

© 1999 р. В.П. Кладько, Л.І. Даценко, С.Й. Оліховський,  
В.Ф. Мачулін, І.В. Прокопенко

Інститут фізики напівпровідників НАН України, Київ

## АНАЛІЗ НЕСТЕХІОМЕТРІЇ І ХАРАКТЕРИСТИК МІКРОДЕФЕКТІВ ПРИ ДИФРАКЦІЇ РЕНТГЕНІВСЬКИХ ПРОМЕНІВ ПО БРЕГУ

На основі динамічної теорії розсіяння рентгенівських променів реальними кристалами одержані вирази для когерентної та дифузної складових повної інтегральної відбиваючої здатності (ПВЗ) у випадку брег-дифракції. Отримані формули справедливі у випадку сильного поглинання, а також в умовах значного вкладу аномальної дисперсії  $\chi_{ih} \gg \chi_{rh}$ . Проаналізована поведінка інтерференційного коефіцієнта поглинання для структурних та квазізаборонених рефлексів (КЗР) у кристалах GaAs. Встановлена слабка чутливість дифузного розсіяння для КЗР до дефектів кулонівського типу, що дало можливість визначити параметр відхилення хімічного складу бінарних кристалів від ідеального при вимірюваннях енергетичних залежностей ПВЗ.

The formulae for the coherent and diffuse components of the X-ray total integral reflectivity (XTIR) of the Bragg diffracted beams taking into account the anomalous dispersion phenomena were obtained on the basis of the dynamical scattering theory for a real crystals containing homogeneously distributed Coulomb defects (clusters). The obtained expressions are true for the case of strong absorption when the imaginary part of the Fourier coefficient of susceptibility exceeds the real one. The behavior of the interferences absorption coefficient for the "structural" and quasi-forbidden reflections (QFR) has been analyzed in GaAs crystals for wide region of wavelengths situated between the absorption *K*-edges. Weak sensitivity of diffuse scattering for the QFRs to structure defects for energetic dependence of the XTIR was shown what permitted us to determine the parameter describing the deviation of chemical composition of binary crystal from stoichiometrical one.

Останнім часом проблемам брегівської дифракції рентгенівських променів (РП) у реальних монокристалах присвячена значна кількість робіт [1-7]. Цей інтерес викликаний можливістю отримувати таку ж інформацію про дефектну структуру кристалів, як і у випадку Лауе, але з значно меншими експериментальними затратами. Зокрема, у роботах [4,7] для різних умов симетричної дифракції розраховані азимутальні залежності брегівської (когерентної) і дифузної складових інтегральної відбиваючої здатності (ІВЗ), а також проаналізовані ефективні коефіцієнти поглинання, спричинені дифузним розсіянням (ДР), для обмежених кулонівських дефектів різного типу. У цих роботах виведені формули, які дозволяють розширити область застосування теорії брег-дифракції реальними кристалами для дефектів різних розмірів. Незважаючи на детальне дослідження чутливості ІВЗ до характеристик дефектів (концентрації, протяжності полів деформації) при різних рівнях поглинання, у цих роботах відсутній аналіз особливостей дифракції в умовах значного впливу явищ аномальної дисперсії. Такий вплив може призводити до специфічних ситуацій, які виникають поблизу *K*-країв

поглинання компонент кристала, до прикладу, уявна частина коефіцієнта Фур'є-поляризованості істотно перевищує дійсну ( $\chi_{ih} \gg \chi_{rh}$ ), включаючи випадок  $\chi_{rh}=0$ . Перші спроби прояснити ситуацію у цій області довжин хвиль для кристалів GaAs були зроблені у роботах [8-10] для структурних (дозволених) рефлексів. Однак повний теоретичний аналіз даних, які визначаються в експерименті і враховують особливості дефектних структур у реальному кристалі, в них відсутній.

У роботах [11-12] визначено, що особливо чутливими до дефектів структури, які викликані зміною хімічного складу (стехіометрії), є квазізаборонені рефлекси. Ця чутливість зростає як за рахунок дисперсійних поправок поблизу *K*-країв поглинання компонент, так і особливо у тій області довжин хвиль, де  $\chi_{rh}=0$  [13]. Недоліком зазначених робіт слід вважати ту обставину, що в основу аналізу експериментальних результатів покладена теоретична модель, яка розглядає розсіяння РП як кінематичне, коли впливом дефектів структури I й II роду по класифікації Криво-глаза при розгляді ПВЗ можна знехтувати [14].

На можливість практичної реалізації цього випадку для структурних рефлексів в умовах динамічної дифракції вказано у роботі [15], а для КЗР – у [16]. У роботі [17] теоретично проаналізований випадок  $\chi_{ih} \gg \chi_{rh}$  для ідеального кристала в умовах як брег-, так і лауе-дифракції.

Мета даної роботи - теоретичне й експериментальне дослідження особливостей брег-дифракції в умовах сильного поглинання і значного впливу явищ аномальної дисперсії, а також впливу дефектів структури типу кулонівських центрів і нестехіометрії на характер розсіяння РП в області К-країв поглинання GaAs, а також визначення можливості отримання цих характеристик із експериментальних енергетичних залежностей ІВЗ.

### Теоретична частина

Компоненти Фур'є-поляризованості  $\chi_r$  – пропорційні структурному фактору бінарного кристалу  $F_h$ :

$$\begin{aligned} F_h &= \sum c_j f_j \exp(-M_j) \exp(2\pi i \vec{h} \vec{r}_j), \\ \chi_{rh} &= (e^2 / mc^2) (\lambda^2 / \pi V) F_{rh}, \\ \chi_{ih} &= (e^2 / mc^2) (\lambda^2 / \pi V) F_{ih}, \end{aligned} \quad (1)$$

$\chi_h = \chi_{rh} + i\chi_{ih}$ ,  $\chi_{rh} = \chi'_{rh} + i\chi''_{rh}$ ,  $\chi_{ih} = \chi'_{ih} + i\chi''_{ih}$ , де  $\chi_{rh}$ ,  $\chi_{ih}$  – дійсна і уявна частини поляризованості для відбивання з дифракційним вектором  $\vec{h}$ ,  $\lambda$  – довжина хвилі РП,  $\vec{r}_j$  – радіус-вектор  $j$ -го атома,  $c_j$  – атомна концентрація компонент кристала,  $M_j$  – температурний множник Дебая-Валера.

