

Este exemplar corresponde a redação final
da Tese de Mestrado defendida pelo aluno
Sérgio Luiz Morelhão e aprovada pela Comissão
Julgadora.

Campinas, 18 de maio de 1990
Lisandro Faive Cardoso

A DIFRAÇÃO MÚLTIPLA NO ESTUDO DE CAMADAS EPITAXIAIS TENSIONADAS

Sérgio Luiz Morelhão

Tese apresentada ao Instituto de Física
"Gleb Wataghin" da Universidade Estadual
de Campinas (UNICAMP) para a obtenção do
título de Mestre em Física.

ORIENTADOR: Prof. Dr. Lisandro Faive Cardoso

Campinas - São Paulo Abril de 1990

Aos meus pais Maria de Lourdes
e Rubens, e a minha filha
Larissa.

Este trabalho foi realizado no Laboratório de Cristalografia do Instituto de Física "Gleb Wataghin" da Universidade Estadual de Campinas (UNICAMP) com o apoio do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) e da Empresa Brasileira de Telecomunicações S.A. (TELEBRÁS).

Agradecimento especial ao Prof. Dr. Lisandro Pavie Cardoso pela sua dedicação à pesquisa, pela minha formação científica ao longo dos últimos três anos (Iniciação Científica + Mestrado), e pela orientação desta tese.

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Dr. S. Caticha-Ellis pelas discussões e por permitir o uso dos equipamentos disponíveis no Laboratório de Cristalografia do IFGW, UNICAMP.

Aos Profs. Drs. Cícero Campos e Ariel Caticha pelas discussões proveitosas durante a realização deste trabalho.

Aos colegas José Marcos Sasaki pelas discussões e ajuda no manuseio dos equipamentos utilizados, e Adilson P. Pereira pelo auxílio na automatização do equipamento de medida.

Ao Prof. Dr. Mauro M.G. de Carvalho, Monica A. Cotta (LPD, IFGW) e A.C. Sachs (CPqD - Telebrás) pelas valiosas informações sobre o crescimento das amostras utilizadas e fornecimento das mesmas.

Ao Prof. Dr. Richard Landers e Jonder Reis pelas medidas por espectroscopia Auger das amostras.

Aos demais professores e funcionários do Laboratório de Cristalografia, em especial a Silvano Lopes Gomes pelo auxílio na realização das experiências e pela confecção de vários desenhos, e Lúcia Cardoso pela confecção de vários outros desenhos.

A todos os colegas do Grupo de Cristalografia pelas discussões e amizade durante esta etapa de minha vida.

RESUMO

Neste trabalho, é desenvolvido um método baseado na técnica de difração múltipla de raios-X, para caracterizar a discordância entre os parâmetros de rede da camada e do substrato, na direção paralela à interface camada/substrato. Esse método utiliza os casos de três feixes envolvendo as reflexões secundárias de superfície, cujo feixe secundário é espalhado paralelamente aos planos atômicos primários, além das difrações múltiplas híbridas, oriundas da interação entre as redes da camada e do substrato. A detecção de ambas num mesmo diagrama Renninger, possibilita a caracterização desejada.

Para o estudo da ocorrência das contribuições híbridas, foi necessário considerar a geometria de Kossel para a difração múltipla, utilizada na técnica do feixe de raios-X divergente. A utilização das equações básicas dessa geometria, foi modificada de forma a contemplar o espalhamento pelos planos secundários e de acoplamento, que são importantes na interação das redes camada/substrato. Esse novo tratamento fornece a possibilidade de considerar o efeito de imperfeições cristalinas (largura mosaico como um primeiro exemplo) nas equações desenvolvidas, com facilidade. Também, a partir dele, foi possível traçar diagramas de incidência, que evidenciam tanto os efeitos da divergência do feixe incidente quanto a observação das contribuições híbridas.

O método desenvolvido foi aplicado a dois sistemas: GaAs/Si[001] e InGaAsP/GaAs[001], e apresentam resultados muito bons na caracterização deles. Além disso, mostrou que mesmo camadas finas (da ordem de 500\AA neste trabalho) intermediárias entre uma camada externa mais espessa e o substrato, podem ser analisadas com razoável precisão.

