

ГАММА-ДИФРАКТОМЕТРИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ХАОТИЧЕСКИ РАСПРЕДЕЛЕННЫХ ДИСЛОКАЦИЙ В МОНОКРИСТАЛЛАХ КВАРЦА

© А.И.Курбаков, А.Е.Соколов, И.И.Калашикова,
В.С.Наумов, С.С.Пашков

Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова
Российской академии наук,
188350 Гатчина, Ленинградская обл., Россия
(Поступила в Редакцию 21 декабря 1995 г.)

Исследовался промежуточный между динамическим и кинематическим случай дифракции коротковолнового высокомонохроматического гамма-излучения. Показано, что процессы дифракции гамма-излучения в малодислокационных монокристаллах кварца хорошо описываются в рамках модифицированной статистической динамической теории дифракции. Данная теория была применена при разработке метода неразрушающего контроля плотности дислокаций в объемных монокристаллах, основанного на измерении интегрального коэффициента отражения, что позволило избежать необходимости перенормировки статического фактора Дебая-Валлера. Метод был использован для определения плотности дислокаций в монокристаллах кварца. Результаты сравнивались с данными гидротермального травления кристалла, химического травления вырезанных пластин и рентгеновской топографии. Показана возможность определения плотности дислокаций с точностью до нескольких $\text{см}/\text{см}^3$ в диапазоне 0–200 $\text{см}/\text{см}^3$.

1. В настоящее время существует ряд методик, позволяющих определять плотность линейных дефектов в монокристаллах кварца. Часто применяющиеся прямые методы имеют определенные недостатки: они являются либо разрушающими (травление), либо требующими длительной экспозиции (рентгеновская топография). Более перспективными представляются методы, основанные на дифракции гамма-лучей.

Метод дифракции высокомонохроматического гамма-излучения, методически близкий к двухкристальной рентгеновской дифрактометрии, обладает по сравнению с ней рядом существенных преимуществ: высокой проникающей способностью гамма-квантов (что позволяет вести неразрушающий контроль монокристаллов в объеме при практическом отсутствии ограничений размеров образцов), высоким абсолютным угловым разрешением, возможностью измерений абсолютных значений интегрального коэффициента отражения и на несколько порядков большей чувствительностью к слабым искажениям структуры высокосовершенных образцов [1,2].

Следует отметить, что изучение дифракции гамма-излучения в малодислокационных кристаллах имеет важное теоретическое значение,

так как при этом реализуется довольно сложный с точки зрения интерпретации экспериментальных результатов промежуточный случай дифракции. Плотность дислокаций слишком мала, чтобы использовать кинематическую теорию, но уже не позволяет рассматривать дифракцию как чисто динамическую. Делались попытки описывать промежуточный случай как динамический [3,4], однако они были ограничены случаем малых отклонений от идеальной периодичности потенциала кристалла. Более общими являются динамическая теория рассеяния рентгеновских лучей монокристаллами с микроскопическими однородно распределенными дефектами [5] и статистическая динамическая теория дифракции (СЛТД) [6,7]. В работе [8] СЛТД была применена к дифракции рентгеновского излучения на дислокационном кремнии, но были обнаружены значительные расхождения между результатами теории и экспериментальными данными, вследствие чего был сделан вывод о неприменимости СЛТД к кристаллам, содержащим дислокации. Однако эти же экспериментальные данные затем были достаточно хорошо описаны с использованием уточненного варианта теории [9].

2. Исследования степени структурного совершенства образцов монокристаллического кварца проводились методом дифракции монохроматического гамма-излучения от активированного нейтронами источника ^{198}Au ($E = 412\text{keV}$, $\lambda = 0.03\text{\AA}$, $\Delta\lambda/\lambda \leq 10^{-6}$) на гамма-дифрактометре ПИЯФ РАН. Экспериментальная установка, методика измерений и интерпретации экспериментальных данных подробно описаны в [2,10].

