

## Асимметричная рентгеновская дифракция ограниченных пучков в кристаллах

С. И. Колосов, Д. М. Мальков, В. И. Пунегов

Физико-математический институт ФИЦ Коми НЦ УрО РАН,  
г. Сыктывкар

kolos@ipm.komisc.ru  
dimamalkov93@mail.ru  
vpunegov@ipm.komisc.ru

### Аннотация

Теоретически исследована асимметричная динамическая дифракция ограниченных рентгеновских пучков в кристаллах с применением уравнений Такаги-Топена, включая численное решение с использованием узловой сетки и вычисления рентгеновских полей в Фурье пространстве. Выполнено моделирование карт распределения интенсивности рассеяния от кристалла кремния вблизи узла обратной решетки в зависимости от размеров рентгеновских пучков.

### Ключевые слова:

асимметричная динамическая дифракция, ограниченные рентгеновские пучки, карты углового распределения интенсивности рассеяния в обратном пространстве

### Введение

Обычно при рассмотрении динамической теории дифракции в идеальном кристалле предполагается, что на поверхность образца падает неограниченная плоская рентгеновская волна [1]. Такая модель удобна, поскольку в уравнениях Такаги-Топена [2, 3], записанных в прямоугольной системе координат, сразу отбрасывается производная вдоль латерального направления, при этом дифракционная задача становится одномерной. С развитием метода высокоразрешающей трехосевой дифрактометрии [4] анализ углового распределения интенсивности рассеяния преимущественно выполняется с использованием карт в обратном пространстве (reciprocal space maps, RSM). Однако при условии бесконечно широкого фронта падающей рентгеновской волны угловое распределение интенсивности когерентного рассеяния в обратном пространстве вдоль горизонтальной оси сводится к  $\delta$ -функции, что делает невозможным визуализацию дифракционной картины на карте RSM. С другой стороны, в реальном эксперименте как падающий, так и дифракционно отраженный рентгеновский пучок латерально ограничен наличием имеющихся щелей и коллиматоров.

Ранее была разработана динамическая теория дифракции пространственно ограниченных рентгеновских

## Asymmetric X-ray diffraction of confined beams in crystals

S. I. Kolosov, D. M. Malkov, V. I. Punegov

Institute of Physics and Mathematics,  
Federal Research Centre Komi Science Centre, Ural Branch, RAS,  
Syktyvkar

kolos@ipm.komisc.ru  
dimamalkov93@mail.ru  
vpunegov@ipm.komisc.ru

### Abstract

Asymmetric dynamic diffraction of confined X-ray beams in crystals has been theoretically studied using Takagi-Taupin equations, including numerical solution using nodal grid and calculations of X-ray fields in Fourier space. We have fulfilled simulation of scattering intensity distribution maps from silicon crystal near reciprocal lattice site depending on size of X-ray beams.

### Keywords:

asymmetric dynamic diffraction, limited X-ray beams, angular distribution maps of reciprocal space scattering intensity

пучков в совершенных кристаллах [5, 6]. Для простоты рассмотрение выполнено для симметричной брэгговской дифракции. Однако не менее важную роль играет изучение асимметричной рентгеновской дифракции [7]. Например, для получения почти параллельного синхротронного пучка от ондуляторного источника применялась дифракционная схема с последовательными ассиметричными отражениями [8]. Кроме того, ассиметричная дифракция широко используется для анализа процессов релаксации в эпитаксиальных слоях полупроводниковых материалов [9].

Цель настоящей работы состоит в анализе асимметричной динамической дифракции ограниченных рентгеновских пучков в кристалле в зависимости от размеров щелей в падающем и отраженном направлениях на основе уравнений Такаги-Топена [2, 3].

### 1. Решение для асимметричной дифракции в Фурье пространстве

Для описания асимметричной динамической дифракции рентгеновского пучка в кристалле введем прямоугольную систему координат (рис. 1), оси  $x$  и  $y$  которой параллельны входной поверхности, а ось  $z$  направлена вглубь

кристалла, при этом  $xOz$  – плоскость дифракции. Пусть рентгеновская волна падает на поверхность кристалла под углом  $\theta_1$ . Поперечный размер  $w_1$  рентгеновской волны ограничен щелью  $S_1$ , которая расположена на расстоянии  $L_{S1}$  до поверхности кристалла. Начало координат находится в центре падающего рентгеновского пучка.

