

05

Диффузное рассеяние рентгеновских лучей от кристалла, промодулированного поверхностной акустической волной

© В.И. Пунегов, Д.В. Казаков, Д.В. Иржак,
Д.В. Пунегов, Д.В. Роцупкин, Я.И. Нестерец

Коми научный центр УрО РАН, Сыктывкар, Россия
Сыктывкарский государственный университет, Россия
Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых
материалов РАН, Черноголовка, Россия
CSIRO Manufacturing and Infrastructure Technology,
Victoria 3169, Australia
E-mail: punegov@syktsu.ru

Поступило в Редакцию 4 сентября 2006 г.

Рассмотрено формирование диффузного рассеяния рентгеновского излучения в кристалле, промодулированном поверхностной акустической волной (ПАВ). Показано, что угловое распределение диффузного рассеяния зависит от величины градиента изменения амплитуды ультразвуковой волны в глубь кристалла и формируется не только вблизи основного дифракционного пика, но и вокруг дифракционных сателлитов. Теоретические карты распределения интенсивности рассеяния в обратном пространстве сравниваются с экспериментальными результатами.

PACS: 61.10.-I, 61.10.Dp, 77.65.Dq

В реальных кристаллах разные типы несовершенства нарушают идеальную периодичность решетки. Если эти нарушения носят случайный характер, например, при наличии в объеме кристалла хаотически распределенных дефектов, то процесс дифракции рентгеновских лучей неизменно сопровождается выходом диффузного рассеяния [1]. С другой стороны, нарушения идеальной периодичности кристаллической решетки могут иметь неслучайный характер, например, при распространении поверхностной акустической волны (ПАВ), которая оказывает существенное влияние на рассеяние рентгеновских лучей, в первую очередь на ее когерентную компоненту в виде возникновения дифракционных сателлитов вокруг основного дифракционного максимума [2]. Поскольку

приборы на основе ПАВ широко применяются в различных областях человеческой деятельности, например, современных телекоммуникационных системах [3], то исследование кристаллов с ультразвуковой модуляцией неразрушающими рентгенодифракционными методами представляет весьма актуальную задачу.

В настоящее время дифракция рентгеновских лучей на кристаллах с ПАВ интенсивно исследуется теоретически и экспериментально [4–6]. Однако эти исследования проводятся в рамках так называемого когерентного приближения. До сих пор влияние ПАВ на процесс диффузного рассеяния рентгеновских лучей не изучено. Поэтому цель данной работы состоит в развитии теории диффузного рассеяния на акустически промодулированном кристалле применительно к методу трехкристальной дифрактометрии [7,8] с последующим сопоставлением теоретических расчетов с экспериментальными измерениями.

Так как поверхностная акустическая волна проникает в глубь кристалла на относительно небольшую глубину порядка нескольких микрон, то диффузное рассеяние можно рассматривать в кинематическом приближении без учета вторичной экстинкции. Пусть $\mathbf{k}_{0,h}$ — волновые векторы падающего и отраженного рентгеновского пучка. Дифракционное рассеяние происходит от атомных плоскостей, перпендикулярных вектору обратной решетки \mathbf{h} . Будем исходить из общего выражения для интенсивности диффузного рассеяния [9], угловое распределение которого выражается через проекции вектора $\mathbf{q} = \mathbf{k}_h - \mathbf{k}_0 - \mathbf{h}$, задающего отклонение вектора рассеяния от узла обратной решетки:

$$q_x = \kappa((\sin \theta_1 + \sin \theta_2)\omega - \sin \theta_2 \varepsilon),$$

$$q_z = -\kappa((\cos \theta_1 - \cos \theta_2)\omega + \cos \theta_2 \varepsilon),$$

где $\theta_{1,2} = \theta_B \mp \varphi$ — углы, определяющие направления падающей и дифракционной волны относительно входной поверхности кристалла; φ — угол скоса отражающих плоскостей к поверхности образца; $\kappa = 2\pi/\lambda$ — волновое число в вакууме; λ — длина волны рентгеновского излучения в вакууме; ω, ε — угловые отклонения образца и анализатора в схеме трехосевой дифрактометрии. Для слоя толщиной l и шириной засветки рентгеновским пучком поверхности кристалла L интенсивность диффузного рассеяния может быть представлена

