

Изобретение относится к рентгеновским дифракционным методам контроля степени структурного совершенства реальных кристаллов и может быть использовано при производстве монокристаллических материалов и приборов на их основе.

Наиболее близким к предлагаемому изобретению является способ контроля структурного совершенства монокристаллов [4], заключающийся в том, что исследуемый образец облучают полихроматическим пучком рентгеновских лучей, при средней длине волны  $\lambda_1$  выбранной из условия  $\mu_0 t < 3$ , на заданной системе плоскостей осуществляют лауэ-дифракцию излучения и измеряют интегральную интенсивность рефлекса  $I_R(H_1)$ , где  $H_1$  - вектор дифракции, образец поворачивают, чтобы на той же системе плоскостей для выбранной  $\lambda_1$  реализовалось отражение более высокого порядка  $H_2 = KH_1$ , где  $K$  - увеличение порядка отражения, причем выбирают значение  $H_1$  минимальным, а  $K \geq 3$ , измеряют интенсивность рефлекса  $I_R(H_2)$ , находят величины

отношений  $\alpha = I_R(H_1)/I_R(H_2)$  и  $\beta = R^{\lambda_1}(H_1)/R^{\lambda_1}(H_2)$ ,

где  $R^{\lambda_1}$  - интегральная отражающая способность идеального кристалла толщиной  $t$  на выбранной  $\lambda_1$ , определяют  $L$  по формуле

$$L(H_2) = (\beta - \alpha) \Lambda_2 / 4\pi t [\alpha - \beta K^{-2} \Lambda_2 / \Lambda_1],$$

где  $\Lambda_1$  - экстинкционная длина.

Этот способ не позволяет точно измерять искомые параметры из-за того, что разработанная в рамках данного способа математическая модель использует приближение  $\mu_{ds}(H_1) = \mu_{ds}(H_2)$ , которое в общем случае не выполняется, что вносит дополнительную неконтролируемую погрешность, снижающую сходимость результатов контроля.

Описанный способ контроля структурного совершенства применим в приближениях тонкого и промежуточного кристалла (при  $\mu_0 t < 3$ ), что исключает из круга возможных исследуемых объектов такие важные для промышленности сильно поглощающие материалы, как германий и арсенид галлия. Недостатком известного способа является также и то, что им нельзя контролировать структурное совершенство образцов произвольной формы. Для контроля необходимо приготовление плоскопараллельных образцов и измерение толщины кристалла, которое вносит дополнительную погрешность в получаемые результаты.

Указанные недостатки устранены в предлагаемом техническом решении.

В основу изобретения поставлена задача - расширение круга исследуемых материалов, обеспечение возможности исследования образцов произвольных формы, объема и размера и повышение точности определения параметров дефектной структуры.

Поставленная задача достигается тем, что в способе, включающем облучение образца полихроматическим пучком рентгеновского излучения и измерение интегральной интенсивности рефлексов при дифракции излучения для двух положений при повороте образца и определение статического фактора Дебая-Валлера  $L^H$ , причем дифракцию излучения в обоих положениях образца осуществляют в геометрии Брэгга, при этом поворот осуществляют на угол, при котором в обоих положениях реализуется отражение, характеризующееся одним вектором дифракции и разными длинами волн  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$ , по измеренным интегральным интенсивностям рассчитывают полные интегральные отражающие способности  $R^H(\lambda_1)$  и  $R^H(\lambda_2)$ , определяют фактор Дебая-Валлера и эффективные коэффициенты поглощения диффузного фона из-за рассеяния сильных брэгговских и диффузных волн на искажениях решетки  $\mu_1^* \mu_2^*$  для длин волн  $\lambda_1$   $\lambda_2$

соответственно, из выражений  $R^H(\lambda_i) = f(L^H, \mu_i^{*H})$  ( $i=1,2$ ),  $\mu_1^{*H} / \mu_2^{*H} = \varphi(\lambda_1, \lambda_2)$  и по характеру зависимости  $L(H)$  и  $L^*(H)$  определяют тип дефектов и осуществляют диагностику.

