

# 测定离子注入单晶损伤与应变的 双晶 ( $n^o$ , $-n^o$ ) 排列方法

李 润 身

(中国科学院, 上海冶金研究所)

H. K. Wagenfeld and J. S. Williams

(Royal Melbourne Institute of Technology, Australia)

Stephen Wilkins and Andrew Stevenson

(CSIRO, Division of Material Science and Technology, Australia)

1988年12月5日收到  
依据双晶摇摆曲线的形成原理, 提出了一种高分辨率, 高灵敏度的测定离子注入单晶损伤与应变的双晶 ( $n^o$ ,  $-n^o$ ) 排列方法。考虑到掠入射情形的色散效应, 对掠射角的选择进行了讨论。对 Ga 注入 Si 单晶样品的测定证实了 ( $n^o$ ,  $-n^o$ ) 排列的优越性, 摆摆曲线上得到了未曾见过的细微振荡。

**主题词** 硅, 离子注入, 双晶衍射, 摆摆曲线, X 射线衍射

## 一、引言

双晶摇摆曲线对晶格畸变有极高的灵敏度, 加之其对样品的非破坏性, 使其成为研究晶格畸变的有效方法。如用于测定各种外延晶片的点阵错配, 晶面弯曲, 应用双晶貌相法研究晶格的微畸变等。近年来, 双晶摇摆曲线被进一步应用到离子注入单晶应变与损伤的测定。在这种情形下, 畸变层厚度只有几百埃至几千埃, 而且应变与损伤随深度变化, 使损伤与应变的测定变得困难复杂。Akira Fukuhara (1977)<sup>[1]</sup>, V. S. Speriosu (1981)<sup>[2]</sup>, C. R. Wie (1986)<sup>[3]</sup> 等人提出的理论模型开辟了解决这一问题的途径。依据这些理论模型可以解释复杂的摇摆曲线线形, 配合使用计算机拟合方法还可得到应变与损伤随深度的定量分布。在计算机拟合过程中, 必须使用样品本征的反射系数曲线, 为此, 人们在双晶排列方法上也做了改进, 除了对称的 ( $n^o$ ,  $-n^o$ ) 排列外<sup>[4-7]</sup>, 又采用了 ( $n^o$ ,  $-n'$ ) 排列<sup>[8-10]</sup>。为了提高探测畸变的灵敏度, A. L. Golovin 等人<sup>[11]</sup>应用了全反射 (TRD) 和倾斜 Bragg 反射 (IBD) 方法。( $n^o$ ,  $-n'$ ) 方法通过窄化第一晶体反射线束角宽度来提高测定样品(第二晶体)反射系数曲线的分辨率, 但对提高探测畸变的灵敏度却没有作用。TRD 与 IBD 方法虽然提高了探测畸变的灵敏度, 但却难以得到近于本征的样品反射系数曲线, 给摇摆曲线的分析带来困难。这里介绍的双晶 ( $n^o$ ,  $-n^o$ ) 排列方法, 通

过窄化第一晶体反射线束角宽度，同时展宽样品反射系数曲线而得到更加近于样品本征反射系数曲线的双晶摇摆曲线。这种排列也大大提高了来自样品畸变层的衍射强度，增加了探测畸变的灵敏度。对 Ga 注入 Si 单晶样品的测定说明了 ( $n^\circ, -n^\circ$ ) 排列的优越性。

## 二、原 理

依照完整晶体的  $\alpha$  射线衍射动力学理论， $\alpha$  射线在晶体上衍射并不在严格的 Bragg 角位置，衍射也不只发生在一个确定的角度，而是发生在稍稍偏离 Bragg 角的一定角范围。对于 Bragg 情形，对于一定波长而言，在一确定的入射方向上被晶体反射的  $\alpha$  射线强度对入射  $\alpha$  射线强度之比定义为该晶体对这一波长，这一入射方向上  $\alpha$  射线的反射系数。而反射系数随入射方向变化的曲线(Darwin 曲线)称为该晶体对相应波长  $\alpha$  射线的反射系数曲线，在下面的讨论中简称其为 R 曲线。对于完整晶体，R 曲线可由动力学有关公式精确计算出来<sup>[12]</sup>。其半高宽由下式确定，

$$(\Delta\varphi_q)_0 = \frac{2|C|e^2\lambda^2F(h)}{(sin2\theta_0) \cdot mc^2\pi\nu} \left( \frac{|\gamma_h|}{\gamma_0} \right)^{1/2} \quad (1)$$