У двоххвильовому випадку дифракції РП недосконалими монокристалом, що містять однорідно розподілені обмежені дефекти, (тобто дефекти I роду [14]), амплітуди електричної індукції заломленої  $D_0$  і дифрагованої  $D_h$  плоских хвиль, які утворюють когерентну квазіблохівську хвилю в кристалі, повинні задовольняти однорідну алгебраїчну систему рівнянь [18]:

$$\begin{aligned} (-2\varepsilon_0 + \chi_0 + \Delta\chi_{00})D_0 + (CE\chi_{\vec{h}} + \Delta\chi_{0h})D_h &= 0, \\ (CE\chi_h + \Delta\chi_{h0})D_0 + (-2\varepsilon_h + \chi_0 + \Delta\chi_{hh})D_h &= 0. \end{aligned} \quad (2)$$

Тут  $\varepsilon_0 = (K_0 - K)/K$  і  $\varepsilon_h = (K_h - K)/K$  – похибки збурження заломленої і дифрагованої хвиль, відповідно, з хвильовими векторами  $\vec{K}_0$  і  $\vec{K}_h = \vec{K}_0 + \vec{h}$ ,  $\vec{h}$  – вектор оберненої ґратки,  $K = 2\pi/\lambda$ ,  $\lambda$  – довжина хвилі РП,  $C$  – поляризаційний множник,  $\chi_0$ ,  $\chi_h$ ,  $\chi_{\vec{h}}$  – Фур'є-компоненти комплексної поляризованості, помножені на  $4\pi$ ,  $E = \exp(-L_h)$  – статич-

ний фактор Дебая-Валера,  $\Delta\chi_{gg'}$  – дисперсійні поправки, що враховують послаблення когерентних хвиль, спричиненого дифузним розсіянням ( $g, g' = 0, h$ ).

Умова розв'язку системи (2) дасть дисперсійне рівняння для хвильового вектора  $\vec{K}_0 = \vec{K} + (\varepsilon_0/\gamma_0)\vec{n}$  ( $\vec{K}$  – хвильовий вектор падаючої плоскої хвилі,  $\vec{n}$  – внутрішня нормаль до вхідної поверхні кристала,  $\gamma_{0,h} = \cos(\vec{K}_{0,h} \hat{\vec{n}})$ ):

$$\begin{aligned} (-2\varepsilon_0 + \chi_0 + \Delta\chi_{00})(-2\varepsilon_h + \chi_0 + \Delta\chi_{hh}) &= \\ = (CE\chi_h + \Delta\chi_{h0})(CE\chi_{\vec{h}} + \Delta\chi_{0h}). \end{aligned} \quad (3)$$

З врахуванням співвідношення  $\varepsilon_h = \varepsilon_0 \gamma_h / \gamma_0 + \alpha$ , де  $\alpha = \Delta\theta \sin 2\theta$ ,  $\theta$  – кут Брега,  $\Delta\theta$  – кутові відхилення вектора  $\vec{K}$  від напрямку, що відповідає умові Брега, із рівняння (3) випливає

$$\varepsilon_0^\delta = \frac{1}{2}(\chi_0 + \Delta\chi_{00}^\delta) + \frac{\lambda\gamma_0}{2\Lambda} \left[ y + (-1)^\delta \sqrt{y^2 - 1} \right]. \quad (4)$$

У співвідношенні використані позначення:  $\delta = 1, 2$ ,  $y = (\alpha - \alpha_0)\sqrt{b}/\sigma$ ,  $b = \gamma_0/|\gamma_h|$ ,  $\Lambda = \lambda|\gamma_h|\sqrt{b}/\sigma$ ,

$$\sigma^2 = (CE\chi_h + \Delta\chi_{h0}^\delta)(CE\chi_{\vec{h}} + \Delta\chi_{0h}^\delta),$$

$$\alpha_0 = \chi_0(1+b)/2 + (\Delta\chi_{hh}^\delta + \Delta\chi_{00}^\delta/b)/2.$$

Когерентне хвильове поле у кристалі описується так:

$$D(\vec{r}) = \sum_\delta d_\delta(\vec{r}) = \sum_\delta D_0^\delta e^{-iK_0^\delta \vec{r}} + D_h^\delta e^{-iK_h^\delta \vec{r}}, \quad (5)$$

де  $\vec{K}_0^\delta = \vec{K} + K\Delta_\delta \vec{n}$ ,  $\vec{K}_h^\delta = \vec{K}_0^\delta + \vec{h}$ ,  $\Delta_\delta = \varepsilon_0^\delta/\gamma_0$ , а амплітуди  $D_0^\delta$  і  $D_h^\delta$  є розв'язками системи (2), які задовільняють звичайним граничним умовам для плоскопаралельного кристала, і в даному випадку геометрії дифракції по Брегу мають вигляд [19]:

$$D_0^\delta = (-1)^\delta E_0 B_\delta / (B_1 - B_2), \quad D_h^\delta = C^\delta D_0^\delta, \quad (6)$$

де  $B_\delta = C^\delta e^{-iK\Delta_\delta t}$ ,  $C^\delta = \sqrt{\zeta b} \cdot [y + (-1)^\delta \sqrt{y^2 - 1}]$ , амплітуда падаючої на кристал плоскої хвилі  $\exp(-i\vec{K}\vec{r})$ ,  $\zeta = (CE\chi_h + \Delta\chi_{0h}^\delta)/(CE\chi_{\vec{h}} + \Delta\chi_{h0}^\delta)$ ,  $t$  – товщина кристала.

Затухання когерентного хвильового поля (5) по глибині кристала вздовж нормалі  $\vec{n}$  визначається різними коефіцієнтами поглинання:

$$\mu_\delta = -2K \text{Im} \Delta_\delta, \quad (7)$$

для двох хвильових полів, які є квазіблохівськими хвилями  $f_\delta(\vec{r})$ .

Розглянемо спочатку вираз для ІВЗ ідеального поглинаючого кристала, який згідно [20] можна

записати так:

$$R_{coh} = R_{i0} \zeta P(g_0, \kappa_0, t), \quad (8)$$

де  $R_{i0} = \frac{8}{3} \frac{\sqrt{|\chi_h \chi_{\bar{h}}|}}{\sin 2\theta}$  – ІВЗ ідеального непогли-

наючого кристалу,  $\zeta = \sqrt{\frac{1+2s_0}{1-2s_0}}$ ,  $P(g_0, \kappa_0, t) =$

$$= \frac{3}{8} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} r(g_0, \kappa_0, t, z) dz.$$

Запишемо у загальному випадку важливий для аналізу параметр  $|\chi_h \chi_{\bar{h}}| = |\Psi_h|^2 (1 - \kappa_0^2 + 2ip_0)$ , де дійсна частина Фур'є-коефіцієнта може приймати також нульове значення. Тут використано позначення:

$$\begin{aligned} |\Psi_h|^2 &= |\chi_{rh}|^2 + |\chi_{ih}|^2, \quad \kappa_0 = \sqrt{2} |\chi_{ih}| / |\Psi_h|, \\ p_0 &= (\chi'_{rh} \chi'_{ih} + \chi''_{rh} \chi''_{ih}) / \Psi_h^2, \\ s_0 &= (\chi''_{rh} \chi'_{ih} - \chi'_{rh} \chi''_{ih}) / \Psi_h^2; \\ g_0 &= -|\chi_{i0}| \frac{\sqrt{b} + 1/\sqrt{b}}{2C\Psi_h}. \end{aligned} \quad (9)$$

Для центросиметричного напівнескінченного досконалого кристала  $R_{coh}(\Delta\theta)$  не залежить від товщини:

$$R_{coh}(\Delta\theta) = \zeta(L - \sqrt{L^2 - 1}), \quad (10)$$

$$L = \frac{z^2 + g_0^2 + \sqrt{(z^2 + \kappa_0^2 - g_0^2 - 1)^2 + 4(zg_0 - p_0)^2}}{\sqrt{(1 - \kappa_0^2)^2 + 4p_0^2}},$$

$z = \frac{\Delta\theta \sin 2\theta}{C\Psi_h} \sqrt{b}$  визначає узагальнений безроз-

мірний параметр відхилення дифракційних умов від положення дифракційного максимуму:

$$y = -\frac{z + ig_0}{\sqrt{1 - \kappa_0^2 + 2ip_0}}.$$

У реальному кристалі крім когерентної складової  $R_{i0}$  з'являється дифузна компонента. Узагальнюючи згідно з [4,7], наведені вище формули (9)-(10) на випадок реального кристала шляхом заміни  $\psi_h$  на  $\psi_h \exp(-L_h)$ , а також  $\chi_{i0}$  на  $|\chi_{i0}| + \mu_{ds}/K$ , де  $\mu_{ds}$  – коефіцієнт додаткових втрат енергії за рахунок дифузного розсіяння на дефектах, можна отримати когерентну складову розсіяння у кристалічному середовищі з дефектами. Тоді  $g = g_0(1 + \mu_{ds} C^2 / \mu_0) \exp(L_h)$ , а  $\bar{R}_{i0} = R_{i0} E$ .