Заявляемый способ отличается от известного тем, что значения  $L^H$  и  $\mu^{*H}$  определяются путем обработки на ЭВМ (по специально сопоставленным программам с использованием строгих впервые полученных в геометрии Брэгга выражений динамической теории для ПИОС нарушенного монокристалла) экспериментальных величин ПИОС  $R^H(\lambda_1)$  и  $R^H(\lambda_2)$  исследуемого образца, полученных для двух длин волн.

Использование более строгих математических выражений способствует повышению точности определения параметров динамического рассеяния.

Предлагаемый способ позволяет расширить круг исследуемых материалов, исследовать образцы произвольной формы, размеров, различных кристаллографических направлений и порядков рефлексов, благодаря тому, что определение  $L^H$  и  $\mu^{*H}$  осуществляется при использовании геометрии Брэгга, в любом приближении (тонкого и толстого кристалла) и для любого разрешенного в исследуемом монокристалле рефлекса. Такая возможность для неразрушающих способов неизвестна и впервые обоснована авторами предлагаемого технического решения.

Полная интегральная отражающая способность кристалла с однородно распределенными дефектами  $R$  состоит из когерентной ( $R_B$ ) и диффузионной ( $R_D$ ) компонент:  $R = R_B + R_D$ . Согласно кинематической теории (Кривоглаз М.Ф. Дифракция рентгеновских лучей и нейтронов в неидеальных кристаллах. - Киев: Наук, думка, 1983. - 408 с.)  $R$  не зависит от степени искажений и сохраняется равной ПИОС совершенного кристалла  $R_{id}$ . Это обусловлено тем, что появляющаяся и растущая с увеличением степени искажений кристалла диффузная составляющая интенсивности компенсируется при любой толщине кристалла  $t$  соответствующим уменьшением брэгговской составляющей

$$R = R_B + R_D = R_{id}(1 - j^2 L^2) + R_{id}(1 - j^2 L^2) = R_{id}.$$

При динамическом рассеянии в монокристаллах с хаотически распределенными дефектами закон сохранения ПИОС нарушается (при  $t > \Lambda$ ) из-за существенного отличия количественных значений параметров, характеризующих динамические эффекты в диффузном и брэгговском расстоянии. Величина ПИОС

становится чувствительной к дефектам структуры, что и положено в основу всех описанных выше методов контроля структурного совершенства динамически рассеивающих монокристаллов. Способы аналогов и прототипа используют геометрию Лауэ. Для геометрии Брэгга особенности динамической дифракции имеют принципиально иной характер проявления, что обусловило необходимость построения для этого случая динамической теории ПИОС. Учет уменьшения когерентной составляющей ПИОС вследствие ухода части интенсивности в диффузный фон, ослабления "источника" из-за диффузного рассеяния и распространение динамического подхода на диффузное рассеяние позволяли получить в случае геометрии Брэгга выражение для ПИОС монокристалла, содержащего хаотически распределенные дефекты:

$$R^H(\lambda) = R_B + R_D - f(L^H, \mu^{*H}).$$

Получены также выражения, связывающие величины  $L^H$ ,  $\mu_{ds}^{OH}$  (эффективного коэффициента поглощения из-за рассеяния части интенсивности в диффузный фон),  $\mu^{*H}$  (эффективного коэффициента поглощения диффузного фона из-за рассеяния сильных брэгговских и диффузных волн на искажениях решетки) - с характеристиками дефектов монокристаллов и длиной волны используемого излучения. Таким образом, теоретически обоснован способ оценки структурного совершенства монокристаллов по величинам ПИОС, измеряемых для излучений двух длин волн в геометрии Брэгга.

Предлагаемый способ, не уступая способу толщинных зависимостей интегральных интенсивностей по точности и информативности, лишен недостатков последнего, связанных с необходимостью придания образцу плоскопараллельной формы, измерения толщины образца, что вносит дополнительную погрешность в получаемые результаты, с необходимостью послойного сравливания образца.

Изобретение осуществляется следующим образом.

