

05

Теория дифракции рентгеновских лучей в нанопористых кристаллах с латеральной квазипериодичностью

© В.И. Пунегов, А.А. Ломов

Коми научный центр УрО РАН, Сыктывкар
Институт кристаллографии РАН, Москва
E-mail: punegov@syktsu.ru

Поступило в Редакцию 24 июля 2007 г.

В рамках статистического подхода разработана теория рассеяния рентгеновских лучей в нанопористых кристаллах при наличии ближнего структурного порядка рассеивающих элементов (кристаллитов). Показано, что угловое распределение интенсивности рассеяния определяется фактором когерентности латеральной квазипериодичности пористого материала. Получены структурные характеристики пористого слоя InP на основе сравнения теоретических расчетов с экспериментальными измерениями.

PACS: 61.10.Dp, 61.72.Dd

В настоящее время проявляется огромный интерес к пористым структурам как к новому классу материалов [1]. Разрабатываются различные физико-химические методы создания пористых слоев в приповерхностной области монокристаллов. Электрофизические свойства таких слоев зависят от параметров пор и кристаллитов. Пористые системы являются перспективными объектами для изготовления различных устройств в современной оптике, электронике, биологии и медицине. Электрохимическое травление в режиме анодирования поверхности полупроводниковых пластин приводит к образованию пористых слоев с толщиной, варьирующейся от нескольких микрон до нескольких десятых долей микрона. При этом в зависимости от технологических условий могут образоваться различные по параметрам и свойствам пористые слои. Поэтому получение детальной информации о строении пористых слоев представляет весьма актуальную задачу. Перспективными для диагностики пористых слоев оказались высокоразрешающие рентгенодифракционные методы (см. [2] и приведенную в этой работе литературу).

Настоящая работа посвящена разработке теории рассеяния рентгеновских лучей от пористой структуры в рамках формализма статистической теории дифракции [3,4].

Рассмотрим модель слоя, состоящего из N элементов, расположенных вдоль оси x и отстоящих друг от друга на расстояние $T(x)$ в плоскости дифракции. Пусть эти элементы представляют собой кристаллит или систему кристаллитов с размерами l_x и l_z в горизонтальном и вертикальном направлениях соответственно. В пористой структуре кристаллиты отличаются по своим размерам [2], поэтому l_x и l_z являются случайными величинами. Придерживаясь формализма, предложенного в [4], проведем статистическое усреднение по размерам кристаллитов $D = [l_x, l_z]$ с использованием логарифмического нормального распределения

$$p_{LN}(D) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} D \sigma_{LN}} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(D) - \langle D_{LN} \rangle}{\sigma_{LN}} \right)^2 \right],$$

где среднее значение $\langle D \rangle$ и среднеквадратичное отклонение σ^2 соотносятся с присутствующими в функции распределения параметрами как $\langle D \rangle = \exp(\langle D_{LN} \rangle + \sigma_{LN}^2/2)$, $\sigma^2 = \exp(\langle D_{LN} \rangle + \sigma_{LN}^2/2) [\exp(\sigma_{LN}^2/2) - 1]$.

Интенсивность рассеяния рентгеновских лучей от пористой структуры может быть представлена в виде

$$I_h(\mathbf{q}) = I_1(\mathbf{q}) \left(N + 2 \operatorname{Re} \left(\sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^{n-1} \exp \left(i q_x \sum_{s=m}^{n-1} T_s \right) \right) \right), \quad (1)$$

где $I_1(\mathbf{q})$ — интенсивность рассеяния на отдельном элементе с учетом усреднения по их размерам. Вектор \mathbf{q} определяет отклонение вектора рассеяния $\mathbf{k}_h - \mathbf{k}_0$ от узла обратной решетки \mathbf{h} , где $\mathbf{k}_{0,h}$ — волновые векторы падающего и дифракционного рентгеновского пучка, q_x — проекция этого вектора в латеральном направлении. Если кристаллиты имеют разную форму, необходимо провести также усреднение по их конфигурациям.

