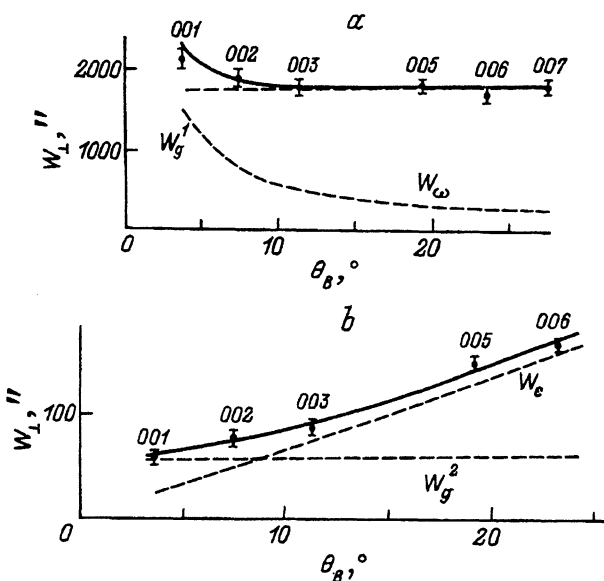


Рис. 4. Зависимость полуширины 00L-отражений, измеренных в трехкристальной схеме, от угла Брэгга.

Использовались две моды сканирования: *a* — θ -сканирование, *b* — $\theta-2\theta$ -сканирование. Сплошная линия — наилучшая подгонка под экспериментальные точки на основе квадратичного разделения вкладов. Извлеченные вклады каждого типа нарушений показаны штриховой линией.

Общие свойства брэгговских рефлексов для YBaCuO пленок аналогичны тем, которые имели место и для других сильно рассогласованных эпитаксиальных систем [7-9]. Однако наличие рефлексов с очень малыми брэгговскими углами расширяет возможности анализа полуширин. При использовании рефлексов малых порядков вклад деформационного уширения в величину (W_{\parallel}) сильно уменьшается, что делает хорошо заметным вклад размера когерентно рассеивающих областей. При анализе величины (W_{\perp}) мы обнаруживаем, что размерный член также возрастает, но уже по абсолютной величине, так как (W_g^1) $\sim 1/\sin \theta_B$. Отсюда следует, что возможность определения величин τ_1 и τ_2 зависит от точности измерения отражений первых порядков 001 и 002. С достаточным разрешением это может быть сделано только с использованием трехкристальной схемы, в которой инструментальное уширение значительно меньше собственных полуширин рефлексов пленки. Что же касается измерения ширины рефлексов в однокристалльной схеме, то построение зависимостей $W_{\parallel}(\theta_B)$ затруднено тем, что наблюдаемые значения W_{\parallel} того же порядка, что и угловые расстояния между K_{α_1} - и K_{α_2} -линиями, которые также пропорциональны $\text{tg } \theta_B$.

Проведенный анализ полуширин и полученные значения величин, представленных в табл. 1, основаны на предположении, что структура пленок может быть описана в рамках приближения мозаичного кристалла. Вопрос о том, насколько хорошо исследованные слои YBaCuO соответствуют этой модели, остается открытым. С одной стороны, очень большие значения средней разориентации (ω) заставляют предположить наличие малоугловых границ между зернами (блоками мозаики). С другой стороны, размеры блоков получаются достаточно большими, при этом их размер в перпендикулярном направлении не отличается от толщины пленки (для толстых пленок размерный вклад в полуширину выделить не удастся). Оказывается, что тангенциальный размер того же порядка, что и нормальный, или больше. Как и в сильно рассогласованных эпитаксиальных структурах других

Таблица 1

Структурные характеристики слоев YBaCuO на различных подложках, измеренные при помощи трехкристальной дифрактометрии

№	Подложка	$\epsilon, 10^{-3}$	$\omega, 10^{-3}$	τ_2, nm	τ_1, nm
462	SrTiO ₃	1.0	3.65	260	>500
468	SrTiO ₃	1.46	3.90		>500
574	MgO	0.76	2.78	160	>700
474	MgO	0.88	3.25	280	200
562	MgO	1.12	9.40	270	>200
556	MgO*	1.93	9.97	110	68
251	MgO	2.24	11.1	190	>180
95	Сапфир	1.96	8.43	210	>200
96	»	2.59	15.5	130	147

*Образец № 556 имел самый тонкий слой YBaCuO.