ÍNDICE

	Pag
CAPÍTULO 0 - INTRODUÇÃO.....	1
CAPÍTULO 00 - CONSTRUÇÕES GEOMÉTRICAS PARA A DIFRAÇÃO MÚLTIPLA.....	5
00.1 - CONSTRUÇÃO GEOMÉTRICA DE KOSSEL.....	5
00.2 - CONSTRUÇÃO GEOMÉTRICA DE EWALD.....	11
CAPÍTULO 000 - DIFRAÇÃO MÚLTIPLA EM SISTEMAS CAMADA/SUBSTRATO.....	15
000.1 - REFLEXÕES SECUNDÁRIAS DE SUPERFÍCIE NA CARACTERIZAÇÃO DE CAMADAS EPITAXIAIS - UM NOVO MÉTODO.....	15
000.2 - CONDIÇÕES PARA OCORRÊNCIA DE DIFRAÇÕES MÚLTIPLAS HÍBRIDAS EM DIAGRAMAS RENNINGER.....	23
000.2.1 - CONSTRUÇÃO DE KOSSEL PARA CRISTAIS MOSAICOS.....	24
000.2.2 - DIFRAÇÃO MÚLTIPLA HÍBRIDA EM CAMADAS IMPERFEITAS.....	31
000.2.3 - CONSTRUÇÃO DO DIAGRAMA DE INCIDÊNCIA.....	32
CAPÍTULO 0V - PARTE EXPERIMENTAL.....	35
0V.1 - DESCRIÇÃO DA GEOMETRIA INSTRUMENTAL.....	35
0V.2 - ESPECIFICAÇÃO DAS AMOSTRAS.....	37
CAPÍTULO V - RESULTADOS.....	39
V.1 - DIFRAÇÃO MÚLTIPLA HÍBRIDA NO SISTEMA GaAs/Si[001].....	39
V.2 - APLICAÇÃO DO MÉTODO AO SISTEMA GaAs/Si.....	49
V.3 - APLICAÇÃO DO MÉTODO AO SISTEMA InGaAsP/GaAs[001].....	52

CAPÍTULO V0	— CONCLUSÕES	59
V0.1	— CONTRIBUIÇÕES AO ESTUDO DA GEOMETRIA DA DIFRAÇÃO MÚLTIPLA	59
V0.2	— CONTRIBUIÇÕES A CARACTERIZAÇÃO DE CAMADAS EPITAXIAIS	61
V0.3	— POSSÍVEIS EXTENSÕES DESTE TRABALHO	62
APÊNDICE		64
REFERÊNCIAS		67

A caracterização da discordância entre as redes da camada e do substrato, também conhecida como descasamento entre redes, fornece um dos mais importantes meios de controle do crescimento de camadas heteroepitaxiais. No crescimento dessas estruturas, o objetivo é obter uma condição para o crescimento coerente, onde o descasamento das redes é totalmente acomodado por tensões elásticas. Nas heteroestruturas onde o descasamento e a espessura da camada são ambos pequenos, isto pode ser conseguido. Contudo, em outras estruturas o descasamento é tão grande que a formação de dislocações na interface camada/substrato (C/S) é inevitável. A comparação dos parâmetros de rede da camada e do substrato, usando técnicas de difração de raios-X, fornece o método mais preciso para determinar as tensões presentes. O procedimento usualmente adotado, é registrar a diferença no ângulo de Bragg dos planos paralelos à interface na camada e no substrato, e então deduzir, via lei de Bragg, os parâmetros das redes. É importante notar que a difração por planos paralelos à interface, providencia unicamente uma visão unidimensional da estrutura. Esta limitação não permite determinar independentemente crescimento coerente e composição química.^[1] Sendo assim, é fundamental caracterizar os parâmetros de rede da camada e do substrato nas direções paralela e perpendicular à interface.

Para determinar diretamente o descasamento na direção paralela à interface, é necessário obter a difração por planos Bragg perpendiculares à interface, mas infelizmente na maioria das situações é pouco prático, uma vez que a espessura do substrato não permite transmissão adequada do feixe de raios-X. Uma alternativa, é a difração por planos inclinados em relação à interface, mas que ainda permite geometria assimétrica de reflexão. A separação dos picos de Bragg da camada e do substrato registrados dessas reflexões, antes e depois de reverter o caminho do feixe de raios-X, pode ser usada para calcular os descasamentos paralelo e perpendicular à interface.^[2] Na prática, esse

procedimento é trabalhoso e necessita de feixes de raios-X com baixa divergência, como os obtidos usando um duplo cristal. Além disso, essas técnicas de análise só podem ser aplicadas no estudo de camadas finas ($<500\text{\AA}$) e interfaces, usando equipamentos altamente sofisticados.^[3]