同时，反射光束对相应的入射光束而言也并不严格分布在以衍射面成镜面反射的方向上。现定义反射系数随反射方向变化的曲线为反射 R 曲线，或简称其为 R' 曲线。R' 曲线有与 R 曲线相似的线型，其半高宽为，

$$(\Delta\varphi_q)_h = \frac{2|C| \cdot e^2\lambda^2F(h)}{(sin2\theta_0)mc^2\pi\nu} \left( \frac{\gamma_0}{|\gamma_h|} \right)^{1/2} \quad (2)$$

(1), (2) 式中  $C$  为偏振因子， $m$ ， $e$  分别为电子的静止质量与电荷， $\lambda$  为  $\alpha$  射线波长， $\nu$  为晶体的单胞体积， $F(h)$  为晶体结构因数。 $\gamma_0$ ， $\gamma_h$  分别为入射波矢，衍射波矢与晶体表面上法线夹角的余弦。 $c$  为光速， $\theta_0$  为 Bragg 角。 $R'$  曲线与 R 曲线半高宽的比为，

$$\frac{(\Delta\varphi_q)_h}{(\Delta\varphi_q)_0} = \frac{\gamma_0}{|\gamma_h|} = b \quad (3)$$

$b$  称为不对称因子。

上述定义更加明确的物理意义是：R 曲线描述了晶体对入射线反射能力随入射方向的分布，R' 曲线描述了反射线强度随反射方向的分布。在对称反射情形， $\gamma_0 = |\gamma_h|$ ，R 与 R' 曲线具有全同的线形。而在不对称情形， $(\Delta\varphi_q)_0$  与  $(\Delta\varphi_q)_h$  可以有很大差别，即  $\alpha$  射线角范围可以通过晶体反射后产生很大变化，这决定于  $b$  的大小。

当晶体发生畸变时，其 R 曲线与 R' 曲线将产生相应的变化，但二者的宽度仍保持(3)式所确定的比例。晶体的畸变包括晶体中原子无规则的位移，称其为损伤；还有原子的规则位移，相当于点阵参数的变化，称其为应变。另外晶体尺寸缩小也是对理想完整状态的偏离。这三种畸变都将引起晶体 R 曲线和 R' 曲线产生变化，以致产生若干次峰。W. H. Zachariasen<sup>[12]</sup> 在其著作中详细论述了薄晶体 R 曲线若干次极大值的形成。我们正是通过测定晶体 R 曲线的变化求出晶体的畸变参数。关于从晶体 R 曲线求得晶体畸变参数的方法，以及损伤与应变对 R 曲线的影响，V. S. Speriosu 与 C. R. Wie 的文章已做

了详细的叙述，下面将要讨论如何得到晶体的  $R$  曲线。

在 X 射线激光得到之前，双晶衍射是测定单晶  $R$  曲线的唯一有效方法。在下面的讨论中应用了 Renninger<sup>[13]</sup> 引入的符号  $V$ 、 $R$ 、 $S$ ，分别表示 X 射线对晶体的掠入射，掠出射和对称反射。在双晶排列中，第一晶体选用极近完整的晶体，第二晶体为样品。依照动力学 DuMond 图分析方法<sup>[14]</sup>，双晶摇摆曲线由第一晶体的反射 DuMond 图与第二晶体的人射 DuMond 图平移交迭确定。在非色散的双晶排列情形，可以简单地认为双晶摇摆曲线为第一晶体  $R'$  曲线与第二晶体  $R$  曲线卷积形成。图 1 示意地表示了这一卷积过程。显然，一般情况下双晶摇摆曲线即不同于第二晶体  $R$  曲线，也不同于第一晶体  $R'$  曲线。只有当第一晶体相当完整，从而其  $R'$  曲线具有简单的单一峰形，而且其半高宽很小时，或者更确切地说，其  $R'$  曲线相对第二晶体  $R$  曲线很窄时，才能得到近于第二晶体  $R$  曲线的双晶摇摆曲线。

