

УДК 548.73, 616-073.756.8

РЕНТГЕНОВСКАЯ ДИФРАКЦИОННАЯ ТОМОГРАФИЯ С ПРИМЕНЕНИЕМ ЛАБОРАТОРНЫХ ИСТОЧНИКОВ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ОДИНОЧНЫХ ДИСЛОКАЦИЙ В СЛАБОПОГЛОЩАЮЩЕМ МОНОКРИСТАЛЛЕ КРЕМНИЯ

© Д. А. Золотов¹, В. Е. Асадчиков^{1,2}, А. В. Бузмаков¹,
И. Г. Дьячкова¹, Ю. С. Кривонос¹,
Ф. Н. Чуховский¹, Э. В. Суворов³

¹Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова
ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН,
119333, Москва, Ленинский проспект, 59

²Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова,
119234, Москва, ул. Ленинские Горы, 1, стр. 2

³Институт физики твердого тела,
142432, г. Черноголовка Московской обл., ул. Академика Осипьяна, 2
E-mail: zolotovden@crys.ras.ru

Работа продолжает цикл исследований по развитию метода рентгеновской дифракционной томографии с использованием лабораторного оборудования. В результате тестирования степени чувствительности рентгеновского дифрактометра получены результаты исследования пространственного расположения одиночной полигональной дислокационной полупетли в монокристалле кремния. Проведено их сравнение с экспериментальными данными с высоким пространственным разрешением, полученными на синхротронном источнике излучения ESRF (European Synchrotron Radiation Facility). Представлены методики эксперимента и программно-аппаратного обеспечения для трёхмерной реконструкции исследуемого единичного дефекта полигональной дислокационной полупетли.

Ключевые слова: рентгеновская топография, рентгеновская томография, единичные дислокационные полупетли, алгебраические методы реконструкции.

DOI: 10.15372/AUT20190203

Введение. В последние годы метод рентгеновской дифракционной томографии с использованием лабораторных и синхротронных источников излучения всё более активно применяется для исследования реальной структуры различных монокристаллов, причём не только полупроводниковых. Спектр приложений этого метода резко возрастает по мере увеличения доступа к специализированным синхротронным станциям. Становится возможным изучение процессов роста кристаллов *in situ*, зарождения и движения дефектов, фазовых переходов [1].

Метод состоит из комбинации методов рентгеновской дифракции [2–5] и компьютерной томографии [6] (так называемая рентгеновская дифракционная томография). В процессе эксперимента ось вращения исследуемого кристаллического образца должна быть строго параллельной выбранному вектору обратной решётки одной из отражающих плоскостей. Это достигается путём поворота оси вращения на соответствующий брэгговский угол относительно направления пучка рентгеновского излучения. Подобно известным томографическим методам пространственное расположение дефектов внутри кристалла восстанавливается по набору двумерных проекционных изображений, сформированных дифракционными отражениями в геометрии Лауэ при разных углах поворота образца [7–9].

Однако следует отметить, что получение доступа к станциям синхротронного излучения часто является сложной и длительной процедурой. По этой причине существует очевидная потребность в разработке рентгенотопографических методов диагностики структурных несовершенств кристаллов с применением лабораторного оборудования. При этом важно извлечь информацию о трёхмерном расположении дефектов с высоким (на уровне единиц микрона) пространственным разрешением для последующего построения математических моделей. В данной работе представлены результаты, полученные с использованием разработанной авторами лабораторной рентгеновской установки.

В [10, 11] использовалось компьютерное моделирование рентгеновских топографических изображений прямолинейных дислокаций в плоскопараллельных монокристаллических образцах Si (111). Целью моделирования, описанного в [10], являлось доказательство возможности наблюдения единичных дислокаций путём численной оценки величины дифракционного контраста. В [11] был предложен новый метод численного решения уравнений Такаги — Топена с учётом особенностей дифракционного томографического эксперимента. Результаты проведённого моделирования изображений винтовой и 60-градусной дислокаций показывают доступность наблюдения линейных дефектов с использованием лабораторного источника рентгеновского излучения.

