

УДК 537.531

ОСОБЕННОСТИ ДИФРАКЦИИ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ В ТОЛСТЫХ СОВЕРШЕННЫХ КРИСТАЛЛАХ С ПРИПОВЕРХНОСТНЫМИ ДЕФОРМИРОВАННЫМИ СЛОЯМИ

А.О. АБОЯН

Государственный инженерный университет Армении, Ереван

(Поступила в редакцию 27 января 2010 г.)

Исследована дифракция рентгеновских лучей в толстых совершенных кристаллах с приповерхностными деформированными слоями. Показано, что в деформированных слоях происходит кинематическое рассеяние, а в объеме совершенной части – динамическое рассеяние. Выявлено, что в пучках, дифрагировавших на поверхностных дефектах, существенную роль играет вторая гармоника использованного характеристического излучения $\text{MoK}_{\alpha 1}$.

1. Введение

Как известно, рентгеновская дифракционная диагностика дефектов приповерхностных слоев совершенных кристаллов имеет большое научное и практическое значение [1,2], в особенности для производства полупроводниковых приборов. В [1] теоретически разработан и экспериментально осуществлен ряд новых высокочувствительных методов, позволяющих получить информацию о структурном совершенстве тончайших приповерхностных слоев. В [2] обсуждаются методики, использующие дифракцию рентгеновских лучей при скользких углах падения, причем изучение свойств поверхности и приповерхностных слоев ведется по угловым энергетическим спектрам упруго рассеянного рентгеновского излучения.

Дифракция рентгеновских лучей скользкого угла падения, при которой оба угла, как падения, так и выхода, малы и вектор дифракции приблизительно параллелен поверхности [3-7], является дифракционной геометрией, очень чувствительной к постоянной решетки. Как правило, этот метод чувствителен для исследования шероховатых поверхностей [8,9], так же, как и для исследования структуры тонких пленок, помещенных на шероховатой поверхности [10]. Другим методом исследования рентгеновского рассеяния на тонких пленках и многослойных структурах являются измерения незеркального рентгеновского рассеяния от шероховатых поверхностей и интерфейсов при определенных малых углах, что позволяет достичь очень малой расходимости падающего пучка и, следовательно, высокой разрешимости, близкой к зеркально-отраженному пучку [11]. Ранее нами в [12] предложен метод получения рентгенотопографических

изображений приповерхностных деформированных слоев и определения их толщины.

В настоящей работе исследована дифракция рентгеновских лучей в случае Лауэ в толстых совершенных кристаллах с приповерхностными нарушенными слоями. Необходимо отметить, что для изучения очень тонких приповерхностных слоев толстых кристаллов традиционный метод Лауэ неприменим, так как светосила этого метода слишком мала. Целью настоящей работы является исследование некоторых закономерностей дифракции рентгеновских лучей в таких кристаллах, в частности, происхождение контраста рентгенодифракционных изображений приповерхностных и объемных нарушений структуры.

2. Методика эксперимента

Из бездислокационного кремния были изготовлены образцы параллелепipedальной формы толщиной 10–15 мм с отражающими плоскостями (110), перпендикулярными поверхности (симметричный случай Лауэ, рис.1). После травления образца была получена его топограмма с использованием рефлекса

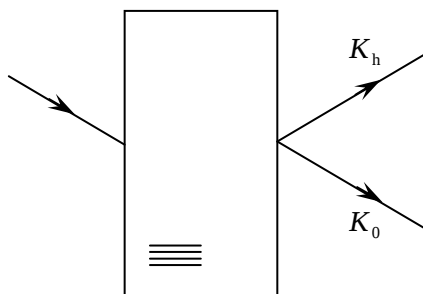


Рис.1. Симметричная схема Лауэ, примененная в эксперименте.