Предположим, что расстояние $T(x)$ между соседними элементами вдоль оси x испытывает случайные отклонения δT от среднего значения \bar{T} , т.е. $T = \bar{T} + \delta T$. Тогда из (1) приходим к следующему выражению для интенсивности рассеяния

$$I_h(\mathbf{q}) = I_1(\mathbf{q}) \left(N + 2 \operatorname{Re} \left(\sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^{n-1} \exp(i q_x (n-m) \bar{T}) \exp \left(i q_x \sum_{s=m}^{n-1} \delta T_s \right) \right) \right).$$

Проведем статистическое усреднение данного решения по случайным величинам δT , в итоге получаем

$$\bar{I}_h(\mathbf{q}) = I_1(\mathbf{q}) \left(N + 2 \operatorname{Re} \left(\sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^{n-1} \exp(i q_x (n-m) \bar{T}) f(q_x)^{n-m} \right) \right), \quad (2)$$

где $f(q_x) = \langle \exp(i q_x \delta T) \rangle$ — эффективный статический фактор латерального порядка. Вид этой функции зависит от функции распределения $w(x)$ случайной величины $T(x)$. Решение для интенсивности рассеяния может быть представлено в виде

$$\bar{I}_h(\mathbf{q}) = I_1(\mathbf{q}) L(q_x), \quad (3)$$

где

$$L(q_x) = N + 2 \operatorname{Re} \left(\left(\frac{Z(q_x) \left((1 - Z(q_x)) N - (1 - Z(q_x))^N \right)}{(1 - Z(q_x))^2} \right) \right) \quad (4)$$

— фактор когерентности латеральной квазипериодической структуры пористого слоя, $Z(q_x) = f(q_x) \exp(i q_x \bar{T})$. В случае полностью неупорядоченного расположения латеральных элементов $f(q_x) = 0$ и интенсивность рассеяния от слоя равна сумме интенсивностей от отдельных элементов:

$$\bar{I}_h(\mathbf{q}) = I_1(\mathbf{q}) N. \quad (5)$$

При этом отсутствует всякая корреляция рентгеновского рассеяния от отдельных кристаллитов.

На рис. 1 показаны результаты численных расчетов от пористого слоя (без учета когерентного рассеяния от монокристаллической подложки). Эффективный фактор латерального порядка выбран в виде функции Лоренца

$$f(q_x) = 1 / (1 + (q_x \sigma_T)^2),$$

где σ_T — дисперсия флуктуации латерального периода пористой структуры. В случае полностью неупорядоченного расположения кристаллитов профиль интенсивности рассеяния (кривая I на рис. 1) имеет куполообразный вид. Согласно (5), такое поведение кривой отражения полностью соответствует угловому распределению интенсивности рассеяния от отдельных кристаллитов с учетом статистического

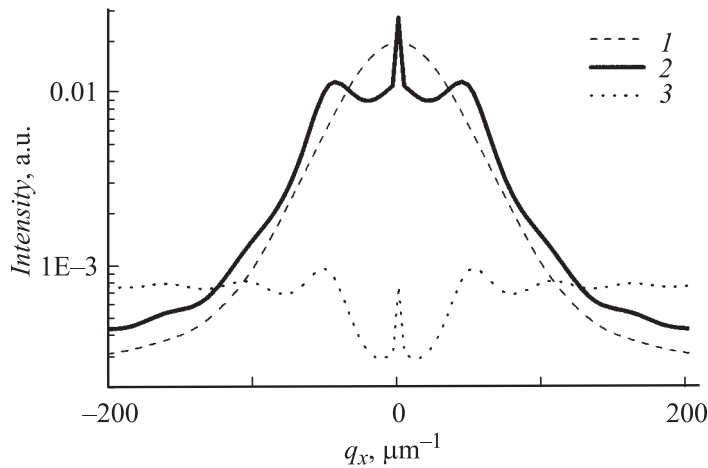


Рис. 1. Теоретические кривые интенсивности рассеяния в отсутствие (1) и при наличии (2) ближнего порядка с фактором когерентности $L(q_x)$ (3).

усреднения по их размерам. Наличие латеральной квазипериодичности, например, с дисперсией $\sigma_T = 0.4\bar{T}$ приводит к появлению „плечей“ на кривой дифракционного рассеяния, а также слабовыраженных дальних осцилляций. Именно такой вид углового распределения интенсивности рассеяния задается поведением фактора когерентности $L(q_x)$ (кривая 3 на рис. 1).