如果已知第一晶体的  $R'$  曲线，则可通过解卷积，由双晶摇摆曲线求出第二晶体  $R$  曲线。这要求精确知道第一晶体的  $R'$  曲线，解卷积也是一复杂费时的工作，所以人们采用了  $(n^v, -n^v)$  双晶排列。在这种排列情形，X 射线对第一晶体呈掠入射，(2) 式中的  $(r_0/|\gamma_h|)^{1/2}$  变小，得到半高宽很小的  $R'$  曲线。与  $(n^v, -n^v)$  双晶排列比较，其第一晶体  $R'$  曲线相对第二晶体  $R$  曲线窄化了  $(|\gamma_h|/\gamma_0)^{1/2}$  倍。

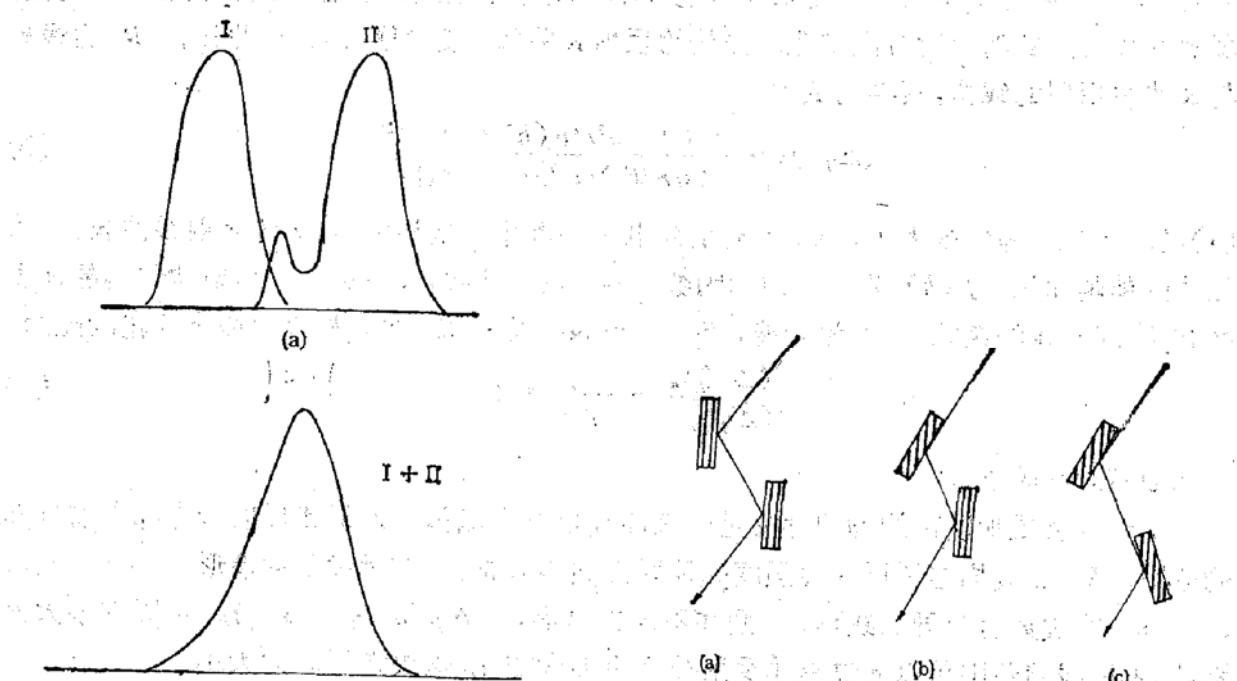


图 1 非色散情形双晶摇摆曲线的形成：(a) 曲线 I 与 II；(b) 曲线 I 与 II 的卷积曲线；图 2 双晶的三种排列：(a)  $(n^v, -n^v)$  排列，(b)  $(n^v, -n^v)$  排列，(c)  $(n^v, -n^v)$  排列。

这里采用了  $(n^v, -n^v)$  双晶排列。与  $(n^v, -n^v)$  排列相同的是，它使第一晶体  $R'$  曲线窄化了  $(|\gamma_h|/\gamma_0)^{1/2}$  倍，同时，由于 X 射线对第二晶体也为掠入射，使第二晶体  $R$  曲线宽化了  $(|\gamma_h|/\gamma_0)^{1/2}$  倍，这可由公式 (1) 看出。假定在所有情形下  $\gamma_0, \gamma_h$  都相同，那么与  $(n^v, -n^v)$  双晶排列比较，在  $(n^v, -n^v)$  排列情形，第一晶体  $R'$  曲线相

