

УДК 548.732

©1994

К РЕШЕНИЮ ОБРАТНОЙ ЗАДАЧИ КИНЕМАТИЧЕСКОЙ РЕНТГЕНОВСКОЙ ДИФРАКЦИИ НА НЕОДНОРОДНЫХ КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ СТРУКТУРАХ

С.Г.Подоров, В.И.Пунегов, В.А.Кусиков

В рамках кинематического приближения предложен новый метод вычисления структурных характеристик неоднородных кристаллических слоев по экспериментальным рентгенодифракционным данным. В основе метода лежит Фурье-преобразование амплитудного коэффициента отражения. Алгоритм вычисления профиля деформации и статического фактора Дебая-Валлера построен на итерационной процедуре. Возможности метода иллюстрируются процедурой вычислений структурных параметров градиентных слоев по теоретическим и экспериментальным рентгенодифракционным спектрам.

Решение обратных задач рентгеновской дифракции на нарушенных приповерхностных слоях кристаллов остается важнейшей теоретической и прикладной задачей рентгеновской кристаллооптики [1-10]. При исследовании тонких нарушенных слоев и эпитаксиальных пленок можно использовать кинематическое приближение. Однако даже в этом случае возникают значительные трудности, связанные, во-первых, с потерей фазовой информации при экспериментальных измерениях [1-3], а во-вторых, необходимостью учета в ряде случаев диффузного рассеяния [11].

Фазовая проблема в ряде случаев ведет к неединственности решения обратной задачи [1]. Неоднозначность восстановления параметров кристаллической структуры проиллюстрирована в работе [3] на примере кинематической модели дискретных слоев. Показано, что в случае n -слойной системы существуют 2^n -допустимых различных решений. С другой стороны, в работе [5] утверждается, что в рамках кинематической модели кристалла с непрерывным и монотонным профилем деформации обратная задача имеет единственное решение.

Диффузное рассеяние существенно влияет на формирование кривых дифракционного отражения (КДО) при наличии крупных дефектов в приповерхностном слое [12]. Если дефекты имеют малые размеры, выход некогерентно-рассеянных квантов охватывает довольно большой угловой интервал, а их интенсивность при этом существенно мала по сравнению с когерентной составляющей [13]. В этом случае наличие дефектов заметно влияет лишь на интенсивность когерентно-рассеянных волн.

Выделение когерентной составляющей возможно с использованием методики, основанной на $\vartheta - 2\vartheta$ сканировании исследуемого кристалла и кристалла-анализатора [14].

В зависимости от характеристик исследуемых объектов при решении обратных задач используются кинематическая [10], полудинамическая [9] и динамическая [1] теории дифракции.

В данной работе предлагается новый и в то же время довольно простой алгоритм решения обратной задачи восстановления профиля деформации нарушенного слоя в рамках кинематического приближения. Предполагается, что мелкомасштабные флуктуационные поля смещений статистически распределенных микродефектов малы, так что влиянием диффузной компоненты на КДО можно пренебречь. Для простоты ограничимся рассмотрением задачи, когда осцилляционная структура КДО от нарушенного слоя расположена на относительно большом угловом расстоянии от пика подложки и, следовательно, влияние интерференционного эффекта, вызванного дифракционным рассеянием на подложке, не существенно.

1. Основные уравнения

Рассмотрим симметричное брэгговское отражение рентгеновских лучей от неоднородной кристаллической пленки в рамках кинематического приближения. Амплитудный коэффициент отражения (АКО) когерентно-рассеянных рентгеновских волн от градиентного слоя толщиной l и полем атомных смещений gu имеет вид

$$R_g = i\sigma_g \int_0^l E e^{i[\eta^r z - F(z)]} dz = R e^{i\varphi}, \quad (1)$$

где в общепринятых обозначениях [15] угловой параметр [12]

$$\eta = \frac{2\pi}{\lambda\gamma_0} (\chi_0 + \sin 2\vartheta_0 \Lambda \vartheta)$$

является комплексной величиной

$$\eta^r = \text{Re}(\eta), \quad \eta^{i,m} = \text{Im}(\eta).$$

В решении (1) $F(z) = gu - i\text{Im}(\eta z)$, g — вектор дифракции, $E(z) = e^{-W(z)}$ — статический фактор Дебая-Валлера,

$$\sigma_g = \frac{\chi_g C}{\lambda \sin \vartheta_0}.$$

Расширим границы интегрирования (1) путем введения функции Хевисайда $\vartheta(z)$

$$R_g = \int_{-\infty}^{+\infty} \Phi(z) \vartheta(z) \vartheta(l-z) e^{i[\eta^r z - F(z)]} dz, \quad (2)$$

где

$$\vartheta(z) = \begin{cases} 1, & z \geq 0, \\ 0, & z < 0, \end{cases}$$

$$\Phi(z) = i\sigma_g E(z).$$

С другой стороны, комплексную функцию R_g можно записать в виде

$$R_g = Re^{i\varphi}, \quad (3)$$

где $R = |R_g|$ — модуль АКО; φ — его фаза, зависящая от толщины кристалла l , углового параметра η и поля атомных смещений gu .