В данных экспериментах сечение пучка гамма-лучей составляло $0.3 \times 10\text{mm}$. Измерялись угловые распределения дифрагированной интенсивности и интегральные коэффициенты отражения (R_i) для семейства рефлексов ($0k0$) методом ω -сканирования в трансмиссионной (Лауэ) геометрии с шагом сканирования $3''$. Измерение интегральных коэффициентов отражения осуществлялось следующим образом: площадь под кривой качания (интегральная интенсивность дифрагированного излучения) нормировалась на интенсивность прошедшего пучка, что позволило абстрагироваться от нормального поглощения и различных размеров образцов и получить R_i . Для исследования различных областей кристаллов осуществлялось перемещение образцов в направлении, перпендикулярном падающему гамма-пучку.

В качестве объектов исследования были выбраны монокристаллы кварца с плотностью дислокаций, меняющейся в небольшом диапазоне: $0\text{--}200\text{см}/\text{см}^3$ (по данным травления). Результаты измерений R_i приведены в таблице. Кроме гамма-дифрактометрического исследования проводились гидротермальное травление кристаллов с последующим подсчетом ямок травления на поверхности пинакоида, травление пластин, вырезанных по АТ-срезу, в бифлюориде аммония с последующим подсчетом каналов травления и рентгеновская топография этих пластин.

3. В литературе достаточно подробно описана дифракция рентгеновских лучей в кристаллах, содержащих дефекты. Поскольку гамма-излучение сходно с рентгеновским по своей природе, отличаясь лишь меньшей длиной волны, в дальнейшем мы будем опираться на теорию взаимодействия рентгеновского излучения с кристаллической решеткой.

Результаты гамма-дифрактометрических измерений, а также измерений и расчетов плотности дислокаций (в cm/cm^3)

Образец	Область образца	t, cm	$R_i \cdot 10^6$	$R_d \cdot 10^6$	E	ρ_1	ρ_2	ρ_3	ρ_4
16	I	3.00	0.57(2)	0.32	0.991	7	2 (0-2)	0.8	0-2 (в отдельных местах до 15)
20	I	3.00	0.99(3)	0.74	0.979	15	10 (2-46)	7.5	4-5
	II		1.56(5)	1.32	0.963	27	44	63.2	0-60 (в среднем 45)
15	I	3.40	1.25(4)	1.00	0.975	18	16 (11-67)	10.8	0-20 (неравномерные скопления)
	II		1.59(5)	1.35	0.967	24	48	29.0	0-30 (в отдельных местах до 60)
21	I	3.35	1.24(4)	0.99	0.975	18	50 (0-68)	13.7	0-30 (очень неравномерно)
25	I	4.65	2.72(7)	2.48	0.955	33	226 (217-297)	96.3	~ 100 (равномерно)
	II		7.77(21)	7.55	0.854	100	258	160.0	~ 200
5	I	3.60	1.27(4)	1.02	0.976	18	105	46.3	50-60 (равномерно)
	II		2.45(7)	2.21	0.948	38	74 (0-416)		
	III		5.34(16)	5.12	0.874	88	138	65.6	90-100 (есть области без дислокаций)
	IV		6.86(21)	6.65	0.832	114	286		

Дислокации относятся к дефектам второго класса по классификации Кривоглаза, поэтому, как показано в [11], в случае дислокационных кристаллов показатель статического фактора Дебая-Валлера $L \gg 1$, и когерентное рассеяние должно исчезнуть, а воздействие дефектов на дифракционную картину сведется к уширению кривых качания, по которому может быть оценена плотность дислокаций. Метод измерения полуширин кривых качания применяется при больших плотностях дислокаций, а в случае малодислокационных кристаллов ($\rho \ll \Lambda_0^2$, где Λ_0 — длина экстинкции) уширение столь незначительно (много меньше приборного разрешения), что практически не может быть использован.

В действительности же при относительно малых плотностях дислокаций ($\rho \ll \Lambda_0^2$) наблюдаются эффекты динамического рассеяния

рентгеновских лучей $^{[12-15]}$ и получаемая по периоду толщинных осцилляций величина $L \ll 1$. Эти данные не позволяют отождествлять динамический и кинематический статические факторы и приводят к необходимости перенормировки L $^{[5,16]}$.