Аналіз кривих відбивання для когерентної складової показує, що збільшення відношення

$|\chi_{rh}|/|\chi_{ih}|$  приводить до зміщення кутового положення дифракційних максимумів у бік від'ємних значень параметра  $y$ . Зміна величини вказаного відношення відчутна при вимірюваннях енергетичної залежності ІВЗ між  $K$ -краями поглинання компонент  $\chi_{rh}$  і змінюється різко за рахунок поправок Хьонля, а  $\chi_{ih}$  слабо змінюється у цьому інтервалі довжин хвиль РП.

Дифузні хвилі, що виникають через розсіяння сильних берегівських хвиль на флуктуаціях полів статичних зміщень атомів у кристалах від хаотично розподілених дефектів, також утворюють у кристалі динамічне хвильове поле. У двохвильовому випадку дифракції амплітуди дифузних плоских хвиль  $\bar{D}_k$  і  $\bar{D}_{h+k}$  задовольняють систему неоднорідних рівнянь [21,22]:

$$\begin{aligned} (-2\varepsilon_{0k} + \chi_0 + \Delta\chi'_{00})\bar{D}_k + (C\varepsilon\chi_{-h} + \Delta\chi'_{0h})\bar{D}_{h+k} &= \\ &= -(\delta\chi_k D_0 + C\delta\chi_{-h+k} D_h), \\ (-2\varepsilon_{hk} + \chi_0 + \Delta\chi'_{hh})\bar{D}_{h+k} + (C\varepsilon\chi_h + \Delta\chi'_{h0})\bar{D}_k &= \\ &= -(C\delta\chi_{h+k} + \delta\chi_k D_h), \end{aligned} \quad (11)$$

де  $\varepsilon_{0k}$  і  $\varepsilon_{hk}$  – помилки збудження дифузних хвиль,  $\Delta\chi'_{gg}$  – дисперсійні поправки, що враховують процеси багатократного дифузного розсіяння ( $\vec{g} = 0, \vec{h}$ ).

Накладаючи граничні умови на амплітуди хвиль ДР у випадку дифракції Брега і перетворюючи отримані амплітуди плоских хвиль на межі кристала в амплітуду розсіяння і відповідний поперечний переріз ДР [21], із системи (11) можна отримати такий вираз для дифузної компоненти диференційної відбиваючої здатності кристала [23,24]:

$$R_D(\vec{k}) = \frac{\langle |f_h(K', K)|^2 \rangle}{\gamma_0 S |E_0|^2}, \quad (12)$$

де  $f_h(K', K)$  – амплітуда дифузного розсіяння, кутові дужки означають усереднення по розподілу дефектів,  $S$  – площа вхідної поверхні кристала, що оспромінюється РП. Вираз (12) може бути спрощений, коли справедливе наближення напівнескінченного кристала. У цьому випадку в кристалі зберігається лише одна блохівська хвиля у хвильових полях як сильних берегівських, так і дифузно розсіяних хвиль. Тоді з (12) випливає:

$$R_{DS}(\vec{k}) = \frac{1}{\gamma_0 S} \left( \frac{CVK^2}{4\pi} \right) F_{dyn} S(\vec{q}), \quad (13)$$

де  $S(\vec{q}) = \langle |\delta\chi_{h+q}|^2 \rangle$ .

$$F_{dyn} = 1 + |\zeta'|^2 b R_{coh} + 2 \operatorname{Re}(\zeta' c^{(\delta)}), \quad (14)$$

де  $\vec{q} = \vec{k} + i\mu_i \vec{n}$ ,  $\mu_i = K \operatorname{Im}(\Delta'_\tau - \Delta_\delta)$ . Тут вектор  $\vec{k} = \vec{K}' - \vec{K} - \vec{h}$  – відхилення кінця хвильового вектора дифузної розсіяної хвилі у вакуумі ( $\vec{K}' = \vec{K}$ ) від найближчого вузла оберненої ґратки. Екстинкційний фактор  $F_{dyn}$  описує модуляцію дифузної розсіяної інтенсивності, яка викликана екстинкцією сильних брегівських хвиль.

Інтегруючи (13) по всій сфері Евальда ( $K'=K$ ), в околі точки  $H$  оберненої ґратки, ми отримаємо інтегральну дифузну компоненту, виміряну на ДКС з широко відкритим вікном детектора [3,24]:

$$R_{diff}(\Delta\theta) = \int_{K'=K} R_{DS}(k) dS_{K'} / K^2 dk = \quad (15)$$

$$= F_{dyn}(\Delta\theta) \mu_{00}^\delta(\Delta\theta) t / \gamma_0 d\theta,$$

$$\mu_{00}^\delta(\Delta\theta) = \frac{C^2 V}{4\lambda^2} \int dS_{K'} S(\vec{q}), \quad (16)$$

де  $dS_{K'} = K^2 d\Omega_{K'}$  – елемент площі поверхні в оберненому просторі.

Для малих концентрацій  $c \ll 1$ , довільно розподілених обмежених дефектів з середнім радіусом  $R_0$ , Фур'є-компонента флуктуацій поляризованості кристала може бути представлена в області  $q \ll k_m = 2\pi/R_0$  як  $\delta\chi_{h+q} \approx iE\chi_h(hU_q)c_q$  [1], де  $U_q$  – Фур'є-компонента поля зміщень від одиничного дефекту,  $c_q = N^{-1} \sum (c_S - c) \exp(iqR_S^0)$  – Фур'є-компонента флуктуацій концентрації дефектів,  $N = V/v_c$ ,  $v_c$  – об'єм елементарної комірки,  $c_S = 0$  або 1 – числа заповнення вузлів  $R_S$  кристалічної ґратки,  $c = \langle c_S \rangle$  – концентрація дефектів;  $R_S^0 = \langle R_S \rangle$ . Усереднення по випадковому розподілу дефектів дає

$$\langle |\delta\chi_{h+q}|^2 \rangle \approx \quad (17)$$

$$\approx c v_c V^{-1} |\chi_h|^2 |hU_q|^2 [1 - \exp(-2\mu t)] / (2\mu t).$$

Для двох типів мікрodefектів (а саме: сферично-симетричних кластерів і випадково орієнтованих дислокаційних петель) функція  $F(q) = |h_0 U_q|^2$  у (17), де  $\vec{h}_0 = \vec{h}/h$ , може бути представлена у вигляді [25]:

