

Дифракция рентгеновского излучения на однородно изогнутом кристалле в геометрии на отражение

© И.А. Смирнова¹, Э.В. Суворов¹, Е.В. Шулаков²

¹ Институт физики твердого тела РАН,
Черноголовка, Московская обл., Россия

² Институт проблем технологии микроэлектроники РАН,
Черноголовка, Московская обл., Россия

E-mail: irina@issp.ac.ru

(Поступила в Редакцию 29 апреля 2010 г.
В окончательной редакции 17 июня 2010 г.)

Исследованы особенности распределения интенсивности на выходной поверхности однородно изогнутого кристалла в геометрии на отражение. Эксперименты проводились на тонкослойных гетероструктурах $\text{Si}_{(1-x)}\text{Ge}_x/\text{Si}$. Для гетеросистем внутренние напряжения, возникающие в пленке и подложке, приводят к упругому изгибу всей системы. На секционных топограммах наблюдаются интерференционные деформационные полосы. Важно, что контраст этой интерференционной картины почти на порядок превосходит случай брэгговского рассеяния в идеальном кристалле. Наблюдаемая интерференционная картина зависит от радиуса изгиба кристалла. При увеличении радиуса все максимумы смещаются в сторону основного брэгговского пика. Соответственно уменьшаются все расстояния между полосами. Показано, что положение максимумов интенсивности не зависит от знака изгиба кристалла. При отрицательном знаке радиуса изгиба кристалла (положительный градиент деформации) наблюдается увеличение интегральной интенсивности. Результаты численного моделирования дифракционных изображений хорошо согласуются с экспериментальными топограммами. Сопоставление численного моделирования интерференционной картины и экспериментальных топограмм позволяет точно определить радиус изгиба кристалла (4%). По результатам моделирования эксперимента получены формулы, описывающие положение интерференционных максимумов в зависимости от радиуса изгиба образца.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 09-02-00731-а).

1. Введение

В совершенных кристаллах в геометрии на прохождение хорошо известен эффект маятниковых осцилляций интенсивности рентгеновского излучения [1,2]. Наблюдаемая интерференционная картина широко использовалась для прецизионных измерений атомного фактора рассеяния [3–5]. В геометрии на отражение экспериментальное наблюдение маятниковых полос затруднено из-за быстрого уменьшения их интенсивности с ростом номера полосы [6,7] и не имеет практического применения. Здесь нужно учесть фон, который присутствует на всех рентгеновских снимках и резко снижает контраст слабых максимумов.

Другой тип интерференционных полос в геометрии на отражение — это интерференционные деформационные полосы. Такие полосы впервые наблюдались на топограммах кристалла с аморфной окисной пленкой переменной толщины [8]. Интерпретация этого явления была впервые дана в терминах геометрической оптики в [9,10].

В настоящей работе методами секционной топографии на отражение и численного моделирования исследуется картина интерференционных полос однородно деформированного кристалла (гетероструктуры $\text{Si}_{(1-x)}\text{Ge}_x/\text{Si}$).

2. Распределение интенсивности на выходной поверхности кристалла для точечного источника в геометрии на отражение

2.1. Идеальный кристалл. В рентгеновской топографии идеальных монокристаллов при дифракции узко коллимированного квазимонохроматического пучка наблюдается картина интерференционных полос в геометрии Брэгга с квазипериодом τ [6,7,11]. Распределение амплитуды рассеянной волны на поверхности образца описывается формулой

$$D_h = \exp(-\mu x / 2 \cos \theta) [J_0(\pi x / \tau) + J_2(\pi x / \tau)]. \quad (1)$$

Здесь μ — линейный коэффициент фотоэлектрического поглощения. J_n — цилиндрические функции Бесселя n -порядка, $\tau = \lambda \cos \theta / C \chi_h$ — экситонная глубина по Лауэ, C — поляризационный фактор. Первое слагаемое в (1) описывает рассеяние первичной волны в объеме кристалла. Второе соответствует рассеянной волне, зеркально отраженной от входной грани кристалла. Функция $J_2(\pi x / \tau)$ существенно отличается от функции $J_0(\pi x / \tau)$, взятой со знаком минус, только в области $x / \tau < 1.5$. Это означает, что зеркально отраженная волна при $x / \tau > 1.5$ сдвинута по фазе отно-

