

УДК 548.4:548.731

КЛАДЬКО В. П., КРЫШТАБ Т. Г., ДАЦЕНКО Л. И.

## ОСОБЕННОСТИ РАССЕЯНИЯ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ ДЛЯ СВЕРХСТРУКТУРНЫХ ОТРАЖЕНИЙ ВБЛИЗИ К-КРАЕВ ПОГЛОЩЕНИЯ КОМПОНЕНТОВ БИНАРНЫХ СОЕДИНЕНИЙ НА ПРИМЕРЕ КРИСТАЛЛА $\text{InSb}$

Экспериментально исследовано динамическое рассеяние лауэ-дифрагированных рентгеновских лучей для сверхструктурных (квазизапрещенных) отражений с помощью однокристалльного спектрометра при использовании длин волн вблизи  $K$ -края поглощения компонентов в кристаллах антимионида индия в области малых и промежуточных уровней поглощения. Показано, что толщинные зависимости интегральных интенсивностей и их скачков являются чувствительными к отклонению от стехиометрии в кристаллах.

Изучению особенностей рассеяния рентгеновских лучей (РЛ) в случае лауэ-дифракции с длинами волн, близкими к  $K$ -краям поглощения  $\lambda_K$  компонентов, для структурных рефлексов в области тонкого кристалла  $\text{CdTe}$  ( $\mu t < 1$ , где  $\mu$  — нормальный коэффициент фотоэлектрического поглощения,  $t$  — толщина кристалла) посвящены наши предыдущие работы [1, 2].

Для сверхструктурных (квазизапрещенных) отражений в бинарных кристаллах закономерности рассеяния не изучены как для  $\mu t < 1$ , так и в области промежуточных уровней поглощения. Однако, как следует из результатов теоретических работ [3, 4], полученных в приближении толстого кристалла для таких отражений, можно ожидать ряд особенностей в закономерностях изменений интегральных интенсивностей (ИИ) дифракционных пучков, связанных с неоднородностью химического состава бинарных монокристаллов. Проведенные в последнее время исследования особенностей поведения ИИ для сверхструктурных отражений в геометрии Брэгга [5] иллюстрируют, в частности, их высокую чувствительность к отклонению от стехиометрии.

В этой связи цель настоящей работы — изучение толщинных зависимостей ИИ дифрагированных пучков РЛ и их скачков  $S$  вблизи  $K$ -краев  $\lambda_K$  поглощения компонентов бинарных соединений для сверхструктурных отражений в области малых и промежуточных уровней поглощения и выяснение возможности контроля отклонения от стехиометрии кристаллов.

### Теоретическая часть

Выражение для интегральной отражательной способности (ИОС) при симметричной лауэ-дифракции, согласно [6], можно представить в виде

$$R_i = \frac{c\pi |\chi_h \chi_{\bar{h}}|^{1/2}}{2 \sin \theta} \exp(-\mu t) \sqrt{1 + \kappa^2} \left\{ \int_0^{2A} J_0(x) dx + \sum_{r=1}^{\infty} \frac{1}{r! r!} \left(\frac{h}{2}\right)^{2r} g_{2r+1}(2A) \right\}, \quad (1)$$

где  $\kappa = |\chi_{h\bar{h}}| / |\chi_{rh}|$ ,  $h = \mu t \epsilon / \gamma$ ,  $\gamma = \cos \theta$ ,  $\theta$  — угол Брэгга,  $t = t_0 / \cos \theta$  — эффективная толщина кристалла,  $c$  — фактор поляризации,  $A = \pi c t / \Lambda$ ,  $\Lambda = \lambda \cos \theta / \sqrt{|\chi_h \chi_{\bar{h}}|}$  — экстинкционная длина,  $J_0(x)$  — функция Бесселя вещественного аргумента,  $\chi_h$  — коэффициент фурье-поляризуемости среды. Численные

значения функции  $g_m(2A)$  в широком интервале значений  $2A$  или  $t$  оказываются близкими к единице для значений  $2A < 3$ .

В случае centrosимметричных отражений  $|\chi_h \chi_{\bar{h}}|^{1/2} = (\sqrt{\Phi_h^2 + \psi_h^2})^{1/2} = |\chi_{rh}| \sqrt{1 + \kappa^2}$ , где  $\Phi_h = |\chi_{rh}|^2 - |\chi_{ih}|^2$ ,  $\psi_h = 2|\chi_{rh}||\chi_{ih}|$ , и, следовательно, (1) можно записать

$$R_i = \frac{c\pi |\chi_{rh}|}{2 \sin 2\theta} \exp(-\mu t) (1 + \kappa^2) \left\{ \int_0^{2A} J_0(x) dx + \sum_{r=1}^{\infty} \frac{1}{r! r!} \left(\frac{h}{2}\right)^{2r} g_{2r+1}(2A) \right\}. \quad (2)$$