$$F(q) = [B_1 + B_2 (\vec{h}_0 \vec{q} / q)^2] / q^2. \quad (18)$$

Дифузну компоненту коефіцієнта відбивання кристала з однорідно розподіленими дефектами, проінтегрована по кутах виходу, може бути виражена співвідношенням [3]:

$$R_D(\Delta\theta) = F_{dyn}(\Delta\theta) \frac{\mu_{ds}(k_0) \cdot \gamma_0}{2\mu_i(\Delta\theta)}, \quad (19)$$

$$\text{де } k_0 = K\Delta\theta \sin(2\theta), \quad \mu_{ds}(k_0) = c \cdot C^2 E^2 m_0 J_0(k_0),$$

$$m_0 = \pi a^3 (h |\Psi_h| / \lambda)^2 / 4,$$

при  $|k_0| \leq k_m$

$$J_0(k_0) = b_2 \left( 1 + \ln \frac{(k_m^2 + \mu_i^2)}{k_0^2 + \mu_i^2} \right) + b_3 \left( \frac{k_0^2}{2k_m^2} - 1 \right), \quad (20)$$

$$\text{при } |k_0| \geq k_m \quad J_0(k_0) = (b_2 - b_3 / 2) \frac{k_m^2}{k_0^2}.$$

Параметри розсіяння  $b_2 = B_1 + B_2 \cos^2(\theta/2)$ ,  $b_3 = -B_2 \cos^2\theta (1 - 2\operatorname{tg}^2\theta) / 2$  у моделі сферичних кластерів залежать від їх деформаційних характеристик  $B_1 = 0$ ,  $B_2 = (4\pi A_{cl} / a^3)^2$ ,  $A_{cl} = \Gamma \varepsilon R_0^3$ ,  $\Gamma = (1 + \nu) / [3(1 - \nu)]$ ,  $\varepsilon$  – параметр деформації,  $\nu$  – коефіцієнт Пуасона.

Отримане співвідношення для дифузної компоненти кривої відбивання містить множники, які описують характерний перерозподіл інтенсивності  $F_{dyn}(\Delta\theta)$  з екстинкційним провалом в області повного зовнішнього відбивання  $|y| \leq 1$  для структурного рефлексу 400 і його відсутність для КЗР 200 в області довжин хвиль  $\lambda_K^{As} \leq \lambda \leq \lambda_K^{Ga}$ .

Така відмінність у поведінці кутового розподілу дифузної розсіяння для даних рефлексів пояснюється характером зміни інтерференційного коефіцієнта поглинання  $\mu_i \rightarrow \frac{\mu_0}{2 \cdot \gamma_0} (1 + b) / 2(1 + r/|g|)$ ,

який зростає в області  $|y| \leq 1$  до значення  $\mu_i = \pi / \Lambda$  (рис.1). Тут використані такі позначення  $r = \sqrt{(\sqrt{u^2 + v^2} - u) / 2}$ ,  $u = z^2 - g_0^2 + \kappa_0^2 - 1$ ,  $v = 2(zg_0 - p_0)$ .

Оскільки  $\Lambda_{200} \geq \Lambda_{400}$ , а  $t \approx \Lambda_{200}$ , то екстинкційний провал для КЗР відсутній. Аналіз зміни інтерференційного коефіцієнта поглинання з ростом рівня спотворень у кристалі показує, що збільшення  $L_h$  призводить до переходу від динамічного характеру розсіяння до кінематичного (залишається лише кінематичний провал). Це особливо яскраво виявляється для рефлексу 200 (рис.1а). Для рефлекса 400 цей ефект менш виражений (рис.1.б).

ІВЗ когерентної і дифузної складових визначались шляхом інтегрування по кутовій змінній  $y \sim \Delta\theta$ . Отже, формули (10)-(20) дозволяють кількісно описувати поведінку повної ІВЗ у широкій кутовій області, а також для кулонівських дефектів довільних розмірів і концентрацій. Вираз для

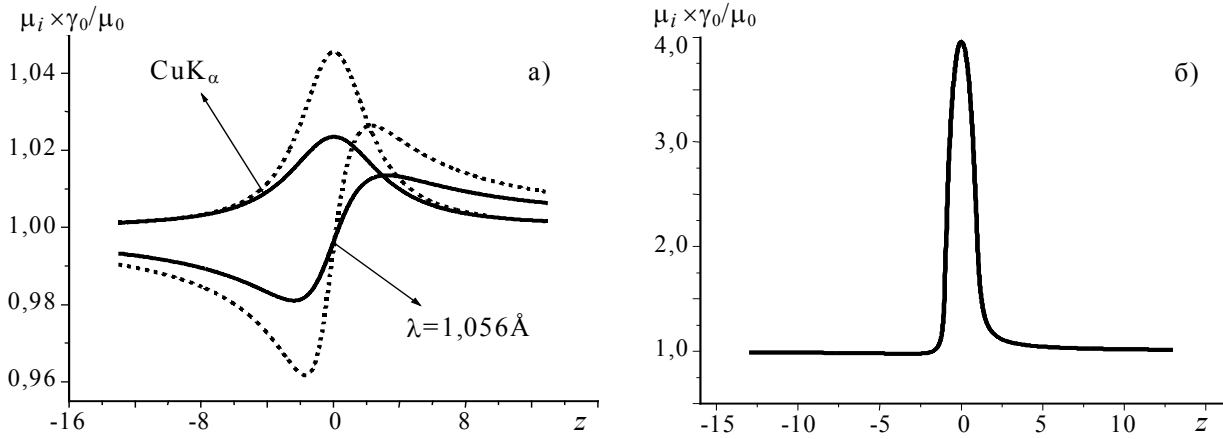


Рис.1. Кутова залежність інтерференційного коефіцієнта поглинання у GaAs для рефлексів 200 (а) і 400 (б). Штрихова лінія – ідеальний кристал, суцільна –  $L_h=0,1$ .

ІВЗ запишеться у вигляді суми когерентної й дифузної складових:

$$R_I = R_{coh} + R_{iD}. \quad (21)$$

На відміну від аналогічних виразів для ІВЗ [1-4], вони дозволяють розраховувати  $R_I$  для реального кристала і у випадку, коли  $\chi_{rh}=0$ . Енергетичні залежності  $R_I(\lambda)$  розраховувались за формулою (21) з врахуванням (10) і (19), а також залежності параметрів розсіяння від довжини хвилі РП і дисперсійних поправок.