сительно первичной примерно на π . Такое поведение зеркальной волны приводит к тому, что результирующая амплитуда рассеянной волны имеет на поверхности кристалла вблизи точки входа излучения в образец яркий выброс интенсивности с амплитудой 100% и шириной на половине высоты, равной 0.5τ . Первый минимум расположен на расстоянии 1.25τ . Другие максимумы расположены только с правой стороны и быстро убывают по амплитуде. Так, интенсивности первых трех боковых максимумов по отношению к главному максимуму имеют величины 1.5, 0.3 и 0.1% соответственно. Экспериментальное наблюдение этих полос возможно только при значительной переэкспозиции изображения [12,13]. Итак, в области $x/\tau \gg 1.5$ мы имеем нулевую амплитуду рассеянной волны в условиях, когда амплитуды объемной и зеркальной волны существенно отличаются от нуля. Внесение любого дефекта в эту область изменяет фазовое соотношение между волнами первого и второго типов и изображение дефекта становится ясно видимым.

2.2. Кристалл с постоянным градиентом деформации (изогнутый кристалл). Аналитическое описание рассеяния рентгеновского излучения на кристалле с постоянным градиентом деформации можно получить с использованием уравнений Такаги и построением асимптотики функций Грина–Римана [14]. Общее решение выражается через вырожденные гипергеометрические функции и является довольно сложным. Анализ решения в квазиклассическом приближении позволяет найти вид траекторий блоховских волн вблизи поверхности однородно изогнутого кристалла. Эти траектории приобретают гиперболическую форму, концами обращенную к поверхности кристалла, где в точках касания траекторий с поверхностью кристалла происходит отражение блоховской волны. Это и приводит, по мнению авторов [9,10], к возникновению новых деформационных интерференционных полос на секционных топограммах. Положения максимумов интенсивности на выходной поверхности кристалла описываются выражением

$$x_n = [16\pi(2n - 1)/5B^2]^{1/3}, \quad (2)$$

где x_n — расстояние от точки падения до полосы вдоль поверхности кристалла, нормированное на π/Λ , $B = \frac{\Lambda^2}{4\pi^2 \sin^2 \vartheta} \frac{\partial^2(\mathbf{H}\mathbf{U})}{\partial s_\sigma \partial s_H}$ — градиент деформации, $n = 1, 2, 3, \dots$ — номер полосы, $\Lambda = \lambda \sin \vartheta / C\chi_H$ — экстинкционная длина по Брэггу. В работах [13–16] также отмечается, что должен наблюдаться эффект полноводного распространения излучения вдоль поверхности кристалла в случае положительного градиента деформации и соответственно экспоненциальное затухание волны при обратном знаке градиента. В настоящей работе показано, что выводы, сделанные в [9,10], не согласуются с экспериментом.

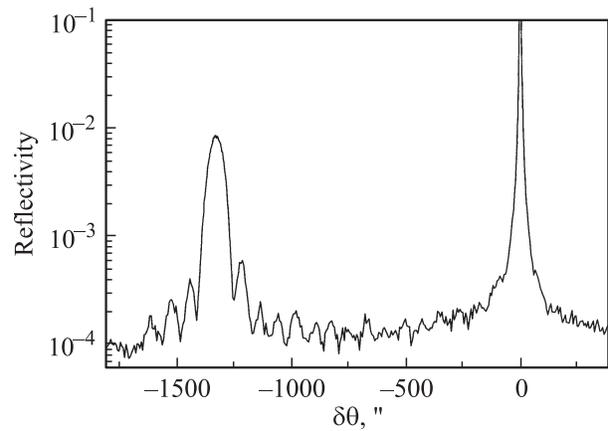


Рис. 1. Двухкристальная кривая качания $\theta-2\theta$ $\text{Si}_{(1-x)}\text{Ge}_x/\text{Si}$ (образец № 2). Отражение $\text{Si}(004)$, излучение $\text{CuK}\alpha_1$. Монохроматор $\text{Si}(004)$, схема $(n, -n)$.