Разработанный подход был использован для анализа экспериментальных данных, полученных методом трехкристальной рентгеновской дифрактометрии при исследовании пористых слоев на поверхности пластин InP(001). Сравнение теоретических и экспериментальных дифракционных кривых в режиме q_x -сканирования демонстрирует рис. 2. В компьютерных расчетах учитывалась динамическая дифракция от монокристаллической подложки InP. Измерения интенсивности вблизи узла 004 InP выполнялись с использованием щелевого трехкратного Ge(004)-монохроматора на автоматизированном спектрометре ТРС-1-«МАТЕХ». На дифракционной картине (рис. 2) проявляются не только побочные максимумы в виде „плечей“, но и продолжающиеся слабовыраженные осцилляции, характерные для структур с ближним порядком. В процессе численной подгонки (см. рис. 2) получены

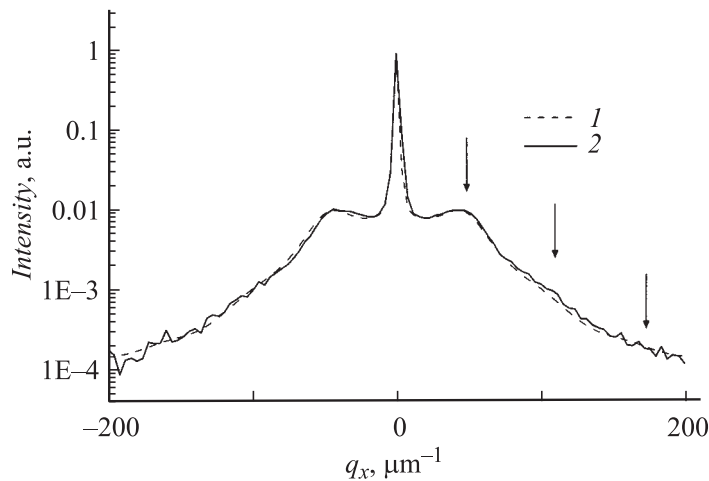


Рис. 2. Теоретическая (1) и экспериментальная (2) дифракционные кривые от пористого слоя InP в режиме вращения образца (q_x — сечения узла 004 InP при $q_z = 0$). Стрелками показаны положения побочных максимумов за счет корреляции пор.

следующие характеристики пористого слоя: размеры кристаллитов в горизонтальном направлении $l_x = (80 \pm 40) \text{ nm}$ (дисперсия $\sigma_x = l_x/2$), в вертикальном направлении $l_z = (500 \pm 300) \text{ nm}$, средний латеральный период $\bar{T} = 120 \text{ nm}$, дисперсия флуктуации латерального периода $\sigma_T = 0.38\bar{T} = 46 \text{ nm}$.

Авторы выражают благодарность D. Nohavica и P. Gladkov (Institute of Radio Engineering and Electronics, Academy of Sciences CR, Prague, Czech Republic) за предоставление образцов пористых кристаллов, а также К.Д. Щербачеву (Московский государственный институт стали и сплавов) за помощь в экспериментальных измерениях и обсуждение результатов.

Работа выполнена при финансовой поддержке целевой программы „Развитие научного потенциала высшей школы“ (проект РНП.2.1.1.3425), Комплексной программы президиума РАН (Низкоразмерные квантовые структуры) и РФФИ (грант 07-02-00090-а).

Список литературы

- [1] *New Developments in Silicon, Relation With Other Nanostructured Porous Materials* / Eds D. Bellet, L.T. Canham. European–Materials Research Symposium Proceedings. Strasbourg. France. 1996 // *Thin Solid Films*. 1997. V. 297. N 9.
- [2] Ломов А.А., Прохоров Д.Ю., Имамов Р.М., Нохавика Д., Гладков П. // *Кристаллография*. 2006. Т. 51. № 5. С. 49.
- [3] *Nesterets Ya.I., Punegov V.I.* // *Acta Cryst. A*. 2000. V. A56. P. 450.
- [4] *Boulle A., Conchon F., Guinebretière R.* // *Acta Cryst. A*. 2006. V. A62. P. 11.