#### Методична частина

Енергетичні залежності ІВЗ в області довжин хвиль між  $K$ -краями поглинання GaAs були одержані з допомогою однокристалного спектрометра ( $\theta, 2\theta$  – сканування). Система колімуючих щілин дозволяла отримувати спектральне вікно з шириною  $\Delta\lambda=0,0025\text{Å}$ . Враховуючи розподіл інтенсивності у падаючому пучку в залежності від розбіжності  $\Delta\theta$  і ширини спектрального вікна  $\Delta\lambda$  випромінювання неперервного спектру, можна записати такий вираз для ІВЗ:

$$R_i = P_i / P_0, \quad (22)$$

$$\text{де } P_i = \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_{\max}} d\lambda I(\lambda) \cdot \int_{-\Delta\theta}^{\Delta\theta} d(\Delta\theta) R_{coh}(\Delta\theta),$$

$$P_0 = \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_{\max}} d\lambda I(\lambda), \quad \lambda_{\min} = \lambda_0 - \Delta\lambda/2, \quad \lambda_{\max} = \lambda_0 + \Delta\lambda/2, \\ -\Delta\theta = \theta - \Delta\theta/2, \quad \Delta\theta = \theta + \Delta\theta/2.$$

Порівняння енергетичних залежностей  $R_i(\lambda)$ , розрахованих з урахуванням реальної ширини спектрального вікна і для фіксованого значення довжини хвилі РП приведено на рис.2.

Для обробки результатів і розрахунку параметрів дефектів використовувалась процедура підгонки теоретичної залежності (22) до експериментальної. Ця процедура описана у роботі [26].

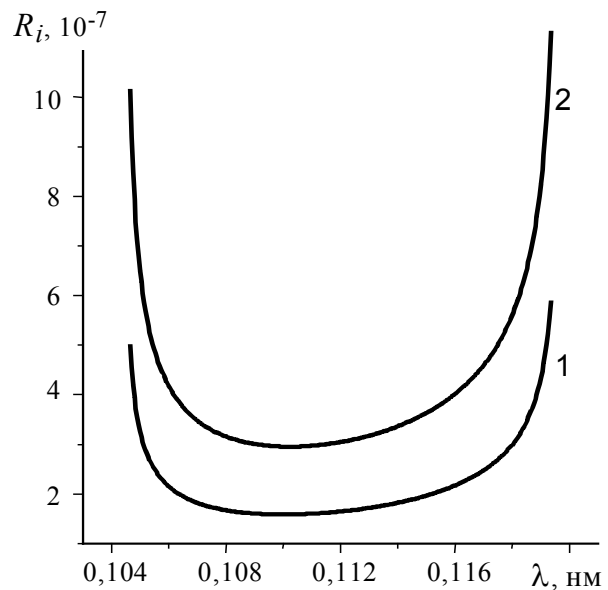


Рис.2. Вплив ширини спектрального вікна однокристалного спектрометра на характер енергетичних залежностей ІВЗ 200:  $\Delta\lambda=0$  (крива 1),  $\Delta\lambda=0,002\text{Å}$  (крива 2).

Вплив розсіяного і флуоресцентного фону враховувався за методикою з роботи [27]. Температурні поправки до функцій атомного розсіяння брались з роботи [28]. Дисперсійні поправки розраховувались за формулами роботи [29] з врахуванням сил осциляторів, взятих з [30]. При вимірюваннях використовувались рефлекси 200 і 400. Досліджувані кристали GaAs з орієнтацією поверхні (001) мали густину дислокацій  $\sim 10^4 \text{ см}^{-2}$ , а також мікроефекти (преципітати).  $W$ -подібний розподіл дислокацій у кристалах забезпечував неоднорідний розподіл власних компонент (нестехіометрія), а також легуючих домішок [31]. Визначення характеристик домінуючих типів мікроефектів у досліджуваних кристалах проводилось також за аналізом хвостів дифузного розсіяння [32], одержаних з допомогою ДКС.

### Результати та їх обговорення

З метою визначення чутливості ІВЗ різних порядків відбивання до дефектів структури, проводились розрахунки впливу відносного вкладу  $R_D$  у повну ІВЗ від концентрації  $c$  (рис.3а) і розмірів  $R_0$  (рис.3б) кулонівських центрів для фіксованих довжин хвиль. Із аналізу цих залежностей випливає, що ІВЗ структурного рефлексу 400 більш чутлива до дефектів, ніж КЗР 200. Зміна когерентної складової ІВЗ враховувалась величиною статичного фактора  $L_h$ , який згідно з [14, 33] такий:

$$\begin{aligned} L_h &= (cm\eta^2)/2, \text{ при } \eta^2 \leq 10, \\ L_h &= cm\eta^{3/2}, \text{ при } \eta^2 \geq 10, \end{aligned} \quad (23)$$

де  $\eta = \Gamma|\varepsilon|R_0h$ . Прагнення до одиниці залежності  $R_{iD}/R_i = f(R_0)$  при великих розмірах дефектів ( $R_0 \geq 2$  мкм) для рефлексу 400 викликано тим, що величина статичного фактора у цьому випадку наближається до одиниці. Для КЗР 200 це відбувається при більших значеннях розмірів дефектів.

Екстинкційні ефекти враховувались параметром  $\mu_{ds}(\Delta\theta)$ , що визначається за співвідношенням (19). Незначний внесок  $R_{iD}$  у повну ІВЗ для КЗР 200 дає підстави вважати, що структурні дефекти не дають значного впливу на положення мінімумів енергетичних залежностей  $R_i(\lambda)$  у кристалах з різним ступенем відхилення від стехіометрії (рис.4). Походження даних мінімумів детально описано у роботах [11,26]. Енергетичні залежності відносного вкладу  $R_{iD}$  у  $R_i$  для рефлексів 400 і 200 показані на рис.5. Поведінка цих функцій свідчить, що внесок дифузної компоненти в ІВЗ для рефлекса 200 значно менший, ніж для 400 в усьому досліджуваному інтервалі довжин

хвиль. Оцінки впливу такого внеску на положення мінімумів  $R_i(\lambda)$  показує, що ним можна знехтувати при визначенні відхилення від стехіометрії на рівні  $\sim 10^{-5}$ .

Проведені розрахунки показують, що використання динамічного наближення для опису поведінки ІВЗ для КЗР 200 у кристалах з дефектами має реальне підґрунття. Взагалі кажучи, це наближення можна використати, коли динамічний параметр  $A = \pi t/\Lambda$  – достатньо великий. Згідно з [34,35], для досягнення граничного значення достатньо, щоб  $A \geq 3$ . У нашому випадку для КЗР 200 його величина змінюється у межах  $2 \div 5$ , тобто  $t \geq \Lambda$ . Дифузна компонента ІВЗ формується у даному випадку всією глибиною проникнення РП, а її інтенсивність пропорційна  $t/\Lambda$ . Тому, очевидно, що її внесок у ІВЗ для випадку сильного поглинання і слабких інтерференцій – незначний. Це свідчить на користь того, що дефекти структури приводять до зменшення когерентної складової, яке не може бути компенсовано внеском в ІВЗ  $R_{iD}$ . Тому значення  $R_i$  у реальному кристалі можуть мати значення ІВЗ менше, ніж в ідеальному кристалі. Сказане вище підтверджується поведінкою експериментальних енергетичних залежностей ІВЗ для рефлексів 200 і 400 у зразках GaAs з різним ступенем структурної досконалості (рис.6). Там же наведені залежності для ідеального кристала, а також підгоночні розрахункові залежності для реальних зразків. Як випливає з рис.6, експериментальні графіки добре узгоджуються з підгоночними як для КЗР 200, так і дозволеного рефлексу 400. Визначення параметра нестехіометрії з енергетичних залежностей для КЗР 200 здійснювалось при використанні значень параметрів дефектів  $c$  і  $R_0$ , одержаних