3. Образцы и геометрия секционной топографии

Исследуемыми образцами являлись тонкослойные гетероструктуры $\text{Si}_{(1-x)}\text{Ge}_x/\text{Si}$: образец № 1 — содержание Ge в твердом растворе $x = 0.15$, толщина SiGe -пленки $t_f = 200 \text{ nm}$ — и образец № 2 — $x = 0.3$, $t_f = 80 \text{ nm}$. Подложка кремния $\text{Si}(001)$ толщиной $t = 0.53 \text{ mm}$. Нелегированный псевдоаморфный слой был выращен на подложке кремния методом молекулярно-лучевой эпитаксии при температуре 500°C . На рис. 1 представлена типичная кривая качания $\text{Si}_{(1-x)}\text{Ge}_x/\text{Si}$ кристалла (образец № 2). На кривой качания наблюдается узкий пик от подложки кремния и максимум от $\text{Si}_{(1-x)}\text{Ge}_x$ пленки, окруженный побочными осцилляциями. Моделирование кривых качания, проведенное в полукинематическом приближении [17] с коэффициентом релаксации напряжений, равным нулю, позволило уточнить значение концентрации германия и толщины пленки. Уточненные значения составили: для образца № 1 — $x = 0.142$, $f = -5.3 \cdot 10^{-3}$, $t_f = 245 \text{ nm}$; для образца № 2 — $x = 0.249$, $f = -9.45 \cdot 10^{-3}$, $t_f = 90 \text{ nm}$ (f — несоответствие параметров решеток). Структурное совершенство пленки и подложки исследовалось методами рентгеновской топографии. Проекционные топограммы в геометрии на прохождение и отражение и секционная топография на прохождение как в объеме кристалла, так и на границе раздела подложка–пленка дефектов не выявили.

Таким образом, для данных образцов напряжения, возникающие в результате роста гетеросистемы, связаны только с несоответствием параметров решеток. Для гетеросистем внутренние напряжения в пленке и подложке приводят у упругому изгибу всей системы, и радиус изгиба можно оценить по формуле Стоуни [18–20]. При малой толщине пленки и когда упругие свойства слоев и подложки близки, радиус изгиба равен $R = -t_s^2/6ft_f$.

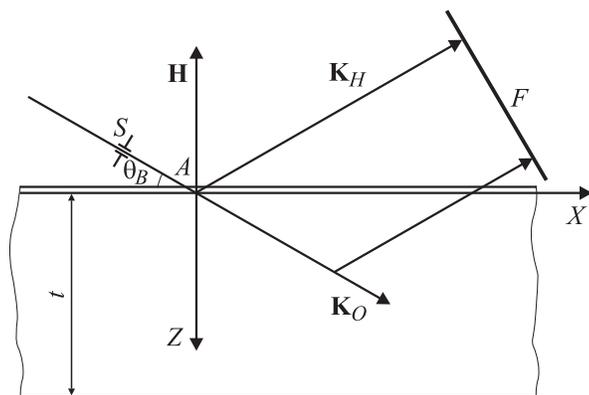


Рис. 2. Геометрия дифракции на кристалле с пленкой. S — входная щель ($10\ \mu\text{m}$), F — плоскость регистрации.

С помощью данных, полученных из двухкристалльной кривой качания, были определены радиусы изгиба: для образца № 1 — $36.7\ \text{m}$, для образца № 2 — $56\ \text{m}$.