Предложенным в [12] методом дифракционной томографии с применением лабораторного источника рентгеновского излучения авторы впервые показали возможность определения пространственного расположения отдельной дислокационной полигональной полупетли.

Исследования с использованием синхротронного источника рентгеновского излучения с пространственным разрешением порядка 1 мкм показали, что наблюдаемая в [13] дислокационная полигональная полупетля представляет собой ряд близко расположенных единичных дислокационных полупетель, лежащих в плоскости скольжения ($\bar{1}11$).

В предлагаемой работе приводятся результаты систематического исследования дислокационных полупетель в условиях повышенной чувствительности и точности лабораторной экспериментальной установки, что позволило выявить отдельные единичные дислокационные полупетли в монокристалле Si (111).

Эксперимент. Для решения задачи обнаружения пространственной конфигурации одиночных дефектов в кристаллических структурах в качестве объекта исследования был выбран монокристалл Si (111) с искусственно введёнными в него единичными дислокационными полупетлями. Для этого применялась специальная методика, описанная в [14].

На поверхность монокристалла Si алмазным индентором была нанесена царапина при нагрузке на него порядка долей грамма. Далее образец подвергался четырёхпорному изгибу. При этом условия деформации, способ нанесения царапины, постоянная нагрузка на образец Si ($2\text{--}10\text{ кг/мм}^2$), температура ($500\text{--}600\text{ }^\circ\text{C}$) и время деформирования подбирались таким образом, чтобы в монокристалле Si возникали единичные дислокационные полупетли. После процедуры травления характерные размеры монокристалла Si (111) составили $50 \times 3,55 \times 0,78\text{ мм}$.

Исследования осуществлялись на экспериментальной установке для рентгеновской дифракционной томографии, разработанной в Институте кристаллографии им. А. В. Шубникова ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН [11]. Схема дифракционного томографа с описанием всех узлов представлена на рис. 1.

Источником рентгеновского излучения послужила лабораторная рентгеновская трубка с молибденовым анодом. Измерения проводились в однокристалльном режиме, т. е. с применением полихроматического рентгеновского излучения. При этом исследуемый кристалл кремния с дислокациями настраивался таким образом, чтобы отражалась только $K_{\alpha 1}$ -линия молибдена ($E_{K_{\alpha 1}} = 17,48\text{ кэВ}$). Для регистрации двумерных рентгенограмм был использован ПЗС-детектор (прибор с зарядовой связью) прямого счёта размером 2056×2080

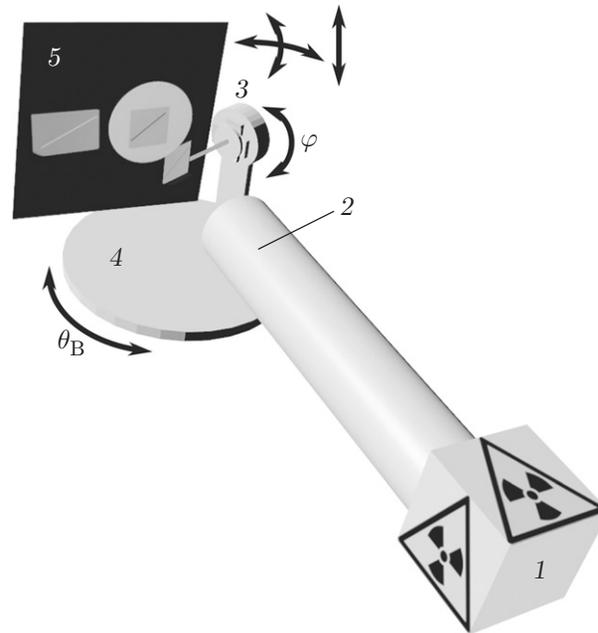


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 — рентгеновская трубка, 2 — вакуумный коллиматор, 3 — исследуемый образец на гониометрической головке, 4 — вращающаяся платформа, 5 — ПЗС-детектор. Стрелками показаны степени свободы установки