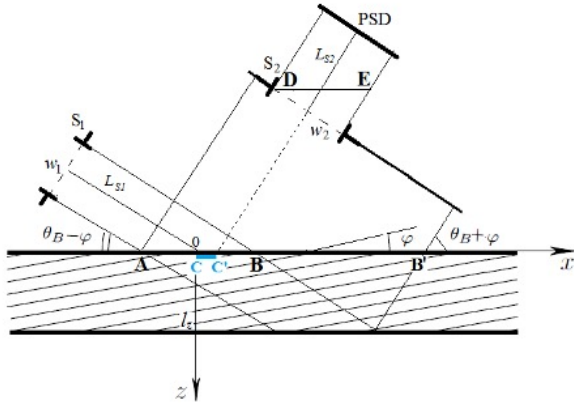


Рисунок 1. Схема асимметричной дифракции рентгеновского пучка, ограниченного щелью  $S_1$  шириной  $w_1$ , падающего на кристалл толщиной  $l_z$ . Дифракционная волна ограничена щелью  $S_2$ , ширина которой  $w_2$ . Дифракционная интенсивность регистрируется позиционно чувствительным детектором (PSD) или системой анализатор-детектор. Щель  $S_2$  может сдвигаться на расстояние  $l_x^{(sh)}$  (отрезок CC) вдоль оси  $x$ .  
Figure 1. Scheme of asymmetric X-ray beam diffraction, limited by a slit  $S_1$  of width  $w_1$ , incident on the crystal thickness  $l_z$ . The diffraction wave is limited by the gap  $S_2$ , whose width is  $w_2$ . Diffraction intensity is recorded with a position sensitive detector (PSD) or analyzer-detector system. The slit  $S_2$  can shift by a distance  $l_x^{(sh)}$  (segment CC) along the  $x$  axis.

Ширина освещения поверхности кристалла падающим рентгеновским пучком ограничена щелью  $S_1$  и равна  $l_x^{(in)} = w_1 / \sin \theta_1$ . Проекция поперечного размера выходящего из кристалла полного дифракционного излучения равна  $L_x^{(ex)}$ . Это излучение пространственно ограничивается щелью  $S_2$ , поперечный размер которой  $w_2$ . Расстояние от этой щели до позиционно чувствительного детектора или системы анализатор-детектор составляет  $L_{S2}$ . Проекция поперечного размера, проходящего через щель  $S_2$  рентгеновского пучка без учета дифракции на краях щели (приближение геометрической оптики), равна  $l_x^{(ex)} = w_2 / \sin \theta_B$  (рис. 1). Амплитуды рентгеновских волн зависят от координат  $(x, z)$ , при этом предполагается, что по координате  $y$ , перпендикулярной плоскости дифракции  $(x, z)$ , рентгеновское поле однородно и проинтегрировано по координате  $y$ . Уравнения Такаги-Топена [2, 3] в прямоугольной системе координат запишутся как

$$\begin{aligned} \left( \operatorname{ctg} \theta_1 \frac{\partial}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial z} \right) E_0(\eta; x, z) &= \\ &= ia_0 E_0(\eta; x, z) + ia_{-h} E_h(\eta; x, z), \\ \left( \operatorname{ctg} \theta_2 \frac{\partial}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial z} \right) E_h(\eta; x, z) &= \\ &= i(ba_0 + \eta) E_h(\eta; x, z) + ia_h E_0(\eta; x, z), \end{aligned} \quad (1)$$

где  $\theta_{1,2} = \theta_B \mp \varphi$  – углы между нормалью к поверхности и падающим и отраженным пучком соответственно,  $\varphi$  – угол асимметрии. В системе уравнений (1) присутствуют следующие параметры:  $a_0 = \pi \chi_{00} / (\lambda \gamma_0)$ ,  $a_{h,\bar{h}} =$