Все топографические эксперименты были выполнены на микрофокусном источнике с оптическим размером фокуса $30 \times 30\ \mu\text{m}$ в неполяризованном характеристическом излучении $\text{MoK}_{\alpha 1}$. Эксперимент проводился на спектрометре А-4 фирмы Rigaku Denku. На рис. 2 показана геометрия дифракции рентгеновского излучения в секционной топографии на отражение. Рентгеновское излучение в плоскости рассеяния XZ падает на кристалл под углом Брэгга θ_B в точку А. Ось X направлена вдоль поверхности образца, а ось Z параллельна вектору обратной решетки \mathbf{H} и направлена вглубь кристалла, ось Y перпендикулярна плоскости рисунка. \mathbf{K}_0 и \mathbf{K}_H — волновые векторы падающей и рассеянной волн, t — толщина кристалла. Отражающие плоскости 400 параллельны входной поверхности кристалла. Перед кристаллом установлена узкая щель размером $10\ \mu\text{m}$. Плоскость регистрации перпендикулярна отраженному лучу и находится на расстоянии $10\ \text{mm}$ от поверхности кристалла. В такой геометрии дифракции можно приближенно считать, что точечный источник находится на поверхности кристалла.

4. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Рассмотрим представленные на рис. 3, *a-c* фрагменты экспериментальных секционных топограмм кристаллов кремния с $\text{Si}_{(1-x)}\text{Ge}_x$ -пленкой. На рисунках слева хорошо виден яркий брэгговский максимум. Справа от него видна система параллельных интерференционных полос (пронумерованных 1, 2, 3, ...) с постепенно уменьшающейся интенсивностью и периодом. Эти полосы формируются в области, где интенсивность для идеального кристалла практически равна нулю. Это и есть интерференционные деформационные полосы однородно изогнутого кристалла. С уменьшением радиуса изгиба

кристалла R (рис. 3, *c*) полосы сгущаются и сдвигаются в сторону меньших расстояний от брэгговского максимума. На фрагментах топограмм наблюдается до девяти интерференционных полос. На рис. 3, *a* первая интерференционная полоса находится от основного максимума на расстоянии $105\ \mu\text{m}$ в плоскости регистрации, на рис. 3, *c* — $81\ \mu\text{m}$.

Наблюдаемая интерференционная картина не привязана к локальной области кристалла и связана с однородным изгибом кристалла. Это подтверждается тем, что при смещении точки падения первичного пучка вдоль поверхности кристалла период полос и контраст интерференционной картины сохраняются. Интерференционная картина видна также и при произвольном повороте кристалла вокруг вектора обратной решетки. И последнее, период интерференционных полос сохраняется по всей высоте секционной топограммы.