A difração múltipla (DM), descrita em detalhes mais adiante, tem sido empregada em vários trabalhos para fornecer informação da rede cristalina de monocristais^[4-12]. A primeira utilização dessa técnica no estudo de defeitos em monocristais foi feita apenas em 1969^[13]. Mas, a metódica extensão dessa técnica à camadas epitaxiais é relativamente recente, e destacam-se os trabalhos onde a DM é obtida usando a geometria de feixe de raios-X divergente^[1,14], que é denominada como técnica do feixe divergente^[14] (TFD), e a simulação desses diagramas já foi obtida^[15]. A outra geometria conhecida para se obter sistematicamente o fenômeno de DM, é a geometria do feixe colimado conhecida como geometria de Renninger^[4], e denominada por técnica do feixe colimado^[14] (TFC). Esta técnica já foi aplicada em sistemas C/S. Primeiro, no sistema InGaAsP/InP[001] para se observar variações das intensidades multiplamente espalhadas, quando comparadas com aquelas espalhadas por um sistema sem deposição de camada^[16]. Uma segunda aplicação foi ao sistema ZnSe/GaAs[001], na observação de picos extras negativos no diagrama de DM, isto, devido à absorção de intensidade do feixe incidente e do feixe difratado nos planos do substrato, em consequência da difração deles em planos Bragg da camada^[17]. Mas, até agora, a TFC nunca foi utilizada como uma técnica de caracterização.

O interesse neste trabalho é desenvolver um método, baseado na TFC, para caracterizar o descasamento paralelo à interface, tanto de camadas espessas ($>1\mu\text{m}$) como de camadas finas ($<0,05\mu\text{m}$), usando equipamentos não sofisticados. O motivo deste interesse, e as contribuições necessárias para o desenvolvimento do método são descritos abaixo.

Em termos gerais o fenômeno da DM na TFC no espaço real é produzido pela rotação do cristal, em torno da normal aos planos cristalinos paralelos à sua superfície (chamados planos primários), enquanto o feixe difratado por eles é monitorado por

um detector fixo na posição do feixe difratado primário. Durante a rotação outros planos (chamados planos secundários) entram em condição de difração simultaneamente com a reflexão primária. O gráfico da intensidade monitorada em função do ângulo de rotação é conhecido como diagrama Renninger, devido à geometria instrumental utilizada^[4]. A ocorrência de DM é indicada no diagrama Renninger por uma variação na intensidade, produzindo um pico de DM positivo ou negativo dependendo da interação entre a reflexão primária e as secundárias envolvidas naquela posição, que na DM, aparece como uma nova reflexão em planos chamados de acoplamento entre elas, dirigindo o novo feixe difratado para o detector que está fixo na posição da primária. Nos diagramas Renninger, algumas das regiões angulares aparecem como imagens refletidas de outras, em torno de determinadas posições construídas como espelhos. O número desses espelhos de simetria é definido pela simetria do eixo primário.

Uma vez que os planos secundários são inclinados em relação à superfície, esta técnica pode fornecer informação tridimensional sobre as redes.

O caso de DM de especial interesse aqui, é aquele envolvendo as reflexões secundárias de superfície (RSS), onde o feixe secundário é difratado paralelamente aos planos primários, isto é, paralelo à superfície da amostra. Então, quando a TFC é aplicada a uma camada epitaxial, com os planos primários paralelos à interface, espera-se que as contribuições devido as RSS sejam as menos sensíveis à espessura das camadas, possibilitando obter informação tanto das camadas finas como das interfaces. Assim, é necessário fazer um desenvolvimento, que permita caracterizar o descasamento paralelo, a partir da observação no diagrama Renninger de picos de DM devido às RSS.

Outro importante caso de DM que ocorre somente em estruturas C/S é a chamada DM híbrida, observada pela primeira vez em 1981^[1] quando se utilizou a TFD em experiências com camadas heteroepitaxiais. Essas reflexões híbridas aparecem quando o feixe difratado pelos planos secundários da camada ou do substrato, cruza a interface C/S para ser difratado por planos de acoplamento do substrato ou da camada, na direção do detector. Entretanto, em experiências com a TFC nunca uma DM híbrida foi observada.

Contudo, acredita-se ser possível observar DM híbrida mesmo na TFC, mas para isso será desenvolvida uma nova maneira de estudar a geometria da DM, que permitirá levar em conta a DM híbrida e também as imperfeições cristalinas nas camadas tensionadas, que será considerada através de uma largura mosaico relativamente grande, e que, influi muito nas condições que limitam a ocorrência da DM híbrida na TFC.

A geometria da DM no espaço recíproco é usualmente representada usando a construção geométrica de Ewald.^[18,19] No entanto, a construção de Kossel,^[20] a qual é utilizada na interpretação de experiências de DM com a TFD,^[21] será útil no presente trabalho também na interpretação de experiências de DM com a TFC. Começaremos analisando essa última geometria.

