

ДИФРАКЦИЯ И РАССЕЯНИЕ ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ

УДК 548.73

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ РЕНТГЕНОВСКОЙ СЕКЦИОННОЙ ТОПОГРАФИИ ГАЗОВЫХ ПОР В КРИСТАЛЛЕ КАРБИДА КРЕМНИЯ

© 2024 г. В. Г. Кош^{1,*}

¹Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, Россия

*E-mail: kohnvict@yandex.ru

Поступила в редакцию 28.05.2024 г.

После доработки 01.07.2024 г.

Принята к публикации 01.07.2024 г.

Впервые представлены результаты компьютерного моделирования изображений газовых пор в кристалле карбида кремния на секционных топограммах, т.е. при дифракции узкого пучка рентгеновских лучей в кристалле. Для этого использовался специальный модуль универсальной компьютерной программы XRWP, которую разрабатывает автор для расчетов эффектов когерентной рентгеновской оптики. Метод расчета сочетает в себе два ранее известных метода, а именно метод преобразования Фурье (метод Като) и метод решения уравнений Такаги–Топена. Показано, что газовые поры могут создавать самые разнообразные изображения в зависимости от условий эксперимента и положения поры внутри кристалла.

DOI: 10.31857/S0023476124050025, EDN: ZDZJMX

ВВЕДЕНИЕ

Рентгеновская секционная топография дефектов структуры почти совершенных кристаллов — широко известный и эффективный метод исследования структуры кристаллов для микроэлектроники, прежде всего кристалла кремния. Метод был впервые предложен в [1] и состоит в том, что квазимонохроматический пучок рентгеновских лучей с длиной волны λ проходит через узкую щель, установленную перед кристаллом. В лабораторных условиях поперечный размер стандартного источника S относительно большой, а расстояние до источника z_0 , наоборот, относительно малое, если сравнивать его с источниками синхротронного излучения (СИ) третьего поколения. По этой причине длина поперечной когерентности $L_{tc} = \lambda z_0 / 2S$ очень мала и излучение внутри щели не является когерентным.

Однако в результате динамической дифракции на кристаллической решетке узкий пучок рентгеновских лучей распространяется в кристалле внутри треугольника Бормана с углом $2\theta_B$ при вершине, где θ_B — угол Брэгга. Он может быть равен нескольким десяткам градусов. И в случае отраженного пучка этот треугольник заполняется симметрично. Соответственно, основание треугольника Бормана на глубине кристалла t равно $2t \sin \theta_B$ в проекции на направление, перпендикулярное направлению падающего пучка. Оно может быть намного больше ширины щели в случае достаточно

толстого кристалла. Это позволяет увидеть в изображении кристалла интерференционные полосы с большим периодом, которые имеют когерентную природу, при условии, что размер щели много меньше этого периода. В когерентной теории, когда щель находится сразу перед кристаллом, расчет надо проводить для всех точек внутри щели, считая их независимыми источниками, и затем суммировать изображения (интенсивность), соответствующие всем этим точкам. Как раз особенность дифракции, т.е. сильное увеличение размеров отраженного пучка внутри кристалла, и делает такой эксперимент почти когерентным. Если размер щели мал по сравнению с размером пучка на выходе из кристалла, то суммирование по размеру щели почти ничего не меняет в центральной части изображения. В расчетах обычно просто усредняют поперечное распределение интенсивности по размеру щели.

Теоретический расчет изображения кристалла, получаемого методом секционной топографии, впервые был выполнен Като в 1961 г. [2] методом преобразования Фурье волновой функции падающих на кристалл рентгеновских лучей. Размеры входного пучка считались бесконечно малыми. Использовалось известное аналитическое решение задачи для кристалла в форме пластины и падающей на кристалл плоской рентгеновской волны. В следующем году Такаги [3] предложил более универсальную форму теории в виде системы дифференциальных уравнений для волновых функций

двух пучков, которые проще, чем исходные уравнения Максвелла, но учитывают динамические эффекты при дифракции рентгеновских лучей в монокристаллах в полной мере. Решения уравнений он, однако, не представил. Топен в 1964 г. предложил такие же уравнения, а затем впервые применил их для численного расчета дифракции рентгеновских лучей в кристалле с дислокацией [4].