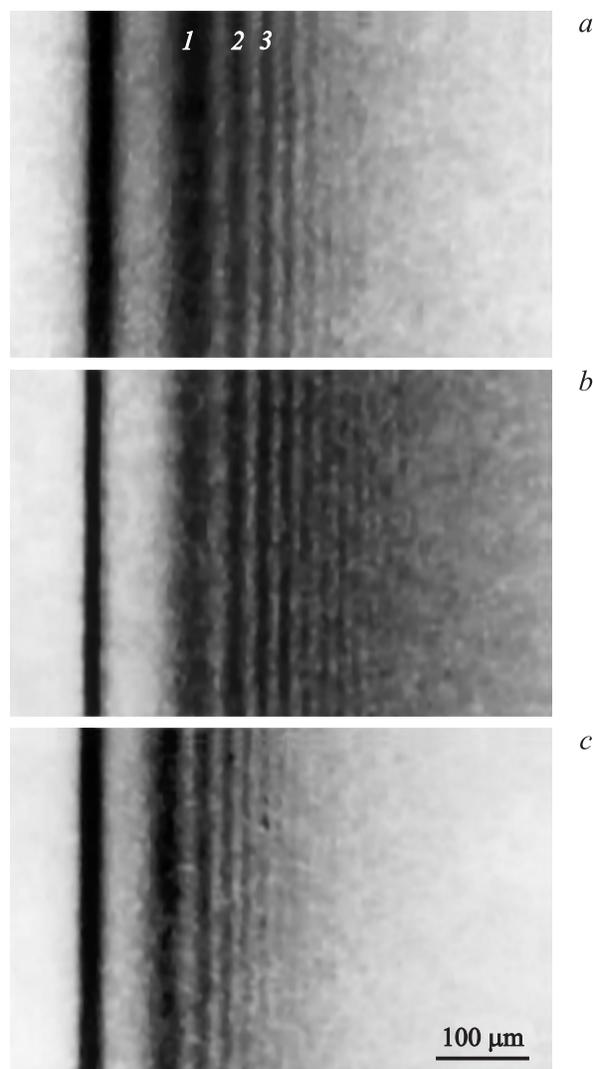


Рис. 3. Фрагменты секционных топограмм. Отражение $\text{Si}(004)$, излучение $\text{MoK}_{\alpha 1}$. *a* — образец № 2, $R = 54\ \text{m}$; *b* — образец № 2, $R = -54\ \text{m}$; *c* — образец № 1, $R = 37\ \text{m}$.

На рис. 3, *a, b* интегральная интенсивность при отрицательном знаке радиуса изгиба кристалла (положительном знаке градиента деформации) больше, чем при положительном знаке радиуса изгиба. При этом хорошо видно, что период полос при изменении знака радиуса изгиба сохраняется. Изменение знака достигается простым поворотом кристалла вокруг оси X на 180° (рис. 2).

Для анализа распределения интенсивности на входной поверхности кристалла использовалось численное моделирование с помощью системы дифференциальных уравнений Такаги [21]. Они являются основной системой уравнений при решении задач о распространении пространственно неоднородных рентгеновских волновых пакетов в кристаллах и при анализе проблемы изображения в рентгеновской дифракционной оптике в идеальных и деформированных кристаллах [22].

Пусть имеется тонкая сферическая изогнутая пластинка. Тогда поле смещений $U = (u_x, u_y, u_z)$ в плоскости рассеяния XZ для цилиндрически изогнутой пластины толщиной t с радиусом изгиба нейтральной плоскости R (радиус изгиба положительный — выпуклость вверх, рис. 2) будет иметь вид

$$\begin{aligned} u_x(x, z) &= x(z - t/2)/R + v(z - t/2)^2/2R, \\ u_z(x, z) &= x^2/2R + v(z - t/2)^2/2R, \end{aligned} \quad (3)$$

где v — коэффициент Пуассона.

Система дифференциальных уравнений Такаги

$$\begin{cases} \frac{\partial \Psi_O}{\partial s_O} = -i\pi KC\chi_H\Psi_H, \\ \frac{\partial \Psi_H}{\partial s_H} = -i\pi KC\chi_H\Psi_O + i2\pi K\beta_H\Psi_H. \end{cases} \quad (4)$$

Здесь Ψ_O и Ψ_H — амплитуды прошедшей и дифрагированной волн, $K = 1/\lambda$, χ_H — коэффициенты поляризуемости кристалла, s_O и s_H — единичные векторы вдоль направлений падающей и рассеянных волн (рис. 2), C — поляризационный фактор. Функция β_H описывает отклонение рассеянной волны от угла Брэгга и связана с полем смещений внутри кристалла $U(x, y, z)$ соотношением $\beta_H = -\frac{1}{K} \frac{\partial(\mathbf{H}U)}{\partial s_H}$. Для цилиндрически изогнутого кристалла функция локальных угловых разориентаций имеет вид $\beta_H = x \sin 2\theta(1 - v \operatorname{tg}^2 \theta)/R$. При углах дифракции $\theta < \operatorname{arctg} \sqrt{1/v}$ радиус изгиба кристалла и локальная угловая разориентация имеют один знак.

При расчетах распределения интенсивности на входной поверхности кристалла приведение системы (3) к уравнениям в конечных разностях осуществлялось неявным методом второго порядка точности. Шаг интегрирования равен $\Delta x = 0.05 \mu\text{m}$. Граничные условия задавались так, как было предложено в [23].

Были рассчитаны интенсивности дифрагированного излучения на выходной поверхности однородно изогнутого кристалла при радиусах изгиба от 10 до 200 м для различных отражений и длин волн.

