

УДК 548.73

## МЕТОДИКА РЕГИСТРАЦИИ КАРТ ОБРАТНОГО ПРОСТРАНСТВА С ВРЕМЕННЫМ РАЗРЕШЕНИЕМ С ПРИМЕНЕНИЕМ АДАПТИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ РЕНТГЕНОВСКОЙ ОПТИКИ

© 2020 г. Я. А. Элиович<sup>a, b, \*</sup>, В. И. Аккуратов<sup>a, b</sup>, А. В. Таргонский<sup>a, b</sup>, П. А. Просеков<sup>a, b</sup>,  
А. Е. Благоев<sup>a, b</sup>, Ю. В. Писаревский<sup>a, b</sup>, М. В. Ковальчук<sup>a, b</sup>

<sup>a</sup>Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова ФНИЦ “Кристаллография и фотоника”  
Российской академии наук, Москва, 119333 Россия

<sup>b</sup>Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”,  
Москва, 119333 Россия

\*e-mail: yan.eliovich@gmail.com

Поступила в редакцию 20.12.2019 г.

После доработки 09.01.2020 г.

Принята к публикации 11.01.2020 г.

Предложена методика регистрации карт обратного пространства в окрестности брэгговского рефлекса с использованием адаптивного изгибного элемента рентгеновской оптики на основе бидоменного монокристалла ниобата лития для проведения времяразрешающих исследований дефектной структуры монокристаллов на лабораторных источниках рентгеновского излучения. Проведена апробация предложенной методики на кристалле кремния в условиях статической одноосной механической нагрузки.

**Ключевые слова:** рентгенодифракционные методы, трехкристалльная дифрактометрия, адаптивная рентгеновская оптика, исследования с временным разрешением.

**DOI:** 10.31857/S1028096020080075

### ВВЕДЕНИЕ

Методы рентгеновской дифрактометрии являются незаменимым источником информации при проведении исследований различных функциональных материалов, являющихся основой современной микроэлектронной промышленности. Наиболее распространенной экспериментальной схемой рентгеновской дифракции является двухкристалльная, позволяющая проводить измерения так называемых кривых дифракционного отражения (КДО) – угловых зависимостей интенсивности отраженного образцом рентгеновского излучения в окрестностях брэгговского угла. Путем сравнения получаемых таким образом данных с численными расчетами, следующими из динамической теории дифракции, можно сделать выводы о дефектной структуре исследуемых образцов. Однако если необходимо получить информацию не только о степени дефектности исследуемого образца, но и о природе наблюдаемых дефектов, то это можно сделать с помощью более сложной трехкристалльной схемы [1–4].

Такая экспериментальная конфигурация позволяет регистрировать наборы КДО, которые мо-

гут быть объединены в двумерные изображения – образы узлов обратного пространства исследуемого кристалла, называемые картами обратного пространства. Регистрация карт позволяет определить не только степень дефектности исследуемых образцов, но и природу возникновения наблюдаемых дефектов, разделяя вклады точечных дефектов, деформаций (изменений межплоскостного расстояния) и локальной разориентации и мозаичности кристалла в картину рассеяния [5]. В частности, форму гало диффузного рассеяния можно сопоставить с полями деформаций, возникающими вследствие наличия дефектов в кристалле [6].

В общем случае трехкристалльная рентгенооптическая схема состоит из кристалла-монохроматора, образца и кристалла-анализатора. Измерение карт обратного пространства происходит путем сканирования углов падения рентгеновского пучка относительно точного брэгговского положения по отдельности для образца и анализатора. Обычно для этого используют гониометрические системы, обладающие ограниченным быстродействием и точностью, в которых регистрация карт

обратного пространства может занимать десятки минут или даже часы. Таким образом, несмотря на уникальные возможности, которые предоставляет трехкристальная дифрактометрия при анализе дефектной структуры, возникает серьезная проблема, связанная с невозможностью проведения с помощью этого метода достаточно быстрых измерений с временным разрешением. Следует отметить, что существует и другая возможность для проведения аналогичных экспериментов — использование двухкоординатных детекторов, однако в этом случае точность напрямую зависит от чувствительности и размера пикселя детектора, быстродействие достаточно серьезно ограничено, а стоимость таких детекторов достаточно высока.

