

УДК 548.734

ОДНОКРИСТАЛЬНАЯ РЕАЛИЗАЦИЯ МЕТОДА АСИМПТОТИЧЕСКОЙ БРЭГГОВСКОЙ ДИФРАКЦИИ

А. М. Афанасьев, Р. М. Имамов, А. А. Ломов, Д. В. Новиков

Работа посвящена развитию метода асимптотической брэгговской дифракции (АБД) в скользящей геометрии Брэгга—Лауэ. Рассматривается схема регистрации дифракционного рассеяния от образца при использовании координатного детектора. Методика позволяет перейти от регистрации отдельных спектров АБД к одновременной регистрации всей кривой дифракционного отражения без вращения образца в однокристалльной схеме. Показано, что регистрация поверхностного брэгговского пика при угле выхода излучения, равном критическому углу полного внешнего отражения, позволяет сделать метод АБД чувствительным к наличию на поверхности образца тонкой рентгеноаморфной пленки. Теоретически рассмотрена и экспериментально подтверждена возможность извлечения по полученным рентгенодифракционным данным параметров искажений структуры тонкой переходной области монокристалл—аморфная пленка, а также толщины этой пленки. Показано, что предельная чувствительность методики при определении толщины переходной области составляет доли монослоя, а при определении толщины аморфной пленки — 1 нм. Представлены экспериментальные результаты по исследованию кристаллов кремния после различных обработок.

В последние годы метод асимптотической брэгговской дифракции (АДБ) [1-3] получает все большее развитие. Суть метода АДБ состоит в том, что по измерениям интенсивности дифракционного отражения не самих брэгговских пиков, а в максимальной отдаленности от них можно получать информацию о структурных характеристиках тончайших приповерхностных слоев [4-14]. В зарубежной литературе этот метод получил название метода усеченных брэгговских стержней [13].

Измерение интенсивности дифракционно рассеянной волны вдали от брэгговских пиков требует устранения фоновых интенсивностей различной природы: диффузного рассеяния, рассеяния от различных частей держателя образца и т. д. С этой целью в первых экспериментах по АДБ использовался трехкристалльный рентгеновский спектрометр [2, 15, 16], который благодаря расположению между образцом и детектором кристалла-анализатора K_2 позволял выделить чисто дифракционное рассеяние от исследуемого образца с разрешением в несколько угловых секунд (рис. 1, а). Естественно, что в этих условиях все фоновые интенсивности сильно подавляются, и это обстоятельство дало возможность реализации данной методики с использованием стандартных рентгеновских источников излучения с мощностью ~ 2 кВт.

Как было показано в работе [6], в случае скользящей геометрии Брэгга—Лауэ, когда дифракция рентгеновских лучей происходит от плоскостей, почти перпендикулярных поверхности, а падающий и дифракционный лучи составляют малые углы с поверхностью, можно реализовать метод АБД без третьего кристалла, заменяя его сканированием со щелью. Возможность замены (третьего кристалла-анализатора сканированием щелью) связана с тем обстоятельством, что малые изменения по брэгговскому углу θ вызывают существенно большие изменения угла выхода дифракционного рассеяния из кристалла.

Действительно, угол выхода Φ_h связан с углом отхода от точного угла Брэгга соотношением [6]

$$\Phi_h^2 = (\Phi_0 - \Psi)^2 - 2 \sin 2\theta_B \Delta\theta. \quad (1)$$

Здесь Φ_0 — угол падения, $\Psi = 2\varphi \sin \theta_B$ — эффективный, а φ — реальный углы скоса (рис. 1, б), $\Delta\theta = \theta - \theta_B$, θ_B — угол Брэгга.

Согласно формуле (1), при малых Φ_0 порядка нескольких минут изменения в $\Delta\theta \sim 1''$ вызывают изменения Φ_h порядка $1'$. Поэтому использование сканирующей по Φ_h щели с приемным окном $\sim 1'$ оказывается эквивалентным использованию третьего кристалла с разрешением порядка $1''$. Вместо щели в схеме можно использовать линейный координатный детектор [17], что позволяет одновременно измерять интенсивность дифракционного излучения для разных углов выхода Φ_h (рис. 1, б). При этом оказывается, что псевдопик и пик диффузного рассеяния [6, 17] имеют один и тот же не зави-