Эффективный структурный фактор для сверхструктурных отражений типа  $h+k+l=4n+2$  ( $n=0, \pm 1, \pm 2, \pm \dots$ ), как известно, имеет следующий вид:

$$F_h' = 4 \{ (f_0 + f' + if'')_{\alpha} c_{\alpha} e^{-M_{\alpha}} - (f_0 + f' + if'')_{\beta} c_{\beta} e^{-M_{\beta}} \}, \quad (3)$$

где  $M_{\alpha}$  и  $M_{\beta}$  — температурные факторы Дебая — Валлера для подрешеток с атомами сорта  $\alpha$  и  $\beta$ ;  $f'$  и  $f''$  — соответственно действительная и мнимая дисперсионные поправки к функции атомного рассеяния;  $c_j$  — эффективная атомная концентрация  $j$ -го компонента. В случае идеального кристалла в формуле (3)  $c_{\alpha} = c_{\beta} = 1$ . В кристаллах, решетка которых состоит из атомов с близкими порядковыми номерами, для длин волн, симметрично расположенных относительно  $K$ -краев поглощения компонентов, мнимая часть структурного фактора  $4(f_{\alpha}'' - f_{\beta}'')$  может оказаться соизмеримой с действительной частью  $4\{(f_0 + f')_{\alpha} - (f_0 + f')_{\beta}\}$ , и ею, следовательно, пренебрегать нельзя. Кроме того, мнимые части  $F_h'$  оказываются существенно различными в коротко- и длинноволновой областях  $K$ -края поглощения.

Используя (2) с учетом того обстоятельства, что ряд параметров вблизи  $K$ -края поглощения мало ( $\sim 3-6\%$ ) отличается для длин волн  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  ( $\theta_1 \approx \theta_2$ ,  $c_1 \approx c_2$ ,  $\chi_{rh_1} \approx \chi_{rh_2}$ ) запишем выражение для  $\ln S$  (здесь и далее индексами 1 и 2 будем обозначать величины, относящиеся соответственно к коротко- и длинноволновым областям  $K$ -края поглощения)

$$\ln S = (\mu_1 - \mu_2)t + \ln[(1 + \kappa_2^2)/(1 + \kappa_1^2)] + \ln(w_2/w_1), \quad (4)$$

$$\text{где } w_i = \left\{ \int_0^{2A} J_0(x) dx + \sum_{r=1}^{\infty} \frac{1}{r! r!} \left(\frac{h}{2}\right)^{2r} g_{2r+1}(2A) \right\}_i.$$

Из анализа (4) следует, что  $\ln S$  для сверхструктурных отражений отличается от аналогичного выражения [1] для структурных рефлексов на величину  $\Delta B = \ln[(1 + \kappa_2^2)/(1 + \kappa_1^2)]$ , которая оказывается чувствительной к изменению эффективной концентрации компонент, а также на величину  $\ln(w_2/w_1)$ , значение которой по приближенным оценкам равно нулю.

### Методика эксперимента

В работе использовался непрерывный спектр излучения рентгеновской трубки с молибденовым анодом при режиме работы 43 кВ, 20 мА, что исключало появление гармоник  $\lambda/2$  для длин волн вблизи  $\lambda_K \ln$ . Измерения ИИ проводились на однокристалльном спектрометре в положении симметричной 400 и 200 лауэ-дифракции. Ширина спектрального окна в среднем была равна  $\sim 0,015 \text{ \AA}$ , что при дифракции вблизи  $K$ -краев компонент намного превышает полуширины кривых дифракционного отражения для всех исследуемых образцов.

Исследовали бездислокационные по данным топографии образцы  $\text{InSb}$  в толщинном интервале 100–200 мкм. Изменение толщины образца осуществлялось методом наклона его вокруг оси, параллельной вектору

**Значения дисперсионных поправок к функциям атомного рассеяния  
и среднеквадратичных смещений для атомов индия и сурьмы**

К-край	$\lambda, \text{Å}$	$f'$		$f''$		$\langle u_s^2 \rangle, \text{Å}^2$
		In	Sb	In	Sb	
In	0,452	-3,7056	-2,3379	0,5746	0,5726	$1,72 \cdot 10^{-2}$
	0,437	-3,4093	-2,7463	3,2047	0,5633	
Sb	0,415	-2,1354	-3,6708	2,9942	0,5413	$1,44 \cdot 10^{-2}$
	0,400	-1,4645	-3,3203	2,7771	3,1795	

от расчетной  $I$  отсутствием максимума в этом интервале изменения параметра  $A$ , хотя значения ИИ, отвечающие экспериментальному интервалу толщин, находятся в пределах  $0,63 < A < 1,25$ . Отличие поведения экспериментальных зависимостей по сравнению с кривой  $I$  может быть связано с варьированием величины используемых дисперсионных поправок, незначительное изменение которых приводит к существенному изменению параметра  $\lambda$ , а следовательно, и  $A$ . Представленные экспериментальные зависимости ИИ отвечают областям  $a$  и  $b$  исследуемого образца на рис. 2.