$C \pi \chi_{h,\bar{h}} / (\lambda \gamma_{h,0})$ ,  $\gamma_{0,h} = \sin \theta_{1,2}$ ,  $b = \gamma_0 / \gamma_h$  – фактор асимметрии. Угловая переменная  $\eta = (k / \gamma_h) \sin(2\theta_B) \omega$  обычно используется в двухкристальной дифрактометрии в режиме  $\theta - 2\theta$  сканирования,  $\omega = \theta - \theta_B$  – отклонение падающей под углом  $\theta$  рентгеновской волны от угла Брэгга  $\theta_B$ ,  $k = 2\pi / \lambda$  – волновое число,  $\lambda$  – длина волны рентгеновского излучения в вакууме,  $C$  – поляризационный фактор,  $\chi_g = -r_0 \lambda^2 F_g / (\pi V_c)$  ( $g = 0, h, \bar{h}$ ) – Фурье-компоненты рентгеновской поляризуемости,  $V_c$  – объем элементарной ячейки,  $r_0 = e^2 / (mc^2)$  – классический радиус электрона,  $e, m$  – заряд и масса электрона,  $F_g$  – структурный фактор.

Амплитуды рентгеновских волн  $E_{0,h}(\eta; x, z)$  зависят от координат  $(x, z)$ , при этом предполагается, что по координате  $y$ , перпендикулярной плоскости дифракции  $(x, z)$ , рентгеновское поле однородно и проинтегрировано по координате  $y$ .

Отметим, что в рассматриваемом случае в системе уравнений (1) нельзя пренебрегать производной по координате  $x$ , поскольку как падающая, так и отраженная волны пространственно ограничены в этом направлении.

После выполнения Фурье преобразования амплитуд рентгеновских полей в системе уравнений (1)

$$\begin{aligned} E_{0,h}(\eta; x, z) &= \\ &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk \exp(ikx) \hat{E}_{0,h}(k, \eta; z), \end{aligned} \quad (2)$$

где Фурье образы имеют вид

$$\begin{aligned} \hat{E}_{0,h}(k, \eta; z) &= \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} dx \exp(-ikx) E_{0,h}(\eta; x, z), \end{aligned} \quad (3)$$

получаем одномерные уравнения дифракции в Фурье пространстве [5]:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{E}_0(k, \eta; z)}{\partial z} &= \\ &= i(a_0 - k \operatorname{ctg} \theta_1) \hat{E}_0(k, \eta; z) + ia_{\bar{h}} \hat{E}_h(k, \eta; z), \\ - \frac{\partial \hat{E}_h(k, \eta; z)}{\partial z} &= ia_h \hat{E}_0(k, \eta; z) + \\ &+ i(ba_0 + \eta - k \operatorname{ctg} \theta_2) \hat{E}_h(k, \eta; z). \end{aligned} \quad (4)$$

Используя граничные условия [5] для амплитуды дифракционной рентгеновской волны, получаем

$$\begin{aligned} \hat{E}_h(q_x, q_z) &= \\ &= \frac{a_h}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk \frac{\exp(i\xi l_z) - 1}{Q} Y_{in}(k) Y_{ex}(k - q_x), \end{aligned} \quad (5)$$

где  $l_z$  – толщина кристалла,  $\xi = \sqrt{\psi^2 - 4a_h a_{\bar{h}}}$ ,  $\psi = (1+b)a_0 + \eta - k(\operatorname{ctg} \theta_1 + \operatorname{ctg} \theta_2)$ ,  $Q = \xi_1 \exp(i\xi l_z) - \xi_2$ ,  $\xi_{1,2} = (-\psi \pm \xi) / 2$ ,  $\eta = q_x \operatorname{ctg} \theta_B - q_z$ . Граничные коэффициенты имеют вид  $Y_{in}(k) = \frac{\sin(l_x^{(in)} k / 2)}{l_x^{(in)} k / 2}$ ,  $Y_{ex}(k - q_x) = \frac{\sin(l_x^{(ex)} [k - q_x] / 2)}{l_x^{(ex)} [k - q_x] / 2}$ . Проекция отклонения вектора дифракции от узла обратной решетки  $q_x$  и  $q_z$  связаны с углом

поворота образца  $\omega$  и анализатора  $\varepsilon$  следующими соотношениями:  $q_x = (2\pi/\lambda)[(\sin \theta_1 + \sin \theta_2)\omega - \sin \theta_2 \cdot \varepsilon]$ ,  $q_z = -(2\pi/\lambda)[\cos \theta_2 \cdot \varepsilon + (\cos \theta_1 - \cos \theta_2)\omega]$ .