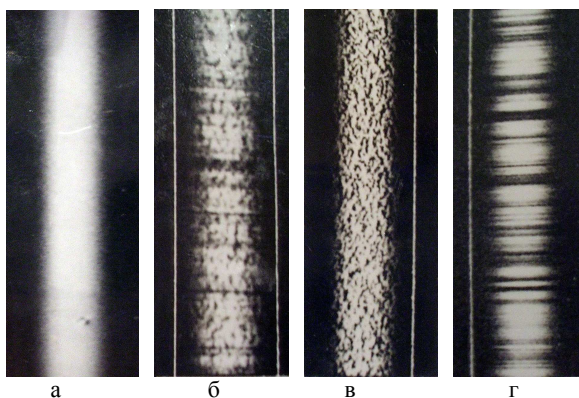


Рис.2. Отражения от монокристалла кремния толщиной 12 мм: а) образец подвергнут химическому травлению; б) обе поверхности обработаны мелким алмазным порошком; в) входная поверхность

протравлена, выходная отшлифована; г) входная поверхность отшлифована, выходная протравлена.

(220) (рис.2а), ясно показывающая, что образец действительно не содержит дислокаций. Затем входные и выходные поверхности образцов были отшлифованы мелким алмазным порошком. На рис.2б представлен один из снимков, полученных от шлифованных образцов. Из этого снимка видно, что основная (широкая) линия с двух сторон сопровождается тонкими (интенсивными) белыми линиями (здесь и далее речь идет о позитиве); на основной линии получены белые горизонтальные (поперечные) линии, а между ними беспорядочно расположены белые и черные фигуры различной формы.

3. Интерпретация структуры рефлекса (220), полученной от толстого совершенного кристалла с приповерхностными деформированными слоями

Впервые структура рефлекса (220) была исследована в [13]. Можно показать, что тонкие интенсивные линии получаются от деформированных шлифовкой поверхностных слоев при наличии расходимости первичного падающего пучка. Тонкая линия, расположенная справа от основной, получается, от приповерхностного слоя – на входной поверхности кристалла, а слева – от приповерхностного слоя на выходной поверхности. Если обе поверхности кристалла протравлены, то эти линии не получаются (рис.2а); если отшлифована только входная поверхность, то исчезает левая линия (рис.2в), а если отшлифована только выходная поверхность кристалла, то исчезает правая линия (рис.2г).

Наличие на фотопленке тонких линий от шлифованных поверхностей обусловлено тем, что интенсивность пучка, дифрагировавшего на дефектах, больше, чем пучка, испытавшего дифракцию на совершенной части. Например, в нашем эксперименте, при длине коллиматора 400 мм и ширине диафрагмы 0,7 мм, угловая расходимость первичного пучка составляла примерно 400". При указанных параметрах, как показали микрофотометрические измерения топограмм, интенсивность дифракции на дефектах в сто раз больше интенсивности дифракции на совершенной части. При отсутствии расходимости или при малой расходимости первичного пучка тонкие боковые линии не должны получаться из-за большого коэффициента поглощения (нормальное поглощение). Чтобы убедиться в этом, был поставлен эксперимент: первичный пучок пропусклся через монохроматор Отье [14], причем монохроматор и образец были изготовлены из одного монокристалла и имели общее основание (рис.3а).

Отраженный в монохроматоре пучок K_h (рис.3б) не имеет расходимости и проявляет себя в качестве плоской волны. Напротив, проходящий пучок K_0 сохраняет свою первоначальную расходимость. Именно поэтому рефлексы на рис.3в и д, образованные отраженным в монохроматоре пучком K_h , не сопровождаются тонкими линиями, а рефлекс на рис.3г, образованный проходящим пучком K_0 , имеющим расходимость, с двух сторон сопровождается тонкими линиями.

Однако, даже с учетом расходимости первичного пучка, интенсивность боковых линий в условиях толстых поглощающих кристаллов получалась выше ожидаемой. Дело в том, что лучи, дифрагировавшие на дефектах поверхности и дающие изображение тонкой боковой линии внутри кристалла, направлены не под углом Брэгга и должны были бы сильно поглощаться.

