05;07;11;12

Характер рентгенодифракционного рассеяния и определение структурных параметров пленки с переменным градиентом деформации

А.А. Дышеков, Ю.П. Хапачев

Кабардино-Балкарский государственный университет,
360004 Нальчик, Россия

(Поступило в Редакцию 24 февраля 1998 г.)

Рассмотрим особенности рентгенодифракционного поля в структурах с переменным градиентом деформации на примере модели с экспоненциальным профилем. Показано, что задача восстановления структурных параметров нарушенного слоя по угловым положениям основного максимума и осцилляций в общем случае оказывается неоднозначной даже при монотонном изменении деформации по глубине. Получены условия, при которых решение этой задачи оказывается возможным. Выявлена аналогия с результатами подхода к расшифровке параметров нарушенного слоя, основанного на использовании интегральных характеристик кривой дифракционного отражения.

Аналитическое исследование деформированной приповерхностной области кристалла рентгенодифракционными методами существенно опирается на информацию о структуре волнового поля по глубине кристалла в различных угловых интервалах вблизи брэгговского максимума [1]. Деформационный профиль при этом описывается некоторой моделью, в которой заложена информация о структурных параметрах нарушенной области: толщине слоя, характере убывания по глубине и т. д. Полный анализ при различных условиях дифракции и возможных соотношениях структурных параметров возможен лишь для таких профилей, для которых известно точное аналитическое решение соответствующей динамической задачи дифракции [1]. В этой связи особое значение приобретает задача дифракции для экспоненциального профиля

$$\varepsilon(z) = \varepsilon_0 e^{-Mz}, \qquad (1)$$

где ε_0 — амплитуда деформации; M — положительная величина, пропорциональная градиенту деформации и определяющая некоторую характерную толщину, на которой происходит изменение деформации; z — координата по нормали в глубь кристалла.

Точное решение задачи динамической дифракции для кристалла с экспоненциальным изменением деформации (1) в общем случае имеет вид [2,3]

$$E_{\mathbf{H}}(\tau) = C_1 e^{-i(\kappa+\kappa_0)\tau} \times F\left(1+\frac{i}{\mu}(\kappa+\kappa_0),\, 1+\frac{i2\kappa_0}{\mu};\, \frac{i2\xi}{\mu}e^{-\mu\tau}\right) + C_2 e^{-i(\kappa-\kappa_0)\tau} \times F\left(1+\frac{i}{\mu}(\kappa-\kappa_0),\, 1-\frac{i2\kappa_0}{\mu};\, \frac{i2\xi}{\mu}e^{-\mu\tau}\right), \qquad (2)$$

где $F(a, c; x)$ — вырожденная гипергеометрическая функция; C_1 и C_2 — произвольные постоянные, определяемые граничными условиями задачи.

В (2) введены следующие обозначения:

$$\kappa = \left(-2\Delta\theta\sin 2\theta - \chi_0\left(1-\frac{\gamma_{\mathbf{H}}}{\gamma_0}\right)\right)\frac{\pi L}{2\gamma_{\mathbf{H}}\lambda},$$

$$\xi = -\frac{\pi L}{2\gamma_{\mathbf{H}}\lambda}4\sin^2\theta\left(\cos^2\varphi \pm \frac{1}{2}\operatorname{ctg}\theta\sin 2\varphi\right)\varepsilon_0,$$

$$\delta_0 = \left(\frac{L}{L_{\text{ext}}}\right)^2, \quad L_{\text{eta}} = \frac{\lambda\sqrt{|\gamma_{\mathbf{H}}|\gamma_0}}{\pi\eta|\chi_{\mathbf{H}}|},$$

$$\kappa_0^2 = \kappa^2 - \delta_0, \qquad \mu = ML,$$

$\Delta\theta$ — отклонение от точного угла Брэгга θ; $\gamma_{\mathbf{H}} = -\sin(\theta \pm \varphi)$ и $\gamma_0 = -\sin(\varphi \pm \theta)$ — соответственно направляющие косинусы волновых векторов дифрагированной и преломленной волн; φ — угол наклона плоскости дифракции к поверхности кристалла; L_{ext} — длина экстинкции; λ — длина волны падающего излучения; φ_0 — амплитуда деформации; η — поляризационный фактор; $\tau = z/L$ — нормированная на толщину кристалла L координата; знак "$+$" ("$-$") соответствует геометрии дифракции, когда падающий пучок расположен под углом $\theta - \varphi(\theta + \varphi)$ к поверхности кристалла.