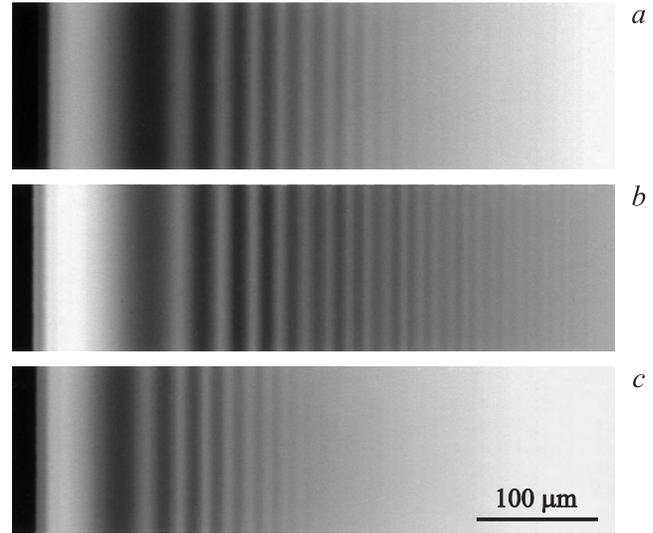


Рис. 4. Моделирование дифракционного эксперимента, соответствующее экспериментальным фрагментам на рис. 3. Коэффициент контрастности $\gamma = 0.65$. Рабочий уровень интенсивности $I_w = I_0$ (a), $3.71I_0$ (b) и $2.57I_0$ (c).

Численное моделирование экспериментальных топограмм представлено на рис. 4. Расчетные распределения интенсивности в соответствии с условиями эксперимента были получены при свертке теоретических кривых со „щелью“ — функцией $\operatorname{rect}(x/S)$, имеющей ширину $S = 11 \mu\text{m}$ ($\operatorname{rect}(\xi)$ равна 1 при $|\xi| < 1$ и 0 при $|\xi| > 1$). Степень почернения на расчетных изображениях пропорциональна логарифму интенсивности дифрагированного излучения. Сопоставление экспериментальных и теоретических распределений позволяет определить радиус изгиба кристалла. На рис. 4, *a* для образца № 2 радиус изгиба $R = 54$ м (градиент деформации $B = -0.039$), на рис. 4, *b* $R = -54$ м ($B = 0.039$), на рис. 4, *c* для образца № 1 $R = 37$ м ($B = -0.057$), точность определения радиуса изгиба 4%. Полученный радиус изгиба кристаллов соответствует оценке, полученной по формуле Стоуни. На экспериментальных (рис. 3) и теоретических топограммах (рис. 4) наблюдается хорошее соответствие в положении максимумов интенсивности и контраста интерференционной картины. Расчетный график распределения интенсивности на выходной поверхности кристалла при радиусе изгиба 54 м, но разных знаках представлен на рис. 5. На графиках сплава выброс интенсивности с амплитудой 100%. Интенсивности первых шести максимумов по отношению к главному максимуму имеют величины 2.59, 3.07, 3.27, 3.09, 2.58, 2.39% для $R = -54$ м. Соответственно 0.997, 0.91, 0.82, 0.69, 0.55, 0.47% для $R = 54$ м. Хорошо видно, что независимо от знака изгиба кристалла при увеличении расстояния интенсивность убывает экспоненциально. Интегральная интенсивность в боковых максимумах при отрицательном радиусе изгиба кристалла существенно больше.