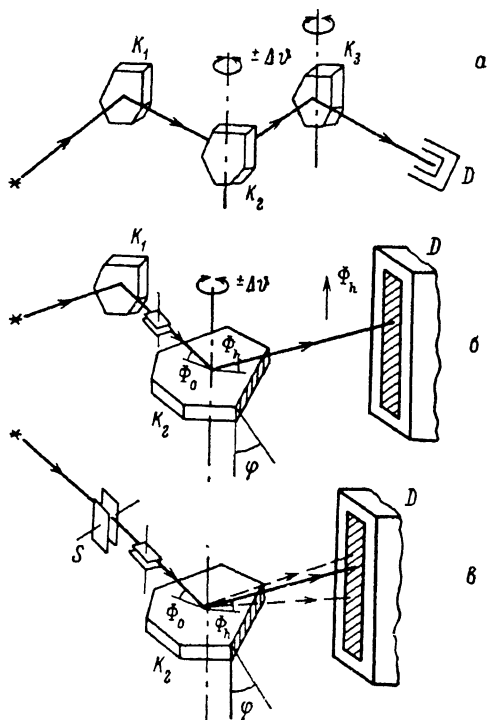


Рис. 1. Схемы съемки кривых дифракционного отражения.

а — трехкристалльная схема, б — съемка в геометрии Брэгга—Лауэ с регистрацией с помощью координатного детектора, в — схема съемки в геометрии Брэгга—Лауэ без коллимации по углу Брэгга. K_1 — кристалл-монокроматор; K_2 — исследуемый кристалл; K_3 — кристалл-анализатор; D — детектор; S — коллимирующая щель; $\Delta\theta$ — угол отклонения от угла Брэгга; φ — угол отклонения отражающих плоскостей от нормали с поверхностью; Φ_0, Φ_h — углы скольжения падающего и дифракционного излучения.

сящий от $\Delta\theta$ угол выхода, равный Φ_h^0 и далеко отстоящий от исследуемого диапазона углов выхода.

На рис. 2 представлены дифракционные кривые, измеренные по схеме рис. 1, б, от эталонного монокристалла кремния при угле падения $\Phi_0 = 45'$. Образец имел угол разориентации поверхности относительно плоскости (111) $\varphi_{\max} = 4^\circ$. В качестве отражающих плоскостей выбирались плоскости (110), отклонения от нормали к поверхности на угол скоса $\varphi = 3.5^\circ$ ($\Psi = -167'$). Монокроматором служил совершенный монокристалл кремния (110). Дифракционные кривые записывались при использовании (220)-отражения, Си K_α -излучения. Коллимация излучения по углу θ составляла $\sim 6''$, а по углу падения $\sim 3'$ и определялась размерами выходных щелей коллиматора.

Дифракционные кривые приведены для углов отклонения исследуемого кристалла от точного угла Брэгга $\Delta\theta = -110''$ (а) и $-130''$ (б). Каждая из дифракционных кривых состоит из двух пиков: главного (Гп) и псевдопиков (Пс) [18]. При изменении $\Delta\theta$ псевдопик остается на месте, а главный перемещается в соответствии с формулой (1)

$$\Phi_h^2 = \sqrt{\Phi_h^0 + 2 \sin 2\theta_B \Delta\theta}, \quad (2)$$

где

$$\Phi_h^0 = |\Phi_0 + \Psi|. \quad (3)$$

Кроме того, диффузное рассеяние от дефектов в кристалле с дальнедействующими полями напряжений также сосредоточено в окрестности псев-

допика. Таким образом, интенсивность и форма главного пика определяются чисто дифракционным рассеянием.

Такие зависимости положений главного и псевдопиков позволяют существенно упростить эксперимент. Предположим, что на исследуемый кристалл падает излучение, не коллимированное по брэгговскому углу, но имеющее коллимацию по углу падения Φ_0 . В этом случае каждый из

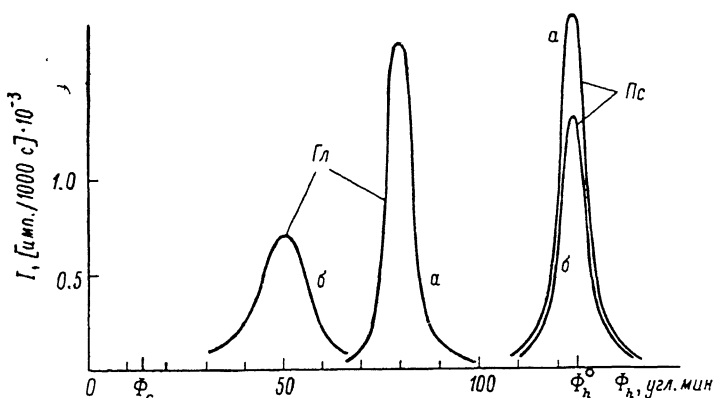


Рис. 2. Кривые дифракционного отражения от эталонного кристалла кремния в геометрии Брэгга—Лауэ, измеренные по схеме рис. 1, б.