пикселей, размер одного пикселя 9×9 мкм. Выбранный вектор дифракции $\mathbf{h} = [2\bar{2}0]$. Угловое перемещение гониометра осуществлялось с помощью шагового двигателя ($\varphi = 2^\circ$), управляемого с компьютера в диапазоне от 0 до 360° (всего 180 дифракционных проекций). Трёхмерная реконструкция по набору экспериментальных дифракционных данных была выполнена с использованием модифицированного алгебраического метода SART (Simultaneous Algebraic Reconstruction Technique) [6], учитывающего геометрическую схему рентгеновского дифракционного томографического эксперимента. В качестве примера на рис. 2 приведены некоторые двумерные изображения (проекции), полученные из восстановленного трёхмерного изображения исследуемого дефекта. Анализ этих изображений позволяет интерпретировать его как гексагональную дислокационную полупетлю. Минимальное соотношение сигнал/шум в эксперименте составило 100 : 1.

Аналогичное исследование этого кристалла было выполнено на станции ID19 (синхротрон ESRF, Франция), предназначенной для проведения экспериментов по дифракционной ламинографии [9] с использованием монохроматического рентгеновского пучка с энергией $E = 25,3$ кэВ.

На рис. 3 показано рентгеновское дифракционное изображение той же самой дислокационной структуры (см. рис. 2), полученное при отражении от плоскости $(2\bar{2}0)$ с применением рентгеночувствительного двумерного детектора с эффективным размером пикселя 0,96 мкм. С одной стороны, из рис. 3 следует, что наблюдаемая дислокационная структура дефекта на рис. 2 представляет собой группу дислокаций (позиция 1). С другой стороны, на рис. 4 показано, что исследуемый дефект состоит как минимум из 12 одиночных дислокаций, которые плотно расположены относительно друг друга. С учётом того что изображение получено при повороте кристалла на угол $\varphi = 45^\circ$, расстояние между ними варьируется от 2 до 8 мкм. Кроме того, на рис. 3 видна единичная дислокационная полупетля (позиция 2), которая является предметом особого внимания.

Для повышения чувствительности лабораторного дифракционного томографа в целях наблюдения этого единичного дефекта были предприняты следующие шаги.