## 2. Численное решение уравнений Такаги-Топена

Теперь применим численные методы для решения данной задачи, а именно используем метод Рунге-Кутты четвертого порядка точности. Для этого перепишем уравнения Такаги-Топена (1) в эквивалентном, но более удобном виде для численного интегрирования по оси  $x$ :

$$\begin{aligned} & \left( \frac{\partial}{\partial x} + \operatorname{tg} \theta_1 \frac{\partial}{\partial z} \right) E_0(x, z) = \\ & = \frac{i\pi}{\lambda \cos \theta_1} \chi_0 E_0(x, z) + \frac{i\pi}{\lambda \cos \theta_1} \chi_{-g} E_h(x, z), \\ & \left( \frac{\partial}{\partial x} - \operatorname{tg} \theta_2 \frac{\partial}{\partial z} \right) E_h(x, z) = \\ & = \frac{i\pi}{\lambda \cos \theta_2} (\chi_0 - \alpha) E_h(x, z) + \frac{i\pi}{\lambda \cos \theta_2} \chi_g E_0(x, z), \end{aligned} \quad (6)$$

где  $\theta_1 = \theta_B - \varphi$ ,  $\theta_2 = \theta_B + \varphi$ ,  $\alpha = -2 \sin 2\theta_B \Delta\theta$ .

Граничные условия для данной задачи:  $E_0(x, z = 0) = 1$  при  $0 \leq x \leq l$ , иначе  $E_0(x, z = 0) = 0$ ,  $E_h(x, z = L_z) = 0$ , где  $L_z$  – толщина кристалла,  $l$  – ширина засветки падающего пучка на поверхности кристалла.

Для численного интегрирования введем разностную сетку вдоль оси  $z$ :

$$\begin{aligned} z_n &= n \cdot \Delta z, \quad n = 0 \dots N_z, \quad z_0 = 0, \\ z_{N_z} &= L_z, \quad \Delta z = L_z/N_z, \end{aligned}$$

и аппроксимируем производные по  $z$  в каждом узле сетки  $z_n$  следующими выражениями

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial E_0(x, z)}{\partial z} \right)_{z=z_n} &\approx \frac{E_0(x, z_{n+1}) - E_0(x, z_{n-1})}{2\Delta z}, \\ \left( \frac{\partial E_h(x, z)}{\partial z} \right)_{z=z_n} &\approx \frac{E_h(x, z_{n+1}) - E_h(x, z_{n-1})}{2\Delta z}. \end{aligned} \quad (7)$$

Эти аппроксимации имеют второй порядок точности. На границах  $z = 0$  и  $z = L_z$  аппроксимации такого же порядка точности будут иметь вид

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial E_h(x, z)}{\partial z} \right)_{z=0} &\approx \\ &\approx \frac{4E_h(x, z_1) - 3E_h(x, z_0) - E_h(x, z_2)}{2\Delta z}, \\ \left( \frac{\partial E_0(x, z)}{\partial z} \right)_{z=L_z} &\approx \\ &\approx \frac{E_0(x, z_{N_z-2}) - 4E_0(x, z_{N_z-1}) + 3E_0(x, z_{N_z})}{2\Delta z}. \end{aligned} \quad (8)$$

Хотя разностные производные на сетке  $z_n$  были взяты второго порядка точности, так что полная численная схема не даст четвертый порядок точности, но схема Рунге-Кутты IV позволит выбирать более крупные шаги интегрирования

вдоль оси  $x$  в пределах интервала устойчивости, который для нашей схемы выглядит так:

$$\frac{\Delta x}{\Delta z} \leq \operatorname{ctg} \theta_B.$$

Подставив выражения (7) и (8) в систему уравнений Такаги (6), получим систему  $2N_z$  обыкновенных дифференциальных уравнений первого порядка по переменной  $x$ , которую решаем численно методом Рунге-Кутты четвертого порядка точности. Этот алгоритм численного решения является стандартным и описан в любом пособии по численным методам, а потому здесь не излагается.