лучей, падающий на исследуемый кристалл под углом $\Delta\theta$, после дифракционного рассеяния будет выходить по своим углам скольжения, определяемым формулой (2), а псевдопик и диффузное рассеяние будут вне зависимости от угла $\Delta\theta$ сосредотачиваться в окрестности угла Φ_h^0 (рис. 2); Φ_h^0 — угол выхода дифрагированного излучения при точном значении угла Брэгга.

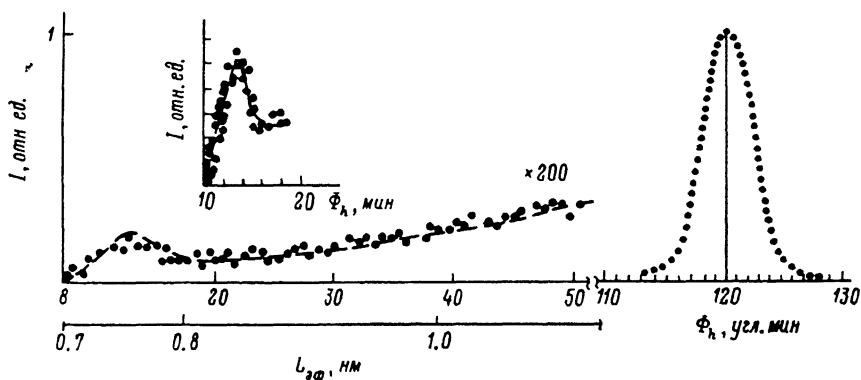


Рис. 3. Кривая дифракционного отражения от эталонного образца кремния в геометрии Брэгга—Лауэ в однокристалльной схеме съемки (рис. 1, в).

Штриховая кривая — теоретическая подгонка с параметрами $L_{ам}=1.2$, $L_{гг}=0.5$ нм. Точками показаны измеренные экспериментальные значения. На вставке — ПВП в увеличенном масштабе. $L_{2\phi}$ — глубина формирования дифрагированного излучения.

Для реализации такой схемы следует отказаться от коллимации излучения по углу Брэгга. На рис. 3 показана угловая зависимость интенсивности дифрагированного излучения, измеренная от эталонного монокристалла Si (по схеме рис. 1, в) при угле падения $\Phi_0=45'$. Использовались Cu K_α -излучение, (220)-отражение. На этом рисунке видны основной дифракционный пик, который соответствует углу $\theta=\theta_B$, «всплеск» или поверхностный брэгговский пик (ПВП) [6, 19], соответствующий углу выхода $\Phi_h=\Phi_c$, где $\Phi_c=\sqrt{|\chi_0|}$ есть критический угол зеркального отражения, а χ_0 — поляризуемость кристалла.

Интенсивность дифракционной кривой при углах Φ_h , кроме окрестности $\Phi_h = \Phi_h^0$, есть как раз интенсивность чисто дифракционного рассеяния за вычетом фоновых составляющих, связанных с побочным рассеянием. Согласно идеологии метода АБД [1-3], знание интенсивности дифракционного рассеяния вдали от брэгговского угла дает информацию о структурном совершенстве тончайших граничных или переходных слоев, а из поведения кривой в окрестности ПБП можно извлечь информацию о толщине переходного слоя на поверхности кристалла [19]. Преимущество данной схемы дифракции состоит в том, что в ней проводятся одновременно измерения интенсивности дифракционного рассеяния для большого числа значений θ . В нашем случае при использовании рентгеновского координатного детектора РКД-1 измеряется одновременно более 800 точек. Именно это обстоятельство позволяет с рентгеновской трубкой малой мощности (~ 1 кВ) и без вращения образца проводить детальное измерение кривой дифракционного рассеяния вдали от брэгговского пика, включая и область ПБП.