Изучение динамики структурных изменений в кристаллических материалах — востребованная научная задача, и развитие метода трехкристальной дифрактометрии с микросекундным временным разрешением представляется крайне интересным. Возможным путем модернизации методики может быть использование адаптивных изгибных элементов рентгеновской оптики [7, 8], изготовленных из кристаллов ниобата лития с бидоменной структурой [9–12], которые ранее уже применялись в двухкристальной рентгенооптической схеме экспериментов [13]. Они помогли достигнуть увеличения быстродействия на несколько порядков относительно гониометрических систем на лабораторном источнике излучения.

В настоящей работе представлены первые результаты модельного эксперимента по регистрации карт обратного пространства с использованием адаптивного изгибного элемента рентгеновской оптики, а также их сравнение с результатами, полученными с применением традиционного метода регистрации с помощью гониометрического сканирования.

## МЕТОДИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Эксперименты проводились на базе модернизированного дифрактометра ТРС [14] производства СКБ РАН, модульная конструкция которого позволяет применять различные конфигурации. В настоящей работе была использована трехкристальная схема рентгеновской дифракции, соответствующая конфигурация установки представлена на рис. 1.

В качестве источника рентгеновского излучения применяли трубку с молибденовым анодом. В качестве монохроматора для эксперимента с гониометрическим сканированием был выбран кристалл кремния (111) высокого рентгенооптического качества. При гониометрическом скани-

ровании изгибный монохроматор выступал в роли обычного монохроматора, на него электрический сигнал не подавался. В качестве кристалла-анализатора был выбран кристалл кремния (111) рентгенооптического качества. Кристалл-анализатор и детектор были закреплены на одном плече и при сканировании перемещались вокруг оси  $2\theta$  одновременно.

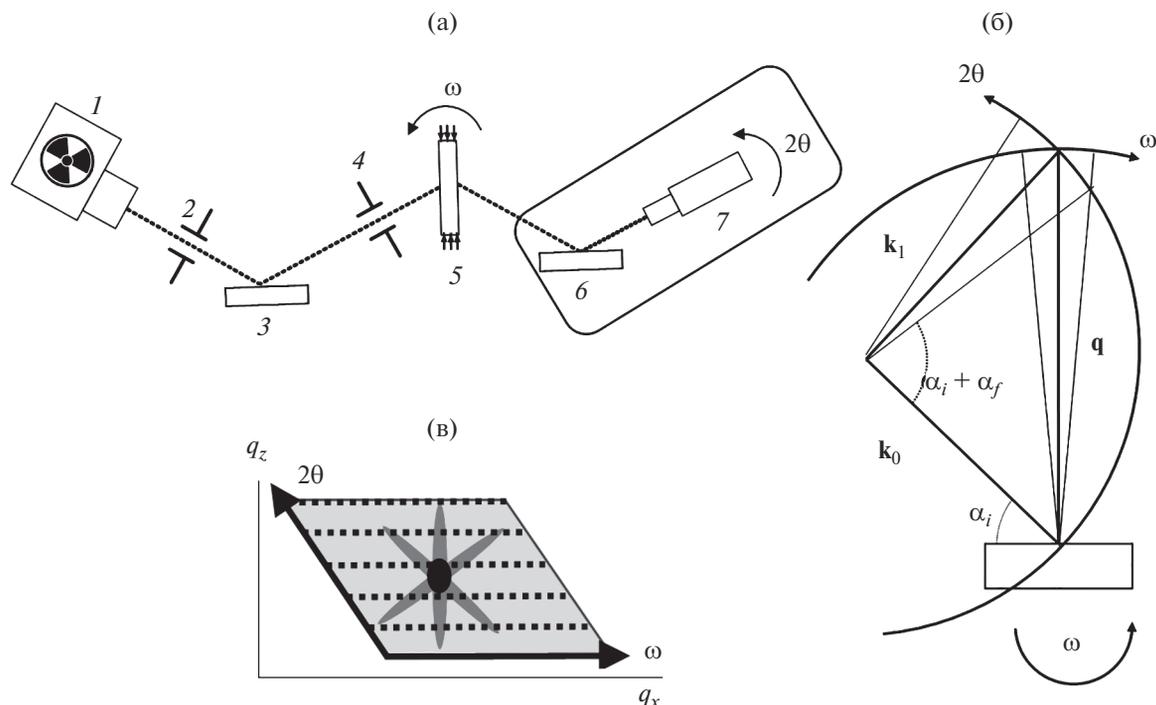
### *Адаптивный изгибный элемент рентгеновской оптики (АЭРО)*