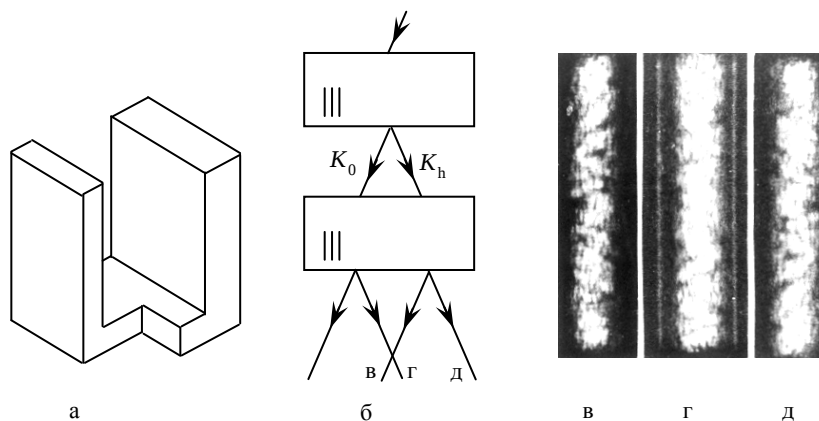


Рис.3. Монохроматор Отье и полученные с его помощью снимки: а) общий вид монохроматора и образца, имеющих общее основание; б) ход лучей в системе; в), г), д) топограммы, соответствующие пучкам K_0 и K_h (лучи в,г,д на рис.3б).

Для объяснения большой интенсивности боковых линий была проведена проверка участия гармоник характеристического излучения в их спектре. Как известно, коротковолновая граница непрерывного спектра излучения рентгеновской трубки определяется из условия $\lambda(\text{\AA}) = 12.4/U(\text{kV})$, где λ – длина волны, U – напряжение на трубке. Отсюда порог возбуждения второй гармоники характеристического излучения $\text{MoK}_{\alpha 1}$ с $\lambda = 0.354 \text{\AA}$ получается чуть меньше 35 кВ. Так как съемка проводилась при напряжении на трубке, равном 40 кВ, то в спектре излучения присутствовала вторая гармоника. В эксперименте первичный пучок, падающий на исследуемый кристалл, характеризуется как угловой расходимостью, так и определенным спектральным составом. Спектральная интенсивность характеристического излучения велика по сравнению с интенсивностью тормозного излучения, но с другой стороны, нормальный коэффициент для коротковолновой части непрерывного спектра намного меньше коэффициента поглощения характеристического излучения. Например, для кристалла кремния и излучения $\text{MoK}_{\alpha 1}$ ($\lambda = 0.71 \text{\AA}$) коэффициент поглощения $\mu = 14 \text{ см}^{-1}$, а для второй гармоники с $\lambda = 0.354 \text{\AA}$ $\mu = 1.75 \text{ см}^{-1}$. Как видно из рис.4б, полученного от толстого кристалла ($t = 10 \text{ мм}$), боковые линии действительно отсутствуют. Чтобы полностью исследовать проблему, были сняты топограммы тонкого кристалла ($t = 1.5 \text{ мм}$), приготовленного, как и толстый, с плоскостями (110), перпендикулярными отшлифованным поверхностям. На рис.4в,г видно, что боковые линии получаются при съемке как с

$U = 40$ кВ, так и $U = 28$ кВ. Следует указать, что вследствие малой толщины кристалла боковые светлые линии на рис.4в,г не отделились от средних широких основных рефлексов, а близко примыкают к ним, являясь их границами. Действительно, на рис.4в,г основные рефлекссы имеют по этой причине резко выраженные границы в виде светлых линий, а, например, на рис.4а, полученном от толстого кристалла ($t = 10$ мм), светлые боковые линии отделены от основного рефлекса, не имеющего резких границ. В случае тонкого кристалла (рис.4г) светлые боковые линии получаются лишь благодаря расходимости первичного пучка и малости коэффициента μt .

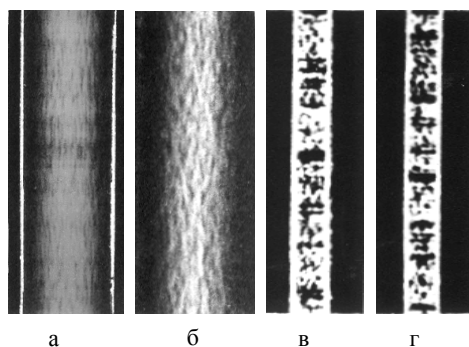


Рис.4. Топограммы, полученные от кристаллов при разных режимах работы рентгеновской трубки. При 40 кВ в спектре присутствует вторая гармоника характеристического излучения $\text{MoK}_{\alpha 1}$ при 28 кВ она отсутствует: а) толщина образца $t = 10$ мм, напряжение на трубке $U = 40$ кВ; б) $t = 10$ мм, $U = 28$ кВ; в) $t = 1.5$ мм, $U = 40$ кВ; г) $t = 1.5$ мм, $U = 28$ кВ.