00.1 - CONSTRUÇÃO GEOMÉTRICA DE KOSSEL

Nesta geometria as condições de difração são representadas através dos cones de Bragg. Como feito por *Isherwood & Wallace*^[21], a representação de uma difração simples (caso de dois feixes: incidente e refletido) é mostrada na figura 1.a. Os feixes incidente e refletido, KO e OK' , são geradores do cone de Bragg, e terminam sobre o círculo da intersecção das duas esferas de dispersão de raio $1/\lambda$ centradas em O e G . Mesmo com λ variando, K e K' sempre estão sobre o contorno da zona de Brillouin, que é o plano entre O e G . O plano paralelo à esse contorno passando por G em duas vezes a distância da origem, é conhecido como plano de Kossel, e a esfera de raio $2/\lambda$ centrada em O , é a esfera de reflexões ou esfera limite. A esfera de Ewald de raio $1/\lambda$ passa pelos pontos O , G e C . Os pontos C e C' pertencem ao círculo formado pela intersecção do plano de Kossel com a esfera de reflexões e são distintos dos demais por estarem contidos no plano de incidência. Os vetores conectando O com C , C' e G são nomeados como \vec{r} , \vec{r}' e \vec{g} respectivamente. Os vetores \vec{r} e \vec{r}' também são geradores do cone de Bragg e satisfazem as seguintes relações:

$$\begin{cases} \vec{r} \cdot \vec{g} = G \equiv |\vec{g}|^2 \\ |\vec{r}| = R \equiv \frac{2}{\lambda} \end{cases} \quad (\text{II-1.a})$$

$$\vec{r}' = 2\vec{g} - \vec{r} \quad (\text{II-1.b})$$

Essas relações representam o plano de Kossel, a esfera de

reflexões e a lei de Bragg, respectivamente.

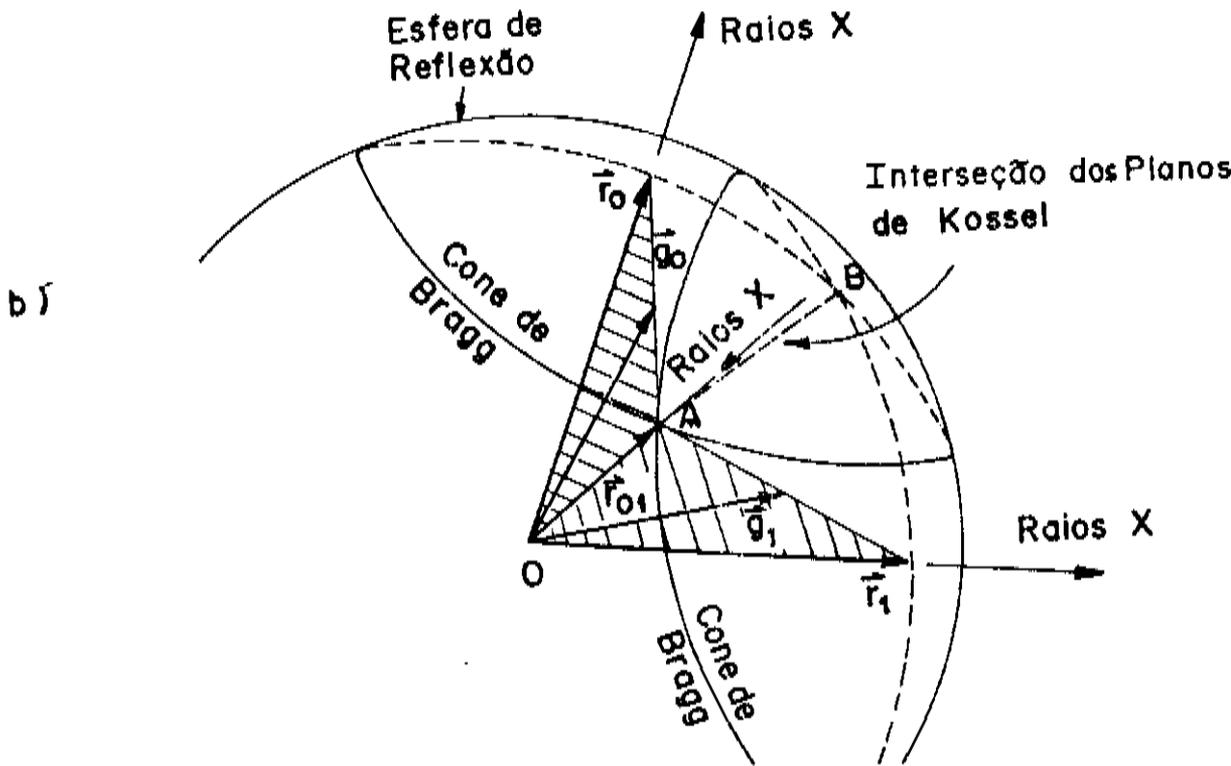
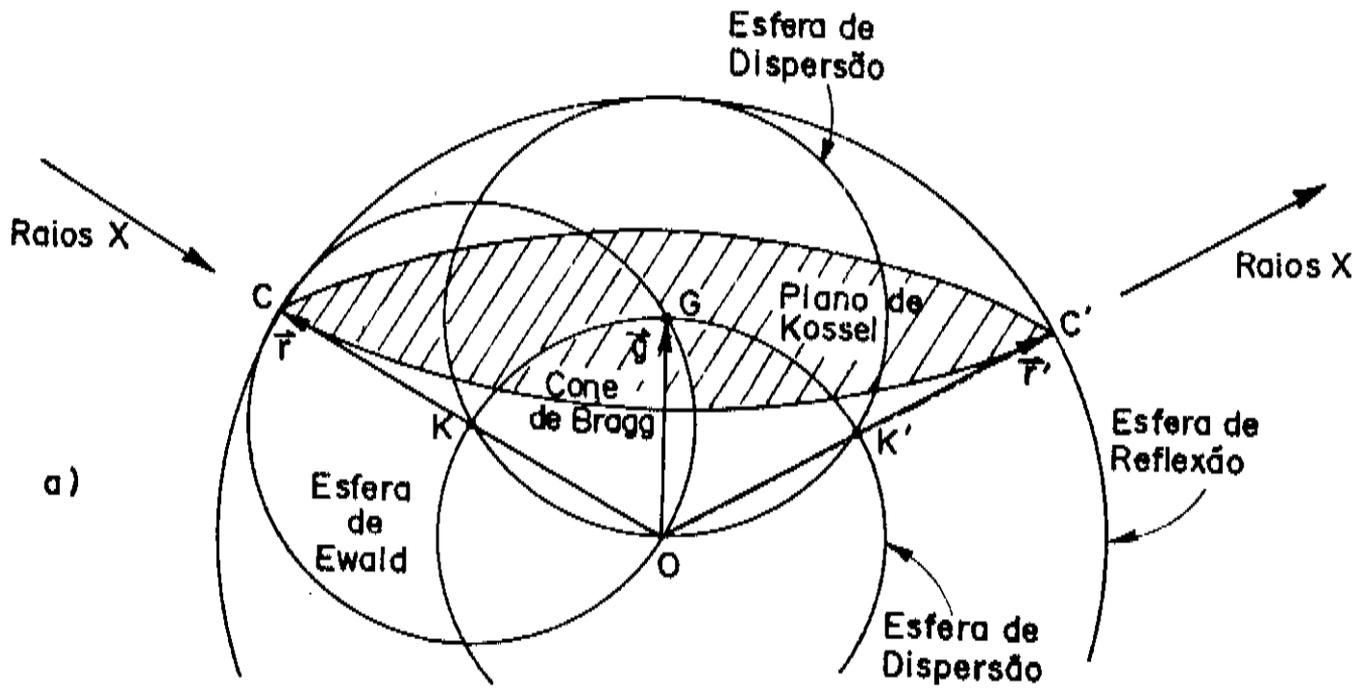