对第二晶体  $R$  曲线窄化了  $|\gamma_h|/\gamma_0$  倍。所以其双晶摇摆曲线将更加近于第二晶体  $R$  曲线。图 2(a), (b), (c) 分别表示了  $(n^\circ, -n^\circ)$ ,  $(n^\circ, -n^\circ)$ ,  $(n^\circ, +n^\circ)$  排列几何。

离子注入单晶畸变层厚度一般只有几百埃至几千埃，来自畸变区的衍射强度只有非畸变区主峰的千分之几至百分之几，极易被噪声淹没，所以提高来自畸变区的衍射强度也是测定离子注入单晶损伤与应变的关键问题。解决这一问题的方法之一是在测量衍射强度时采用定点计数，增加每一测量点的计数时间。无规波动的噪声随计数时间的增加而趋于稳定，而衍射信号则随计数时间增加而加强。当计数时间增加到使噪声的波动远小于衍射信号时，才能得到有用的衍射信号，依此原则，可以恰当地选定每点的计数时间。提高畸变层衍射强度的另一有效方法便是在样品上采用掠入射几何。这使得对于同一深度而言，X 射线入射路径增加，真吸收增强，从而增加来自晶体表层的衍射强度。这在多晶膜的研究中已被广泛应用，在单晶情形下，其作用将更加明显。(4) 式为由初级消光确定的单晶线吸收系数表达式<sup>[1]</sup>，

$$\sigma_e = \frac{2\pi |C| \cdot |\phi_h|}{\lambda (\gamma_0 \cdot |\gamma_h|)^{1/2}} (1 - P^2)^{1/2} \quad (4)$$

式中  $\lambda$  为 X 射线波长， $P$  为相对 Bragg 角的偏离参数， $\phi_h$  为与晶体结构因数，X 射线波长等有关的常数。显然在掠入射情形下， $\gamma_0$  变小而导致  $\sigma_e$  增大。所以  $(n^\circ, -n^\circ)$  双晶排列不仅提高了测定样品  $R$  曲线的分辨率，而且同时也提高了探测畸变的灵敏度。另外，第一晶体一般不需要特殊制备，只要选用与样品相同的未经注入的近完整单晶。当然，在  $(n^\circ, -n^\circ)$  排列情形衍射面的选择要受到晶体结构与取向的限制。

### 三、实 验

测量的样品为 Ga 离子注入的 (100) 取向 Si 单晶，离子能量为 100keV，剂量为  $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ ，样品经  $600^\circ\text{C}$  20 秒快速退火。图 3 为  $(n^\circ, -n^\circ)$  排列，(113) 反射双晶