Рассчитав значения амплитуды дифрагированной волны на верхней поверхности кристалла, найдем суммарную амплитуду отраженной волны

$$S(q_x, q_z) = \int_0^l E_h(x, z = 0; q_x \operatorname{ctg} \theta_B - q_z) e^{-iq_x x} dx$$

и соответствующую интенсивность, идущую в детектор

$$I(q_x, q_z) = |S(q_x, q_z)|^2.$$

## 3. Моделирование карт асимметричной дифракции в обратном пространстве

Численные расчеты распределения интенсивности рассеяния вблизи узла обратной решетки выполнены с использованием двух подходов интегрирования уравнений Такаги-Топена. Для расчетов применялись данные асимметричного Si(224) отражения  $\sigma$ -поляризованного рентгеновского  $\text{CuK}_{\alpha_1}$ -излучения. Длина первичной экстинкции составляла  $l_{ext} = 5,1 \mu\text{m}$ . Угол Брэгга для выбранного отражения равен  $44$  угл. град., межплоскостное расстояние  $d_{224} = 1,1 \text{ \AA}$ . В расчетах толщина кристалла  $l_z = 100 \mu\text{m}$ . Угол асимметрии  $\varphi = 35,3^\circ$ , угол падения рентгеновского пучка  $\theta_1 = 8,8^\circ$ , угол отражения  $-\theta_2 = 79,3^\circ$ .

На рис. 2 показаны расчетные карты RSM асимметричной дифракции Si(224) для разных размеров рентгеновских пучков. При падении рентгеновского пучка поперечного размера  $w_1 = 16 \mu\text{m}$  под углом  $\theta_1 = 8,8^\circ$  ширина засветки поверхности кристалла равна  $l_x^{(in)} = 105 \mu\text{m}$ . Проекция поперечного размера  $103 \mu\text{m}$ , проходящего через щель  $S_2$ , рентгеновского пучка на латеральное направление, также равна  $l_x^{(ex)} = 105 \mu\text{m}$ . Контуры равной интенсивности дифракционного рассеяния в обратном пространстве для этого случая демонстрирует рис. 2а. Дважды увеличивая размер падающего пучка ( $w_1 = 32 \mu\text{m}$ ), ширина засветки также увеличивается в два раза,  $l_x^{(ex)} = 210 \mu\text{m}$ . Увеличивая также дважды размер выходной щели  $S_2$ , получаем  $l_x^{(ex)} = 210 \mu\text{m}$ . Карта RSM для этого случая показана на рис. 2б, которая по контуру похожа на карту на рис. 1а, но с более сконцентрированным угловым распределением интенсивности рентгеновского рассеяния. Малые размеры щелей приводят к более широкому угловому распределению дифрагированной интенсивности вблизи узла обратной решетки (рис. 2с). С другой стороны, широкая выходная щель  $S_2$  сжимает дифракционную картину к интенсивности главного дифракционного максимума (рис. 2д).