Строгая динамическая теория рассеяния в дислокационных кристаллах в настоящее время не разработана. Тем не менее существует ряд приближенных полуэмпирических моделей $^{[5,16-18]}$, с помощью которых можно получить удовлетворительное описание результатов в случае рентгеновской дифракции. Они основаны на идее о необходимости в случае динамической теории перенормировки величины, играющей роль статического фактора Дебая-Валлера в кинематической теории, путем введения процедуры обрезания вклада далеких дислокаций. Проведенные нами предварительные исследования $^{[19]}$ показывают, что в случае гамма-дифракции такой подход очень ограничен. При использовании коротковолнового излучения из-за большой величины длины экстинкции, которую необходимо сравнивать с расстоянием между хаотически расположенными дислокациями, не вполне применимы упрощения, используемые для рентгена в моделях $^{[5,16-18]}$.

Более плодотворным представляется метод, основанный на СДТД $^{[6,7]}$, в рамках которой не делается никаких предварительных предположений, связанных с типом дефектов, а наблюдаемая интенсивность дифрагированного излучения рассматривается как динамическая интенсивность, усредненная по статистическому ансамблю искажений кристалла. Общее выражение для интегральной интенсивности в случае симметричной геометрии Лауэ представлено в $^{[7]}$ формулами (11)–(20). Интегральная интенсивность является функцией трех переменных: средней фазы решетки E , внутренней корреляционной длины τ и корреляционной длины для амплитуд волновых полей $\Gamma \approx \Lambda_0/E \gg \tau$. Как показано на примере бездислокационного кремния в $^{[20-22]}$, некоторые допущения, сделанные в оригинальной теории Като, приходят в противоречие с экспериментальными данными. Γ является независимой переменной, различной для разных образцов, и имеет величину порядка τ . Удовлетворительные результаты получаются при использовании асимптотической формулы, когда $\tau/\Lambda_0 \rightarrow 0$ (и соответственно $\Gamma/\Lambda_0 \rightarrow 0$) (формула (7) в $^{[22]}$). Учитывая малость углов дифракции для гамма-излучения и проведя усреднение по пренебрежимо малым толщинным осцилляциям интенсивности, переходя от интенсивности к интегральному коэффициенту отражения, получаем следующие довольно простые выражения:

$$R_i = R_{\text{coh}} + R_{\text{inc}}, \quad R_{\text{coh}} = ER_{\text{dyn}},$$

$$R_{\text{inc}} = 2(1 - E^2)R_{\text{dyn}}t/\Lambda_0, \quad \Lambda_0 = V_0/(\lambda r_0 F_{hkl}),$$

где R_{coh} — когерентная составляющая интегрального коэффициента отражения, R_{inc} — некогерентная составляющая, E — средняя фаза решетки (в традиционных теориях статический фактор Дебая-Валлера), R_{dyn} — динамический предел интегрального коэффициента отражения, Λ_0 — длина экстинкции, V_0 — объем элементарной ячейки, λ — длина волны используемого излучения, r_0 — классический радиус электрона,

F_{hkl} — структурный фактор, t — эффективная толщина образца в направлении падающего излучения (т.е. путь, проходимый излучением в образце).

По вышеприведенным формулам из экспериментально полученного R_i можно найти величину E . При этом, поскольку никаких предположений о характере дефектной структуры кристалла не делалось, отпадает необходимость перенормировки.

Для определения плотности дислокаций была применена формула (20) из [16], которая после преобразования к удобной для расчетов форме имеет вид

$$\rho = \frac{R_d}{\frac{\pi}{3} (b \frac{\Lambda_0}{d})^2 Q t},$$

где ρ — плотность дислокаций, b — модуль вектора Бюргерса, d — межплоскостное расстояние для данного отражения, Q — интегральная кинематическая отражающая способность, R_d — составляющая интегрального коэффициента отражения, обусловленная диффузным рассеянием. R_d имеет тот же смысл, что и некогерентная составляющая в теории Като. Таким образом, принимается следующая методика вычисления ρ : по экспериментальному значению R_i находится E , по значению E вычисляется R_d , и по ней находится ρ .