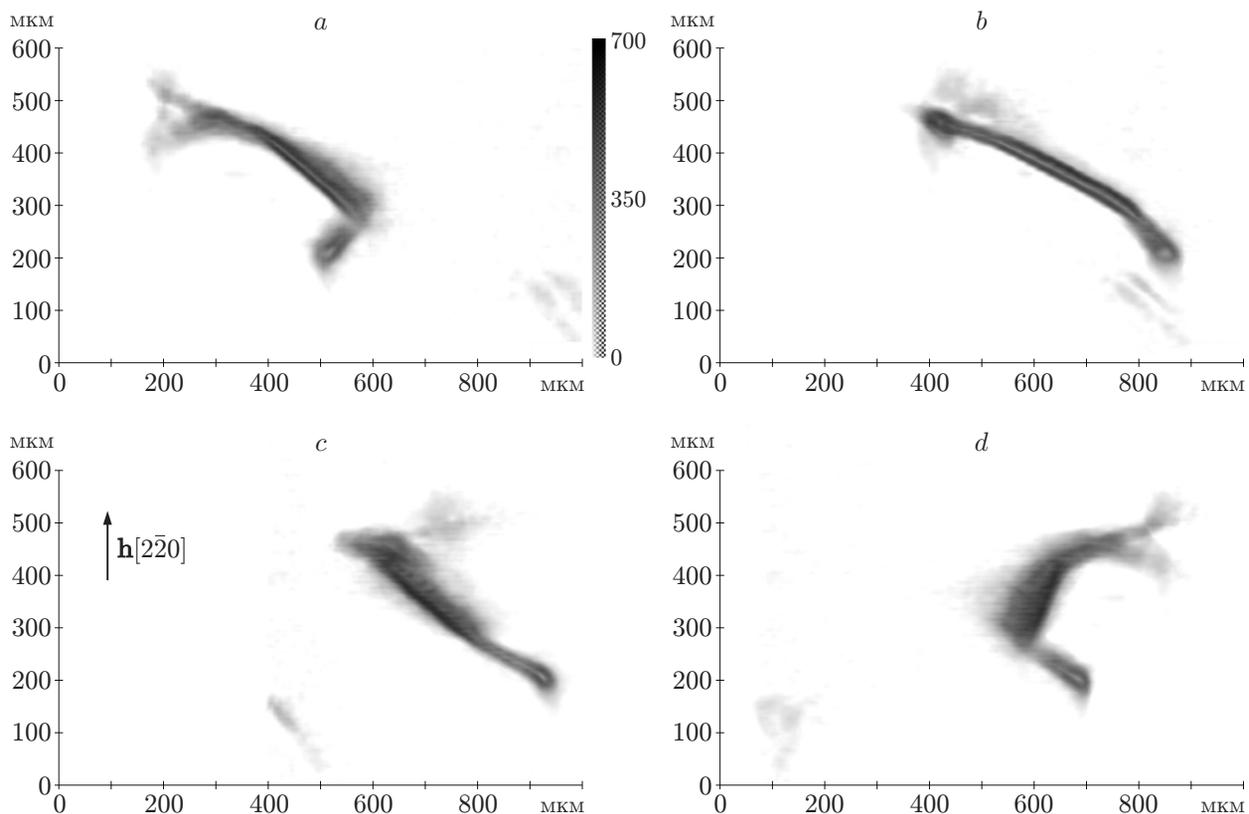


Рис. 2. Результаты реконструкции дислокационной полупетли при различных углах поворота кристалла φ : (a) — 0, (b) — 45, (c) — 90, (d) — 135°. Шкала интенсивности представлена в относительных единицах

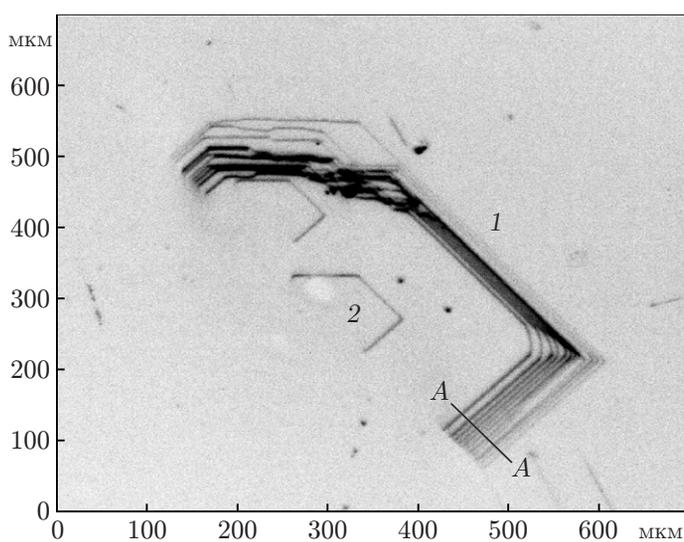


Рис. 3. Рентгеновская топограмма группы 1 и одиночной 2 дислокационных полупетель в монокристалле Si (111), полученная на синхротронном источнике

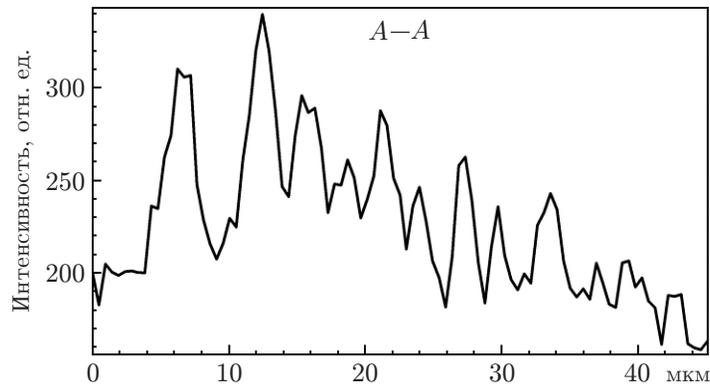


Рис. 4. Поперечное сечение группы дислокационных полупетель, построенное вдоль прямой А—А на рис. 3