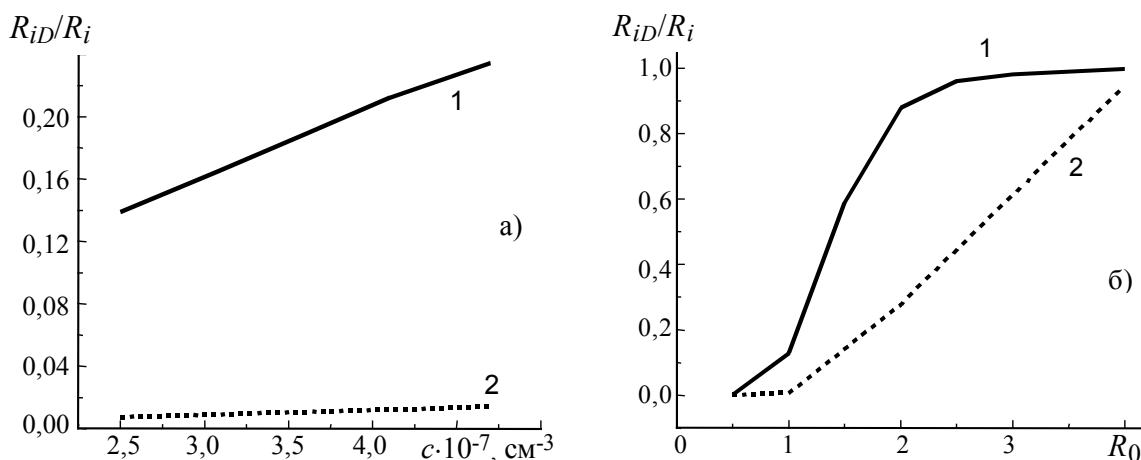


Рис.3. Залежність відносного вкладу дифузної складової у повну ІВЗ від концентрації ( $R_0=1$ мкм) (а) і розмірів кластерів ( $c=2,5 \cdot 10^8 \text{см}^{-3}$ ) (б) для кристала GaAs. Рефлекси: 400 (крива 1), 200 (крива 2).

Таблиця 1. Характеристики дефектів і параметри нестехіометрії для зразків GaAs. Номери кристалів відповідають позначенням рис.6.

Номер зразка	400			200			$\Delta=c_{\text{Ga}}-c_{\text{As}}$
	$L$	$R_0$ , мкм	$c_0 \cdot 10^{-8}$ , $\text{см}^{-3}$	$L$	$R_0$ , мкм	$c_0 \cdot 10^{-9}$ , $\text{см}^{-3}$	
3	0,029(3)	0,20(2)	3000(30)	0,005(1)	0,31(5)	280(80)	-0,0003
2	0,22(5)	0,57(5)	200(10)	0,075(5)	0,7(1)	29(3)	-0,0037
4	0,14(3)	1,0(1)	5(1)	0,035(3)	4,0(3)	6(1)	+0,0012

Фактор  $R=100[\Phi^2 / \sum_{i=1}^N (R_i^{\text{exp}} / \sigma_i^{\text{exp}})^2]$ , де  $\Phi^2 = \sum_{i=1}^N [(R_i^{\text{exp}} - R_{i0}) / \sigma_i^{\text{exp}}]^2$ , – у межах від 2,8% (зразок 3) до 13% (зразок 4).

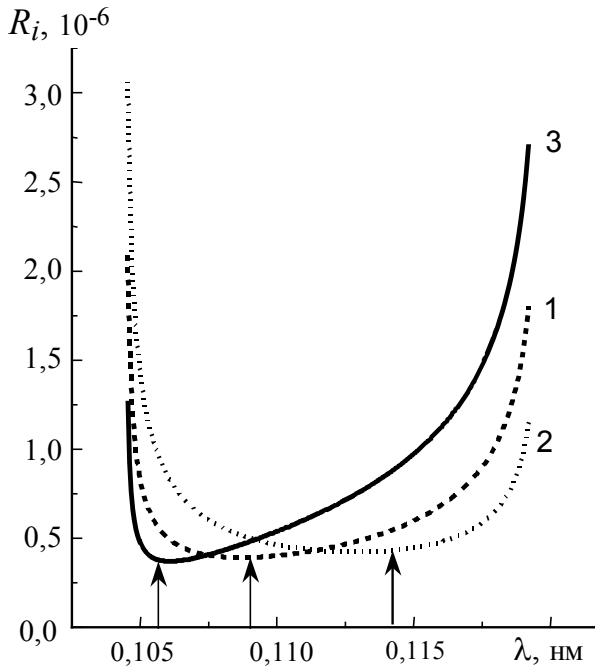


Рис.4. Енергетичні залежності когерентної компоненти ІВЗ для КЗР 200 GaAs, розраховані для кристалів: стехіометричного складу (1), з надлишком Ga ( $c_{\text{Ga}}-c_{\text{As}}=+0,05$ ) (2), з надлишком As ( $c_{\text{Ga}}-c_{\text{As}}=-0,05$ ) (3).

при підгонці теоретичних кривих для рефлекса 400, більш чутливого до дефектів структури. Ці дані, а також одержані при підгонці значення статичних факторів  $L_h$  і параметрів дефектів для структурного 400 і квазізабореного 200 рефлексів, приведені у таблиці 1. Відмітимо, що результати визначення параметрів нестехіометрії кристалів GaAs даним способом добре корелюють з одержаними раніше методом маятникових осциляцій інтенсивності КЗР [36]. Значення параметрів дефектів, одержані даним способом підгонки теоретичних залежностей  $R_i(\lambda)$ , також добре корелюють з результатами, які отримані методом аналізу двокристалівних кривих відбивання ( $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -випромінювання, рефлекс 400).

На завершення розглянемо характер поведінки енергетичної залежності  $R_i(\lambda)$  для зразка з механічно порушеною (шліфованою) поверхнею (залежність 5 на рис.6а). Крива відбивання

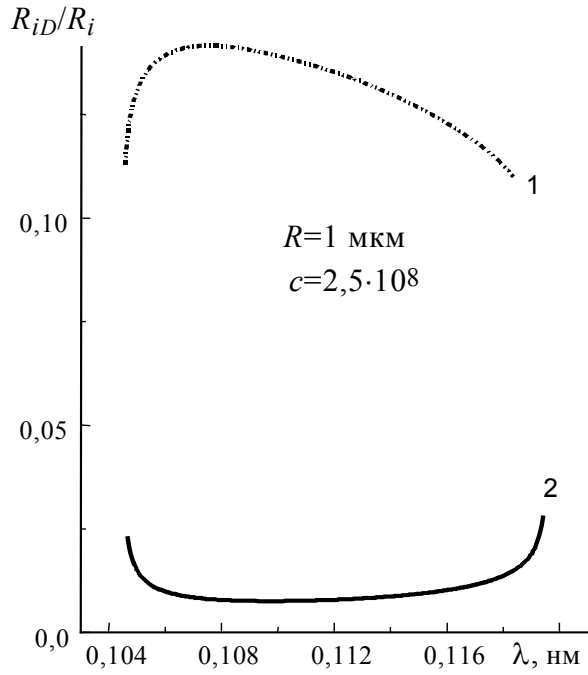


Рис.5. Енергетичні залежності відносного внеску  $R_{iD}$  в ІВЗ для рефлексів 400 (1) і 200 (2) у GaAs ( $c=2,5 \cdot 10^8 \text{ см}^{-3}$ ,  $R_0=1 \text{ мкм}$ ).