Таким образом, белый контраст тонких боковых линий в случае толстых кристаллов является результатом наличия как расходимости первичного пучка, так и малого коэффициента поглощения второй гармоники, присутствующей в этой линии.

Была также экспериментально исследована зависимость толщины тонкой боковой линии от некоторых факторов. Увеличение ширины диафрагмы, при прочих неизменных условиях, приводило к росту толщины линии. Причем при диафрагме шириной 4 мм это уже не тонкие линии, а широкие полосы, перекрываемые друг с другом и с основной линией рефлекса, на которую изменение ширины диафрагмы, естественно, не влияло. Ширина боковой линии растет также с увеличением размера зерен, используемых для шлифовки поверхности порошка, что связано с увеличением толщины нарушенного слоя, информацию о котором несет в себе боковая линия. На рис.5 представлены топограммы, на которых видно их уширение с увеличением расстояния от кристалла до фотопленки. Микрофотометрирование этих снимков дало расходимость порядка $400''$, что с большой точностью совпало с расходимостью

первичного пучка в нашем эксперименте (длина коллиматора $l = 400$ мм, ширина диафрагмы $d = 0.7$ мм и расхождимость $\alpha = 400''$)

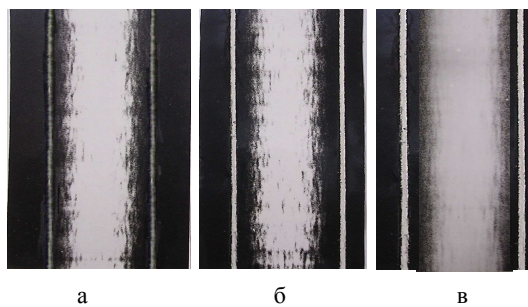


Рис.5. Отражения (220), полученные при различных расстояниях образца до фотопленки: а) $l = 12$ см, б) $l = 24$ см, в) $l = 36$ см.

Можно убедиться также в том, что тонкие линии являются результатом кинематического рассеяния рентгеновских лучей в деформированных приповерхностных слоях. В этом случае волны, рассеянные входными деформированными слоями, выходят из кристалла без участия в многократных переотражениях в его объеме.

Последнее можно показать, воспользовавшись разработанным в [15] методом ступенчатого кристалла. В случае, когда первичный пучок падает на ступенчатый кристалл с гладкой стороны, сечение дифрагированного пучка при кинематическом рассеянии имеет форму отражающих плоскостей (рис.6). В случае динамического рассеяния части следов дифрагированного пучка от тонкой и толстой частей кристалла сдвинуты друг относительно друга. Как видно из рис.7, образованная от ступенчатого кристалла с приповерхностными деформированными слоями (рис.7б) тонкая линия, полученная от приповерхностного деформированного слоя входной поверхности, перегиба не имеет. Это доказывает, что в приповерхностном слое происходит кинематическое рассеяние.

Широкая линия рефлекса получается в результате динамической дифракции рентгеновских лучей в объеме кристалла. Это наглядно видно из рис.7б. Действительно, части рефлекса, образованные в тонкой и толстой частях ступенчатого кристалла, почти не отличаются по ширине и смещены друг относительно друга. Это означает, что в объеме происходит динамическое рассеяние.

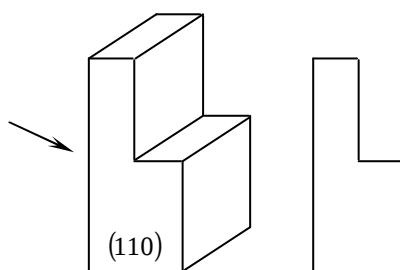


Рис.6. Случай кинематического рассеяния, когда топограммы, полученные от кристаллов, имеют форму отражающих плоскостей.