Figura 1: a) Geometria da difração (caso de dois feixes) usando a construção de Kossel. b) Geometria para o caso de três feixes, onde o feixe incidente é paralelo à direção r_0 , que corresponde a interseccção dos dois cones de Bragg.

Um caso de três feixes (incidente, primário e secundário) ocorre, quando um gerador comum dos cones de Bragg correspondentes a dois conjuntos de planos da rede, é paralelo à direção do feixe incidente. A figura 1.b mostra a representação de um caso de três feixes envolvendo os vetores recíprocos \vec{g}_0 e \vec{g}_1 . As expressões $\vec{r}_0 = 2\vec{g}_0 - \vec{r}_{01}$ e $\vec{r}_1 = 2\vec{g}_1 - \vec{r}_{01}$ expressam a lei de Bragg para ambas as reflexões. Uma outra condição de difração, é obtida pela subtração destas duas, fornecendo $\vec{r}_0 = 2\vec{g}_2 - (-\vec{r}_1)$ onde \vec{g}_2 é o vetor recíproco $\vec{g}_0 - \vec{g}_1$ chamado vetor de acoplamento, que é o responsável pela transferência de potência entre os feixes espalhados nas direções \vec{r}_0 e \vec{r}_1 , ou seja a interação entre esses feixes.