соединений, основной вклад в продольное уширение вносит деформация дилатационного характера. Однако рентгенодифракционный анализ не дает ответа на вопрос, чем вызваны эти локальные изменения деформации. Одной из причин могут быть дефекты зерен, например хаотически распределенные дислокации, как это имеет место в структурах на основе A^3B^5 [9]. Но такое же искажение вполне может быть следствием нестехиометрии пленки, флуктуаций состава по кислороду как внутри блоков, так и от блока к блоку. Свой вклад в колебания деформации, а также в распределение дифрагированной интенсивности в целом могут внести двойники, тем или иным образом распределенные в пленке. Влияние двойников в структурах $YBaCuO$ на ширину рентгеновских кривых отражения требует специального анализа на основе более широкого набора данных.

При сравнении величин средних деформаций и разориентаций обнаруживается, что $\langle \omega \rangle$ меняется от образца к образцу в гораздо более широких пределах, чем $\langle \epsilon \rangle$, так что отношение ориентационного вклада в уширение к дилатационному колеблется от 2.7 до 20. Очевидно, что образование и структура дислокационных скоплений, присутствием которых отчасти описываются межзеренные границы, в большей степени зависят от условий выращивания (от совершенства подложек, качества обработки их поверхности, от стабильности температуры процесса и т.д.), чем внутренние локальные деформации в пленке. Величина микродеформаций мало менялась не только от образца к образцу, но и между системами, выращенными на различных подложках. Последний вывод кажется странным: весьма заметное увеличение несоответствия параметров решетки при переходе от $YBaCuO/SrTiO_3$ к $YBaCuO/MgO$ не влияло заметным образом на величину микродеформаций.

Для полноты представления распределения дефектов интересно сравнить структурные параметры для c -ориентированной и a -ориентированной фаз. Прежде всего обе полуширины W_{\parallel} и W_{\perp} для образцов со смешанными фазами, как правило, больше, чем для образцов без a -фазы, выращенных в идентичных условиях. Для обеих фаз величина средней разориентации примерно одинакова, тогда как микродеформация c -ориентированной части больше, чем a -ориентированной. Размер зерен W_g^1 , извлеченный из полуширин a -рефлексов, был в три раза больше, чем для c -фазы. Если учесть, что примерно в такое же количество раз отличаются интегральные интенсивности близких рефлексов 003 и 100, то можно сделать вывод о том, что a - и c -ориентированный материалы существуют в виде прослоек, параллельных гетерогранице. Толщины этих подслоев равны $(\tau_{\perp})^a$ и $(\tau_{\perp})^c$. Близость значений средних разориентаций может означать, что межзеренные границы «прошивают» подслои обеих фаз. Что касается изменения величины $\langle \epsilon \rangle$, то оно прямо указывает на противоречивость интерпретации дилатационного уширения высокой плотностью прорастающих дислокаций. Существенное различие плотности последних в параллельных границе прослойках трудно представить. В таком случае флуктуации состава по кислороду представляются более логичным объяснением изменения $\langle \epsilon \rangle$. Тем более что известно, что одно и то же изменение x меньше влияет на параметр a , чем на параметр c .

Таблица 2

Параметр c слоев YBaCuO в сравнении с расчетными значениями этой величины для монокристаллов такого же состава (c_{cr})

№	Подложка	c , Å	x^*	c_{cr}^{**} , Å
468	SrTiO_3	11.722		
462	SrTiO_3	11.704		
474	MgO	11.714	0.13	11.689
251	MgO	11.710	0.04	11.676
375	MgO	11.703	0.07	11.680
574	MgO	11.713	0.12	11.687
581	MgO	11.760	0.18	11.694
95	Сапфир	11.695	0.02	11.673
96	»	11.695	0.03	11.675

* Значения x были определены при помощи термоэлектрических измерений [10].

** Значения параметров c монокристаллов рассчитаны при помощи данных, представленных в [11].

3) Определение параметра c . Параметр c решетки пленок YBaCuO определяется из угловых положений рефлексов $00L$. В данной работе межплоскостное расстояние вдоль оси c рассчитывалось из положения отраженного пучка в трехкристальной схеме. Поскольку направление падающего пучка задано кристаллом-монокристаллом, то поворот анализатора, необходимый при замене кристалла-эталона исследуемым образом, фиксирует разницу между углами рассеяния $2\theta_B$ образца и эталона. При таком измерении дифракционный максимум пленки имеет полуширину, определяемую уширением рефлекса в направлении дифракционного вектора, т.е. заметно меньшую, чем интегральная ширина отражения, поэтому положение максимума на шкале анализатора может быть зафиксировано достаточно точно (примерно $5-10''$), и это дает относительную погрешность в определении $\delta c/c = 10^{-4}$.