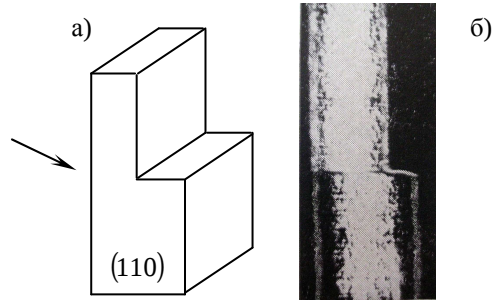


Рис.7. Толстый ступенчатый кристалл со шлифованными поверхностями (а) и полученная от него топограмма (б).

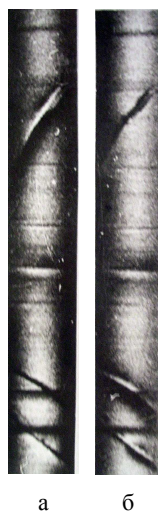


Рис.8. Топограммы, полученные от толстого кристалла кремния с механическими нарушениями поверхности: а) в отраженном пучке; б) в проходящем пучке. Горизонтальные линии получаются от дефектов входной поверхности, наклонные – выходной.

Дефекты входной и выходной поверхностей дают изображения и на основной линии. Как видно из рис.8, дефекты как входной, так и выходной поверхностей имеют черно-белый контраст. Причем дефекты входной поверхности имеют одинаковый контраст в пучке, дифрагированном как в направлении падения, так и в направлении отражения, а дефекты выходной поверхности – противоположный контраст (белое становится черным и наоборот).

4. Структура рефлексов лауэграмм от толстых совершенных кристаллов с приповерхностными нарушенными слоями

Одновременно с рефлексом (220) от характеристического излучения $\text{MoK}_{\alpha 1}$ получаются и другие рефлексы, обусловленные излучением непрерывного спектра (рис.9). Но на этих рефлексах основные линии не получаются из-за относительно малой интенсивности непрерывного спектра (малой светосилы метода Лауэ). Тонкие же линии, обусловленные приповерхностными деформированными слоями, достаточно интенсивны, так как деформированные участки кристалла отражают гораздо сильнее, чем совершенные участки.

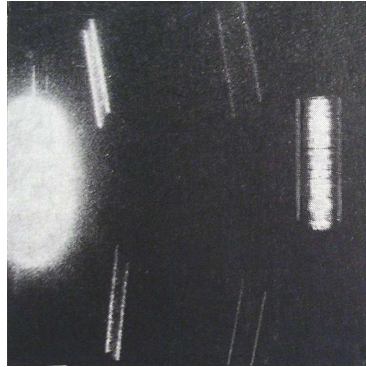
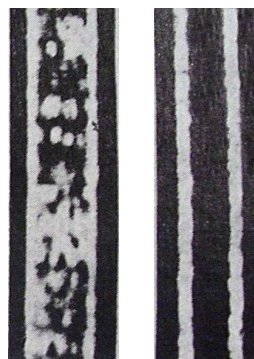


Рис.9. Рефлексы, полученные одновременно с рефлексом (220) от характеристического излучения $\text{MoK}_{\alpha 1}$, обусловленные излучением непрерывного спектра.

Исчезновение основной линии в рефлексах, полученных от непрерывного спектра, объясняется узостью угловых и спектральных областей первичного пучка, участвующих в отражении при динамическом рассеянии. Поэтому на лауэграммах, обусловленных непрерывным спектром, основные линии при разумных экспозициях не появляются. В рефлексе характеристического излучения они появляются из-за большой интенсивности этого излучения. Появление тонких линий в рефлексах непрерывного спектра объясняется широкими угловыми спектральными областями отражения, обусловленными приповерхностными деформированными слоями.



а 372 б

Рис.10. Отражения (220) при хорошей юстировке (а) и при небольшой разъюстировке (б).

Чтобы убедиться в том, что непрерывный спектр при не слишком больших экспозициях не дает основной линии динамического рассеяния, кристалл был выведен из ориентации отражения (220) характеристического излучения $\text{MoK}_{\alpha 1}$. В этом случае, как показано на рис.10б, основная линия исчезла, а тонкие линии остались – характеристическое излучение заменено излучением непрерывного спектра.