Как правило, в экспериментах фазовая информация теряется, а $R = \sqrt{I_g(\eta)}$. Здесь $I_g(\eta)$ — угловое распределение отраженной интенсивности.

Выполним Фурье-преобразование (2)

$$\Phi(z)\vartheta(z)\vartheta(l-z)e^{-iF(z)} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\eta^r z} Re^{i\varphi} d\eta. \quad (4)$$

Принимая во внимание тот факт, что производная $\vartheta(z)$ есть дельта-функция $\delta(z)$, продифференцируем (4) по переменной z

$$\left\{ \frac{\delta(z)}{\vartheta(z)} + \frac{\delta(l-z)}{\vartheta(l-z)} - iF'(z) + \frac{\Phi'(z)}{\Phi(z)} \right\} \Phi(z)e^{iF(z)}\vartheta(z)\vartheta(l-z) =$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} (-i\eta^r) e^{-i\eta^r z} Re^{i\varphi} d\eta.$$

Разделим обе части полученного соотношения на исходное уравнение (4)

$$\frac{\delta(z)}{\vartheta(z)} + \frac{\delta(l-z)}{\vartheta(l-z)} - iF'(z) + \frac{\Phi'(z)}{\Phi(z)} = -i \frac{A_1(z)}{A_0(z)}, \quad (5)$$

где производная $F'(z)$ непосредственно связана с профилем деформации приповерхностного слоя $\Delta d(z)$

$$F'(z) = \frac{2\pi}{d} \frac{\Delta d(z)}{d} - i\text{Im}(\eta).$$

В выражении (5) введены обозначения

$$A_1(z) = \int_{\Delta\Omega} \eta^r e^{-i\eta^r z} Re^{i\varphi} d\eta, \quad (6)$$

$$A_0(z) = \int_{\Delta\Omega} e^{-i\eta^r z} Re^{i\varphi} d\eta. \quad (7)$$

Строго говоря, уравнение (5) нельзя считать абсолютно точным. Действительно, мы произвели упрощение, суть которого сводится к

замене интегрирования по бесконечным пределам к интегрированию по отрезку, соответствующему угловой области профиля КДО $\Delta\Omega$. Данная замена оправдана, поскольку вне области профиля КДО в подынтегральных выражениях (6), (7) величина модуля АКО R близка к нулю. В левой и правой частях уравнения (5) записаны комплексные функции. Приравнявая мнимые части этих функций, получаем

$$\frac{\Delta d(z)}{d} = \frac{d}{2\pi} \operatorname{Re} \left\{ \frac{A_1(z)}{A_0(z)} \right\}. \quad (8)$$

Это уравнение связывает искомый профиль деформации $f(z) = \frac{\Delta d(z)}{d}$ с интегралами A_1 и A_0 (см. (6) и (7)). В этих интегралах модуль АКО R непосредственно берется из экспериментальной КДО $I_g(\eta)$. Информация о фазе φ отсутствует, поэтому вычисление профиля деформации сводится к рекуррентной процедуре: задается начальный или стартовый профиль деформации $f_0(z) = \Delta d_0(z)/d$, например, по методике, предложенной в [16]. По формулам (1), (3) определяем начальную фазу φ_0 и амплитуду R_0 , при этом R_0 может существенно отличаться от экспериментального значения R . С помощью найденной фазы φ_0 по формуле (8) можно найти $f_1(z) = \Delta d_1(z)/d$ и далее повторить итерационную процедуру. Однако отмеченные выше особенности в точках $z = 0$ и $z = l$ сильно ухудшают сходимость. Поэтому ниже будут предложены методы регуляризации для определения профиля деформации, в основе которых будет лежать решение (8).