в виде

$$I_h^d(q_x, q_z) = |a_h|^2 \int_0^l dz \int_{-L/2}^{L/2} dx (1 - f^2(x, z)) \times \exp(-[1 + b]\mu z) \tau(x, z, q_x; q_z) I_0(x - \cot \vartheta_1 z, 0, z), \quad (1)$$

где $a_h = C\pi\chi_h/(\lambda\gamma_h)$, $\gamma_h = \sin(\theta_2)$, $b = \gamma_0/\gamma_h$ — фактор асимметрии, C — поляризационный фактор, $\chi_h = -r_0 \frac{\lambda^2}{\pi V_c} F_h$ — Фурье-компоненты рентгеновской поляризуемости, V_c — объем элементарной ячейки, $r_0 = e^2/mc^2$ — классический радиус электрона, e , m — заряд и масса электрона, F_h — структурный фактор, μ — коэффициент поглощения рентгеновских лучей. Согласно (1), величина интенсивности диффузного рассеяния определяется статическим фактором Дебая–Валлера $f(x, z)$ и интенсивностью проходящей рентгеновской волны $I_0(x - \cot \vartheta_1 z, 0, z)$, а угловое распределение зависит от корреляционной площади

$$\tau(x, z, q_x, q_z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\rho_x \int_{-\infty}^{+\infty} d\rho_z \exp(i[q_x \rho_x + q_z \rho_z + \mathbf{h}(\langle \mathbf{u}(x + \rho_x, z + \rho_z) \rangle - \langle \mathbf{u}(x, z) \rangle)]) G(x, z; \rho_x, 0, \rho_z).$$

Здесь вектор атомных смещений представлен в виде суммы усредненной и флуктуационной части $\mathbf{u}(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{u}(\mathbf{r}) \rangle + \delta \mathbf{u}(\mathbf{r})$. Тип кристаллических дефектов задается корреляционной функцией

$$G(x, z, \rho_x, 0, \rho_z) = \frac{\langle \exp(i\mathbf{h}[\delta \mathbf{u}(x + \rho_x, z + \rho_z) - \delta \mathbf{u}(x, z)]) \rangle - f^2(x, z)}{1 - f^2(x, z)}.$$

Для некоторых моделей дефектов выражения для корреляционных функций применительно к трехосевой рентгеновской дифрактометрии были получены в [9].

Пусть в приповерхностном слое кристалла распространяется ПАВ, при этом усредненное поле атомных смещений становится периодической функцией по горизонтальной оси x , направленной вдоль поверхности кристалла. Поэтому $\langle \mathbf{u}(x + \Lambda, z) \rangle = \langle \mathbf{u}(x, z) \rangle$, где Λ — длина ультразвуковой волны.

Рассмотрим модель периодической латеральной модуляции, задаваемой гармонической функцией вида $\langle \mathbf{u}(x, z) \rangle = \mathbf{u}_0(z) \sin(\kappa_s x)$, где $\kappa_s = 2\pi/\Lambda$ — волновое число акустических колебаний. Обычно уменьшение амплитуды ПАВ в глубь кристалла выбирают в виде экспоненциального выражения $u_0(z) = u_0 \exp(-\mu_{ac} z)$ с коэффициентом затухания ультразвуковой волны μ_{ac} [4]. Далее предположим, что дефекты в кристалле имеют однородное случайное распределение. При этих условиях площадь корреляции запишется как

$$\tau(z, q_x, q_z) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \left| J_m(hu_0(z)) \right|^2 \tau_m(q_x, q_z), \quad (2)$$

где

$$J_m(hu_0(z)) = (2\pi)^{-1} \int_0^{2\pi} \exp[i(hu_0(z) \sin(\varphi/\kappa) + m\varphi)] d\varphi$$