Пучок рентгеновских лучей направляют под углом Брэгга для любой выбранной  $\lambda_1$  к фиксированной системе плоскостей и измеряют значение интегральной интенсивности  $I_R^H(\lambda_1)$  отражения, характеризующегося вектором дифракции  $\vec{H}$ . Затем образец поворачивают вокруг вертикальной оси ГУРа на заданный угол, чтобы на той же системе плоскостей реализовалось отражение того же порядка для любой длины волны рентгеновских лучей  $\lambda \neq \lambda_1$ , и измеряют интенсивность рефлекса  $I_R^H(\lambda_1)$ . Определяют экспериментальные значения  $R^H(\lambda_1)$  и  $R^H(\lambda_2)$ . На основании экспериментальных значений  $R^H(\lambda_1)$  по формулам, представленным ниже, с помощью ЭВМ определяют значения  $L^H$  и  $\mu^{*H}$ .

$$\begin{cases} R^H(\lambda_i) = R^{dyn} P(s, q, t) \exp(-L^H) + R^{kin} \Pi(\mu^{*H}, t) [1 - \exp(-2L^H)] \quad (i = 1, 2) \\ \mu^{*H} = \frac{\left( \frac{A_1}{D_1} - \frac{\ln \alpha_1}{\alpha_1} - \frac{F_1}{D_1} \frac{1}{\alpha_1} \right) \cdot \left( 1 - \frac{1}{\alpha_2} \right) \ln \alpha_2}{\left( \frac{A_2}{D_2} - \frac{\ln \alpha_1}{\alpha_2} - \frac{F_2}{D_2} \frac{1}{\alpha_2} \right) \cdot \left( 1 - \frac{1}{\alpha_1} \right) \ln \alpha_1} \cdot \frac{m_{01} B_1 \ln \alpha_1}{M_{02} B_2 \ln \alpha_2}, \end{cases} \quad (5)$$

$$\text{где } R^{dyn} = (16/3 \pi) C Q \Lambda / \gamma_0, \quad R^{kin} = C^2 Q t / \gamma_0$$

$$\Pi(\mu^{*H}, t) = \begin{cases} 1/[2(\mu_0 + \mu^{*H}) t / \gamma] & \text{при } \mu_0 t \gg 1 \\ 1/[1 + (\mu_0 + \mu^{*H}) t / \gamma] & \text{при } \mu_0 t < 1, t \gg \Lambda \end{cases}$$

$$\begin{aligned} P(s, q, t) &\approx 1 - 3\pi s/4 \text{ при } s < 1; \\ s &= (\mu_0 + \mu_{ds}) \Lambda / \gamma \quad C; \quad \frac{1}{\gamma} = \left( \frac{1}{\gamma_0} + \frac{1}{|\gamma_R|} \right) / 2, \quad \mu_{ds} = \frac{\left( 1 - \frac{1}{\alpha} \right) \ln \alpha \mu^{*H}}{2} \left( \frac{A}{D} - \frac{\ln \alpha}{\alpha} - \frac{F}{D} \frac{1}{\alpha} \right)^{-1}, \\ q &= 2\pi C \gamma \ln \sqrt{\chi_2 \chi_2} / \lambda (\mu_0 + \mu_{ds}) \sqrt{\gamma_0 / \gamma_2}, \quad 5 \quad \alpha \frac{\Lambda}{R}; \quad A = 1 + \frac{8}{9} a + \frac{4}{15} a^2; \\ Q &= (\pi / \chi_r)^2 / \lambda \sin 2\theta; \quad D = 1 + \frac{2}{3} a; \quad F = 1 + a + \frac{2}{5} a^2; \\ \Lambda &= \lambda \sqrt{\gamma_0 |\gamma_r|} / 2\pi |\chi_r|; \quad 10 \quad m_0 = \pi C \& (C |\chi_r| \cdot H/2 \lambda)^2; \\ & \quad B = 2 B^{(1)} + B^{(2)} \cos^2 \theta \end{aligned}$$

$$a = \begin{cases} \frac{\tan^2 \theta - 0.5}{\beta} & \text{для кластеров} \\ \beta = (3\nu^2 + 6\nu - 1) / 4(1 - \nu)^2; \\ \frac{\tan^2 \theta - 0.5}{1 + 2/\beta \cos^2 \theta} & \text{для дислокационных петель} \end{cases}$$

$$B(1) = \begin{cases} 0 & \text{для кластеров} \\ 4[b\pi(R)^2/\delta]^2/15 & \text{для петель} \end{cases}$$

$$B(2) = \begin{cases} (4\pi A_{ce}/\delta)^2 & \text{для кластеров} \\ \beta B(1) & \text{для петель} \end{cases}$$