Для эксперимента с изгибным монохроматором был выбран монокристалл бидоменный элемент размером  $75 \times 10 \times 0.5$  мм, изготовленный из пластины монокристалла ниобата лития по специальной технологии [11], с предварительно нанесенными методом магнетронного распыления электродами. Поскольку рентгенооптических свойств используемых кристаллов ниобата лития недостаточно для проведения измерений высокого разрешения, для управления пучком применяли рентгенооптический совершенный кристалл кремния размером  $26.5 \times 10 \times 0.5$  мм и рабочей поверхностью (111), который закрепляли на бидоменном элементе (рис. 2). Перед измерениями изгибный элемент был откалиброван и подготовлен к работе [15, 16]. Электрический управляющий сигнал был треугольной формы для удобства точного определения зависимости отклонения изгибного кристалла от фазы сигнала. Амплитуда электрического сигнала, подаваемого на изгибный элемент, была равна 75 В, диапазон углового сканирования составлял 60.8 угл. с. Все результаты работы получены при таких настройках.

В качестве образца был выбран совершенный кристалл кремния, расположенный в геометрии Лауэ, с отражающими плоскостями (111), что позволило получить информацию о дефектной структуре части кристалла, через которую проходил рентгеновский пучок. Таким образом, эксперименты проводили в бездисперсионной схеме — для изгибного элемента, образца и кристалла-анализатора использовали рефлекс 111, угол Брэгга которого составляет  $6.4945^\circ$ .

### *Методика регистрации карт обратного пространства с использованием гониометрической системы*

В случае бездисперсионной рентгенооптической схемы карта узла обратной решетки в некотором малом объеме обратного пространства  $[q_x, q_z]$  представляет собой изображение трех пересекающихся полос (рис. 1в). Полосы соответствуют динамической дифракции в образце (эта полоса па-



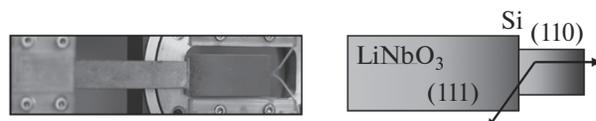
**Рис. 1.** Регистрация карт обратного пространства с использованием гониометрической системы: а – трехкристальная бездисперсионная схема: 1 – источник рентгеновского излучения, 2, 4 – коллимирующие щели, 3 – кристалл-монокроматор, 5 – образец, 6 – кристалл-анализатор, 7 – детектор; б – порядок  $\omega$ – $2\theta$ -сканирования узла обратного пространства ( $\alpha_i$  – угол падения пучка рентгеновского излучения на образец относительно кристалла-образца,  $\alpha_f$  – угол отраженного от образца пучка рентгеновского излучения относительно кристалла-образца); в – карта в масштабе узла обратного пространства, пунктирные линии представляют собой одно сканирование при фиксированной координате.

параллельна  $q_z$ , сдвинута относительно точного положения узла обратной решетки на величину поправки на коэффициент преломления), излучению, рассеянному на кристалле-анализаторе и монокроматоре (полосы пересекают полосу динамической дифракции образца под углом Брэгга), а также “гало” диффузного рассеяния, которое возникает из-за рассеяния рентгеновского излучения на точечных дефектах в окрестности узла обратной решетки [1, 3].