Таким образом, можно констатировать: 1) белый контраст боковых тонких линий связан с расходимостью падающего пучка и с малым коэффициентом поглощения второй гармоники, присутствующей в нем; 2) ширина тонких линий зависит от расходимости (в некоторых пределах) первичного пучка, расстояния от кристалла до фотопленки и от толщины нарушенного слоя. Ширина основной линии от этих факторов не зависит; 3) на лауэграммах интенсивность боковой линии больше интенсивности основной, что обусловлено большой интенсивностью дифрагировавшего на дефектах пучка.

5. Влияние асимметричности отражения на структуру рефлекса топограмм и роль расходимости первичного пучка в образовании тонких боковых линий на секционных топограммах

В предыдущем параграфе был рассмотрен симметричный случай отражения по Лауэ, когда кинематические компоненты расположены симметрично относительно основного рефлекса (рис.2б). Ниже будет рассмотрен случай асимметричного отражения, когда следует различать отражения hkl и $\overline{hkl}$.

На рис.11 показаны ход лучей в кристалле и поперечные сечения рефлексов на пленке, поставленной перпендикулярно отражающим плоскостям. В отраженном пучке расстояние между кинематическими компонентами X_1 в случае отражения (220) больше, чем X_2 в случае отражения $(\overline{2}20)$ (рис.12а,б).

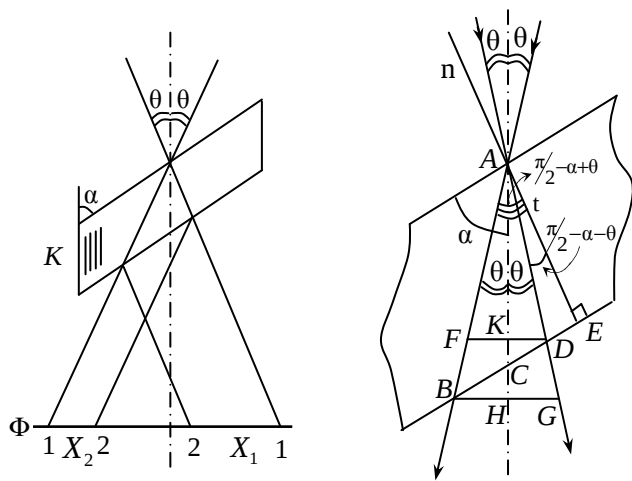


Рис.11. Ход лучей в кристалле при асимметричном отражении; К – исследуемый кристалл; F – фотопленка; 1 и 2 – кинематические компоненты рассеяния от поверхностей входа и выхода.

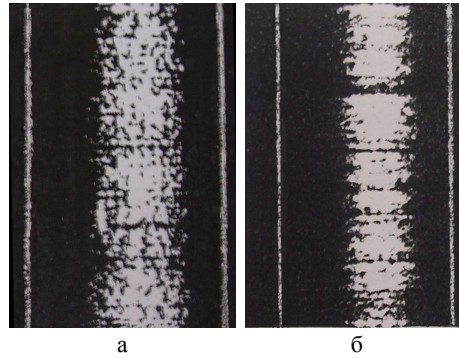


Рис.12. Секционные топограммы при асимметричных отражениях (220) (а) и $(\overline{2}20)$ (б).

Искомые величины X_1 и X_2 легко определяются следующим образом, исходя из рис.11:

$$X_1 = 2t \sin \theta / \sin(\alpha - \theta), \quad (1)$$

$$X_2 = 2t \sin \theta / \sin(\alpha + \theta), \quad (2)$$

где t – толщина кристалла; α – угол наклона отражающих плоскостей на входной поверхности кристалла; θ – угол Брэгга. Углы α и θ удовлетворяют условию $\pi/2 \geq \alpha > \theta$. Если фотопленка установлена перпендикулярно отраженному пучку (рис.11), то для X'_1 и X'_2 имеем

$$X'_1 = X_1 \cos \theta = t \sin 2\theta / \sin(\alpha - \theta), \quad (3)$$

$$X'_2 = X_2 \cos \theta = t \sin 2\theta / \sin(\alpha + \theta). \quad (4)$$

В отраженном пучке кинематические компоненты расположены несимметрично относительно основного рефлекса (рис.12).