Что касается толщинных зависимостей ИИ для структурных отражений 400 и 220, измеренных в различных точках образца соответственно с помощью однокристалльного и двукристалльного спектрометров, то они совпадают с расчетными для идеального кристалла с точностью  $\sim 3\%$ , что свидетельствует о высоком структурном совершенстве кристаллов. Анализ рентгеновских топограмм, полученных от данных образцов, показал наличие мелких выделений (черно-белые точки) в отдельных участках, которые, однако, не оказывали заметного влияния на ИИ структурных 400 и 220 отражений. В то же время указанный выше сдвиг зависимостей  $\ln R_i = f(t)$  для отражения 200 вдоль оси ординат по отношению к расчетной по всей вероятности связан с отклонением от стехиометрического состава в области  $b$  (рис. 2) в бездислокационном антимо-ниде индия.

На рис. 3 приведены экспериментальные толщиновые зависимости  $\ln S$  для кристаллов InSb при использовании отражений 400 и 200. Как следует из рисунка, для структурного отражения 400 толщиновые зависимости аналогичны полученным ранее в [1], и для различных участков образца совпадают между собой. В то же время для сверхструктурного отражения 200 графики  $\ln S = f(t)$  сдвинуты по оси ординат относительно аналогичных для 400 (зависимости 2, 3 отвечают разным областям кристалла). Изменение значений  $\ln S$  для рефлекса 200 по отношению к структурному отражению 400 в разных точках образца при  $t = \text{const}$  можно, по-видимому, объяснить влиянием отклонения от стехиометрии, поскольку величина  $\Delta B$ , как упоминалось выше, чувствительна к изменению состава кристалла. Тот факт, что экспериментальные значения  $\ln S$  для отражения 200 укладываются на прямую линию, параллельную зависимости для 400, может означать, что третий член в формуле (4) имеет малую величину. Величина отклонения от стехиометрии, полученная в работе для исследуемых кристаллов InSb, составляет  $c_{\text{Sb}} - c_{\text{In}} = 0,0027$ .

### Выводы

Анализ экспериментальных данных о характере рассеяния РЛ для сверхструктурных отражений в бездислокационном кристалле InSb показал следующее.

1. В исследуемом интервале толщин 100–200 мкм поведение ИИ для отражений типа  $h+k+l=4n+2$  описывается в рамках динамической теории при значении параметра  $A > 1$ , несмотря на то, что величины расчетного параметра  $0,63 < A < 1,25$ . Кажущееся противоречие может быть объяснено тем обстоятельством, что значения дисперсионных поправок

в настоящее время не известны, в то время как незначительное изменение их величины приводит к варьированию параметра  $A$  в широких пределах.

2. Значения  $\ln S$ , полученные для этих отражений, в различных участках бездислокационного образца при  $t = \text{const}$ , смещаются по оси ординат по отношению к аналогичным для структурных отражений, что, вероятно, связано с локальным нарушением стехиометрического состава.

3. Проведенные оценки показывают, что изменение эффективной концентрации  $c_\alpha - c_\beta \sim 10^{-2}$  может приводить к изменению  $\Delta B$  не менее чем на 20%. Следовательно, при точности измерения этого параметра 6% использование  $\ln S$  позволяет определять с высокой точностью  $c_\alpha - c_\beta = 3 \cdot 10^{-3}$  отклонение от стехиометрии для бинарных соединений с близкими атомными весами компонентов.

Авторы выражают глубокую признательность Ф. Н. Чуховскому, В. Б. Молодкину за обсуждение результатов работы.

#### Литература

1. Даценко Л. И., Кладько В. П., Кисловский Е. Н., Хрупа В. И. // Кристаллография. 1984. Т. 29. № 6. С. 1066.
2. Кладько В. П., Гуреев А. Н., Даценко Л. И. и др. // Кристаллография. 1987. Т. 32. № 5. С. 1202.
3. Гудзенко Г. И., Молодкин В. Б. Динамическая теория рассеяния в твердых растворах: Препринт № 75.4. Киев: ИМФ АН УССР, 1975. 28 с.
4. Гудзенко Г. И., Молодкин В. Б. Маятниковые решения в упорядочивающих сплавах: Препринт № 75.6. Киев: ИМФ АН УССР, 1975. 11 с.
5. Fujimoto J. // Phys. Rev. Lett. 1978. V. 48. № 9. P. 941.
6. Пинскер З. Г. Рентгеновская кристаллооптика. М.: Наука, 1982. 389 с.
7. Воронков С. И., Пискунов Д. И., Чуховский Ф. Н., Максимов С. К. // ЖЭТФ. 1987. Т. 92. № 3. С. 1099.
8. Джеймс Р. Оптические принципы дифракции рентгеновских лучей. М.: Изд-во Иностран. лит., 1950. 572 с.
9. Молодкин В. Б., Кладько В. П., Гуреев А. Н. и др. // Металлофизика. 1984. V. 6. № 5. С. 103.
10. De Marco J. J., Weis R. J. // Acta cryst. 1965. V. 19. № 1. P. 68.

Институт полупроводников  
АН УССР

Поступила в редакцию  
28.V.1987  
С доработки  
12.II.1988