Для монокристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ значение параметра c , как правило, жестко связано с содержанием кислорода x . Для эпитаксиальных пленок величина межплоскостного расстояния вдоль оси c может отличаться от параметра монокристалла такого же состава вследствие упругой деформации. Упругие напряжения при комнатной температуре могут быть либо остаточными, либо термическими, т.е. вызванными разницей в коэффициентах термического расширения.

В табл. 2 представлены данные во величинах параметров как тонких пленок YBaCuO , так и монокристаллов такого же состава. Приведенные в таблице значения x были получены при помощи термоэлектрических измерений [10]. Параметр c решетки монокристаллов рассчитывался по данным, представленным в [11]. Сравнение приведенных значений показывает, что в слоях, так же как и в монокристаллах, величина c росла вместе с x , но для слоев (c_l) она оставалась неизменно больше, чем для монокристаллов (c_{cr}). Разница значений параметра c между теми и другими попадала в интервал значений $\Delta c = c_l - c_{\text{cr}} = (0.2 - 0.3) \cdot 10^{-2}$ Å.

Подобный эффект уже отмечался ранее [12,13], однако причина его до сих пор остается невыясненной. Во всяком случае это явление нельзя объяснить остаточными напряжениями, так как тогда отклонение параметра c имело бы другой знак (параметры решеток подложек SrTiO_3 и MgO , параллельные гетерогранице, больше, чем параметры a и b YBaCuO). С другой стороны, термические напряжения также привели бы к уменьшению параметра c пленки по сравнению с монокристаллом, поскольку слой YBaCuO имеет наибольший среди указанных соединений коэффициент термического расширения.

4) Определение толщины пленок YBaCuO методом двухкристальной дифрактометрии. Толщина пленок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ рассчитывалась из абсолютных измерений интегральных коэффициентов отражения, которые определялись на дифрактометре в двухкристальной схеме. Рассматривая пленку как мозаичный кристалл, можно рассчитать ее толщину по известной формуле кинематической теории (см. (3)) [6]. Для достаточно тонких пленок интенсивности рефлексов малых порядков усилены по сравнению с монокристаллами вследствие увеличения рассеивающего объема пленки.

После измерения величины τ_i из нее определяется произведение $|F_H|^2 t$, где $|F_H|$ — структурный фактор измеряемого отражения, t — толщина пленки. В структурах стабильного состава этого достаточно для расчета толщины t . Однако для слоев YBaCuO значения структурных факторов заметно меняются в зависимости от содержания кислорода. Изменение величин F_{00L} обусловлено не столько самим кислородом, сколько сдвигом катионов Ba^+ и Cu^+ вдоль оси c [13]. По этой причине для определения толщины пленок целесообразно выбрать отражения со структурным фактором, наименее чувствительным к x . Построив зависимости структурной амплитуды F_{00L} от x для рефлексов 001–007 на основе данных из [11], мы увидели, что наименьшее относительное изменение претерпевают F_{003} и F_{005} . При этом 003-отражение не может быть использовано для пленок на подложках SrTiO_3 , поскольку его угловое положение совпадает с отражением от подложки. Однако чувствительность структурных факторов к концентрации кислорода можно использовать для одновременного определения x и t . Это тем более возможно, что имеются рефлексы, для которых $|F|$ изменяется в противоположных направлениях. В этом случае процедура измерения толщины пленки превращается в серию последовательных приближений. Проведя измерения серии рефлексов 001–007, из величины τ_i по формуле (3) можно определить значения толщины. Далее ищется такое значение x , при котором полученные значения будут согласованы друг с другом, т.е. среднеквадратичная ошибка $\langle \delta t \rangle$ будет минимальной. Извлеченные таким образом значения x приведены в табл. 3. Видно, что они согласуются с данными, взятыми из независимых измерений. Следует признать, что точность определения содержания кислорода не очень велика, поскольку минимум функции $\langle \delta t \rangle(x)$ не очень резкий. Тем не менее из-за невозможности определения x при помощи измерения параметра решетки описанный подход может быть успешно использован хотя бы в качестве приближенной оценки при отсутствии других данных по кислороду.