Интенсивность компоненты 1 кинематического рассеяния, обусловленная дефектами входной поверхности кристалла, для отражения (220) больше, чем интенсивность компоненты 2, обусловленная дефектами выходной поверхности, а при отражении $(\overline{2}20)$ имеет место обратное. Это объясняется тем, что в первом случае компонента 1 в кристалле проходит меньший путь и, следовательно, испытывает меньшее поглощение, а во втором случае меньший путь проходит компонента 2 внутри кристалла.

В случае отражения (220) ширина динамической компоненты больше, чем в случае отражения $(\overline{2}20)$, но в обоих случаях она смещена в сторону кинематической компоненты большей интенсивности.

Наличие поверхностных деформированных слоев – необходимое, но не достаточное условие для образования тонких боковых линий на секционной

топограмме. Интенсивность этих линий оказывается гораздо выше ожидаемой, несмотря на то, что коэффициент поглощения кинематических компонент намного больше аномально малого коэффициента поглощения при динамическом рассеянии (эффект Бормана). Это связано с тем, что поток, дифрагировавший на дефектах, на два порядка больше потока, дифрагировавшего на совершенной части кристалла, т. к. при падающем пучке, расходимость которого больше, чем угловая ширина отражения, часть его, удовлетворяющая условию динамической дифракции для данного семейства отражающих плоскостей совершенной части кристалла, участвует в динамическом рассеянии.

Остальная, большая часть первичного пучка участвует в кинематическом рассеянии, т.е. в образовании тонких боковых компонент на топограмме. Таким образом, для появления тонких боковых линий на топограмме необходимо, чтобы первичная волна имела некоторую расходимость.

ЛИТЕРАТУРА

1. **А.М.Афанасьев, П.А.Александров, Р.М.Имамов.** Рентгеновская структурная диагностика. М., Наука, 1986.
2. **А.В.Андреев.** УФН, **145**, 113 (1985).
3. **M.Afanas'ev, M.K.Melkonyan.** Acta Cryst. A, **39**, 207 (1983).
4. **W.C.Marra, P.Eisenberger, A.Y.Cho.** J. Appl. Phys., **450**, 6927 (1979).
5. **H.Dosch.** Critical Phenomena at Surfaces and Interfaces. Berlin, Springer, 1994.
6. **V.H.Etgens, M.Sauvage-Simkin, R.Pinchaux, J.Massies, N.Jedrecy, A.Waldhauer, S.Tatarenko, P.H.Jouneau.** Phys. Rev. B, **47**, 10607 (1993).
7. **A.O.Aboyan, H.R.Drmeyan.** J. Appl. Cryst., **36**, 1256 (2003).
8. **D.K.G. de Boer.** Phys. Rev. B, **49**, 5817 (1994).
9. **Y.H.Phang, D.E.Savage, T.F.Kuech, M.G.Lagally, J.S.Park, K.L.Wang.** J. Appl. Phys., **74**, 3181 (1993).
10. **M.Tolan, G.Vacca, S.K.Sinha, M.Rafailovich, J.Sokolov, H.Lorenz, J.P.Kotthaus.** J. Phys. D: Appl. Phys., **28**, A231 (1995).
11. **T.Salditt, T.H.Metzger, J.Peisl, G.Goerigk.** J. Phys. D: Appl. Phys., **28**, A236 (1995).
12. **А.О.Абоян, А.С.Тумасян.** Изв. НАН Армении, Физика, **35**, 100 (2000).
13. **P.A.Bezirganyan, A.O.Aboyan, A.S.Tumasyan.** Crystal Res. and Technol., **23**, 893 (1988).
14. **A.Authier.** Acta geologica Bratislava, **14**, 11 (1968).
15. **P.A.Bezirganyan, E.G.Zargaryan, V.G.Aslanyan.** Crystal Res. and Technol., **19**, 5 (1984).

FEATURES OF X-RAY DIFFRACTION IN THICK PERFECT CRYSTALS WITH DEFORMED SUBSURFACE LAYERS

A.O. ABOYAN

Diffraction of X-rays in thick perfect crystals with deformed subsurface layers has been investigated. It is shown that the kinematic scattering of X-rays take place in deformed layers, while the dynamical one occurs in the perfect part of the crystal, its bulk. It is revealed also that in beams of X-rays diffracted on surface defects, the role played by the second harmonic of the applied characteristic radiation $\text{MoK}_{\alpha 1}$ is essential.