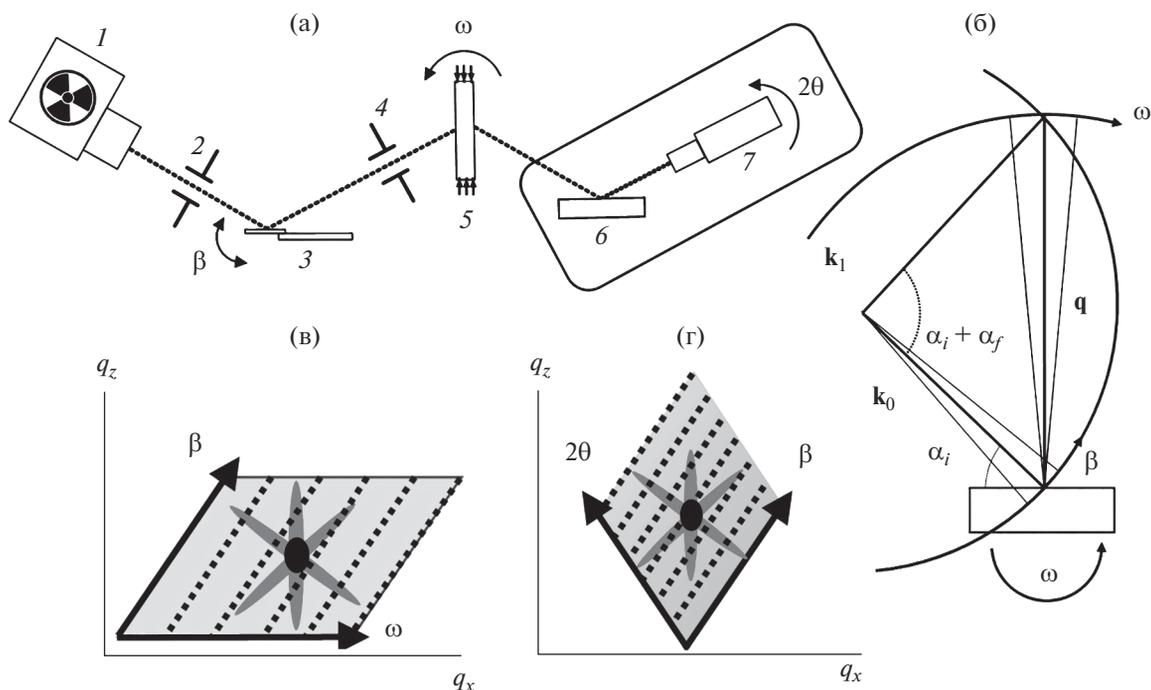
В настоящей работе карты обратного пространства измеряли для трех степеней нагрузки на исследуемый образец при статическом механическом одноосном сжатии, аналогичном [13]. Были получены результаты сканирования обратного пространства при помощи АЭРО в трехкристальной рентгенооптической схеме и проведено их сравнение с результатами обычного  $\omega$ – $2\theta$ -сканирования.

В случае сканирования в трехкристальной рентгенооптической схеме (рис. 1а) данные представляют собой набор сканирований по углу (вращение образца вокруг оси  $\omega$ ) при различных фиксированных значениях угла установки плеча ( $2\theta$ ) с закрепленным на нем кристаллом-анализатором

и детектором. Набор получаемых данных имеет вид сетки, каждая точка которой характеризуется координатами ( $\omega$ ,  $2\theta$ ) и значением интенсивности рентгеновского излучения, и после обработки данных преобразовывается в карту узла обратного пространства. На рис. 1б представлен алгоритм  $\omega$ – $2\theta$ -сканирования узла обратной решетки при помощи гониометра. Вектор рассеяния  $\mathbf{q}$ , определяемый векторами падающего и отраженного относительно кристалла-образца рентгеновского пучка  $\mathbf{k}_0$  и  $\mathbf{k}_1$  имеет две составляющие: горизонтальную  $q_x$  и вертикальную  $q_y$ . Угол между векторами  $\mathbf{k}_0$  и  $\mathbf{k}_1$  определяется суммой углов падения и отражения рентгеновского пучка относительно образца. Поскольку для обратного и реального пространства углы являются инвариантом, то, вращая образец вокруг оси  $\omega$  и меняя



**Рис. 2.** Фотография и схематичное изображение АЭРО.



**Рис. 3.** Регистрация карт обратного пространства с использованием АЭРО: а – трехкристалльная бездисперсионная схема: 1 – источник рентгеновского излучения, 2, 4 – коллимирующие щели, 3 – адаптивный элемент, используемый вместо кристалла-монокроматора, 5 – образец, 6 – кристалл-анализатор, 7 – детектор; б – порядок сканирования обратного пространства; в –  $\beta$ - $\omega$ -сканирование в масштабе узла обратного пространства ( $\beta$  – угол, определяемый положением изгибного монокроматора); г –  $\beta$ - $2\theta$ -сканирование в масштабе узла обратного пространства.