Для каждого рефлекса существуют предельные значения плотности дислокаций ρ_0 , которые соответствуют чисто кинематическому случаю рассеяния ($E = 0$, $R_{\text{coh}} = 0$, $R_i = R_{\text{inc}} = Qt$). Дальнейшее увеличение ρ не окажет влияния на значение R_i , а приведет только к уширению кривой; следовательно, для расчетов по данной методике имеет смысл использовать те рефлексы, для которых ρ_0 наиболее велико. Для монокристаллов кварца это рефлекс (010) ($\rho_0 \approx 370 \text{ см}^2/\text{см}^3$), поэтому именно он и был использован в эксперименте. При $\rho > \rho_0$ для определения плотности дислокаций может быть использован стандартный дифрактометрический метод, основанный на измерении уширения линии.

4. Результаты измерений и расчетов приведены в таблице. Расчеты плотности дислокаций, проведенные на основании данных гамма-дифрактометрии (ρ_1), сравнивались с результатами гидротермального травления кристаллов с последующим подсчетом ямок травления на поверхности пинакоида (ρ_2), травления пластин, вырезанных по АТ-срезу, в бифлюориде аммония с последующим подсчетом каналов травления (ρ_3), рентгеновской топографии этих пластин (ρ_4). Образцы в таблице расположены по уменьшению степени их структурного совершенства.

При расчетах использовались следующие величины: $\Lambda_0 = 0.084 \text{ см}$, $Q = 6.004 \cdot 10^{-6} \text{ см}^{-1}$, $R_{\text{dyn}} = 0.253 \cdot 10^{-6}$, $b = 8.18 \cdot 10^{-11} \text{ см}$.

Абсолютная точность измерения плотности дислокаций по данным гамма-дифрактометрии ρ_1 определяется главным образом адекватностью примененного метода расчета. Относительная же точность в данном случае оказалась очень высокой, что объясняется чувствительностью коротковолновой дифракции. Так, для одной и той же толщины образца (ср. 16-I и 20-II) изменение ρ_1 в 4 раза (от 7 до 27) соответствует изменению экспериментально измеряемой величины R_i на 270% при точности измерения R_i 3%. Данные по ρ_2 приведены как среднее арифметическое плотностей дислокаций на двух параллельных поверхно-

стях кристалла (входной и выходной для гамма-пучка), полученных в 1 cm^2 засвечиваемой гамма-пучком области. В скобках указан полный разброс плотности дислокаций по всему образцу. ρ_3 представляет собой среднее значение плотности дислокаций, определенной по каналам травления в засвечиваемой гамма-пучком области пластины, вырезанной по АТ-срезу. Данные по рентгеновской топографии ρ_4 приведены с краткими комментариями, касающимися характера распределения дислокаций по пластинам.

Из анализа всех результатов, приведенных в таблице, можно сделать следующие заключения.

На самом совершенном кристалле 16, содержащем несколько дислокаций в cm^2 с равномерным их распределением по всему объему, наблюдается хорошее соответствие между данными, полученными всеми примененными методиками.

В случае равномерного распределения дислокаций по макрообластям кристалла при наличии несколько отличающихся по ρ таких областей (образцы 15, 20) соответствие между результатами различных методов остается достаточно хорошим. Гамма-дифрактометрия в этом случае дает меньший разброс в ρ между макрообластями, что, видимо, указывает на то, что на процесс дифракции гамма-излучения оказывают влияние все дислокации кристалла, и процедура обрезания вклада далеких дислокаций, применяемая при рентгеновской дифракции, здесь вряд ли уместна. Плотность дислокаций, определенная методом гамма-дифрактометрии (ρ_1), может рассматриваться как интегральная характеристика всего кристалла.

На трех исследованных образцах из шести выявилось значительное несоответствие между значениями ρ , определенными методами гамма-дифрактометрии, травления пластин и рентгеновской топографии (ρ_1 , ρ_3 и ρ_4), дающими информацию об объеме кристаллов, и данными поверхностного травления слитков (ρ_2), причем как в образце с относительно малой величиной ρ (образец 21), так и с большим ρ (образцы 5, 25). Данные обстоятельства указывают на то, что распределение дефектов в объеме кристаллов малодислокационного кварца может существенным образом отличаться от их распределения в приповерхностных областях.