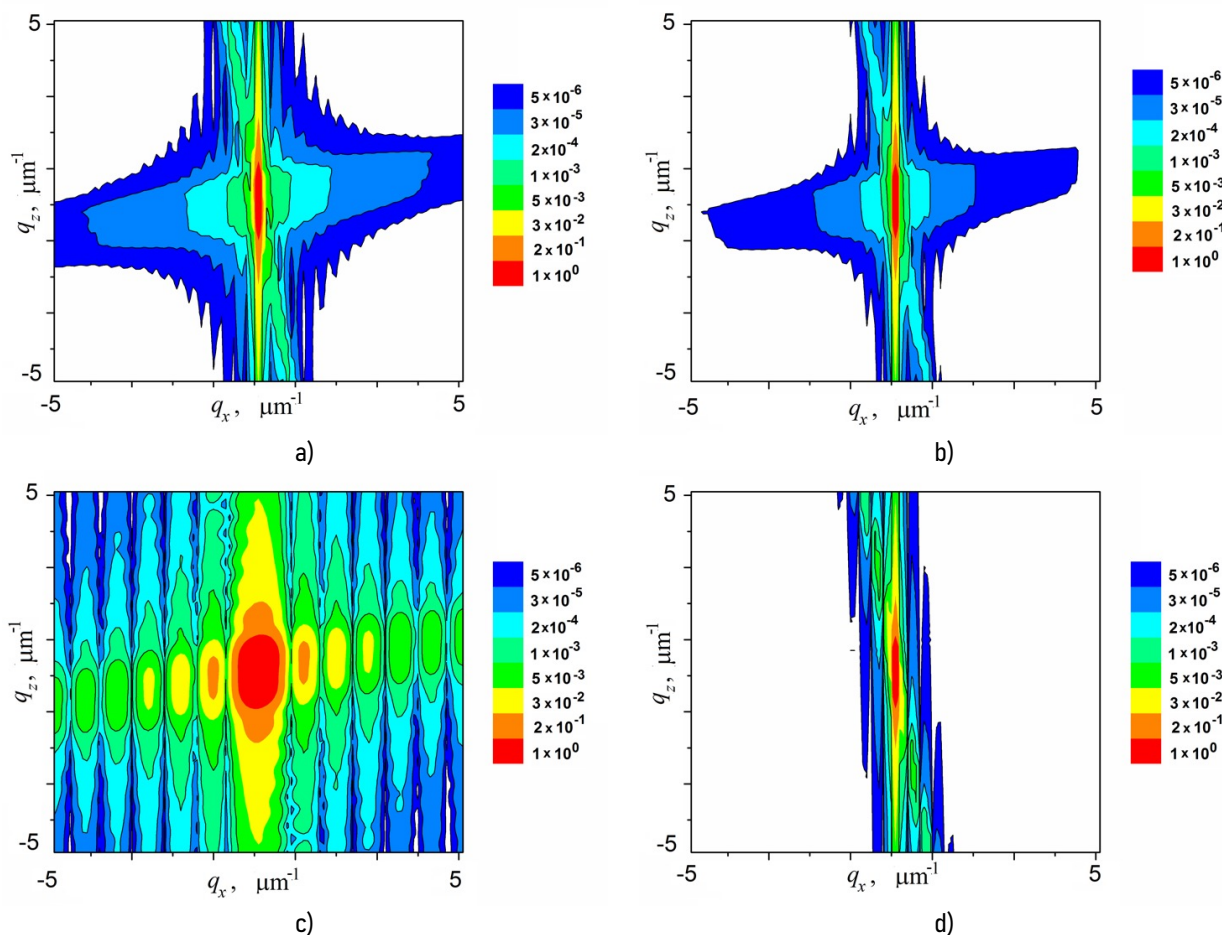


Рисунок 2. Расчетные карты RSM асимметричной дифракции Si(224) для разных размеров падающего и дифрагированного рентгеновского пучка: а)  $w_1 = 16 \mu\text{m}$ ,  $w_2 = 104 \mu\text{m}$ ; б)  $w_1 = 32 \mu\text{m}$ ,  $w_2 = 208 \mu\text{m}$ ; в)  $w_1 = 16 \mu\text{m}$ ,  $w_2 = 8 \mu\text{m}$ ; д)  $w_1 = 16 \mu\text{m}$ ,  $w_2 = 500 \mu\text{m}$ .  
 Figure 2. Calculated RSM maps of asymmetric Si(224) diffraction for different sizes of the incident and diffracted X-ray beam: а)  $w_1 = 16 \mu\text{m}$ ,  $w_2 = 104 \mu\text{m}$ ; б)  $w_1 = 32 \mu\text{m}$ ,  $w_2 = 208 \mu\text{m}$ ; в)  $w_1 = 16 \mu\text{m}$ ,  $w_2 = 8 \mu\text{m}$ ; д)  $w_1 = 16 \mu\text{m}$ ,  $w_2 = 500 \mu\text{m}$ .