2. Вычисление статического фактора Дебая-Валлера

Исходным уравнением для вычисления статического фактора $E(z)$ служит соотношение (4). Выделение области интегрирования $\Delta\Omega$ вместо бесконечных пределов и наличие функции Хевисайда позволяют говорить лишь о приближенном решении. На отрезке $0 < z < l$, исключив точки 0 и l , запишем

$$\Phi(z)e^{-iF(z)} \approx \frac{1}{2\pi} A_0(z). \quad (9)$$

Выделяя модули правой и левой части (9), приходим к выражению для вычисления статического фактора Дебая-Валлера

$$E(z) = \frac{e^{-\operatorname{Im}F(z)}}{|\sigma_g|2\pi} |A_0(z)|. \quad (10)$$

3. Определение толщины градиентного слоя

Построим комплексную функцию вида

$$\hat{R} = \int_z^{l+z} \Phi(z-z') e^{-iF(z-z')} e^{i\eta^r z} dz. \quad (11)$$

Введение новой переменной $\xi = z - z'$ в (11) непосредственно приводит к соотношению, связывающему эту функцию с АКО

$$\hat{R} = R_g e^{i\eta^r z'}. \quad (12)$$

Совершенно очевидно, что

$$\int_{\Delta\Omega} R_g \hat{R}^* d\eta = \int_{\Delta\Omega} I_g(\eta) e^{-i\eta z} dz, \quad (13)$$

где $I_g(\eta)$ — угловое распределение отраженной интенсивности от нарушенного кристаллического слоя.

С другой стороны, по теореме Планшереля [17]

$$\int_{\Delta\Omega} R_g R^* d\eta = \int_{z'}^l \Phi(z) e^{-iF(z)} \Phi^*(z-z') e^{-iF(z-z')} e^{i\eta z} dz = i(z'). \quad (14)$$

Сравнивая (13) и (14), получаем формулу

$$i(z) = \int_{\Delta\Omega} I_g(\eta) e^{-i\eta z} dz. \quad (15)$$

Соотношение (15) служит для определения толщины кристаллического слоя по известному профилю КДО $I_g(\eta)$. Действительно, согласно (14), $i(z) = 0$ в точке $z = l$, что соответствует толщине кристаллического слоя. Таким образом, численно построив по формуле (15) зависимость $i(z)$ по известной из эксперимента функции $I_g(\eta)$ и определив точку, в которой $i(z) = 0$, находим толщину слоя. Следует отметить, что в уравнении для определения толщины слоя не присутствует в явном виде профиль деформации.

В качестве примера рассмотрим дифракцию на однородной монокристаллической пленке толщиной l . В этом случае $I_g(\eta)$ имеет наиболее простое аналитическое решение

$$I_g(\eta) = |\sigma_g|^2 e^{-\text{Im}(\eta l)} \left| \frac{\sin(\eta l/2)}{\eta/2} \right|^2. \quad (16)$$

Так как (15) является Фурье-преобразованием КДО (здесь мы должны вернуться к угловому интервалу $|\Delta\Omega| = \pm\infty$), то для $i(z')$ получаем аналитическое решение

$$i(z) = 2\pi |\sigma_g|^2 e^{-\text{Im}(\eta l)} (l-z), \quad z \leq l, \\ i(z) = 0, \quad z > l. \quad (17)$$

Из (17) непосредственно следует, что при $z = l$ $i(z) = 0$. Таким образом, аналитически подтверждается правильность формулы (15) для однородной монокристаллической пленки. Решение (15) для градиентных слоев проверялось численными методами. Эти расчеты также приводили к правильным результатам в оценке толщины нарушенного слоя.

4. Итерационная процедура. Численный эксперимент

Так как наличие особенностей типа дельта-функции при вычислении профиля деформации по формуле (8) не дает существенной сходимости, возникает необходимость введения компенсирующего члена, что приводит к регуляризации типа

$$f_{k+1} = f_k + \frac{d}{2\pi} \operatorname{Re} \frac{A_1^{(k)}(z) - \int_{\Delta\Omega} \eta e^{-i\eta z} R_k e^{i\varphi_k} d\eta}{A_0^{(k)}(z)}, \quad (18)$$

где

$$A_1^{(k)}(z) = \int_{\Delta\Omega} \eta^r e^{-i\eta^r z} R e^{i\varphi_k} d\eta, \quad A_0^{(k)}(z) = \int_{\Delta\Omega} e^{-i\eta^r z} R_k e^{i\varphi_k} d\eta.$$

В численном эксперименте использовали модельный профиль деформации в виде участка гауссовой кривой (рис. 1, *a*, кривая 1). Вычисления базировались на параметрах, соответствующих (400) отражению $\text{Cu } K_{\alpha_1}$ -излучения от системы ALGaAs. Формула (18) может быть эффективно реализована на первом этапе решения обратной задачи, так как несколько первых итераций дают существенное приближение к искомому профилю. В качестве начального приближения профиля деформации использовалась линейная зависимость изменения межплоскостного расстояния по глубине слоя [16], что соответствует постоянному отрицательному градиенту деформации. На рис. 1, *b* изображены кривые дифракционного отражения модельного слоя и начального приближения. Первая итерация не дает существенного улучшения в приближении к модельной КДО. Однако после девятой итерации наблюдается практическое совпадение кривых.