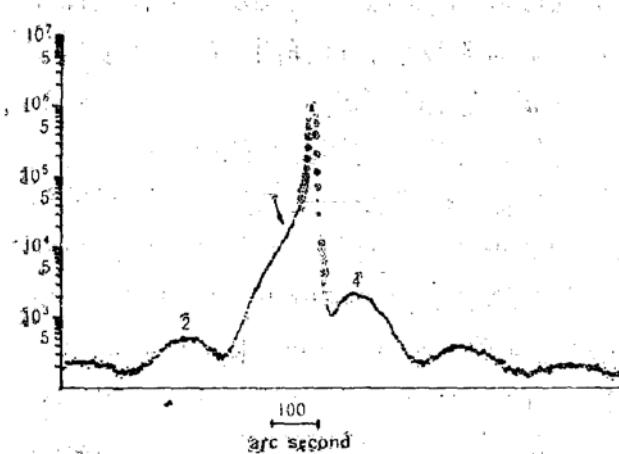


图 3 Ga 离子注入 Si 单晶的  $(n^\circ, -n^\circ)$  双晶排列 (113) 反射摇摆曲线

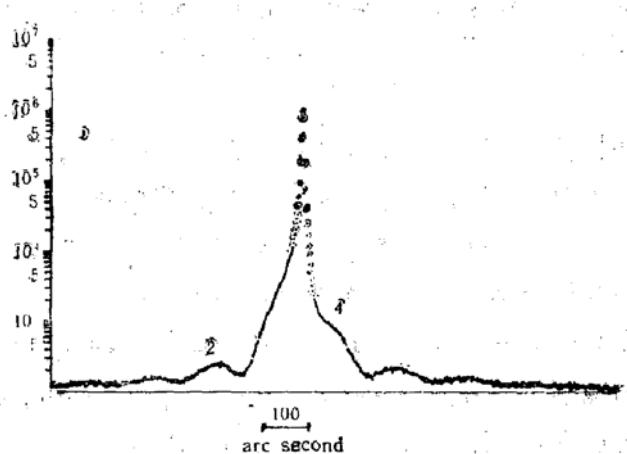


图 4 图 3 中同一样品的  $(n^\circ, -n^\circ)$  双晶排列 (400) 反射摇摆曲线

摇摆曲线。图 4 为  $(n^\circ, -n^\circ)$  排列，(400) 反射双晶摇摆曲线。由离子注入形成的晶体表层损伤与应变随深度变化的畸变薄膜层，使摇摆曲线上出现若干次峰。由于这些次峰

的强度比来自晶体完整区的主峰低两个量级以上，图3与图4中纵向X射线强度坐标为计数的对数。如果强度坐标采用计数或计数率，又让主峰完全在图范围内，那将如常规的扫描方法测定摇摆曲线一样而难以发现那些极弱的次峰。这里采用的 $(n^e, -n^e)$ 排列中， $b = 0.0625$ ，与 $(n^e, -n^e)$ 排列比较，第一晶体 $R'$ 曲线相对样品 $R$ 曲线窄化了16倍。比较图3与图4，并以峰2与峰4为例，可以明显看出，峰2相对主峰的强度在图3中比图4中高近三倍。峰的分辨率更有明显提高，峰4在图3中与主峰明显分开了，而且在箭头所示位置看到了细微的振荡。关于复杂的摇摆曲线的成因及晶体应变与损伤的定量结果我们将另文讨论，而箭头所示的细微振荡，目前还不能很好解释。

#### 四、讨 论

上面已说明了 $(n^e, -n^e)$ 双晶排列的优越性，但对确定的样品晶体，掠射角往往不能随意选择，而要依X射线波长及晶体结构、取向在几种可能的衍射面间选择。在这种情形下，也并非掠射角越小越好，而要避免色散的发生。

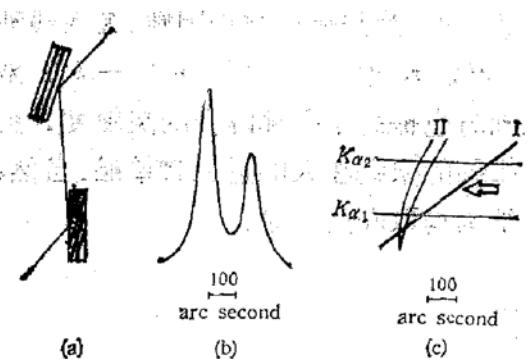


图5 双晶 $(n, -n)$ 排列色散的实例，(a) 双晶排列几何，两晶体都为 $(220)$ 反射，(b) 为测定的双晶摇摆曲线，(c) 为动力学 DuMond 图分析，I 示第一晶体反射 DuMond 图，II 示第二晶体入射 DuMond 图，两条横线对应  $K_{a1}$  与  $K_{a2}$  波长，摇摆曲线由 I, II 平移交迭而成

在 $(n^e, -n^e)$ 排列情形中，第一晶体与第二晶体采用相同的衍射面，一般称其为非色散排列。但当X射线对第二晶体的掠射角很小时，可能有明显色散发生，李润身与许顺生曾对这种色散做过描述<sup>[16]</sup>。图5为这种色散的一个例子。图中第一、第二晶体皆为硅单晶， $CuK_\alpha$  线束相继在两块晶体上的 $(220)$ 面反射。但第一晶体加工为 $(110)$ 表面取向，X射线做 $(220)$ 对称反射。第二晶加工成表面偏离 $(110)$ 面一定角度，使 $CuK_\alpha$  x射线以约150弧度秒的小掠射角射到第二晶体表面做 $(220)$ 非对称反射。这样两个晶体形成属于 $(n, -n)$ 类型的 $(n^e, -n^e)$ 排列。这时在摇摆曲线上 $CuK_{a1}$ 与 $CuK_{a2}$ 峰明显分开了。色散的发生给摇摆曲线的分析带来极大的困难，这时，摇摆曲线已不再能简单地看成是第一晶体 $R'$ 曲线与第二晶体 $R$ 曲线的卷积，而必须应用图5(c)所示的动力学 DuMond 图分析方法，对每一波长进行卷积再对波长进行积分，这是个极为复杂的数学问题。所以对第二晶体的掠射角应当选在没有可观测的色散的角度范围。对于具体的样品，应先绘出其动力学 DuMond 图，再确定恰当的掠射角。关于X射线对第一晶体掠射角的选择不存在色散问题的限制，因为利用的是其反射线束。所以可选择相当小的掠射角以尽量窄化其“ $R'$ ”曲线，但要大于晶体相应的表面全反射角 $\theta_c$ ，以避免衍射强度的损失。