— функция Бесселя m -го порядка. Решение для интенсивности диффузного рассеяния от кристалла с ПАВ можно представить в виде суммы

$$I_h^d(q_x, q_z) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} I_{h,m}^d(q_x, q_z). \quad (3)$$

Под знаком суммы стоят выражения для интенсивностей диффузного рассеяния в угловых областях соответствующих дифракционных порядков $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ (основного максимума ($m = 0$) и сателлитных пиков ($m \neq 0$))

$$I_{h,m}^d(q_x, q_z) = |a_h|^2 (1 - f^2) \tau_m(q_x, q_z) \int_0^l dz \left| J_m(hu_0(z)) \right|^2 \times \int_{-L/2}^{L/2} dx \exp(-[1 + b]\mu z) I_0^c(x - \cot \vartheta_1 z, 0, z). \quad (4)$$

Согласно (3) и (4), распределение диффузного рассеяния от кристалла с ПАВ в обратном пространстве задается поведением собственных корреляционных площадей

$$\tau_m(q_x, q_z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\rho_x \int_{-\infty}^{+\infty} d\rho_z \exp(i[(q_x - m\kappa_s)\rho_x + q_z\rho_z]) G(\rho_x, 0, \rho_z). \quad (5)$$

Эти параметры, а следовательно и интенсивности диффузного рассеяния $I_{h,m}^d(q_x, q_z)$, принимают максимальные значения при $q_x = m\kappa_s$. Кроме этого, интенсивность диффузного рассеяния того или иного дифракционного порядка зависит от „весовых“ коэффициентов $|J_m(hu_0(z))|^2$, т.е. от величины амплитуды ПАВ на поверхности кристалла и градиента ее затухания в глубь образца.

Итак, мы установили, что диффузное рассеяние в условиях дифракции рентгеновских лучей на кристалле с ПАВ характеризуется сателлитной структурой, которая по угловым положениям совпадает с распределением интенсивности когерентного рассеяния [6].

В случае если ПАВ в кристалле проникает на относительно небольшую глубину и к тому же кристалл слабо поглощает рентгеновское излучение, то интенсивность проходящей рентгеновской волны можно считать постоянной величиной. В итоге выражение (4) примет более простой вид

$$I_{h,m}^d(q_x, q_z) = |a_h|^2(1 - f^2)L\tau_m(q_x, q_z)C_m(l, u_0, \mu_{ac}), \quad (6)$$

где коэффициенты $C_m(l, u_0, \mu_{ac}) = \int_0^l dz |J_m(hu_0(z))|^2$ зависят от глубины проникновения l и амплитуды ПАВ на входной поверхности u_0 , а также от коэффициента затухания ультразвуковой волны μ_{ac} .

Если амплитуда ультразвуковой волны не изменяется с глубиной проникновения в кристалл, т.е. $u_0(z) = u_0$, вместо (6) можно записать

$$I_{h,m}^d(q_x, q_z) = |a_h|^2(1 - f^2)\tau_m(q_x, q_z)|J_m(hu_0)|^2Ll.$$

Здесь под l следует понимать толщину кристаллического слоя, в котором возбуждена однородная по амплитуде ультразвуковая волна.

На основе данной теории приведем результаты численных расчетов. Все расчеты выполнены для [104] отражения от 127°-ного Y' -среза кристалла LiNbO_3 σ -поляризованного рентгеновского излучения с длиной волны $\lambda = 0.954 \text{ \AA}$, что соответствует энергии рентгеновских квантов 13 keV. Длина ультразвуковой волны выбрана $\Lambda = 4 \mu\text{m}$, что совпадало с условиями эксперимента. В расчетах использован экспоненциальный закон затухания амплитуды модуляции ПАВ по глубине кристалла [4]. В рассмотрение введен параметр, характеризующий глубину проникновения акустической волны $l_{ac} = 1/\mu_{ac}$. Поскольку,