O vetor de onda $\vec{k}_{01} = -\vec{r}_{01}/2$ representa o feixe incidente, enquanto os vetores de onda $\vec{k}_0 = \vec{r}_0/2$ e $\vec{k}_1 = \vec{r}_1/2$ representam os feixes refletidos. Assim, o feixe \vec{k}_0 é aqui considerado como a soma de dois feixes que percorrem caminhos diferentes dentro do cristal. Um é difratado unicamente pelo conjunto de planos representado por \vec{g}_0 (chamado caminho C1), e o outro, é consecutivamente difratado por \vec{g}_1 e por \vec{g}_2 (caminho C2). De modo idêntico, \vec{k}_1 considera os feixes difratados por \vec{g}_1 e os difratados consecutivamente por \vec{g}_0 e $-\vec{g}_2$. Nos diagramas de DM obtidos para os dois arranjos experimentais usando feixe colimado ou divergente, unicamente o feixe que emerge do cristal (\vec{k}_0 ou \vec{k}_1), para o qual o plano de Bragg é paralelo à superfície da amostra, é observado. Por exemplo, se \vec{g}_0 é perpendicular à superfície, então, apenas o feixe difratado na direção de \vec{r}_0 será observado nessas duas técnicas experimentais. Define-se as direções do feixe incidente e refletido por $-\vec{r} \equiv -\vec{r}_{01}$ e $\vec{r}' \equiv \vec{r}_0$. De acordo com (II-1), tem-se para C1:

$$\begin{cases} \vec{r}' \cdot \vec{g}_0 = G_0 \\ |\vec{r}'| = R \\ \vec{r}' = 2\vec{g}_0 - \vec{r} \end{cases} \quad (\text{II-2})$$

Agora, levando em conta que \vec{r}_1 e $-\vec{r}_1$ são geradores do cone de

Bragg do vetor \vec{g}_1 e do vetor \vec{g}_2 respectivamente, escrevo para Cz :

$$\begin{cases} \vec{r}_1^+ \cdot \vec{g}_1 = G_1 \\ \vec{r}_1^+ \cdot \vec{g}_2 = -G_2 \\ |\vec{r}_1^+| = R \end{cases} \quad (\text{II-3.a})$$

$$\begin{cases} \vec{r}^+ = 2\vec{g}_1 - \vec{r}_1^+ \\ \vec{r}' = 2\vec{g}_2 + \vec{r}_1^+ \end{cases} \quad (\text{II-3.b})$$

As condições para a ocorrência da difração simples de \vec{g}_0 são estabelecidas em (II-2), enquanto (II-3.a) determina os dois únicos valores possíveis para \vec{r}_1^+ nessas circunstâncias. De (II-3) tem-se então, uma nova maneira de calcular as direções que o feixe deve incidir para a sequência de difração em Cz ocorrer, além da direção \vec{r}' na qual ele será espalhado. Na figura 2 mostra-se a reflexão primária (2.a) e também as reflexões pelo caminho de DM Cz , ilustrando os vetores \vec{r} , \vec{r}_1^+ e \vec{r}' (2.b).

No espaço real, a direção do feixe incidente pode ser dada em termos do par de ângulos (ω, ϕ) como se apresenta na figura 3. A direção cristalográfica \vec{m} é um vetor de referência contido no plano perpendicular ao versor \vec{n} . Onde, $\vec{n} = \vec{g}_0 / \sqrt{G_0}$ é normal à superfície da amostra. Esses vetores permitem definir a base ortonormal $[\vec{e}_1^+, \vec{e}_2^+, \vec{e}_3^+]$, sendo :

$$\begin{aligned} \vec{e}_1^+ &= \frac{\vec{m}}{|\vec{m}|} \\ \vec{e}_2^+ &= \frac{\vec{n} \times \vec{m}}{|\vec{m}|} \\ \vec{e}_3^+ &= \vec{n} \end{aligned} \quad (\text{II-4})$$

A direção do feixe incidente pode ser expressa em termos de \vec{r}

COMO :

$$\begin{cases} \omega = \text{sen}^{-1} \left(\frac{\vec{r} \cdot \vec{e}_3}{R} \right) \\ \phi = \text{tan}^{-1} \left(\frac{\vec{r} \cdot \vec{e}_2}{\vec{r} \cdot \vec{e}_1} \right) \end{cases} \quad (\text{II-5})$$