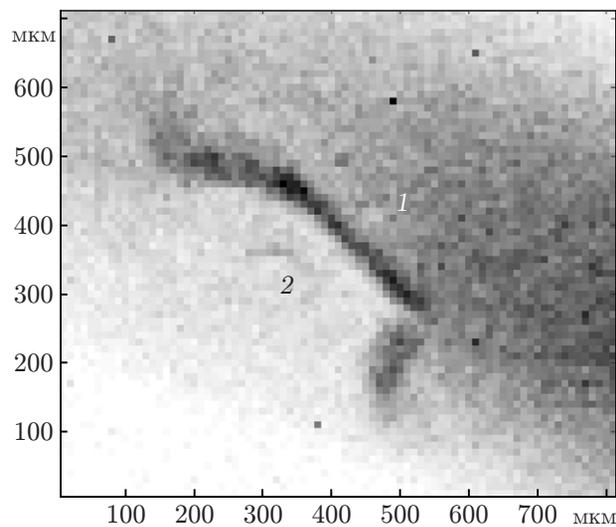


Рис. 5. Рентгеновская топограмма группы 1 и одиночной 2 дислокационных полупетель в монокристалле Si (111), полученная на лабораторном источнике ($E = 17,48$ кэВ)

Во-первых, в конструкцию гониометра дифракционного томографа введена автоматическая юстировка образца. Гониометрическая головка была заменена двумя взаимно перпендикулярными гониометрическими подвижками с угловыми пределами $\pm 15^\circ$ с помощью шаговых двигателей и с угловой точностью, равной $1,6''$. Управление шаговым двигателем осуществлялось с помощью контроллеров через персональный компьютер.

Во-вторых, время экспозиции одного кадра-проекции увеличилось в 2,4 раза (с 250 до 600 с). Такая выдержка подбиралась с тем условием, чтобы исследуемый объект (полупетля) был виден на дифракционном изображении. На рис. 5 представлена одна из таких рентгеновских топограмм, полученных вращением образца вокруг вектора дифракции $\mathbf{h} = [2\bar{2}0]$. Видно, что контраст изображения единичной полупетли (см. рис. 5, позиция 2) намного слабее, чем соответствующий контраст изображения на рис. 3. Тем не менее полученное на лабораторном оборудовании изображение (см. рис. 5) позволяет зарегистрировать одиночную дислокационную полупетлю с низким по сравнению с измерением на синхротронном источнике пространственным разрешением на уровне 10 мкм. Именно эти экспериментальные данные впоследствии обрабатывались для построения трёхмерной картины пространственного расположения дислокаций в исследуемом кристалле Si (111).

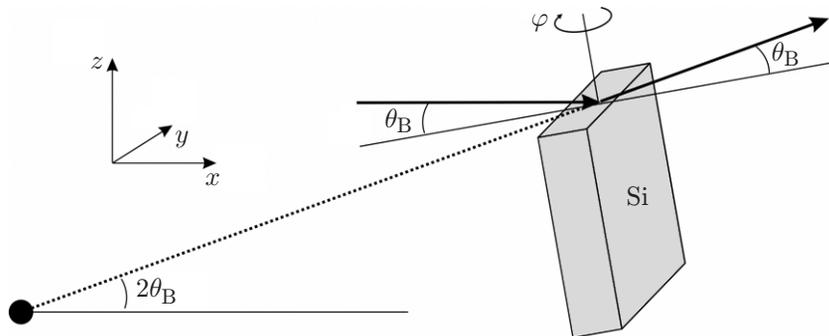


Рис. 6. Модель эксперимента

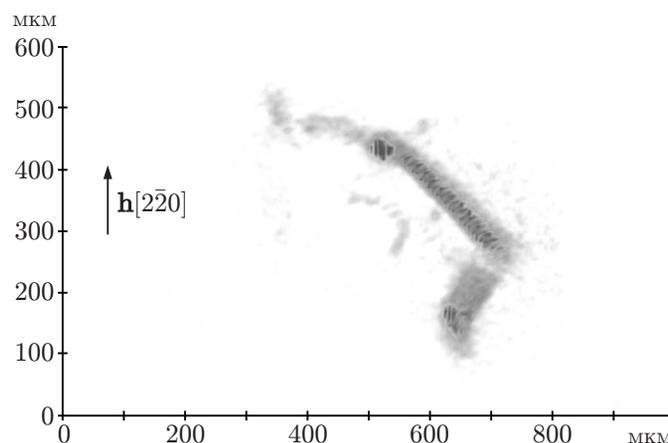


Рис. 7. Результаты трёхмерной реконструкции пространственного расположения единичной дислокационной полупетли в исследуемом кристалле кремния.