Пусть на поверхности кристалла имеется аморфный слой толщиной $L_{ам}$, а под ним граничный слой $L_{гр}$ с частичной аморфизацией (параметр кристаллической решетки в переходном слое предполагается совпадающим с параметром решетки кристалла), которая может быть описана через статический фактор Дебая—Валлера согласно формуле [19]

$$\exp(-W) = 1 - \exp(-Z/L_{гр}), \quad (4)$$

где Z — глубина граничного слоя, отсчитанная от аморфной пленки. Вне области брэгговского максимума дифракционное рассеяние слабое, и для расчета коэффициента отражения рентгеновских лучей можно использовать кинематическое приближение [19]

$$P_R = P_R^0 \exp(-2L_{ам}/L_{гр}) \frac{\delta_{гр}^2}{|\delta + i\delta_{гр}|^2}. \quad (5)$$

Здесь $L_{гр} = \lambda/(2\pi \text{Im } \tilde{\Phi}_h)$ — глубина проникновения рентгеновских лучей, не испытывающих дифракционного рассеяния; λ — длина волны рентгеновского излучения; $\tilde{\Phi}_{0,h} = \sqrt{\Phi_{0,h}^2 + \chi_0}$; $\delta_{гр} = \lambda/(2\pi L_{гр})$; $\delta = \tilde{\Phi}_h - (\Psi - \tilde{\Phi}_0)$. Величина

$$P_R^0 = \frac{|\chi_h|^2}{\Phi_0 \Phi_h} \frac{1}{\delta^2} \left| \frac{\Phi_h}{\Phi_h + \tilde{\Phi}_h} \right|^2 \quad (6)$$

определяет интенсивность дифракционного рассеяния от идеального кристалла. Для анализа интенсивности дифракционного рассеяния в методе АБД удобно использовать не кривые дифракционного отражения (рис. 3), а функции приведенной интенсивности $I(\Phi_h)$

$$I(\Phi_h) = P_R(\Phi_h)/P_R^0(\Phi_h). \quad (7)$$

На рис. 4 представлены $I(\Phi_h)$ для двух монокристаллов кремния: эталонного образца (1) и образца со слоем окисла ~ 5 нм (2). Здесь по оси абсцисс наряду с углом выхода излучения Φ_h отмечены глубина проникновения $L_{гр}$ и эффективная глубина выхода дифрагированного излучения $L_{эфф} = \lambda/2\pi\delta$. $L_{гр}$ позволяет оценить чувствительность данного участка дифракционной кривой к наличию на поверхности образца аморфной пленки (так, наличие аморфной пленки толщиной 600 нм должно практически полностью подавить дифракционное рассеяние с углами выхода менее $22'$). Аналогично значения $L_{эфф}$ показывают, какова глубина нарушенного слоя, информацию о которой дает данный участок кривой.

Для получения точных значений необходимо выполнить численный расчет по приведенным выше формулам. При проведении расчетов по наилучшему совпадению экспериментальных и расчетных кривых по

методу наименьших квадратов определяются свободные параметры модели нарушенного слоя.

Как видно из рис. 4, чувствительность предлагаемого метода в данном эксперименте достигает менее 1 нм при определении $L_{гр}$ и порядка 1 нм при определении $L_{ам}$. Для эталонного образца со слоем естественного окисла на поверхности получены следующие значения толщины аморфной пленки и переходного граничного слоя: $L_{ам} = 1.2 \pm 0.2$ нм, $L_{гр} = 0.5 \pm 0.05$ нм, а для образца со слоем окисла соответственно $L_{ам} = 5.8 \pm 0.3$ нм, $L_{гр} = (0.4 \pm 0.05)$ нм.

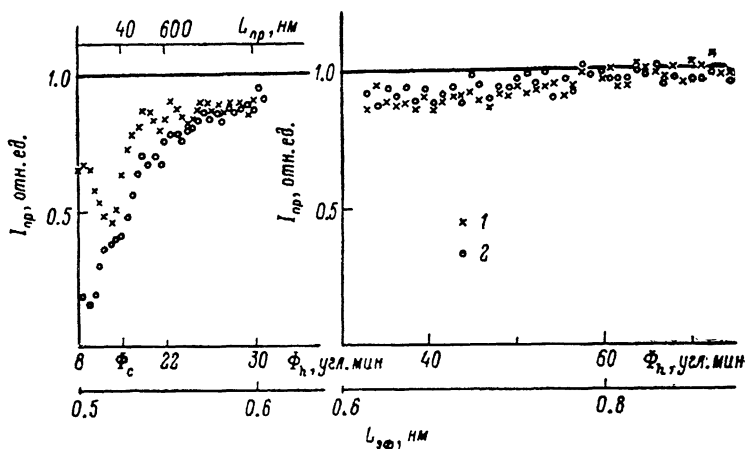


Рис. 4. Функция приведенной интенсивности, полученная для эталонного образца (1) и образца с аморфной пленкой 5 нм (2).

$L_{гр}$ — глубина проникновения рентгеновского излучения без дифракции. $\text{CuK}\alpha$ -излучение, (220)-отражение, $\psi = -167'$, $\Phi_0 = 14'$.