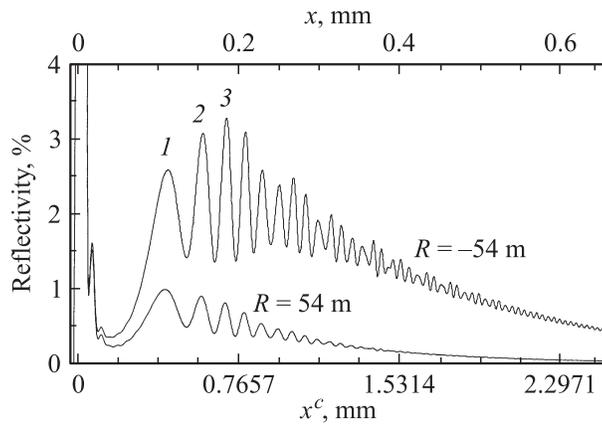


Рис. 5. Моделирование распределения интенсивности на выходной поверхности кристалла. Неполарное излучение. x — координата в плоскости регистрации, x^c — вдоль поверхности кристалла. $x = x^c \sin \theta_B$.

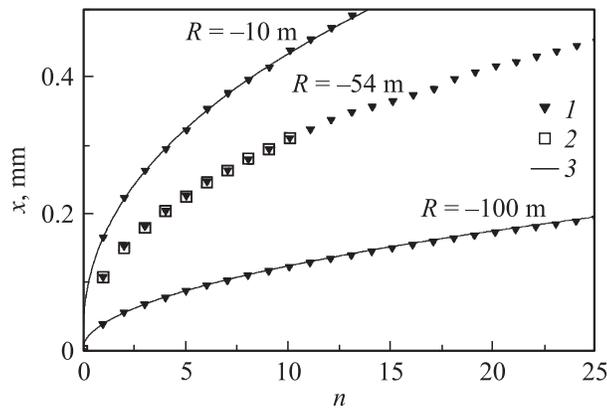


Рис. 6. Зависимость положения максимумов интенсивности однородно изогнутого кристалла от номера максимума n . 1 — моделирование дифракционного эксперимента; 2 — экспериментальные значения, соответствующие рис. 3, б; 3 — аппроксимация.

Численное моделирование дифракционного эксперимента позволяет в большом диапазоне радиусов изгиба кристалла построить зависимости положения максимумов интенсивности x как от их номера n , так и от радиуса изгиба. Положения максимумов интенсивностей, рассчитанные по уравнениям Такаги для трех радиусов изгиба и наблюдаемые в эксперименте ($R = -54$ м), приведены на рис. 6. Аппроксимация методом наименьших квадратов положения первого интерференционного максимума в зависимости от радиуса изгиба кристалла описывается формулой $x_1(R) = AR^{2/3}$ (R — радиус изгиба кристалла, $A = \text{const}$). Положение максимумов интенсивности на выходной поверхности кристалла в зависимости от номера максимума аппроксимируется формулой $x_n(R) = x_1(R)n^p$, где p изменяется от 0.496 ($R = 10$ м) до 0.403 ($R = 200$ м) n — номер максимума. Данная аппроксимация не

согласуется с теоретическими выводами работы [10]. На рис. 6 сплошной линией построена аппроксимация для $R = -10$ м: $x_1 = 40.08 \mu\text{m}$, $p = 0.496$ — и $R = -100$ м: $x_1 = 166.499 \mu\text{m}$, $p = 0.427$.

5. Заключение

Известно, что на выходной поверхности кристалла с постоянным градиентом деформации формируются деформационные интерференционные полосы.

В настоящей работе исследованы интерференционные полосы, связанные с однородным сферическим изгибом подложки тонкой пленкой SiGe. Методом секционной топографии проведены эксперименты на образцах с различными значениями радиуса изгиба.

В качестве однородно изогнутых кристаллов использовались гетероструктуры $\text{Si}_{(1-x)}\text{Ge}_x/\text{Si}$, полученные методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Показано, что в исследуемых образцах возникающие внутренние напряжения связаны только с несоответствием параметров решеток пленки и подложки, при этом значение радиуса изгиба находится в соответствии с формулой Стоуни.

Таким образом, можно сделать следующие выводы.

1) Наблюдаемые в геометрии Брэгга интерференционные полосы в отличие от полос идеального кристалла имеют существенно более высокую интенсивность и контраст. Это позволяет рекомендовать указанную интерференционную картину для точной оценки радиусов изгиба образцов.