## Заключение

На основе двумерных уравнений Такаги-Топена [2, 3] разработаны два алгоритма численных расчетов углового распределения интенсивности когерентного рассеяния в обратном пространстве в асимметричной брэгговской геометрии. Показано влияние размера падающего и отраженного рентгеновского пучка на угловое распределение интенсивности рассеяния. Предложенные методы расчетов карт RSM будут весьма полезны для анализа экспериментальных данных асимметричной рентгеновской дифракции от монокристаллов и эпитаксиальных пленок.

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

## Литература (References)

1. Authier, A. Dynamical theory of X-ray diffraction / A. Authier. – New York: Oxford University Press, 2001.
2. Takagi, S. Dynamical theory of diffraction applicable to crystals with any kind of small distortion / S. Takagi // Acta Cryst. – 1962. – Vol. 15, № 12. – P. 1311–1312.
3. Taupin, D. Theorie dynamique de la diffraction des rayons x par les cristaux deformes / D. Taupin // Bull. Soc. Franc. Mineral. Crist. – 1964. – Vol. 87. – P. 469–511.
4. Iida, A. Separate measurements of dynamical and kinematical X-ray diffractions from silicon crystals with a triple crystal diffractometer / A. Iida, K. Kohra // Phys. Stat. Sol. (a) – 1979. – Vol. 51. – P. 533–542.
5. Punegov, V. I. Applications of dynamical theory of X-ray diffraction by perfect crystals to reciprocal space mapping / V. I. Punegov, K. M. Pavlov, A. V. Karpov, N. N. Faleev // J. Appl. Cryst. – 2017. – Vol. 50. – P. 1256–1266.
6. Punegov, V. I. X-ray microbeam diffraction in a crystal / V. I. Punegov, A. V. Karpov // Acta Cryst. – 2021. – Vol. A 77. – P. 117–125.
7. Afanasev, A. M., Asymmetric x-ray diffraction / A. M. Afanasev, R. M. Imamov, E. Kh. Mukhamedzhanov // Crystallogr. Rev. – 1992. – Vol. 3. – P. 157–230.
8. Tsusaka, Y. Formation of parallel X-ray microbeam and its application / Y. Tsusaka, K. Yokoyama, S. Takeda, M. Urakawa, Y. Kagoshima [et al.] // Jpn. J. Appl. Phys. – 2000. – Vol. 39. – P. 635–637.
9. Bremner, S. P. Impact of stress relaxation in GaAsSb cladding layers on quantum dot creation in InAs/GaAsSb structures grown on GaAs (001) / S. P. Bremner, K.-Y. Ban, N. N. Faleev, C. B. Honsberg, D. J. Smith // J. Appl. Phys. – 2013. – Vol. 114. – P. 103511 (1–9).

**Благодарность (госзадание)**

Работа выполнена в рамках государственного задания ФМИ ФИЦ Коми НЦ УрО РАН по теме НИР № 122040400069-8.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда, № 23-22-00062, <https://rscf.ru/project/23-22-00062/>.

**Acknowledgement (state task)**

The work was done in frames of the State task of the Institute of Physics and Mathematics FRC Komi SC UB RAS on the research topic № 122040400069-8.

The research was financially supported by the grant of the Russian Science Foundation, № 23-22-00062, <https://rscf.ru/project/23-22-00062/>.

**Для цитирования:**

Колосов, С. И. Асимметричная рентгеновская дифракция ограниченных пучков в кристаллах / С. И. Колосов, Д. М. Мальков, В. И. Пунегов // Известия Коми научного центра Уральского отделения Российской академии наук. Серия «Физико-математические науки». – 2024. – № 5 (71). – С. 68–72.

**For citation:**

Kolosov, S. I. Asymmetric X-ray diffraction of confined beams in crystals / S. I. Kolosov, D. M. Malkov, V. I. Punegov // Proceedings of the Komi Science Centre of the Ural Branch of the Russian Academy of Sciences. Series "Physical and Mathematical Sciences". – 2024. – № 5 (71). – P. 68–72.

Дата поступления рукописи: 12.04.2024

Received: 12.04.2024