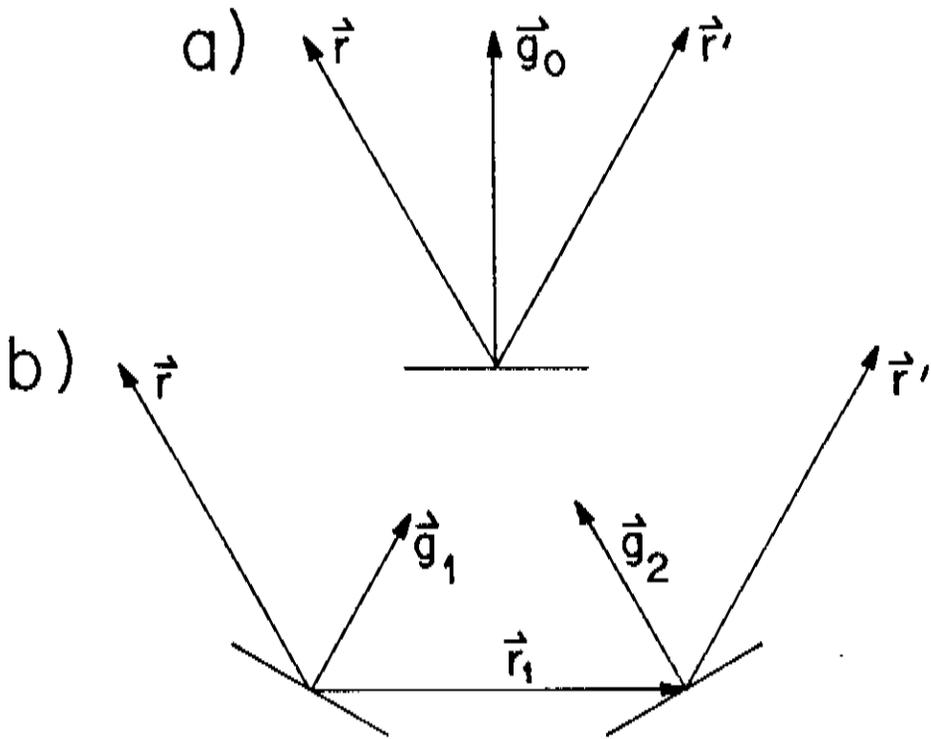


Figura 2: a) Reflexão primária. b) Caminho de DM onde \vec{g}_1 e \vec{g}_2 são os vetores recíprocos dos planos secundários e dos planos de acoplamento respectivamente.

O ângulo ω é definido como o ângulo entre o feixe incidente e os planos primários (paralelos à superfície da amostra), e o ângulo ϕ , é aquele formado entre o plano de incidência primário e o vetor de referência \vec{m} . O diagrama Renninger é obtido girando-se a amostra em torno da normal \vec{n} , enquanto o ângulo ω é mantido fixo e igual ao ângulo de Bragg da reflexão primária. Portanto, como já foi dito, um diagrama Renninger é um registro da intensidade primária como função do ângulo de rotação ϕ .