Данная процедура вычислений не предполагает учета статического фактора Дебая-Валлера. Наличие последнего тормозит процесс сходимости, так как в этом случае требуется одновременное варьирование профиля деформации и статфактора. Поэтому, для того чтобы $k+1$ итерация более эффективно приближала теоретическую КДО к экспериментальному спектру, необходимо проварьировать выражение для амплитудного коэффициента отражения таким образом, чтобы $R_{k+1} = R_k + \delta R = R$. В результате приходим к следующему рекуррентному соотношению:

$$f_{k+1} = f_k + \frac{d}{2\pi} \operatorname{Re} \frac{\iint (\eta^r - \xi^r) R(\eta^r) R_k(\xi^r) e^{-i(\eta^r + \xi^r)z} e^{i[\varphi_k(\eta) + \varphi_k(\xi)]} d\eta d\xi}{\left(\int_{\Delta\Omega} e^{-i\eta^r z} R_k e^{i\varphi_k} d\eta \right)^2}. \quad (19)$$

Следует отметить, что при решении задачи с помощью формулы (19) необходимо иметь достаточно хорошее начальное приближение профиля деформации. Поэтому практически все вычисления по восстановлению структуры нарушенного слоя следует начинать с использования соотношения (18). При этом если дальнейшее использование этой формулы не дает улучшения результата в процессе итераций, то