В результате в литературе закрепились уравнения Такаги–Топена (Takagi–Taupin Equations). А метод Като будем называть методом преобразования Фурье (Fourier Transform Method). В последующие годы появились публикации, в которых численными методами исследовались изображения монокристаллов в форме пластины, содержащих различные дефекты структуры, а также в условиях внешних воздействий. Использовались методы численного решения уравнений Такаги–Топена. Обсуждение этих работ, а также ссылки можно найти в обзорах [5–7].

В процессе роста в объеме некоторых монокристаллов образуются газовые поры достаточно больших размеров, т.е. более 10 мкм. Этот парадоксальный на первый взгляд факт весьма типичный и возникает в самых разных областях физики и в других науках. Пустые места (вакансии) собираются в одном месте по законам теории упругости. Так же ведут себя мелкие капли воды на стекле, собираясь в одну большую каплю, и даже люди, собираясь в огромных мегаполисах. Для наблюдения газовых пор в почти совершенных кристаллах используют разные методы, но наиболее эффективным методом, видимо, является метод рентгеновского фазово-контрастного изображения [8].

Вместе с тем стандартный метод секционной топографии вполне применим для наблюдения газовых пор, например, в карбиде кремния или сапфире. Однако таких исследований в литературе немного. Отметим публикации, которые появились недавно [9, 10]. В них утверждается, что главным источником изображений газовых пор на секционных топографиях являются дислокации, которые их окружают, хотя достоверных доказательств такого утверждения не приводится. Более того, нет ни одной публикации, в которой были бы изучены теоретические изображения газовых пор в объеме кристалла даже в отсутствие дислокаций.

Цель настоящей работы состоит в том, чтобы впервые получить решение данной задачи, а именно теоретически вычислить изображения газовых пор в кристалле карбида кремния, где они образуются весьма часто. Поры относительно небольшого размера, т.е. меньше 20 мкм, как правило, имеют сферическую форму. Сложность такого расчета заключается в том, что неоднородность кристаллической решетки имеет место в небольшой области кристалла, а сам кристалл может быть достаточно толстым. Для расчета газовой поры нужно

использовать метод уравнений Такаги–Топена, требующий намного больше времени, чем метод Като, который использует численный метод быстрого преобразования Фурье [11]. По этой причине в работе впервые применен гибридный метод, совмещающий в себе оба метода сразу.

Метод преобразования Фурье позволяет вычислить двухкомпонентную волновую функцию рентгеновских лучей при прохождении совершенного кристалла до глубины непосредственно перед порой. Сама пора искажает волновую функцию в ограниченной области, и это искажение легко вычислить методом уравнений Такаги–Топена. Затем это искажение необходимо внести в волновую функцию, полученную методом преобразования Фурье для совершенного кристалла на глубине непосредственно после поры. После такой корректировки остальную часть кристалла снова легко вычислить методом преобразования Фурье.

Численные расчеты выполнены с помощью модификации универсальной компьютерной программы XRWP [12]. В ней используется модульный принцип волновой оптики. Он состоит в том, что распределение волновой функции в плоскости, перпендикулярной направлению пучка, учитывается на заданной расчетной сетке, и это распределение последовательно пересчитывается при прохождении каждого объекта и каждого расстояния от одного объекта до другого. Имея набор расчетных модулей для всех объектов, включая пустое пространство, можно выполнить численное моделирование любой экспериментальной схемы.