Пространственное разрешение равно 10 мкм

Обсуждение результатов. Отметим, что в отличие от традиционной абсорбционной томографии физическая модель эксперимента состоит в том, что каждый раз при повороте исследуемого кристалла на детекторе регистрируется интенсивность отражённого от него рентгеновского излучения в условии брэгговской дифракции, но прямой рентгеновский пучок на детектор не попадает. Это означает, что нужно решать задачу не трансмиссионным, а эмиссионным методом томографии, когда источники дифрагированного излучения находятся внутри и/или на поверхности изучаемого образца.

Для решения компьютерной задачи дифракционной томографии, а именно 3D-восстановления изображений дефектов кристаллической решётки, были введены следующие допущения. Во-первых, дифрагированное от образца излучение представляет собой параллельный пучок. Во-вторых, падающее на образец рентгеновское излучение равномерно засвечивает весь объект (образец). В-третьих, угол отражения (дифракции) относительно оси вращения сохраняется при повороте объекта и равен углу Брэгга θ_B . В-четвёртых, отражающая способность объекта r не является функцией угла поворота, а означает только функцию пространственных координат $r(x, y, z)$. При выполнении этих условий задачу можно решать методами традиционной (трансмиссионной) томографии.

Задачу томографии запишем в виде $C\mathbf{r} = \mathbf{p}$, где \mathbf{p} — вектор всех пикселей всех регистрируемых изображений; \mathbf{r} — вектор, содержащий значение искомой отражающей способности в каждой точке исследуемого объекта, которая подлежит определению; C — матрица, описывающая влияние каждого элемента объёма на каждый пиксель регистрируемых изображений. Матрица C определяется геометрией проводимых измерений. Задача поиска

вектора \mathbf{r} является обратной, т. е. по набору проекционных данных \mathbf{p} необходимо найти объект, описываемый \mathbf{r} , проекции $C\mathbf{r}$ которого наиболее похожи на экспериментальные проекционные данные \mathbf{p} . Различие между экспериментальными и рассчитанными проекциями будем вычислять по L_2 -норме. Математически это можно сформулировать в виде оптимизационной задачи

$$\|C\mathbf{r} - \mathbf{p}\|_2^2 \rightarrow \min_{\mathbf{r}}.$$

Численное решение данного уравнения производилось итерационным методом сопряжённых градиентов наименьших квадратов (CGLS — Conjugate Gradient for Least Squares), реализованным в пакете томографической реконструкции ASTRA Tomography Toolbox [15].

Расчёт элементов матрицы C облегчался предположениями, что отражённый пучок является параллельным и угол отражения относительно оси вращения сохраняется при повороте объекта. Это позволяет описать геометрию эксперимента как томографию в параллельном пучке при «виртуальном источнике» рентгеновского излучения, которое отклонено от оси вращения на угол $2\theta_B$ (рис. 6).

Результат 3D-восстановления изображения с применением метода сопряжённых градиентов наименьших квадратов представлен на рис. 7. Отчётливо прослеживается одиночная дислокационная полупетля, ранее выявленная при проведении синхротронных экспериментов на станции ID19. Следует отметить, что восстановленная картина исследуемых полупетель является плоской, т. е. группа одиночных дислокаций лежит в одной плоскости скольжения.

Заключение. С помощью метода рентгеновской дифракционной томографии с применением лабораторного источника рентгеновского излучения впервые определено пространственное расположение единичных дислокационных полупетель в кристалле Si (111). Это стало возможным благодаря усовершенствованию головки гониометра, применению автоматической юстировки образца, увеличению времени экспозиции, а также обработке томографических данных методом сопряжённых градиентов наименьших квадратов, реализованным в пакете ASTRA Tomography Toolbox.