另外，在第一晶体上采用掠入射几何将使X射线束宽度扩大至 $|\gamma_h|/\gamma_0$ 倍。如果样品太小或放置不当将可能使X射线射到样品边缘上，这将引起复加的色散，或称为边缘效应。对此我们将另文详细讨论。所以对于较小的样品，应使用光阑限制第一晶体反射束

宽度并准确放置样品。

( $n^o$ ,  $-n^o$ ) 双晶排列不仅可应用于离子注入单晶损伤与应变的测定, 也适用于超晶格等其它情形单晶表层结构缺陷的研究。

### 参 考 文 献

- [1] Akira Fukuhara and Yukio Takano *Acta Cryst.*, **A33**, 137 (1977).
- [2] V. S. Speriosu *J. Appl. Phys.*, **52**(10), 6094 (1981).
- [3] C. R. Wie, T. A. Tombrello and T. Vreeland, Jr., *J. Appl. Phys.*, **59**(11), 3743 (1986).
- [4] Akira Fukuhara, Yukio Takano, Mitsuo Namba and Michiyosi Maki, *J. Appl. Cryst.*, **13**, 31 (1980).
- [5] V. S. Speriosu, H. L. Glass and T. Kobayashi, *Appl. Phys. Lett.*, **34**(9), 539 (1979).
- [6] D. P. Lecroisier and G. P. Pelous, *Appl. Phys. Lett.*, **30**(3), 141 (1977).
- [7] V. S. Speriosu, B. M. Paine, and M-A. Nicolet, *Appl. Phys. Lett.*, **40**(7), 604 (1982).
- [8] R. N. Kyutt, P. V. Petrashev, and L. M. Sorokin, *Phys. Stat. Sol. (a)*, **60**, 381 (1980).
- [9] E. Zielinska-Rohozinska, *Phys. Stat. Sol. (a)*, **44**, 59 (1977).
- [10] V. E. Baturin, M. V. Kovalchuk, E. K. Kovev and V. E. Palapis, *Sov. Phys. Crystallogr.*, **22**, 79 (1977).
- [11] A. L. Golovin, R. M. Imamov and E. A. Kondrashkina, *Phys. Stat. Sol. (a)*, **88**, 505 (1985).
- [12] William H. Zachariasen, "Theory of X-ray Diffraction in Crystal", New York 1946, 140—141.
- [13] M. Renninger, *Adv. X-ray Anal.*, **10**, 32 (1966).
- [14] Xu Shunsheng (S. S. Hsu) and Li Runshen, *J. Appl. Cryst.*, **21**, 213 (1988).
- [15] R. W. James, *Solid State Phys.*, **15**, 118 (1963).
- [16] Li Runshen and Xu Shunsheng, *J. Appl. Cryst.*, **21**, (1988).

## Method of Double Crystal in ( $n^o$ , $-n^o$ ) Setting for Determining Strain and Damage Distribution in Ion-Implanted Crystal

LI Runshen

(Shanghai Institute of Metallurgy, Academia sinica)

H. K. Wagenfeld, J. S. Williams

(Royal Melbourne Institute of Technology, Australia)

STEPHEN Wilkins and ANDREW Stevenson

(CSIRO, Division of Material Science and Technology, Australia)

### Abstract

A double crystal diffraction method with two crystals arranged in ( $n^o$ ,  $-n^o$ ) is suggested according to the formation mechanism of rocking curves. The method has a high resolution and a high sensitivity in the determination of damage and strain in crystals implanted by ions. The limit for choosing glancing angle of X-rays on crystal is discussed considering dispersion effects. The superiorities of the method are proved in the investigation of the silicon crystal implanted by gallium ions. A fine oscillation which has not been reported is observed on the rocking curve.

**KEY WORDS**

Silicon, Ion-implanted, Double-crystal X-ray diffraction, Rock-

ingcurve, X-ray diffraction