В рассматриваемом случае кристалл разбит на три объекта, а именно, часть кристалла без дефектов до газовой поры, слой кристалла, содержащий пору, и часть кристалла без дефектов после поры. Соответственно, трижды использован метод преобразования Фурье и один раз метод уравнений Такаги–Топена на ограниченной сетке точек. Результаты однозначно показывают, что пора может давать самые разнообразные изображения в зависимости от условий эксперимента.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ И МЕТОД ЕЕ РЕШЕНИЯ

Основные расчетные формулы, которые использует программа XRWP, описаны в [13]. Двухволновая дифракция на атомной решетке в кристалле в форме пластины реализуется в плоскости (x, z) , причем ось z выбираем по нормали к поверхности пластины, а ось x — вдоль ее поверхности. Но для пучков до и после кристалла используем другую систему координат, в которой ось z идет вдоль направления пучка, а ось x — перпендикулярно оси z . Переход от одной системы к другой необходим только для оси x , и он выполняется проектированием. То есть ширина пучка в воздухе уменьшается по сравнению с шириной пучка на

входе в кристалл в результате умножения на множитель $\cos\theta_B$.

При дифракции в кристалле в геометрии Лауэ вместо одного падающего пучка получаем два пучка на выходе из кристалла, направленных в разные стороны. Стандартно программа XRWP “двигается” по траектории одного пучка. В этом случае на входе всегда один пучок, а на выходе надо выбирать один из двух для дальнейшего движения. Так работает любой из указанных выше двух методов в стандартной схеме эксперимента. Однако в методе уравнений Такаги–Топена расчет всегда идет с двумя пучками на входе и на выходе. Программа использует модификацию метода, которая детально описана в [14]. Расчет проводится в системе координат, связанной с кристаллом. В методе преобразования Фурье также предусмотрена возможность работы с двумя пучками на входе и на выходе. Это необходимо для расчета дифракции в кристалле с продолжением, т.е. с постепенным увеличением толщины кристалла. В настоящей работе это использовано. Расчетные формулы для этого метода опубликованы в [15]. Повторять здесь все формулы и рисунки [14, 15] нецелесообразно.

На рис. 1 показаны схема численного эксперимента и особенности расчета. Хотя программа способна делать расчет с точечным источником, иногда все же полезно ставить щель конечной толщины перед кристаллом. Как указано выше, размеры реальной щели в лабораторном эксперименте значительно превосходят длину когерентности, но в расчете можно учитывать меньший размер щели, равный длине когерентности. Иногда это снимает проблемы, возникающие при использовании метода преобразования Фурье. Программа также способна учесть расстояние между щелью и кристаллом.

Кристалл разделяется на три слоя. Волновые функции для двух пучков, проходящего и

отраженного, после первого слоя и после первых двух слоев вычисляются методом преобразования Фурье достаточно быстро и в широкой области засветки кристалла. Затем из волновой функции после первого слоя выделяется часть, которая проходит через пору. Она становится входной волновой функцией для метода уравнений Такаги–Топена. В этом методе расчет идет на двумерной сетке точек с разными шагами по осям x и z , поэтому вычисленные волновые функции на оси x нужно интерполировать на новую сетку. Чтобы программа была универсальной, в кристалле выделена прямоугольная область, которая характеризуется двумя параметрами: шириной w и высотой h . Эта область должна полностью содержать неоднородную часть кристалла, в частности газовую пору.

Для области с такими параметрами размер интервала на выходе, на котором получаем измененные волновые функции, равен $w_2 = w + 2htg\theta_B$. Расчет методом уравнений Такаги–Топена позволяет получить волновую функцию на выходе в этом интервале, т.е. на конце второго слоя, если на входе используется интервал $w_1 = w + 4htg\theta_B$. Такую особенность метода иллюстрирует рис. 2. Реально изменения могут быть в меньшей области, все зависит от формы дефекта. Например, для сечения сферической поры имеем $w = h = D$, где D – диаметр круглого сечения. В этом случае интервалы w_1 и w_2 будут несколько меньше. Это бывает полезно, так как можно сравнить решения, полученные двумя способами, на тех участках, где они должны совпадать. Иногда полезно специально задавать интервал w_1 с запасом, чтобы такие участки были более протяженными.