Ограничим наше рассмотрение случаем резкого градиента деформации, соответствующим малой толщине приповерхностной деформированной области. В качестве параметра малости выберем "эффективную толщину" $1/\mu$ деформированной области, отнесенную к полной толщине кристалла,

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{ML}.$$

Здесь следует оговорить особо, какая именно величина в точном решении предполагается малой по отношению к μ. Поскольку мы намерены использовать получаемые соотношения для произвольных значений деформации (а значит, и характерного для теории параметра ξ), то указанной ограничение будет определять только угловой интервал, в котором можно строить кривую дифракционного отражения (КДО). Таким образом, угловая область, для которой справедливо использованное приближение, ограничивается условиями $|\kappa/\mu| \ll 1$ и $|\kappa_0/\mu| \ll 1$.

Как следует из (2), угловые величины κ_0 и κ входят в функции $F(a,c;x)$ только через параметры a и c, а зависимость от деформации отнесена только к аргументу x. Эта особенность решения позволяет найти для $F(a,c;x)$ так называемое равномерно пригодное асимптотическое разложение [4], при произвольных значениях деформации для указанного выше углового интервала.

Анализ решения (1) в случае резкого градиента показывает [2,3], что структура КДО в целом сохраняет вид, присущий идеальному кристаллу. В то же время наличие деформированной приповерхностной области проявляется в дополнительной модуляции стоячих рентгеновских волн, а также к изменению фазовых соотношений между ними. Вследствие такого перераспределения единого волнового поля в деформированной структуре основной дифракционный максимум и осцилляционные максимумы смещаются от угловых положений, соответствующих идеальному кристаллу.

Угловое положение основного дифракционного максимума с точностью до членов порядка $1/\mu^2$ определяется следующим выражением [3]:

$$\kappa(0) = -\rho(\delta_0)\frac{\mathrm{Si}(2\xi/\mu)}{\mu},$$

$$\rho(\delta_0) = \frac{15(2\delta_0^2 + \delta_0 + 3)}{12\delta_0^2 + 7\delta_0 + 15}, \qquad (3)$$

где $\mathrm{Si}(x)$ — интегральный синус, а коэффициент $\rho(\delta_0)$ определяет характер рассеяния.

Как видно из (3), зависимость углового смещения от амплитуды деформации оказывается существенно нелинейной. Более того, вследствие осцилляционного характера интегрального синуса между ξ и $\Delta\kappa(0)$ в общем случае даже нет однозначного соответствия. Из (3) получим два характерных предела: кинематический предел ($\delta_0 \to 0$) и случай толстого кристалла, соответствующего формальному пределу $\delta_0 \to \infty$. Для кинематического предела из (3) будем иметь

$$\kappa(0)_{\mathrm{kin}} = -3\frac{\mathrm{Si}(2\xi/\mu)}{\mu}. \qquad (4)$$

а для толстого кристалла угловое смещение основного максимума определяется соотношением

$$\kappa(0)_{\mathrm{dyn}} = -\frac{5}{2}\,\frac{\mathrm{Si}(2\xi/\mu)}{\mu}. \qquad (5)$$

Таким образом, эти два случая различаются только численным коэффициентом. Причем, как следует из (3), зависимость углового смещения основного максимума от δ_0 носит монотонный характер и численное различие обоих предельных случаев не превышает 20%. Поэтому в дальнейших оценочных выражениях достаточно принять среднее значение для $\rho(\delta_0) = 2.75$.

Аналогичный расчет для угловых ширин осцилляционных максимумов дает следующий результат [3]:

$$\Delta\kappa(n) = \pi\left(1 + \frac{1}{\mu}\mathrm{Cin}\left(\frac{2\xi}{\mu}\right)\right), \qquad (6)$$

где функция

$$\mathrm{Cin}(x) = \int_0^x \frac{1-\cos y}{y}\,dy = -\mathrm{Ci}(x) + \ln(x) + \gamma$$

выражается через интегральный косинус $\mathrm{Ci}(x)$, $\gamma = 0.577$ — постоянная Эйлера [5].

В формуле (6) порядковый номер n осцилляционного максимума не должен быть слишком большим, чтобы разложение оставалось справедливым. При выводе (6) было принято во внимание, что динамические эффекты проявляются в основном лишь в пределах области полного дифракционного отражения, поэтому уже практически при $n \geqslant 2$ можно использовать кинематическое приближение.

Рассмотрим два варианта, при которых возможна оценка толщины деформированной приповерхностной области и амплитуды деформации по данным угловых смещений основного дифракционного максимума и осцилляций.