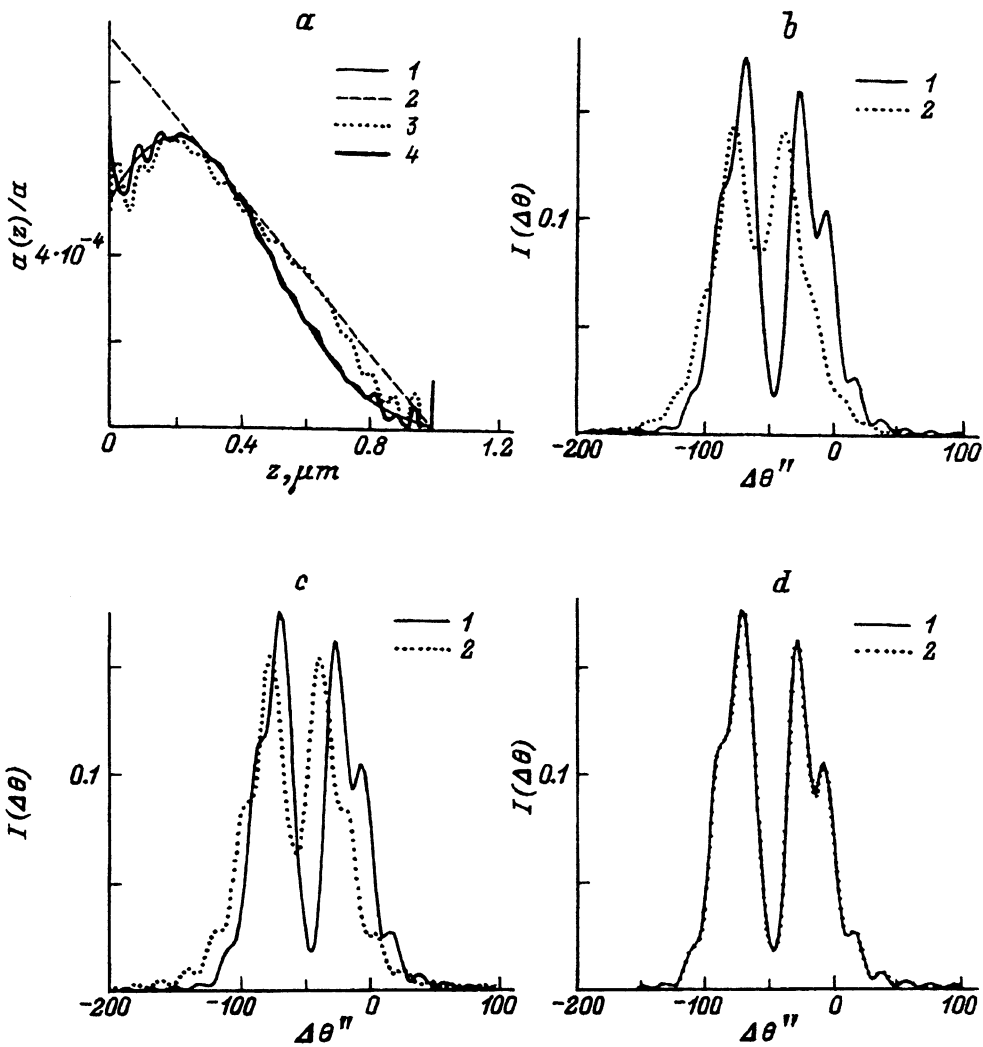


Рис. 1. Результаты численного эксперимента по восстановлению профиля деформации (а) и динамика приближений вычисляемой КДО к модельной кривой после определенного числа итераций.

b — начальное приближение, *c* — после четырех итераций, *d* — после девяти итераций. *a*: 1 — модельный профиль, 2-4 соответствуют рис. *b-d*; *b-d*: 1 — модельная КДО, 2 — вычисляемая КДО.

необходимо перейти к вычислениям по формуле (19). Результат, полученный на первом этапе, будет служить начальным приближением в последующих вычислениях. Эта методика ниже реализована для вычисления профиля деформации и степени аморфизации (статического фактора Лебая-Валлера) эпитаксиального слоя по экспериментальным рентгенодифракционным данным.

5. Определение структурных характеристик эпитаксиального слоя $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}_{0.05}\text{Sb}_{0.95}/(100)\text{GaSb}$ по экспериментальным данным

Изложенный выше подход реализован для вычисления профиля деформаций неоднородного эпитаксиального слоя $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}_{0.05}\text{Sb}_{0.95}$, полученного методом жидкофазной эпитаксии на подложках $(100)\text{GaSb}$ при температуре 600°C (рис. 2). Толщина слоя, измеренная в оптическом микроскопе, приблизительно составляла $0.9\ \mu\text{m}$. Исследования проводились на двухкристальной камере ТРО, совмещенной с генератором RU-200. Для коллимации и монохроматизации первичного пучка использовалось отражение $(440)\text{CuK}\alpha_1$ -излучения от совершенного кристалла Ge с ориентацией (100) . При этом фактор асимметрии составлял 0.095 , а угловая расходимость пучка была менее $1''$. Съемку эпитаксиальной структуры проводили на симметричном отражении (600) .

На рис. 2, *d* показаны экспериментальная и теоретическая кривые дифракционного отражения неоднородного эпитаксиального слоя. Ди-