угол падения  $\alpha_i$  рентгеновского пучка на образец, осуществляют сканирование в небольшой области обратного пространства параллельно  $q_x$ . При вращении плеча с кристаллом-анализатором и детектором относительно образца вокруг оси  $2\theta$  происходит сканирование обратного пространства в направлении  $q_z$ .

#### *Методика регистрации карт обратного пространства с использованием АЭРО*

В случае сканирования при помощи АЭРО эксперимент проводился в трехкристалльной рентгенооптической схеме, показанной на рис. 3а. Рентгеновское излучение регистрировали с помощью специальной системы набора данных, которая состоит из многоканального анализатора, регистрирующего интенсивность рентгеновского излучения в зависимости от напряжения, подаваемого на изгибный кристалл электрического сигнала определенной частоты и точечного сцинтилляционного детектора. Прикладывая электрическое поле к АЭРО и таким образом меняя угол падения рентгеновского пучка на образец (вместо поворота образца при помощи гониометра), при серии фиксированных  $\omega$  положений образца также можно получить карту узла обратного про-

странства по набору точек с координатами (номер канала,  $\omega$ ). При таком способе сканирования угол падения  $\alpha_i$  рентгеновского пучка на образец изменяется не только при помощи поворота образца вокруг оси  $\omega$ , но и при помощи изгибного монокроматора, из-за чего направления сканирования в обратном пространстве заданы по-другому (рис. 3б, 3в).

Таким образом, вид полученных массивов данных будет различаться. В ходе экспериментов также были получены результаты для  $\beta$ - $2\theta$ -сканирования. Такой способ представляет собой комбинацию частей уже описанных типов сканирования (рис. 1г).

#### *Методика калибровки, пересчет данных*

Чтобы иметь возможность представить полученные с помощью АЭРО данные в координатах обратного пространства ( $q_x, q_z$ ), сначала необходимо провести калибровку. Калибровка представляет собой пересчет данных, полученных при помощи многоканального анализатора, из зависимости от номера канала в зависимости от углового положения монокроматора.

Карта обратного пространства соответствует набору КДО, поэтому коэффициент пересчета определяется на основании сравнения двух зарегистрированных последовательно КДО при помощи вращения гониометра и с использованием АЭРО в одинаковых условиях. Каждому каналу соответствует определенное напряжение (т.е. фазы управляющего сигнала), которое можно пересчитать в угловое отклонение, подобрав такое значение коэффициента пересчета, при котором полученные кривые совпадают по своей форме и полуширине. Детально процедура калибровки описана в [13, 15].

Данные, полученные при помощи гониометрического и изгибного сканирования, находятся в разных системах угловых координат. Чтобы иметь возможность сравнить экспериментальные результаты, необходимо перейти к общей системе координат обратного пространства ( $q_x$ ,  $q_z$ ). Для перехода от координат  $\omega-2\theta$  в случае сканирования с использованием гониометра применяли следующие формулы:

$$\begin{aligned} k &= 2\pi/\lambda, \\ q_x &= k(\cos(\alpha_f) - \cos(\alpha_i)), \\ q_z &= k(\sin(\alpha_i) + \sin(\alpha_f)), \\ \alpha_i &= \omega, \quad \alpha_f = 2\theta - \omega, \end{aligned}$$

где  $\lambda$  — длина волны рентгеновского излучения,  $\alpha_i$  — угол падения пучка рентгеновского излучения на образец относительно кристалла-образца,  $\alpha_f$  — угол отраженного от образца пучка рентгеновского излучения относительно кристалла-образца.