Здесь  $C$  - фактор поляризации,  $E = \exp(-L^H)$  - статический фактор Дебая-Валлера,  $k_{HH}$  - вещественная часть  $H$  компоненты Фурье восприимчивости кристалла,  $\Lambda$  - длина экстинкции,  $\nu$  - коэффициент Пуассона,  $s$  - отношение количества точечных дефектов в кристалле к числу атомов в кристалле,  $b$  - объем элементарной ячейки кристалла,  $R$  - радиус дефекта,  $A_{ce}$  - мощность кластера,  $b$  - модуль вектора Бюрегера дислокационной петли,  $\gamma_0$  и  $\gamma_2$  - косинусы углов, составляемых падающим и дифрагированным лучами с внутренней нормалью к входной поверхности образца.

Затем по характеру зависимостей  $L(H)$  и  $\mu^*(H)$  определяют тип дефектов, преобладающих в образце, и осуществляют их количественную диагностику.

Параметры динамического рассеяния рентгеновского излучения определялись предлагаемым способом, способом-прототипом, а также разрушающим способом толщинных зависимостей на образце, вырезанном из слитка бездислокационного монокристалла кремния с концентрацией кислорода  $8 \cdot 10^{17}$  ат·см<sup>-3</sup>, выращенного по методу Чохральского в направлении [111]. Образец был вырезан перпендикулярно оси роста. Диффузия в образец меди проводилась при температуре 1523К в атмосфере азота в течение 1,5 часа.

При осуществлении предлагаемого способа, способов прототипа и толщинных зависимостей измерения значений  $I_R^H$  проводились на однокристалльном спектрометре, созданном на базе установки ДРОН-3М с использованием характеристического излучения рентгеновской трубки БСВ-25 с молибденовым анодом, а также излучения сплошного спектра этой трубки с длиной волны  $\lambda = \lambda_{AgK\alpha}$  - излучения. Использовался детектор БДС-8-01. Пучок рентгеновских лучей коллимировался щелями до сечения  $5 \cdot 10^{-3}$  см<sup>2</sup>.

Регистрировались симметричные лауэ-рефлексы 220, 440, 660 и брэгг-рефлексы 111, 220, 333, 444, 440, 660, 555.

Толщина образца при реализации разрушающего способа толщинных зависимостей изменялась послойным химическим травлением от 0,1 см до 0,012 см, что для  $AgK\alpha$  и  $MbK\alpha$  - излучения соответствует приближению тонкого кристалла  $|\mu_0| \leq 1$ . При определении параметров динамического рассеяния рентгеновских лучей предлагаемым способом и способом, описанным в прототипе, толщина образца составляла 0,012 см.

В предлагаемом способе пучок рентгеновских лучей направлялся под углом Брэгга для  $\lambda_1 = 0,7093 \text{ \AA}$   $/M_bK\alpha/$ , измерялось значение интегральной интенсивности  $I_R^H(\lambda_1)$ , затем образец поворачивался вокруг вертикальной оси Гура на такой угол, чтобы реализовалось отражение, характеризующееся тем же вектором дифракции  $\vec{H}$ , для длины волны  $\lambda_2 = 0,559 \text{ \AA}$   $/AgK\alpha/$  и измерялась интенсивность рефлекса  $I_R^H(\lambda_2)$ , затем по известной формуле [6] рассчитывались экспериментальные значения  $R^H(\lambda_1)$  и  $R^H(\lambda_2)$ , приведенные для различных рефлексов  $\vec{H}$  в табл 1.

Путем обработки на ЭВМ экспериментальных значений  $R^H(\lambda_1)$  и  $R^H(\lambda_2)$  при использовании выражений (5), (6) были получены параметры динамического рассеяния рентгеновских лучей, приведенные в табл. 2.

Как видно из табл. 2, значения параметров динамического рассеяния, определенные предлагаемым способом и разрушающим способом толщинных зависимостей, совпадают в пределах погрешности определения. Это свидетельствует о корректности предложенного способа контроля дефектной структуры.