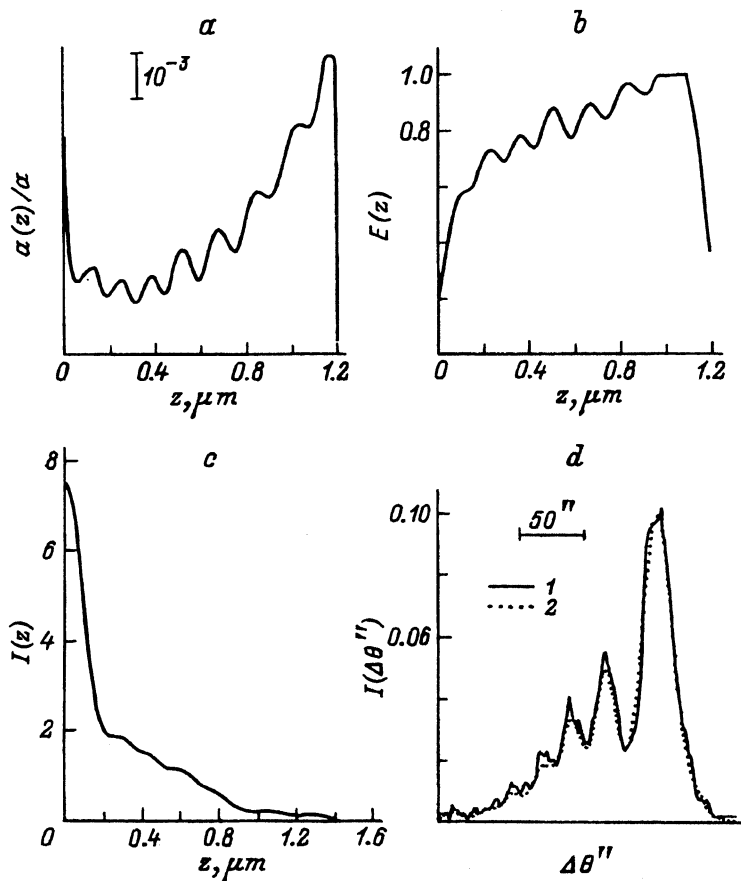


Рис. 2. Определение профиля деформации (а), статического фактора Дебая-Валлера (b) и толщины пленки (c) по экспериментальной КДО (d). 1 — экспериментальная кривая, 2 — теоретическая КДО.

фракционный максимум от подложки расположен на угловом расстоянии порядка 400° от профиля КДО эпитаксиальной пленки и не приведен на рисунке. Поэтому можно утверждать, что влияние подложки на формирование дифракционного спектра эпитаксиального слоя пренебрежимо мало. Рис. 2,с иллюстрирует результаты численной оценки толщины эпитаксиального слоя. Последующие вычисления показали, что наилучшее приближение достигается при $l = 1.2$ мкм. Расхождение с данными оптических измерений на 25% может быть вызвано рядом причин, которые главным образом связаны с точностью этих измерений. Вычисленные по вышеизложенной методике профиль деформации (рис. 2,а) и зависящий от глубины статический фактор Дебая-Валлера (рис. 2,б) имеют осцилляционную структуру. По-видимому, это является следствием флуктуаций состава компонент твердого раствора при приготовлении образца. Такая возможность не исключалась технологией эпитаксиального роста данной структуры.

Предложенный выше метод вычисления структурных характеристик градиентных слоев отличается высокой скоростью. В среднем на восстановление одного профиля с помощью ПЭВ IBM PC-386 требуется порядка 10 мин.

Авторы признательны В.А. Бушуеву, М.А. Андреевой, А.И. Ванину и К.М. Павлову за полезное обсуждение результатов.

Список литературы

- [1] Гончарский А.В., Колпаков А.В., Степанов А.А. Обратные задачи рентгеновской дифрактометрии. Рига, 1992. 181 с.
- [2] Афанасьев А.М., Александров П.А., Имамов Р.М. Рентгенодифракционная диагностика субмикронных слоев. М.: Наука, 1989. 152 с.
- [3] Афанасьев А.М., Фанченко С.С. // ДАН СССР. 1986. Т. 287. № 6. С. 1395-1399.
- [4] Гончарский А.В., Степанов А.А. // ДАН СССР. 1986. Т. 287. № 2. С. 306-311.
- [5] Гончарский А.В., Степанов А.А. // ДАН СССР. 1987. Т. 292. № 1. С. 60-63.
- [6] Степанов С.А., Кондрашкина Е.А., Чузо А.Н. // Поверхность. 1989. № 9. С. 112-118.
- [7] Кон В.Г., Прилепский М.В., Суходрева И.М. // Поверхность. 1984. № 11. С. 122-128.
- [8] Степанов А.А. // Кристаллография. 1992. Т. 37. № 5. С. 1122-1127.
- [9] Kyutt R.N., Petrashen P.V., Sorokin L.M. // Phys. Stat. Sol. (a). 1979. V. 60. P. 381-389.
- [10] Speriou V.S., Glass H.L., Kobayashi T. // Appl. Phys. Lett. 1979. V. 34. N 9. P. 539-542.
- [11] Пунегов В.И. // Поверхность. 1991. № 3. С. 45-49.
- [12] Пунегов В.И. // Кристаллография. 1990. Т. 35. № 3. С. 576-583.
- [13] Пунегов В.И. // ЖТФ. 1991. Т. 61. № 12. С. 71-81.
- [14] Петрашень В.П., Соломин И.К., Фалеев Н.Н., Флакс Л.И. // Тез. докл. III совещ. по всесоюзной межвузовской комплексной программе «Рентген». Ереван, 1989. С. 127.
- [15] Пинскер З.Г. Рентгеновская кристаллооптика. М.: Наука, 1982. 391 с.
- [16] Колпаков А.В., Пунегов В.И. // Поверхность. 1987. № 3. С. 82-84.
- [17] Никольский С.М. Курс математического анализа. Т. II. М.: Наука, 1991. 544 с.

Сыктывкарский
государственный университет

Поступило в Редакцию
5 мая 1993 г.
В окончательной редакции
11 ноября 1993 г.