2) Положение максимумов интенсивности не зависит от знака изгиба кристалла. В то же время при отрицательном знаке радиуса изгиба кристалла (положительный градиент деформации B) наблюдаются полосы более высокого контраста (рис. 3).

3) По результатам моделирования дифракционного эксперимента положение первого интерференционного максимума x_1 от радиуса изгиба аппроксимируется формулой $x_1 = AR^{2/3}$, где $A = \text{const}$. Положение последующих n -максимумов оценивается как $x_n = x_1 n^p$, где показатель степени p зависит от изгиба кристалла и изменяется на 20% в диапазоне R от 10 до 200 м.

4) Все экспериментальные данные хорошо согласуются с численным моделированием эксперимента. Пункты 2 и 3 выводов не совпадают с теоретическими результатами работы [10].

Авторы благодарят В.И. Вдовина и М.М. Рзаева за предоставленные образцы.

Список литературы

- [1] A. Authier. Dynamical theory of X-ray diffraction. Science Publ., Oxford (2001). 724 p.
- [2] N. Kato, A.R. Lang. Acta Cryst. **12**, 4, 787 (1959).
- [3] M. Hart, A.D. Milne. Acta Cryst. A **25**, 134 (1969).
- [4] S. Tanemura, N. Kato. Acta Cryst. A **28**, 69 (1972).

- [5] V.V. Aristov, I.M. Shmytko, E.V. Shulakov. *Acta Cryst. A* **33**, 412 (1977).
- [6] T. Uragami. *J. Phys. Soc. Jpn.* **31**, 4, 1141 (1971).
- [7] A.M. Afanas'ev, V.G. Kohn. *Acta Cryst. A* **27**, 421 (1971).
- [8] И.Л. Шульпина, П.В. Петрашень, Ф.Н. Чуховский, К.Т. Габриэлян. Тез. докл. IV Всесоюз. совещ. „Дефекты структуры в полупроводниках“. Изд-во СО АН СССР, Новосибирск (1984). Ч. 2. С. 114.
- [9] П.В. Петрашень, Ф.Н. Чуховский, И.Л. Шульпина, Р.Н. Кютт. *ФТТ* **29**, 5, 1608 (1987).
- [10] F.N. Chukhovskii, P.V. Petrashen. *Acta Cryst. A* **44**, 8 (1988).
- [11] T. Saka, T. Katagawa, N. Kato. *Acta Cryst. A* **28**, 102 (1972).
- [12] Е.В. Шулаков, И.А. Смирнова. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования *1*, 96 (2001).
- [13] Е.В. Шулаков, И.А. Смирнова, Э.В. Суворов. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования *6*, 5 (2003).
- [14] F.N. Chukhovskii, K.T. Gabrielan, P.V. Petrashen. *Acta Cryst. A* **34**, 610 (1978).
- [15] J. Groncowski, C. Malgrange. *Acta Cryst. A* **40**, 507 (1984); F.N. Chukhovskii, C. Malgrange. *Acta Cryst. A* **45**, 732 (1989).
- [16] H. Yan, O. Kalenci, I.O. Noyn. *J. Appl. Cryst.* **40**, 322 (2007).
- [17] W.J. Bartels, J. Hornsta, D.J.W. Lobeck. *Acta Cryst. A* **42**, 539 (1986).
- [18] Ю.А. Тхорик, Л.С. Хазан. Пластическая деформация и дислокации несоответствия в гетероэпитаксиальных системах. Наук. думка, Киев (1983). С. 304.
- [19] G. Stoney. *Proc. Roy. Soc. (London) A* **82**, 172 (1925).
- [20] P.M. Marcus. *Phys. Rev. B* **51**, 11, 7460 (1995).
- [21] S. Takagi. *J. Phys. Soc. Jpn.* **26**, 5, 1239 (1969).
- [22] И.А. Смирнова, Э.В. Суворов, Е.В. Шулаков. *ФТТ* **49**, 6, 1050 (2007).
- [23] Y. Epelboin, P. Riglet. *Phys. Status Solidi A* **54**, 2, 547 (1979).