В случае, если величина $2\xi/\mu \gg 1$ (а фактически уже при $2\xi/\mu > 2$), имеем $\mathrm{Si}(x) \sim \pi/2$ и $\mathrm{Cin}(x) \sim \gamma + \ln(x)$ [5]. Здесь проявляется отличительная особенность рентгеновской дифракции в структурах с переменным градиентом деформации: угловое положение основного дифракционного максимума оказывается не зависящим от амплитуды деформации, а определяется лишь толщиной деформированного слоя. Подобную ситуацию можно интерпретировать как результат многократного инвертирования фазы дифракционной волны на толщине нарушенного слоя и "забывания" деталей начального "возмущения" (амплитуды деформации). Вследствие этого данный случай рассеяния имеет определенную аналогию с марковским процессом.

Таким образом, критерием экспериментальной реализации этого случая будет служить постоянство величины $\kappa(0)$ в пределах указанной выше погрешности, определяемой характером рассеяния (измерением $\rho(\delta_0)$), от порядка отражения.

Из (3) и (6) получим следующие оценочные выражения для толщины нарушенного слоя и амплитуды деформации в экспериментальных единицах $\kappa(0)$ и $\Delta\kappa(n)$:

$$\frac{1}{\mu} = -0.23\kappa(0), \quad \xi = 0.28\mu\exp\left(\left(\frac{\Delta\kappa(n)}{\pi}\right)\mu\right). \qquad (7)$$

Здесь следует отметить, что данное выражение для ξ носит в значительной степени иллюстративный характер. Это связано с тем, что, согласно (6), угловая ширина осцилляций $\Delta\kappa(n)$ определяется в первую очередь полной толщиной кристалла. Влияние же $\Delta\kappa(n)$ от параметров деформированной приповерхностной области ξ и μ здесь проявляется значительно слабее, поскольку оно имеет характер малой аддитивной добавки. В итоге оказывается, что экспфонента в выражении для ξ в (7) при одном и том же μ всегда весьма близка к единице.

Чаще всего в кристаллах с нарушенным слоем реализуется второй вариант, который соответствует условию $2\xi/\mu \ll 1$. В случае малых значений аргумента для функции $\mathrm{Si}(x)$ и $\mathrm{Cin}(x)$ имеем оценку $\mathrm{Si}(x) \sim x$ и $\mathrm{Cin}(x) \sim x^2/4$. Следовательно, $\Delta\kappa(0)$ оказывается линейно зависящей от ξ, что должно наблюдаться экспериментально. Этот результат вполне совместим с наглядной интерпретацией смещения углового положения основного дифракционного максимума как проявление эффекта некоторого нетривиального "дифракционного усреднения" рентгеновской волной поля деформации по толщине нарушенного слоя. Аналогичные (7) соотношения имеют вид

$$\frac{1}{\mu} = 0.033\,\frac{\kappa^2(0)}{(\Delta\kappa(n)/\pi - 1)}, \qquad \xi = 0.18\mu^2\kappa(0). \quad (8)$$

Таким образом, в рассмотренных предельных случаях информации об угловых смещениях основного максимума и осцилляций оказывается вполне достаточно для оценки в первую очередь толщины деформированной области и лишь во втором случае амплитуды деформации. Однозначная разрешимость этой задачи (для толщины деформированной области) оказывается связанной с двумя альтернативными случаями: условием малости величины отношения деформации на поверхности кристалла к толщине нарушенного слоя или, наоборот, большого значения этой величины. В противном случае для корректного решения задачи необходимо привлекать дополнительную информацию.

Приведем результаты расчета величин ξ и μ по формулам (7) и (8) для двух случаев. Для определения угловых смещений строилась теоретическая КДО по заданным ξ и μ вблизи основного дифракционного максимума с использованием асимптотических представлений точного решения в рассматриваемом случае резкого градиента [2,3].

Для первого случая $2\xi/\mu \gg 1$ для заданных значений, $\xi = 20$ и $\xi = 30$ при $\mu = 10$ получаются следующие значения: $\mu = 8.9$, $\xi = 5.03$ и соответственно $\mu = 9.7$, $\xi = 8.5$. Таким образом, полученное хорошее приближение для μ и полное несоответствие для ξ (отличие практически в четыре раза) иллюстрирует приведенное выше рассуждение об аналогии с марковским процессов — потере информации о ξ.

Для второго случая $2\xi/\mu \ll 1$ расчет дает следующие величины $\xi = 1.2$, $\mu = 8.5$ при истинных значениях $\xi = 1$ и $\mu = 8$, и $\xi = 2.02$, $\mu = 6.7$ для $\xi = 2$ и $\mu = 8$. Здесь проблемы с потерей информации не возникает и подобную точность для оценочных выражений можно считать вполне удовлетворительной.