Из табл. 2 видно, что величина  $L$ , определенная для рефлекса 660 известным способом значительно меньше величины  $L$ , определенной для этого же рефлекса предлагаемым способом. Это расхождение объясняется тем, что разработанная в рамках способа прототипа математическая модель использует допущение  $\mu_{ds}(220) = \mu_{ds}(660)$ . При таком допущении неизбежно увеличение с ростом  $N$  пропорционального величине  $L$  вклада в ПИОС диффузного рассеяния. Однако, при увеличении  $\mu_{ds}$  и  $\mu^*$  (как видно из таблицы 2,  $\mu_{ds}(600) \approx 10 \mu_{ds}(220)$  :  $\mu^*(660) \approx 13 \mu^*(220)$ ) величина диффузного вклада может уменьшаться с ростом  $N$ , что и обуславливает уменьшение получаемых известным способом значений  $L$ . Таким образом, точность определения  $L$  по сравнению с прототипом в предлагаемом способе возрастает в 2 раза.

Полученные зависимости динамических параметров от  $N$  позволяют отнести дефекты в образце к петлям. Для них вычислены следующие параметры: средний радиус  $r = 10^{-3}$  см, концентрация точечных дефектов  $N = 2 \cdot 10^{10}$  ат·см<sup>-3</sup>. Следует отметить, что такое значение концентрации точечных дефектов хорошо согласуется с данными о концентрации кислорода в образце: количество точечных дефектов составляет до 20% количества атомов кислорода, содержащихся в монокристалле.

Предлагаемым способом исследован также монокристаллический образец Ge, при выращивании легированный Li до концентрации, близкой к пределу растворимости. Как сильнопоглощающий материал Ge не подлежал исследованию способом прототипа. В образце произошел распад твердого раствора Li в Ge. Установлено хорошее совпадение значений фактора Дебая-Валлера, полученных для данного образца предлагаемым способом и традиционным способом К-скачков поглощения. Показано, что доминирующим типом дефектов в образце являются кластеры, средний радиус которых составляет  $10^{-4}$  см. Таким образом, круг материалов, подлежащих исследованию предлагаемым способом расширен по сравнению с прототипом.

Таблица 1

hkl	$R^H(\lambda_1) \cdot 10^6 (\lambda_1 = 0,7093 \text{ \AA})$	$R^H(\lambda_2) \cdot 10^6 (\lambda_2 = 0,559 \text{ \AA})$
111	$44 \pm 2$	$45 \pm 2$
220	$40 \pm 3$	$53 \pm 3$
333	$14 \pm 1$	$14 \pm 1$
440	$14 \pm 1$	$21 \pm 1$
444	$8 \pm 0,5$	$9 \pm 0,5$
555	$2,1 \pm 0,1$	$2,1 \pm 0,1$
660	$3,1 \pm 0,2$	$3,8 \pm 0,2$

Таблица 2

hkl	Предлагаемый способ			Прототип	Разрушающий способ толщиной зависимости		
	$\mu_{Ag}^* \text{ см}^{-1}$	$\mu_{Mo}^* \text{ см}^{-1}$	$L \cdot 10^3$		$L \cdot 10^3$	$\mu_{Mo}^* \text{ см}^{-1}$	$\mu_{ds Mo}^* \text{ см}^{-1}$
111	$3 \pm 1$	$3 \pm 1$	$23 \pm 7$	70	$38 \pm 10$	$1,3 \pm 0,4$	$2 \pm 0,6$
220	$0,9 \pm 0,3$	$1,3 \pm 0,4$	$34 \pm 10$				
333	$7 \pm 2$	$10 \pm 3$	$120 \pm 40$				
440	$14 \pm 3$	$13 \pm 4$	$110 \pm 30$				
444	$10 \pm 3$	$16 \pm 1$	$120 \pm 40$		$120 \pm 30$	$13 \pm 4$	$18 \pm 5$
660	$20 \pm 5$	$18 \pm 5$	$200 \pm 60$		$200 \pm 60$	$18 \pm 5$	$25 \pm 8$
555	$15 \pm 3$	$19 \pm 5$	$230 \pm 70$				