Значение x было необходимо для определения толщины пленки. Среднеквадратичная ошибка $\langle \delta t \rangle$, извлеченная из измерений всех се-

Толщина слоев YBaCuO и содержание кислорода в них, измеренные из интегральных интенсивностей 00L-рефлексов в двухкристалльной схеме

№	Подложка	Толщина слоя t , nm	x	x^*
462	SrTiO ₃	285 ± 102	0.14	
468	SrTiO ₃	356 ± 71	0.15	
474	MgO	297 ± 48	0.17	0.12
251	MgO	317 ± 32	0.03	0.04
375	MgO	480 ± 60	0.10	0.07
556	MgO	130 ± 36	0.18	
941	MgO	267 ± 24	0.08	
95	Сапфир	215 ± 50	0.10	0.02
96	»	167 ± 20	0.09	0.03

ми порядков отражения типа 00L, составляла в большинстве случаев величину порядка 10%. Наибольший вклад в ошибку вносит рефлекс 007. Это влияние наблюдалось для структур на разных подложках. Возможно, что такая ошибка связана с использованием при вычислении структурных амплитуд координат атомов Ba и Cu, измеренных методами нейтронной дифракции на поликристаллах [11], положения атомов в которых не достаточно точно соответствуют решетке монокристаллических пленок YBaCuO. Отметим в связи с этим, что из всех измеренных рефлекс 007 наиболее чувствителен к координатам катионов Ba⁺ и Cu⁺.

Таким образом, в настоящей работе тонкие пленки YBaCuO рассматривались как мозаичные кристаллы с преимущественной ориентацией зерен. Применение различных типов сканирования в трехкристалльном режиме позволило извлечь следующие структурные параметры: разориентацию зерен, их размер и микродеформацию внутри них. При помощи комплекса схем были получены также толщины эпитаксиальных слоев, параметр вдоль оси c , содержание кислорода. Кроме ширины максимумов в работе представлен анализ формы кривых отражения. При анализе результатов обнаружилось противоречия с блочной моделью: размер зерен оказался того же порядка, что и толщина слоев, природа микродеформации осталась невыясненной. В данных структурах она является следствием целого ряда факторов: нестехиометрии по кислороду, высокой плотности прорастающих дислокаций, присутствия микродвойников; на данном этапе оценить вклад каждого из них не представляется возможным.

В заключение авторы благодарят А.Б. Шермана за предоставленные образцы.

Список литературы

- [1] Streffler S.K., Lairson B.M., Brawman J.C.A. Appl. Phys. Lett. **57**, 2501 (1990).
- [2] Kromann R., Vase P., Freltoft T., Bilde-Sorensen J.B., Reus R., Andersen N.H. J. Appl. Phys. **71**, 3419 (1992).
- [3] Budai J.B., Young R.T., Chao B.S. Appl. Phys. Lett. **62**, 1836 (1993).
- [4] Cui M., Maiz Z.H. Supercond. Sci. Technol. **4**, 279 (1991).
- [5] Blue C.T. J. Appl. Phys. **72**, 1021 (1992).
- [6] James R.W. The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays. Bell London (1948).
- [7] Ivanov S.V., Altukhov P.D., Argunova T.S., Bakun A.A., Budza A.A., Chaldyshev V.V., Kovalenko Yu.A., Kop'ev P.S., Kutt R.N., Melster B.Ya., Ruvimov S.S., Shaposhnikov S.V., Sorokin L.M., Ustinov V.M. Semicond. Sci. Technol. **8**, 347 (1993).
- [8] Кютт Р.Н., Шольц Р., Рувимов С.С., Аргунова Т.С., Будза А.А., Иванов С.В., Копьев П.С. ФТТ **35**, 3, 724 (1993).
- [9] Кютт Р.Н., Сорокин Л.М., Аргунова Т.С., Рувимов С.С. ФТТ **36**, 9, 2700 (1994).
- [10] Гасумянц В.Е., Козьмин С.А., Кайданов В.И., Смирнов В.И., Байков Ю.М., Степанов Ю.П. Сверхпроводимость **4**, 1280 (1995).
- [11] Jorgensen J.D., Veal B.W., Paulikas A.P., Nowicki L.J. Phys. Rev. **B41**, 1836 (1990).
- [12] Yeh J.J. Appl. Phys. Lett. **54**, 1163 (1989).
- [13] Eom C.B., Sun J.Z., Yamamoto K., Marshall A.F., Luther K.E., Geballe T.H., Laderman S.S. Appl. Phys. Lett. **55**, 595 (1989).