В случае использования изгибного элемента сначала необходимо перевести каналы в углы, откалибровав элемент. Для обработки данных, полученных с использованием изгибного рентгенооптического элемента, формулы были модифицированы исходя из геометрии рентгенооптической схемы эксперимента. В случае ( $\beta$ ,  $\omega$ )-сканирования:

$$\alpha_i = \beta + \omega, \quad \alpha_f = \omega,$$

где  $\beta$  — угол, определяемый положением изгибного монохроматора. В случае ( $\beta$ ,  $2\theta$ )-сканирования:

$$\alpha_i = \beta, \quad \alpha_f = 2\theta.$$

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Полученные при помощи сканирования гониометром (сканирование по  $\omega$  при фиксированном  $2\theta$ ) и изгибным монохроматором (при фиксированном  $2\theta$ ) карты обратного пространства

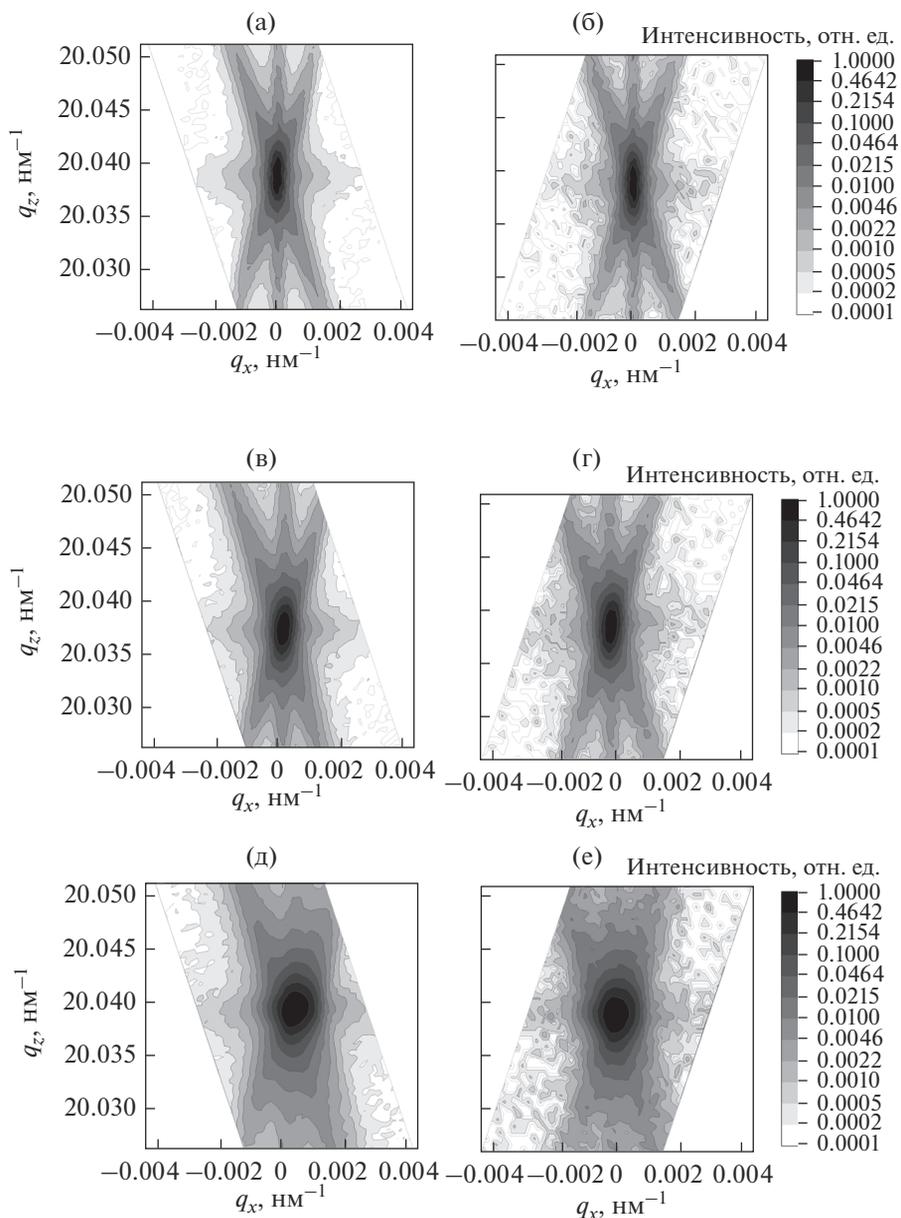
кристалла кремния представлены на рис. 3в, 3г. Известно, что карты обратного пространства в отличие от КДО позволяют установить происхождение деформаций в кристалле и разделить изменения межплоскостного расстояния и общую мозаичность кристалла. Как показано на рис. 4, с увеличением силы сжатия размеры узла обратного пространства кристалла кремния увеличиваются по координатам  $q_x$  и  $q_y$ . В данном случае изменение межплоскостного расстояния обусловлено влиянием статической механической нагрузки, а увеличение мозаичности обусловлено изгибом кристаллической пластины. Подробнее это можно оценить по данным, представленным в табл. 1. Можно сделать вывод об идентичности результатов, полученных при помощи гониометра и АЭРО в пределах погрешности. Межплоскостные расстояния были рассчитаны по положению максимума интенсивности рентгеновского излучения. Теоретическое значение межплоскостного расстояния для кремния (111) составляет 3.1355 Å.