від порушеного шару (ПШ) має широкий кутовий розподіл і при даному спектральному вікні приладу не все розсіяне випромінювання попадає у детектор. Крім того ПШ призводить до сильного пригнічення когерентної складової від неспотвореної частини кристала. Хід цієї залежності описується кінематичним наближенням з врахуванням товщини ПШ і поглинання у ньому інтенсивності падаючого на кристал пучка РП. Відзначимо, що небезпека неповного врахування  $R_{iD}$  існує і для зразків, що містять малі дефекти з широким кутовим розподілом інтенсивності дифузного розсіяння, інтегральний внесок якого в ІВЗ може бути визначальним. Однак, як показано вище, це не може впливати на параметр нестехіометрії, визначений за положенням мінімумів енергетичних залежностей. Збільшення ж величини спектрального вікна, що призводить до більш повного врахування ДР, небажане, з огляду

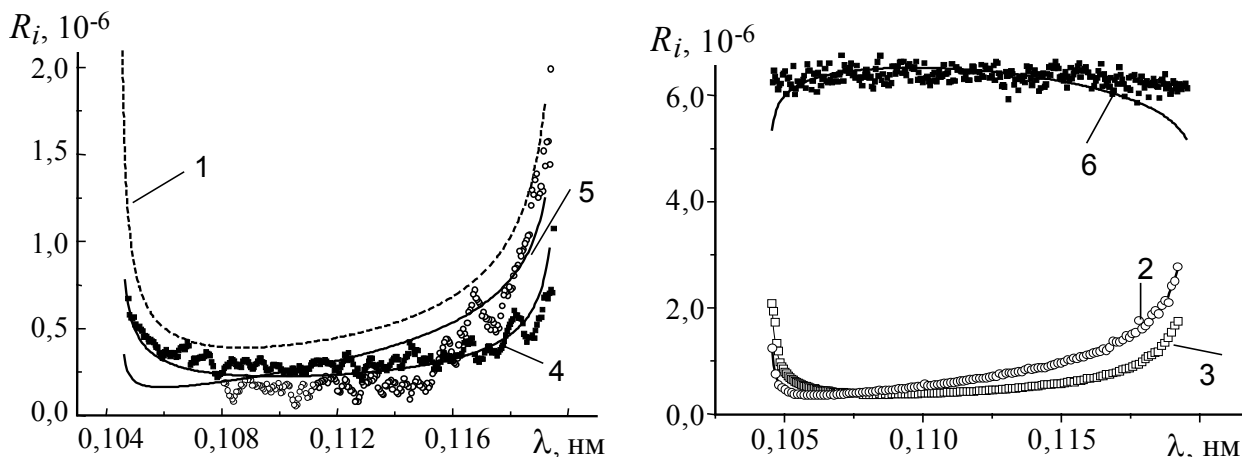


Рис.6. Експериментальні енергетичні залежності  $R_i=f(\lambda)$  для кристалів GaAs: розрахункова для ідеального стехіометричного кристала (1), експериментальні залежності для кристалів GaAs (2-4), зразок з механічно пошкодженою поверхнею (5). Відбивання 200 (1-5), відбивання 400 (6).

на погіршення визначення енергетичного положення мінімуму ІВЗ. Тому необхідний оптимальний вибір ширини щілин коліматора для задоволення обох вимог, що потребує спеціального дослідження.

### Висновки

Отримані вирази для дифузної і когерентної складових диференційної і ІВЗ при дифракції по Брегу в кристалах з кулонівськими центрами в умовах сильного поглинання і впливу аномальної дисперсії. Теоретично проаналізовано поведінку інтерференційного коефіцієнта поглинання для рефлексів 200 і 400, а також умови і характер дифракції РП у залежності від параметрів дефектів і вектора дифракції в кристалах GaAs. Встановлена слабка чутливість дифузного розсіяння до дефектів структури для КЗР. При цьому показано, що формули динамічної теорії брегівської дифракції для реального кристала справедливі і у випадку сильного поглинання при виконанні умов  $|\chi_{ih}| \gg |\chi_{rh}|$ , включаючи випадок  $|\chi_{rh}| = 0$ . Експериментальна реалізація даної умови в області довжин хвиль поблизу  $K$ -країв поглинання дозволила при поєднанні вимірювань для рефлексів 400 і 200 визначити параметри нестехіометричності кристалів GaAs.

### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Барьяхтар В.Г., Гуреев А.Н., Кочелаб В.В., Молодкін В.Б., Олиховський С.И., Осинівський М.Е. Полное интегральное брегг-отражение рентгеновских лучей и определение структурного совершенства реальных монокристаллов // *Металлофизика*. - 1989. - **11**, №3. - С.73-81.
2. Гаврилова Е.Н., Кисловський Е.Н., Молодкін В.Б., Олиховський С.И. Брегг-дифракция рентгеновских

лучей в реальных поглощающих монокристаллах конечной толщины. 1. Когерентная составляющая интегральной отражательной способности // *Металлофизика*. - 1992. - **14**, №3. - С.70-76.

3. Барьяхтар В.Г., Гаврилова Е.Н., Молодкін В.Б., Олиховський С.И. Брегг-дифракция рентгеновских лучей в реальных поглощающих монокристаллах конечной толщины. 2. Диффузная составляющая интегральной отражательной способности и коэффициенты эффективного поглощения // *Металлофизика*. - 1992. - **14**, №11. - С.68-79.
4. Барьяхтар В.Г., Немошкаленко В.В., Молодкін В.Б., Олиховський С.И., Гаврилова Е.Н., Кисловський Е.Н., Кочелаб В.В., Низкова А.И. Брегг-дифракция в реальных поглощающих монокристаллах конечной толщины. III. Полная интегральная отражательная способность // *Металлофизика*. - 1993. - **15**, №12. - С.18-26.
5. Немошкаленко В.В., Молодкін В.Б., Кисловський Е.Н., Козут М.А., Низкова А.И., Гаврилова Е.Н., Олиховський С.И. Брегг-дифракция рентгеновских лучей в реальных поглощающих кристаллах конечной толщины. IV. Экспериментальные исследования энергетических и азимутальных зависимостей отражательной способности // *Металлофизика и новейшие технологии*. - 1994. - **16**, №2. - С.48-51.
6. Молодкін В.Б., Немошкаленко В.В., Низкова А.И., Олиховський С.И., Первак Е.В. Интегральная рентгеновская дифрактометрия несовершенных монокристаллов при совместном использовании геометрий дифракции по Лауэ и Бреггу, а также жесткого и мягкого рентгеновских излучений. - Киев, 1998. - (Препр. / UNSC 1).
7. Молодкін В.Б., Олиховський С.И., Кисловський Е.Н., Кривицкий В.П., Лось А.В., Первак Е.В., Айс Дж.Е., Ларсон Б.К. Интерпретация кривых отражения монокристаллов с микродефектами в случае динамической дифракции рентгеновских лучей по Бреггу // *Металлофизика и новейшие технологии*. - 1997. - **19**, №12. - С.25-34.
8. Fukamachi T., Hosoya S., Okunuki M. X-ray inten-