Расчет дифракции в кристалле для трехмерных объектов проводится как простой набор сечений. Щель однородна вдоль оси y . В кристалле на результат влияет только изменение сечения трехмерного объекта плоскостью (x, z) при изменении

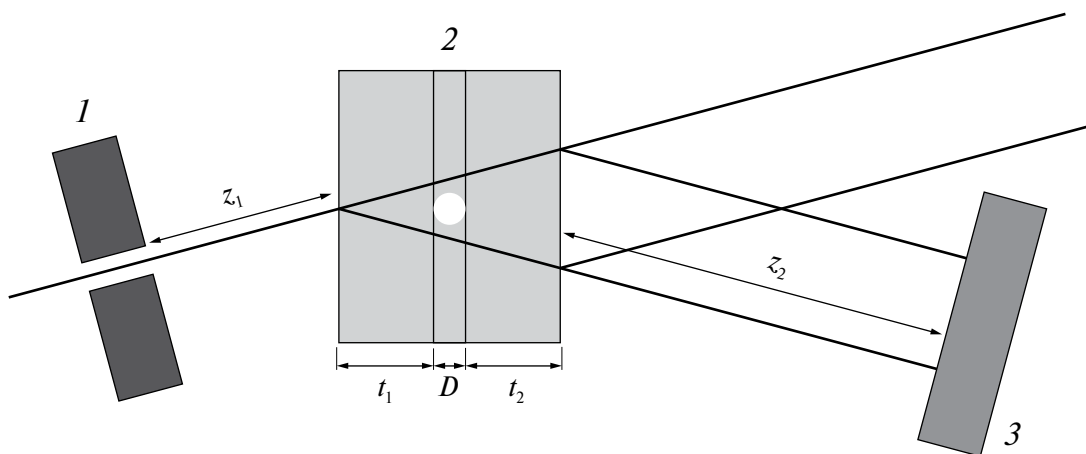


Рис. 1. Схема численного эксперимента и иллюстрация метода расчета: 1 – щель, 2 – кристалл, содержащий газовую пору, 3 – детектор. Кристалл разделен на три слоя: слой перед порой; слой, включающий пору; слой после поры.

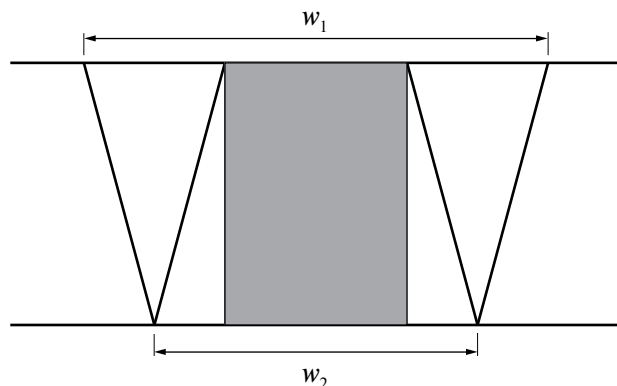


Рис. 2. Слой кристалла, содержащий дефект. Каждая точка на входе является источником возмущений внутри треугольника Бормана с углом $2\theta_B$ при вершине. Соответственно, прямоугольная область искажает волновую функцию пучков на выходе в области w_2 . Для правильного расчета этой области методом уравнений Такаги–Топена необходимо знать волновые функции в области w_1 .

координаты y . Если таких изменений нет, например пора цилиндрическая и ориентирована вдоль поверхности, то ничего не меняется. В случае сферической поры изменения есть. Центр круглого сечения остается на месте, а диаметр D изменяется. Соответственно, меняются толщины t_1 и t_2 для первого и третьего слоев (рис. 1). Изменение волновой функции после кристалла на расстоянии от кристалла до детектора двумерное, если расстояние большое. В экспериментах обычно стараются делать это расстояние как можно меньше. В настоящей работе рассмотрены малые расстояния, когда изменением изображения на этом расстоянии можно пренебречь. В любом случае нужно сначала получить двумерный массив волновых функций на выходной поверхности кристалла и затем вычислить прохождение излучения по воздуху в трехмерном пространстве. Это отдельная задача.