Полученные результаты для конкретной задачи дифракции в кристалле с экспоненциальным изменением деформации позволяют перейти к следующему обобщению. Приведенные выше соотношения по существу устанавливают качественные критерии той или иной степени разрешимости задачи определения амплитуды деформации и толщины деформированной области по рентгенодифракционным данным. Это утверждение в равной степени относится как к аналитическим, так и к численным методам, поскольку последние существенно опираются на угловые положения и ширины дифракционных максимумов [6].

Интересно отметить, что аналогичные выводы можно получить и при рассмотрении задачи дифракции в так называемом полукинематическом приближении, когда приповерхностный нарушенный слой кристалла считается рассеивающим кинематически, а подложка рассеивает, как идеальный динамический кристалл. В [7] при решении такой задачи было получено соотношение, связывающее фурье-трансформанту КДО вдали от основного максимума с нековторой эффективной толщиной L_{eff}. В обозначениях настоящей работы эта формула имеет вид

$$L_{\mathrm{eff}} = \int\limits_0^{1/\mu} \left(1 - \cos\left(-\frac{\xi}{\mu}e^{-\mu\iota}\right)\right) \mathrm{d}\iota$$
$$= \frac{1}{\mu}\left(1 - \mathrm{Ci}\left(\frac{\xi}{\mu}\right) + \mathrm{Ci}\left(\frac{\xi}{\mu}e^{-1}\right)\right). \quad (9)$$

Для первого из указанных выше характерных пределов из (9) получим

$$L_{\mathrm{eff}} = \frac{\xi^2}{4\mu^3}, \quad (10)$$

т. е. в случае неполного инвертирования фазы на толщине нарушенного слоя L_{eff} зависит от параметров нарушенного слоя и, таким образом, оказывается возможным их восстановление по рентгенодифракционным данным.

С другой стороны, оценка (9) при условии $2\xi/\mu \gg 1$ (многократное инвертирование фазы) дает

$$L_{\mathrm{eff}} = \frac{1}{\mu}\left(1 - \frac{\sin(\xi/\mu)}{\xi/\mu}\right). \quad (11)$$

Поскольку второй член в (11) для больших значений аргумента осциллирует вблизи нуля и много меньше единицы, то эффективная толщина сводится лишь к глубине нарушенного слоя и не зависит от амплитуды деформации. Тем самым в этом случае мы имеем дело с потерей информации о параметрах нарушенного слоя.

Чрезвычайно важно, что этот результат можно обобщить и для других спадающих на глубине профилей деформации, проводя оценку интеграла (9). При этом, однако, остается существенное ограничение — изменение деформации по глубине должно иметь монотонный характер. В математическом отношении это требование сводится к отсутствию стационарных точек в фазе косинуса интеграла (9) на толщине нарушенного слоя.

Это фактически означает, что сюда может быть отнесен целый класс знакопостоянных профилей деформаций, спадающих на глубине по крайней мере не слабее, чем экспонента.

Таким образом, можно сделать следующий вывод. Результаты, полученные для кристалла с экспоненциальным градиентом деформации, позволяют считать, что указанные закономерности рентгеновской дифракции проявляются во всех структурах с переменным градиентом и монотонным изменением деформации по глубине. Причем аналогия имеет место как при использовании интегральных характеристик типа фурье-трансформанты КДО, так и угловых положений дифракционных максимумов для расшифровки структуры нарушенного слоя.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, проект № 98-02-16151.

Список литературы

[1] *Афанасьев А.М., Кон В.Г.* // ЖЭТФ. 1978. Т. 74. Вып. 1. С. 300–313.
[2] *Дышеков А.А., Хапачев Ю.П.* // Поверхность. 1997. Вып. 3.
[3] *Дышеков А.А., Хапачев Ю.П.* // Поверхность. 1997. Вып. 3.
[4] *Найфэ А.* Методы возмущений. М.: Мир, 1976. 455 с.
[5] *Абрамовиц М., Стиган И.* Справочник по специальным функциям. М.: Наука, 1979. 832 с.
[6] *Бушуев В.А., Хапачев Ю.П., Лидер В.В.* // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. Вып. 23. С. 74–78.
[7] *Afanasev A.M., Kovalchuk M.V., Kovev E.K., Kohn V.G.* // Phys. St. Sol. (a). 1977. Vol. 42. P. 415–422.