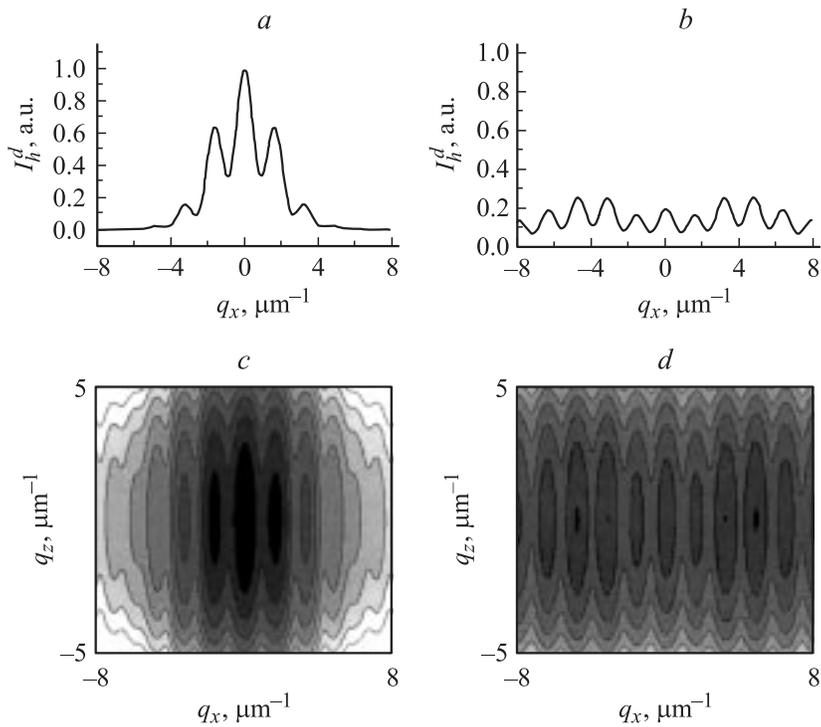


Рис. 1. Расчетные q_x сканы (a, b) и карты (c, d) распределения интенсивности диффузного рассеяния от мозаичного кристалла под воздействием ультразвуковой волны. Амплитуды модуляции ПАВ u_0 : a, c — 0.1 нм; b, d — 0.4 нм. Контуры равной интенсивности представлены в логарифмическом масштабе, отношение интенсивностей между соседними линиями составляет 0.5.

согласно [4], $l_{ac} \approx 1.3\Lambda$, в расчетах мы использовали $l_{ac} = 5.2\mu\text{m}$ ($\mu_{ac} = 0.2\mu\text{m}^{-1}$). Для описания нарушений кристаллической решетки принята модель мозаичного кристалла [9].

На рис. 1 показаны результаты q_x -сканирования при $q_z = 0$ (a, b) и карты (c, d) распределения интенсивности диффузного рассеяния от мозаичного кристалла при малых (a, c) и больших (b, d) значениях амплитуды модуляции ПАВ. Размеры блоков мозаичной структуры составляли в латеральном направлении $5\mu\text{m}$, в вертикальном направ-