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ И ИХ АНАЛИЗ

Конкретный расчет был выполнен для кристалла карбида кремния (SiC), для энергии фотонов $E = 17.479$ кэВ ($K_{\alpha 1}$ -линия в спектре молибденового анода рентгеновской трубки) и для отражения 220. Параметры дифракции вычисляли по онлайн-программе [16] и равны:

$$\begin{aligned} K\chi_0 &= -0.3872 + 0.001431i, \\ K\chi_h &= -0.19682 + 0.001407i, \theta_B = 13.303^\circ. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь $K = 2\pi/\lambda$ – волновое число. Секционная топограмма совершенного кристалла хорошо известна и описана в учебниках [17, 18]. Интенсивность бесконечно узкого пучка распределяется внутри треугольника Бормана, и при относительно малых толщинах внутри него образуются интерференционные полосы Като, вписанные в этот треугольник.

Волновая функция при заданной толщине кристалла в этом случае является пропагатором кристалла в том смысле, что задача прохождения произвольного излучения через кристалл решается методом расчета свертки волновой функции на входной поверхности и пропагатора кристалла [19].

Известно, что пропагатор кристалла описывается функцией Бесселя от комплексного аргумента, который имеет сложную зависимость от координаты x и толщины кристалла t . При наличии когерентной щели и расстояния между ней и кристаллом функция Бесселя искажается, и точное значение вычисляет программа. При малых размерах щели и малом расстоянии искажения тоже малы. На рис. 3 показано изменение интенсивности излучения с ростом толщины кристалла t для указанных выше параметров вдоль нормали к поверхности из вершины треугольника Бормана, полученное с помощью программы для ширины щели $S_1 = 1$ мкм и расстояния между щелью и кристаллом $z_1 = 5$ см. Вдоль этой линии период осцилляций максимальный.

Значение I_0 на рисунке выбрано таким, чтобы хорошо были видны второй и следующие максимумы. Первый максимум в таких единицах обрезан, реально он в 6 раз больше. Если принять за единицу интенсивность излучения перед щелью, то $I_0 = 0.01$. Известно, что пропагатор кристалла равен единице при $t = 0$, и затем он уменьшается. Если $z_1 > 0$ и щель широкая, то существует эффект дифракционной фокусировки [20], при которой максимум смещается вглубь кристалла. В рассматриваемом случае такое микросмещение тоже происходит.

На рис. 4 показаны четыре секционные топограммы, вычисленные по разработанной программе для сферической газовой поры диаметром $D = 18$ мкм, центр которой находится на линии рис. 3. Параметры расчета (рис. 1) следующие: $z_1 = 5$ см, $t_1 = 319$ мкм, $t_2 = 0, 20, 100, 200$ мкм, $z_2 = 0$. Меняется только толщина второго слоя совершенного кристалла (т.е. после дефекта). Порядок очевиден, т.е. сверху вниз. Как следует из рис. 3, первый слой заканчивается в области максимума осциллирующей интенсивности излучения. Начало второго слоя находится в области минимума. На верхнем фрагменте газовая пора выглядит как светлая на темном фоне. Она просто переносит излучение из верхнего слоя в нижний почти без искажений, хотя небольшие искажения все же присутствуют.

По мере увеличения толщины t_2 второго слоя ситуация меняется. В этом слое дефект становится источником искажений стандартной картины, которые распространяются снова в треугольнике Бормана с вершиной в области дефекта. Область возмущений расширяется горизонтально (по оси x) при увеличении толщины t_2 , а вертикально