Эти результаты демонстрируют необычайно высокую чувствительность метода при простом способе проведения экспериментальных измерений. Отсутствие необходимости коллимации пучка по брэгговскому углу с точностью порядка нескольких угловых секунд, которая обычно требуется в дифракционных экспериментах, позволяет назвать используемую схему однокристалльной. Требуемую коллимацию по углу Φ_0 порядка 1 мин можно обеспечить с помощью системы щелей. Однако в действительности кристалл-монокроматор вместе с системой щелей обеспечивает не только высокую угловую коллимацию, но и позволяет отсеять непрерывное рентгеновское излучение, а также выделить отдельные характеристические линии. В этом случае можно использовать любые отражения с максимальным интегральным коэффициентом отражения, например кристалл InSb вместо Si, который обеспечивал бы большую интегральную интенсивность. Так, в данном эксперименте использовался в качестве монокроматора для коллимации пучка по углу Φ_0 монокристалл InSb, который обеспечивал расходимость по Φ_0 порядка $0.5'$.

Авторы выражают благодарность О. Г. Меликяну за составление программ для теоретических расчетов.

Список литературы

- [1] Afanas'ev A. M., Aleksandrov P. A., Imamov R. M., Lomov A. A., Zavyalova A. A. // Eight European Crystallographic Meeting. Liege, Belgium, 1983. P. 230.
- [2] Afanas'ev A. M., Aleksandrov P. A., Imamov R. M., Lomov A. A., Zavyalova A. A. // Acta Cryst. 1984. V. A40. N 3. P. 351—357.
- [3] Якимов С. С., Чапланов В. А., Афанасьев А. М., Александров П. А., Имаммов Р. М., Ломов А. А. // Письма в ЖЭТФ. 1984. Т. 39. № 1. С. 3—5.
- [4] Александров П. А., Завьялова А. А., Ломов А. А. // Кристаллография. 1984. Т. 29. № 4. С. 652—656.

- [5] Афанасьев А. М., Александров П. А., Завьялова А. А., Имамов Р. М., Ломов А. А. // ДАН СССР. 1985. Т. 281. № 3. С. 581—584.
- [6] Афанасьев А. М., Афанасьев С. М., Александров П. А., Завьялова А. А., Имамов Р. М., Ломов А. А. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 8. С. 2274—2281.
- [7] Afanas'ev A. M., Aleksandrov P. A., Imamov R. M., Lomov A. A., Zavyalova A. A. // Acta Cryst. 1985. V. A41. N 3. P. 227—232.
- [8] Afanas'ev A. M., Aleksandrov P. A., Fanchenko S. S., Chaplanov V. A., Yakimov S. S. // Acta Cryst. 1986. V. A42. N 2. P. 116—122.
- [9] Чапланов В. А., Якимов С. С. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 10. С. 3166—3168.
- [10] Афанасьев А. М., Александров П. А., Завьялова А. А., Имамов Р. М., Ломов А. А. // ДАН СССР. 1986. Т. 289. № 5. С. 1120—1123.
- [11] Афанасьев А. М., Александров П. А., Завьялова А. А., Имамов Р. М., Ломов А. А. // Кристаллография. 1986. Т. 31. № 6. С. 1066—1069.
- [12] Andrews S. R., Cowley R. A. // J. Phys. C. Sol. St. Phys. 1985. V. 18. N 35. P. 6427—6439.
- [13] Robinson I. K. // Phys. Rev. B. 1986. V. 33. N 6. P. 3830—3836.
- [14] E. Vlieg, A. W. Denier, van der Gon, J. F. van der Veen. // Phys. Rev. Lett. 1988. V. 53. N 10. P. 671—678.
- [15] Eisenberger A. M., Alexandropoulos N. G., Platzman P. M. // Phys. Rev. Lett. 1972. V. 28. N 23. P. 1519—1525.
- [16] Головин О. Л., Ломов А. А. // ПТЭ. 1988. Т. 3. С. 230—234.
- [17] Ломов А. А., Новиков Д. В., Гаганов Д. А., Гуткевич С. М. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 10. С. 2881—2884.
- [18] Афанасьев А. М., Александров П. А., Имамов Р. М. Рентгеновская структурная диагностика. М.: Наука, 1986. 96 с.
- [19] Афанасьев А. М., Афанасьев С. М., Есаян А. В., Хашимов Ф. Р. // Поверхность. 1988. Т. 12. С. 35—42.

Институт кристаллографии АН СССР
Москва

Поступило в Редакцию
14 февраля 1989 г.
В окончательной редакции
12 июня 1989 г.