Также нужно отметить, что, в отличие от сканирования при помощи гониометрических систем, сканирование при помощи АЭРО позволяет получать более высокое пространственное разрешение из-за специфики использования системы сбора данных на основе многоканального анализатора. Так как весь угловой диапазон сканирования разбивается на количество каналов, можно получить пространственное разрешение на несколько порядков выше, чем возможности самых лучших гониометрических систем, поскольку предельное разрешение ограничено лишь количеством каналов используемого многоканального анализатора. В настоящем эксперименте угловое разрешение (шаг измерения) АЭРО составило  $1.698 \times 10^{-5}$  градусов.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Реализован метод измерения карт обратного пространства с использованием изгибного элемента в качестве монохроматора в трехкристальной бездисперсионной рентгенооптической схеме. На примере модельного эксперимента показано, что результаты, полученные в ходе сканирования обратного пространства при помощи гониометра, идентичны результатам, полученным при сканировании изгибным рентгенооптическим элементом.

Разработанный метод исследования, успешно примененный в настоящей работе для монокристалла кремния, подвергнутого механическому сдавливанию, может быть использован как для оперативной диагностики внутренних напряжений, так и для времяразрешающих исследований



**Рис. 4.** Карты обратного пространства, полученные с помощью гониометра (а, в, д) и АЭРО (б, г, е): без сжатия (а, б); с умеренным сжатием (в, г); с сильным сжатием (д, е).

**Таблица 1.** Полуширина на полувисоте вертикального и горизонтального сечений карты обратного пространства в точке максимальной интенсивности и значения межплоскостного расстояния

Степень сжатия	Гониометрическое сканирование			Сканирование адаптивным рентгенооптическим элементом		
	вертикальное сечение, $q_z, 10^5 \text{ nm}^{-1}$	горизонтальное сечение, $q_x, 10^6 \text{ nm}^{-1}$	межплоскостное расстояние, $\text{\AA}$	вертикальное сечение, $q_z, 10^5 \text{ nm}^{-1}$	горизонтальное сечение, $q_x, 10^6 \text{ nm}^{-1}$	межплоскостное расстояние, $\text{\AA}$
Без сжатия	$276 \pm 6$	$309 \pm 6$	3.13496	$257 \pm 5$	$225 \pm 5$	3.13535
Умеренное сжатие	$296 \pm 6$	$402 \pm 8$	3.13563	$298 \pm 6$	$375 \pm 8$	3.13547
Сильное сжатие	$328 \pm 7$	$765 \pm 15$	3.13590	$336 \pm 7$	$719 \pm 14$	3.13558

различных структурных процессов внутри кристаллических материалов. При измерениях с помощью лабораторной рентгеновской трубки время, необходимое для регистрации карты обратного пространства при помощи АЭРО, в 12 раз меньше времени, требуемого для регистрации карты с использованием гониометра при условии одинакового пространственного разрешения. Минимальное время регистрации одной карты с использованием рентгеновской трубки с пространственным разрешением, достаточным для оценки качества кристаллической структуры (1000 каналов для АЭРО и 2 угл. с для кристалл-анализатора), составляло 5 мин. Это время на порядок превосходит возможности традиционных методов, ограничивается относительно небольшой мощностью лабораторного источника рентгеновского излучения и может быть уменьшено на несколько порядков, например, при проведении исследований на источнике синхротронного излучения, отличающегося более высокой интенсивностью пучка. Еще одним способом увеличения временного разрешения метода может быть использование двух АЭРО, установленных как на месте монохроматора, так и на месте кристалл-анализатора, что открывает широкие возможности для времяразрешающих рентгенодифракционных экспериментов в микросекундном диапазоне.