- intensity measurements on large crystals by energy-dispersive diffractometry. I. Energy dependencies of diffraction intensities near the absorption edge // *Acta Cryst.* - 1976. - **32**, No.1. - P.104-109.
9. *Fukamachi T., Hosoya S., Okunuki M.* X-ray intensity measurements on large crystals by energy-dispersive diffractometry. II. Energy dependences of the Friedel pair intensities and their ratio near the absorption edge // *Acta Cryst.(A)*. - 1976. - **32**, No.2. - P.245-249.
  10. *Fukamachi T., Hosoya S., Kawamura T., Okunuki M.* X-ray intensity measurements on large crystals by energy-dispersive diffractometry. III. Fine structures of integrated intensities and anomalous scattering factor near the K absorption edges in GaAs // *Acta Cryst.(A)* - 1977. - **33**, No.2. - P.54-58.
  11. *Mücklich F., Oettel H.* Measurement of harmonic reflections - An X-ray method for real structure analysis of semiconducting compounds // *Phys. Stat. Sol.(A)*. - 1992. - **129**. - P.323-335.
  12. *Cockerton G., Green G.S., Tanner B.K.* Double crystal synchrotron X-ray diffraction study of stoichiometry in gallium arsenide // *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* - 1989. - **138**. - P.65-71.
  13. *Fukamachi T., Negishi R.* The dispersion surface of X-ray very near the absorption edge // *Acta Cryst.(A)*. - 1995. - **51**, No.2. - P.253-258.
  14. *Кривоглаз М.А.* Дифракция рентгеновских лучей и тепловых нейтронов в неидеальных кристаллах. - Киев: Наукова думка, 1983.
  15. *Кладько В.П.* Дифракция рентгеновских лучей с различными длинами волн для квазизапрещенных отражений и контроль нестехиометричности в бинарных монокристаллах // *Металлофизика и нов.технологии*. - 1998. - **20**,№1. - С.3-8.
  16. *Fukamachi T., Negishi R., Yoshizawa M., Ehara K., Kawamura T., Nakajima T., Zhao Z.* X-ray dynamical diffraction in Ge with a zero-real-part scattering factor // *Acta Cryst.(A)*. - 1993. - **49**. - P.573-575.
  17. *Fukamachi T., Kawamura T.* X-ray diffraction when the real part of the scattering factor is zero // *Acta Cryst.(A)*. - 1993. - **49**. - P.384-388.
  18. *Nemoshkalenko V.V., Molodkin V.B., Olikhovskii S.I., Kislovskii E.N., Krivitsky V.P., Len E.G., Pervak E.V., Ice G.E., Larson B.C.* Dynamical interpretation of total rocking curve in the Bragg case of X-ray diffraction by single crystals with microdefects. - Киев, 1998. - (Препр. / UNSC 2).
  19. *Молодкин В.Б., Тихонова Е.А.* Влияние диффузного рассеяния на эффект Бормана // *ФММ*. - 1967. - **24**,№3. - С.385-394.
  20. *Пинскер З.Г.* Рентгеновская кристаллооптика. - М.: Наука, 1982.
  21. *Молодкин В.Б.* Динамическая теория диффузного рассеяния в кристаллах с хаотически распределенными дефектами // *Металлофизика*. - 1981. - **3**, №4. - С.27-38.
  22. *Костюк А.Н., Молодкин В.Б., Олиховский С.И.* Динамическая теория дифракции рентгеновских лучей в упруго изогнутых кристаллах с микродефектами // - Киев, 1991. - (Препр. / , Институт теор.физики АН Украины: ИТФ-91-60Р).
  23. *Molodkin V.B., Olikhovskii S.I., Kostyuk A.N.* // *Phys.Stat.Sol.(B)*. - 1994. - **183**. - P.59-61.
  24. *Afanas'ev A.M., Kagan Yu.* The role of lattice vibrations in dynamical theory of X-rays // *Acta Cryst.(A)*. - 1967. - **24**. - P.163-170.
  25. *Даценко Л.И., Молодкин В.Б., Осинковский М.Е.* Динамическое рассеяние рентгеновских лучей реальными кристаллами. - Киев: Наукова думка, 1988.
  26. *Кладько В.П., Даценко Л.И., Мачулін В.Ф.* Вплив дефектів структури в GaAs на характер лауедифракції рентгенівських променів з довжинами хвиль, близькими до К-країв поглинання атомів підграток // *УФЖ*. - 1999. - **44**,№9. - С.1148-1154.
  27. *Бругрен Е., Ефимов О., Персон Э.* Определение эффективной величины "спектрального окна" рентгеновского кристалл-спектрометра // *ФТТ*. - 1968. - **10**,№9. - С.2716-2723.
  28. *Xu Z.C., Guo C.L., Zhao Z.Y., Fukamachi T., Negishi R.* The fluorescence emission from GaAs in the Laue case near the absorption edge // *J.Alloys and Compounds*. - 1999. - **286**, No.1-2. - P.265-270.
  29. *Fukamachi T., Hosoya S., Kawamura T., Okunuko M.* X-ray intensity measurements on large crystals by energy - dispersive diffractometry. - Tokyo, 1976. - (Preprint / . The institute for Sol. Stat. Phys. The University of Tokyo: No.760).
  30. *Cromer D.T.* Anomalous dispersion corrections computed from self-consistent field relativistic Dirac-Slater wave function // *Acta Cryst.*- 1965. - **18**. - P.17-23.
  31. *Марков А.В., Мильвидский М.Г., Шифрин С.С.* Влияние дислокаций на однородность монокристаллов арсенида галлия, выращенных из расплава // *Кристаллография*. - 1985. - **30**,№2. - С.404-406.
  32. *Larson B.C., Young F.W.* A comparison of diffuse scattering by defects measured in anomalous transmission and near Bragg reflections // *Z.Naturforsch. (A)*. - 1973. - **28**. - S.626-632.
  33. *Larson B.C.* X-ray Studies of defect Clusters in Copper // *J.Appl.Cryst.* - 1975. - **8**, No.2. - P.150-160.
  34. *De Marco J.J., Weiss R.J.* The integrated intensities of perfect crystals // *J.Appl.Phys.* - 1962. - **33**, No.9. - P.2907-2908.
  35. *Klad'ko V.P., Grigoriev D.O., Datsenko L.I., Machulin V.F., Prokopenko I.V.* Influence of absorption level on mechanism of bragg-diffracted X-ray beam formation in real silicon crystals // *Semicond. Phys., Quantum Electr. and Optoelectr.* - 1999. - **2**, No.1. - P.146-151.
  36. *Даценко Л.И., Кладько В.П., Мельник В.М., Мачулін В.Ф.* Особенности толщинных осцилляций интенсивности при рассеянии рентгеновских лучей вблизи К-края поглощения галлия для квазизапрещенных отражений // *Металлофизика и новейшие технологии*. - 1999. - **21**,№8. - С.46-54.