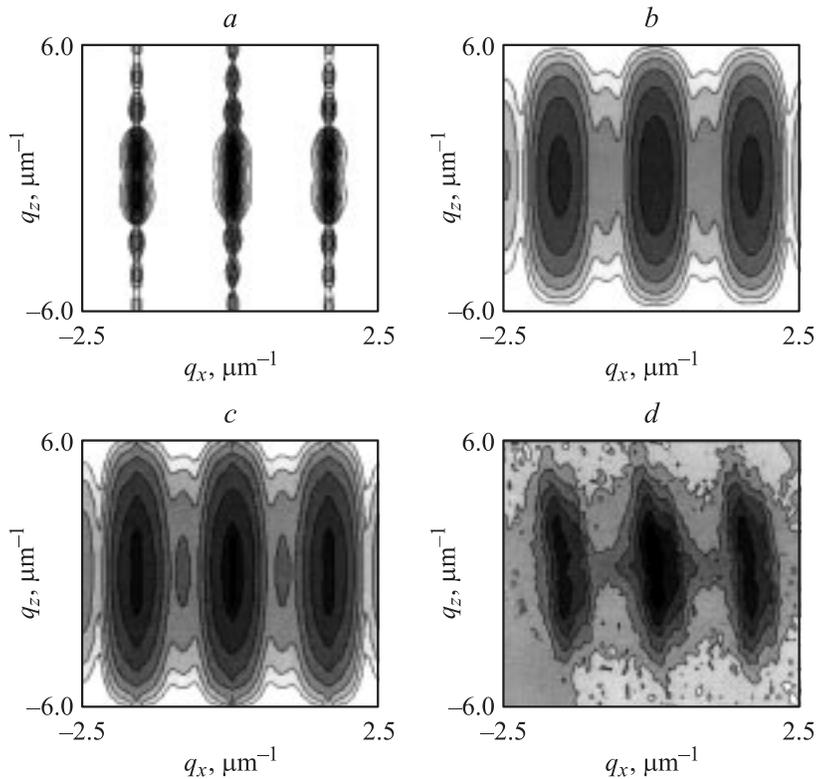


Рис. 2. Вычисленные карты углового распределения интенсивностей для когерентного (*a*), диффузного (*b*) и полного (*c*) рассеяния, $u_0 = 0.29 \text{ nm}$, d — экспериментально измеренная карта на источнике синхротронного излучения. Контурсы равной интенсивности представлены в логарифмическом масштабе, отношение интенсивностей между соседними линиями составляет 0.4.

лении $1 \mu\text{m}$. Из рисунка видно, что в случае слабой модуляции интенсивность диффузного рассеяния концентрируется вокруг основного дифракционного максимума. При большой амплитуде ультразвуковой волны диффузный фон в угловых положениях сателлитных максимумов может превышать некогерентное рассеяние в области основного пика (рис. 1, *b, d*).

Карты углового распределения интенсивностей для когерентного (а), диффузного (b) и полного (с) рассеяния приведены на рис. 2. В расчетах использована модель мозаичного кристалла с размерами блоков 10 и $1\ \mu\text{m}$ в латеральном и вертикальном направлениях соответственно. Вычисление когерентной компоненты интенсивности рассеяния выполнено на основе теории, представленной в [6]. Для сравнения на рис. 2, d представлена экспериментальная карта интенсивности рассеяния от кристалла LiNbO_3 , измеренная на источнике синхротронного излучения ESRF.

Работа выполнена при финансовой поддержке целевой программы „Развитие научного потенциала высшей школы“ (проект РНП.2.1.1.3425) и Российского фонда фундаментальных исследований (контракты № 04-02-16456, 07-02-00090).

Список литературы

- [1] *Кривоглаз М.А.* Дифракция рентгеновских лучей и нейтронов в неидеальных кристаллах. Киев: Наук. думка, 1983. 408 с. (*Krivoglaz M.A.* X-ray and Neutron Diffraction in Nonideal Crystals. Berlin: Springer, 1996.)
- [2] *Roshchupkin D.V., Tucoulou R., Masclet A., Brunel M., Schelokov I.A., Kondakov A.S.* // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Research. B. 1998. V. 142. P. 432–436.
- [3] *Campbell C.K.* Surface Acoustic Wave Devices for Mobile and Wireless Communications. Boston: Academic Press, 1998. 631 p.
- [4] *Tucoulou R., de Bergevin F., Mathon O., Roshchupkin D.* // Phys. Rev. B. 2001. V. 64. P. 134108-1–134108-9.
- [5] *Schelokov I.A., Roshchupkin D.V., Irzhak D.V., Tucoulou R.* // J. Appl. Cryst. 2004. V. 37. P. 52–61.
- [6] *Пунегов В.И.* // Письма в ЖТФ. 2003. Т. 29. В. 19. С. 52–59.
- [7] *Iida A., Kohra K.* // Phys. Stat. Sol. (a). 1979. V. 51. P. 533–542.
- [8] *Lomov A.A., Zaumseil P., Winter U.* // Acta Cryst. A. 1985. V. A41. P. 223–227.
- [9] *Nesterets Ya.I., Punegov V.I.* // Acta Cryst. A. 2000. V. A56. P. 540–548.