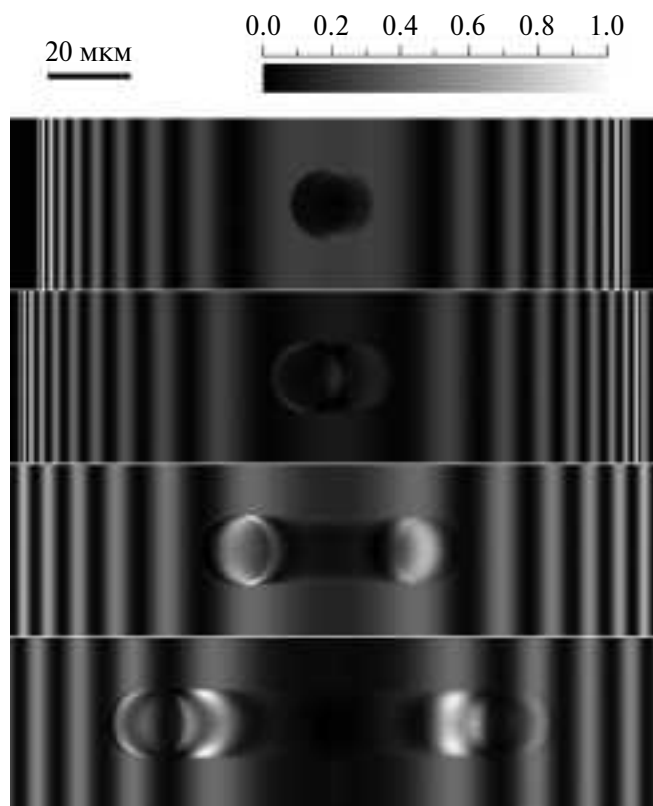


Рис. 5. Серия из четырех секционных топограмм, вычисленных при тех же значениях параметров, что и на рис. 4, и $t_1 = 303$ мкм. Порядок изменения t_2 сверху вниз.

лабораторных измерений. На источниках СИ возможно преобразование волновой функции после кристалла с помощью разных приборов, например преломляющих линз. Но такие эксперименты до сих пор не проводились.

На рис. 5 показаны топограммы, вычисленные при тех же параметрах, что и на рис. 4, кроме одного. Параметр $t_1 = 303$ мкм. Как следует из рис. 3, в этом случае первый слой заканчивается в области минимума интенсивности. По этой причине на верхнем фрагменте изображение получается обратным — пора черная на светлом фоне. На других расстояниях можно заметить определенную закономерность. Она состоит в том, что изображение поры коррелирует с изображением совершенного кристалла. Там, где были светлые полосы, пора тоже светлая, а там, где были темные полосы, она темная. При этом изображения более симметричные, т.е. слева и справа почти одно и то же.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработан новый метод расчета дефектов кристаллической решетки с ограниченными размерами на секционных топограммах. Результаты расчетов для сферической поры диаметром 18 мкм показали, что газовые поры могут давать самые разные изображения в зависимости от их положения в

кристалле. Чтобы детально понять принципы формирования изображений, необходимо провести большую серию расчетов. Пока ясно только то, что изображения пор на секционных топограммах возможны, но для их получения нужно использовать очень узкие щели. В случае щели размером 10 мкм и выше изображения могут сильно усредняться, и их будет сложно заметить. В принципе вместо щелей можно использовать пучок, сфокусированный преломляющей линзой [21]. Но надо иметь в виду, что угловой диапазон преломляющей линзы намного превышает угловой диапазон дифракции в кристаллах, поэтому выигрыша в интенсивности не получится.

Дополнительно необходимо понять, как спектр излучения в сочетании в большом угловым диапазоном линзы влияет на изображения секционных топограмм. На источниках СИ необходимо ограничивать спектр с помощью монохроматора. В лабораторных измерениях угловых зависимостей обычно используют двухкристальные бездисперсионные схемы, но в секционной топографии учитывают весь спектр характеристического излучения, что делает щель некогерентным источником в большей степени. Исследование этих вопросов выходит за рамки настоящей работы, но, возможно, будет выполнено в будущем.