Экспериментально измеренные значения R_i находились в диапазоне $\approx (2-30)R_{\text{dyn}}$, вычисленные по ним величины E (даже для первого порядка отражения) изменялись в довольно широком диапазоне 0.83–0.99, в то время как, согласно рентгеновской дифрактометрии, значения E всегда очень близки к единице [8,15,23]. Данный факт еще раз подтверждает очень высокую чувствительность выбранного параметра — интегрального коэффициента отражения коротковолнового гамма-излучения — к небольшим изменениям плотности линейных дефектов.

Исследования были выполнены при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований в рамках проекта № 94-02-03771.

- [1] В.Л. Алексеев, Л.А. Гордиенко, Б.Н. Гречушников, О.В. Качалов, А.И. Курбаков, В.А. Трунов. Кристаллография **34**, 4, 922 (1989).
- [2] A.I. Kurbakov, N.A. Sobolev. Mat. Sci. Eng. **B22**, 149 (1994).
- [3] Е.А. Тихонов. ФТТ **9**, 2, 516 (1967).
- [4] A.M. Afanasev, Yu. Kagan, F.N. Chukhovskii Phys. Stat. Sol. **28**, 1, 287 (1968).
- [5] Л.И. Даценко, В.Б. Молодкин, М.Е. Осиновский. Динамическое рассеяние рентгеновских лучей реальными кристаллами. Киев (1988). 200 с.
- [6] N. Kato. Acta Cryst. **A36**, 763 (1980).
- [7] N. Kato. Acta Cryst. **A36**, 770 (1980).
- [8] N.M. Olekhnovich, A.L. Karpei, A.I. Olekhnovich, L.D. Puzenkova. Acta Cryst. **A39**, 116 (1983).
- [9] M. Al Haddad, P. Becker. Acta Cryst. **A44**, 262 (1988).
- [10] А.И. Курбаков, В.А. Трунов, Р.П. Дмитриев, В.И. Кадашевич, Я.А. Касман, И.А. Краснощекова, Г.А. Крутов, В.И. Петрова, В.А. Приемышев, Э.Э. Рубинова, В.А. Тюкавин. Препринт ЛИЯФ-1307. Л. (1987). 59 с.
- [11] М.А. Кривоглаз. Теория рассеяния рентгеновских лучей и тепловых нейтронов идеальными кристаллами. М. (1967). 336 с.
- [12] О.Н. Ефимов. ФТТ **5**, 5, 1466 (1963).
- [13] S.J. Maguyama. J. Phys. Soc. Jap. **20**, 8, 1399 (1965).
- [14] L.I. Datsenko, M.Ya. Skorokhod, A.S. Vasilkovskii. Phys. Stat. Sol. (a) **30**, 1, 231 (1968).
- [15] Н.М. Олехнович, А.Л. Карпей, А.И. Олехнович. ДАН БССР **27**, 12, 1083 (1983).
- [16] В.Б. Молодкин, Л.И. Даценко, В.И. Хрупа, М.Е. Осиновский, Е.Н. Кисловский, В.П. Кладько, Н.В. Осадчая. Металлофизика **5**, 6, 7 (1983).
- [17] Н.М. Олехнович. Металлофизика **8**, 1, 48 (1986).
- [18] В.И. Хрупа. Завод. лаб. **57**, 2, 41 (1991).
- [19] I.I. Kalashnikova, V.S. Naumov, A.I. Kurbakov, P.E. Kandyba, S.S. Pashkov, A.E. Sokolov. Abstracts and proc. of Int. Symp. on Surface Waves in Solides (ISSWAS-94). Russia (1994).
- [20] P.J. Becker, M. Al Haddad. Acta Cryst. **A46**, 123 (1990).
- [21] J.R. Schneider, R. Bouchard, H.A. Graf, H. Nagasawa. Acta Cryst. **A48**, 804 (1992).
- [22] T. Takama, H. Harima. Acta Cryst. **A50**, 239 (1994).
- [23] Р.Н. Кютт. Кристаллография **33**, 4, 827 (1988).