#### БЛАГОДАРНОСТИ

Исследования проводились при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках выполнения работ по Государственному заданию ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН, с использованием оборудования ЦКП (проект RFMEFI-62119X0035) в части подготовки образцов, а также при финансовой поддержке РФФИ (грант № 18-32-20108 мол\_а\_вед) и совета по грантам Президента РФ (грант

№ МК-2451.2018.2) в части развития рентгеноакустических методов.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Боуэн Д.К., Таннер Б.К. Высокоразрешающая рентгеновская дифрактометрия и топография. Санкт-Петербург: Наука, 2002. 274 с.
2. Holy V., Pietsch U., Baumbach T. High-Resolution X-ray Scattering from Thin Films and Multilayers. Springer, 1999. 253 p. <https://doi.org/10.1007/BFB0109385>
3. Iida A., Kohr K. // Phys. Stat. Sol. A. V. 51. P. 533.
4. Серегин А.Ю., Просеков П.А., Чуховский Ф.Н. и др. // Кристаллография. 2019. Т. 64. № 4. С. 521.
5. He B.V. Two-Dimensional X-Ray Diffraction. Wiley, 2009. 426 p.
6. Fewster P.F. // Critical Rev. Solid State Mater. Sci. V. 22. P. 69.
7. Благов А.Е., Быков А.С., Кубасов И.В. и др. // Приборы и техника эксперимента. 2016. Т. 59. № 5. С. 728.
8. Blagov A.E., Kulikov A.G., Marchenkov N.V et al. // Experimental Techniques. 2017. V. 41. № 5. P. 517.
9. Nakamura K., Ando H., Shimizu H. // Appl. Phys. Lett. 1987. V. 50. P. 1413.
10. Bykov A.S., Grigoryan S.G., Zhukov R.N. // Russian Microelectronics. 2014. V. 43. P. 536.
11. Патент № 2492283 (РФ). Способ формирования бидоманной структуры в пластинах монокристаллов / НИТУ “МИСиС”. Малинкович М.Д., Антипов В.В., Быков А.С. 2013.
12. Gorfman S., Schmidt O., Ziolkowski M. et al. // J. Appl. Phys. 2010. V. 108. P. 064911.
13. Элиович Я.А., Аккуратов В.И., Таргонский А.В. и др. // Кристаллография. 2018. Т. 63. № 5. С. 1.
14. А.с. № 463045 (СССР). Рентгеновский спектрометр. / ИКАН. Пинскер З.Г., Ковьев Э.К., Миренский А.В. и др. 1975.
15. Kulikov A.G., Blagov A.E., Marchenkov N.V et al. // Sensors and Actuators. A. 2019. V. 291. P. 68.
16. Marchenkov N.V., Kulikov A.G., Targonsky A.V. et al. // Sensors and Actuators. A. 2019. V. 293. P. 48.

## New Approach for Time-Resolved Reciprocal Space Mapping with Adaptive X-Ray Optics

I. A. Eliovich<sup>1,2,\*</sup>, V. I. Akkuratov<sup>1,2</sup>, A. V. Targonskii<sup>1,2</sup>, P. A. Prosekov<sup>1,2</sup>, A. E. Blagov<sup>1,2</sup>, Yu. V. Pisarevsky<sup>1,2</sup>, M. V. Kovalchuk<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Shubnikov Institute of Crystallography, Federal Scientific Research Centre “Crystallography and Photonics”, Russian Academy of Sciences, Moscow, 119333 Russia

<sup>2</sup>NRC “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182 Russia

\*e-mail: yan.eliovich@gmail.com

A new approach is proposed for recording reciprocal space mapping near the Bragg reflection using an adaptive bending element of X-ray optics based on a bidomain monolithic crystal of lithium niobate, which is necessary for time-resolved studies of the defective structure of single crystals on laboratory X-ray sources. The proposed method has been tested on a silicon crystal under static uniaxial mechanical loading.

**Keywords:** X-ray diffraction methods, triple-crystal diffractometry, adaptive X-ray optics, time-resolved studies.