Работа выполнена в рамках государственного задания НИЦ “Курчатовский институт”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Kato N., Lang A.R. // Acta Cryst. 1959. V. 12. P. 787. <https://doi.org/10.1107/S0365110X61001625>
2. Kato N. // Acta Cryst. 1961. V. 14. P. 627. <https://doi.org/10.1107/S0365110X61001947>
3. Takagi S. // Acta Cryst. 1962. V. 15. P. 1611. <https://doi.org/10.1107/S0365110X62003473>
4. Taupin D. // Acta Cryst. 1967. V. 23. P. 25. <https://doi.org/10.1107/S0365110X67002063>
5. Gronkowski J. // Phys. Rep. 1991. V. 206. P. 1. [https://doi.org/10.1016/0370-1573\(91\)90086-2](https://doi.org/10.1016/0370-1573(91)90086-2)
6. Суворов Э.В., Смирнова И.А. // Успехи физ. наук. 2015. Т. 185. С. 897. <https://doi.org/10.3367/UFNr.0185.201509a.0897>
7. Шульпина И.Л., Суворов Э.В., Смирнова И.А. и др. // ЖТФ. 2022. Т. 92. С. 1475. <https://doi.org/10.21883/JTF.2022.10.53240.23-22>
8. Арсенова Т.С., Кон В.Г. // Успехи физ. наук. 2019. Т. 189. С. 643. <https://doi.org/10.3367/UFNr.2018.06.038371>
9. Argunova T.S., Kohn V.G., Lim J.-H. et al. // Materials (MDPI). 2023. V. 16. P. 6589. <https://doi.org/10.3390/ma16196589>
10. Argunova T.S., Kohn V.G., Lim J.-H. et al. // J. Surf. Invest.: X-ray, Synchrotron Neutron Tech. 2023. V. 17. Suppl. 1. P. S20. <https://doi.org/10.1134/S1027451023070030>

11. *Cooley J.W., Tukey J.W.* // Math. Comput. 1965. V. 19. P. 297.
12. *Кон В.Г.* Программа XRWP. <http://xray-optics.ucoz.ru/XR/xrwp.htm>
13. *Кон В.Г.* <http://xray-optics.ucoz.ru/XR/xrwp-equations.pdf>
14. *Кон В.Г.* // Кристаллография. 2023. Т. 68. С. 196. <https://doi.org/10.31857/S002347612302008X>
15. *Кон В.Г., Смирнова И.А.* // Кристаллография. 2022. Т. 67. С. 185. <https://doi.org/10.31857/S0023476122020084>
16. *Кон В.Г.* Онлайн-программа <https://kohnvict.ucoz.ru/jsp/3-difpar.htm>
17. *Authier A.* // Dynamical Theory of X-ray Diffraction. 3rd ed. Oxford University Press, 2005. 696 p.
18. *Pinsker Z.G.* // Dynamical Scattering of X-Rays in Crystals. Springer-Verlag, 1978. 390 p.
19. *Afanasev A.M., Kohn V.G.* // Acta Cryst. A. 1971. V. 27. P. 421.
20. *Афанасьев А.М., Кон В.Г.* // ФТТ. 1977. Т. 19. С. 1775.
21. *Snigirev A., Kohn V., Snigireva I. et al.* // Nature. 1996. V. 384. P. 49.

COMPUTER SIMULATION OF X-RAY SECTION TOPOGRAPHY OF GAS PORES IN A SILICON CARBIDE CRYSTAL

© 2024 V. G. Kohn*

National Research Centre "Kurchatov Institute," Moscow, Russia

**e-mail: kohnvict@yandex.ru*

Abstract. The results of computer simulation of images of gas pores in a silicon carbide crystal in sectional topograms, that is, during diffraction of a narrow beam of X-rays in the crystal, are presented for the first time. For this purpose, a special module of the universal computer program XRWP was used. This program is developing by the author to calculate the effects of coherent X-ray optics. The calculation method combines two methods, previously known, namely, Fourier transform methods (Kato method), and the method of solving the Takagi-Taupin equations. It is shown that gas pores can produce a wide variety of images, depending on the experimental conditions and the position of the gas pore inside the crystal.