Из проведённого исследования можно заключить, что определение изменения формы группы дислокационных полупетель на экспериментальных топограммах-проекциях требует высокого пространственного разрешения, а также увеличения соотношения сигнал/шум на уровне не менее 1000 : 1, что позволяет использовать синхротронные источники рентгеновского излучения.

Кроме того, в ряде практических случаев для анализа пространственного расположения отдельных дефектов, например их перемещений при различных внешних воздействиях на образец, полученный в лабораторном эксперименте результат является достаточным для идентификации дефектов и их перемещений.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Министерства высшего образования и науки РФ в рамках выполнения Государственного задания ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН (получение экспериментальных данных) и Российского фонда фундаментальных исследований (в части применения томографических алгоритмов, проект № 17-29-03492, и сегментации изображений, проект № 18-29-26036).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Baruchel J., Di Michiel M., Lafford T. et al. Synchrotron X-ray imaging for crystal growth studies // C. R. Phys. 2013. 14, N 2/3. P. 208–220.

2. **Боуэн Д. К., Таннер Б. К.** Высокораesрешающая рентгеновская дифрактометрия и топография. С.-Пб.: Наука, 2002. 274 с.
3. **Authier A.** Dynamical Theory of X-ray Diffraction. N. Y.: Oxford Univ. Press, 2001. 513 p.
4. **Black D. R., Long G. G.** X-Ray Topography. Material Science and Engineering Laboratory. Special publ. 960-10. Washington, 2004. 46 p.
5. **Шульпина И. Л., Прохоров И. А.** Рентгеновская дифракционная топография в физическом материаловедении // Кристаллография. 2012. **57**, № 5. С. 740–749.
6. **Kak A. C., Slaney M.** Principles of Computerized Tomographic Imaging. N. Y.: IEEE Press, 1988. 329 p.
7. **Ludwig W., Cloetens P., Härtwig J. et al.** Three-dimensional imaging of crystal defects by «topo-tomography» // Journ. Appl. Cryst. 2001. **34**. P. 602–607.
8. **Hänschke D., Helfen L., Altapova V. et al.** Three-dimensional imaging of dislocations by X-ray diffraction laminography // Appl. Phys. Lett. 2012. **101**. 244103.
9. **Hänschke D., Danilewsky A., Helfen L. et al.** Correlated three-dimensional imaging of dislocations: Insights into the onset of thermal slip in semiconductor wafers // Phys. Rev. Lett. **119**. 215504.
10. **Epelboin Y.** Simulation des trajets des champs d'ondes dans un cristal contenant une dislocation // Acta Cryst. 1975. **A 31**. P. 591–600.
11. **Беседин И. С., Чуховский Ф. Н., Асадчиков В. Е.** Исследование дифракционного контраста дислокаций в рентгеновской топо-томографии. Компьютерное моделирование и анализ изображений // Кристаллография. 2014. **59**, № 3. С. 365–373.
12. **Золотов Д. А., Бузмаков А. В., Елфимов Д. А. и др.** Возможность выявления пространственного расположения одиночных дислокаций методом топо-томографии на лабораторных установках // Кристаллография. 2017. **62**, № 1. С. 12–16.
13. **Asadchikov V., Buzmakov A., Chukhovskii F. et al.** X-ray topo-tomography studies of linear dislocations in silicon single crystals // Journ. Appl. Cryst. 2018. **51**, N 6. P. 1616–1622.
14. **Ерофеев В. Н., Никитенко В. И., Половинкина В. И. и др.** Исследования особенностей рентгенодифракционного контраста и геометрии дислокационных полупетель в кремнии // Кристаллография. 1971. **16**, № 1. С. 190–198.
15. **Van Aarle W., Palenstijn W. J., Cant J. et al.** Fast and flexible X-ray tomography using the ASTRA toolbox // Opt. Express. 2016. **24**, N 22. P. 25129–25147.

Поступила в редакцию 22.10.2018

После доработки 21.12.2018

Принята к публикации 09.01.2019