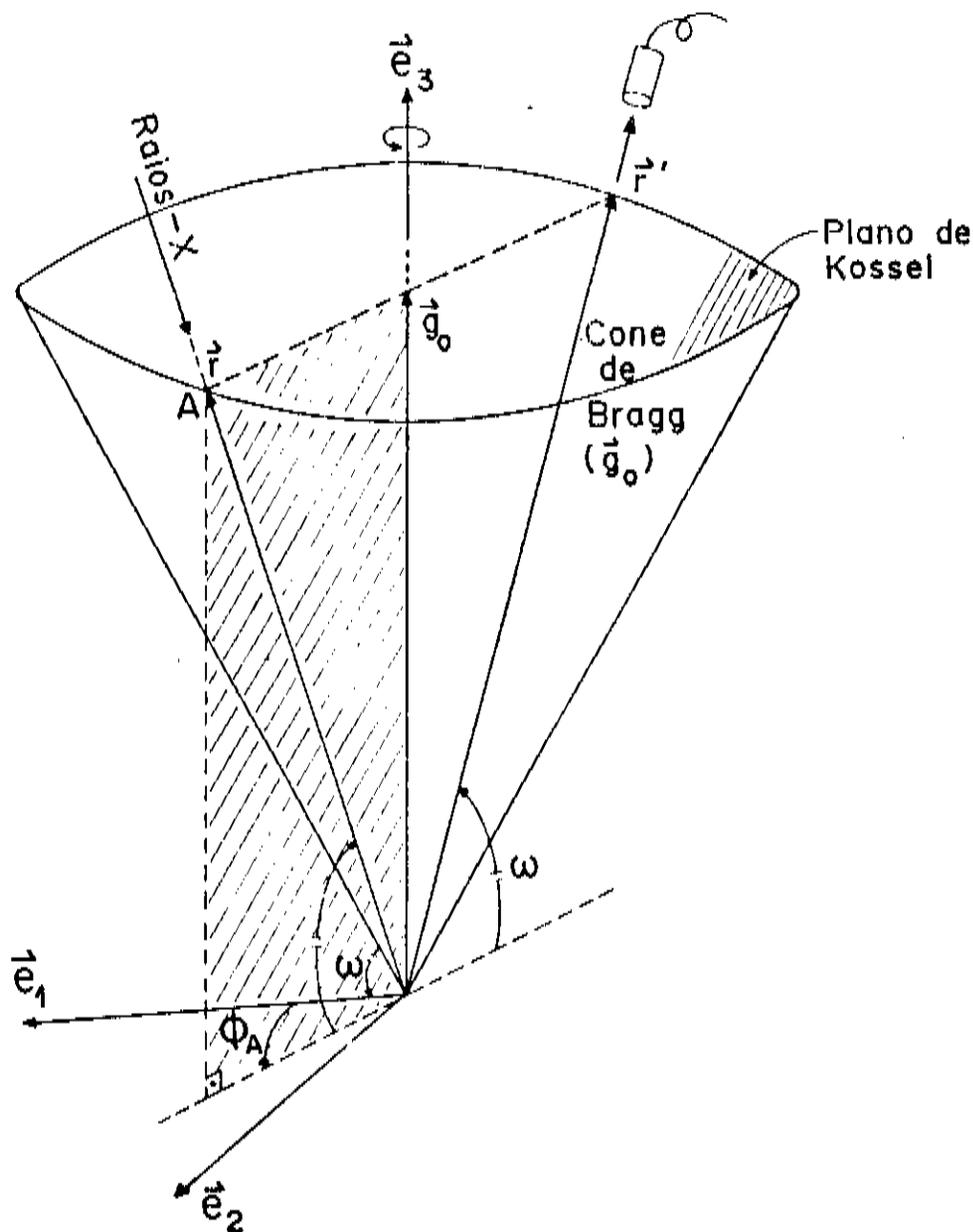


Figura 3: Direção no espaço real do feixe incidente (ω, ϕ) quando este incide paralelo a um gerador do cone de Bragg do vetor \vec{g}_0 .

Num diagrama Renninger com 360° o caminho de DM Cz, especificado pelo vetor secundário \vec{g}_1 e pelo vetor de acoplamento \vec{g}_2 , difratará o feixe incidente duas vezes, correspondendo ao feixe incidindo pelos pontos A e B da figura 1.b. Os vetores \vec{r}_A e \vec{r}_B , obtidos da solução do sistema em (II-3), apontam os pontos A e B. Usando $\vec{r}_{A,B}$ em (II-5) obtém-se $\omega = \theta_0^{\text{Bragg}}$ e as posições ϕ_A e ϕ_B , nas quais os picos de DM devido ao caminho Cz, aparecem no diagrama Renninger.

00.2 - CONSTRUÇÃO GEOMÉTRICA DE EWALD

No espaço recíproco a relação de Bragg é sintetizada no fato da diferença entre os vetores de onda incidente e refletido ser igual ao vetor da rede recíproca do plano de Bragg difratante. Quando um feixe incidente com comprimento de onda λ é representado pela Esfera de Ewald (EE), de raio $1/\lambda$, a relação acima será satisfeita sempre que as extremidades do vetor recíproco, que são denominados de nós da rede recíproca, estiverem tocando a superfície da EE.

A DM (caso de três feixes) ocorre quando os nós da rede recíproca, apontados por dois vetores distintos \vec{g}_0 e \vec{g}_1 , estão simultaneamente tocando a EE. De modo idêntico ao mostrado no item 00.1 tem-se, $\vec{k}_0 = \vec{g}_0 + \vec{k}_{01}$, $\vec{k}_1 = \vec{g}_1 + \vec{k}_{01}$ e a terceira condição de difração é obtida pela subtração destas $\vec{k}_0 = \vec{g}_2 + \vec{k}_1$, onde $\vec{g}_2 = \vec{g}_0 - \vec{g}_1$.

Na TFC, durante a rotação do cristal em torno de \vec{e}_3 , o vetor primário \vec{g}_0 tem seus extremos mantidos sobre a EE ($\omega =$ ângulo de Bragg da reflexão primária). Assim, quando o nó apontado pelo vetor secundário \vec{g}_1 toca a EE o feixe incidente é simultaneamente difratado por \vec{g}_0 e \vec{g}_1 e a intensidade primária sofre uma variação devido à difração pelo caminho Cz ($\vec{g}_1 + \vec{g}_2$).

Usando a base $[\vec{e}_1, \vec{e}_2, \vec{e}_3]$ definida no item anterior, vemos na figura 4, a posição geométrica da EE, dos vetores recíprocos e dos feixes de raios-X no exato ângulo de rotação ϕ_A , para o qual o vetor secundário \vec{g}_1 , está tocando a EE no ponto \vec{A} . O centro da EE

é apontado por $\vec{S}_0 = -\vec{k}_{01} = \frac{\vec{r}_{01}}{2}$, que é escrito nessa base como:

$$\begin{aligned} \vec{S}_0 &= \frac{1}{\lambda} \cos\omega \cos\phi \vec{e}_1 + \frac{1}{\lambda} \cos\omega \sin\phi \vec{e}_2 + \frac{1}{\lambda} \sin\omega \vec{e}_3 = \\ &= X_0 \vec{e}_1 + Y_0 \vec{e}_2 + Z_0 \vec{e}_3 \end{aligned} \quad (\text{II-6})$$

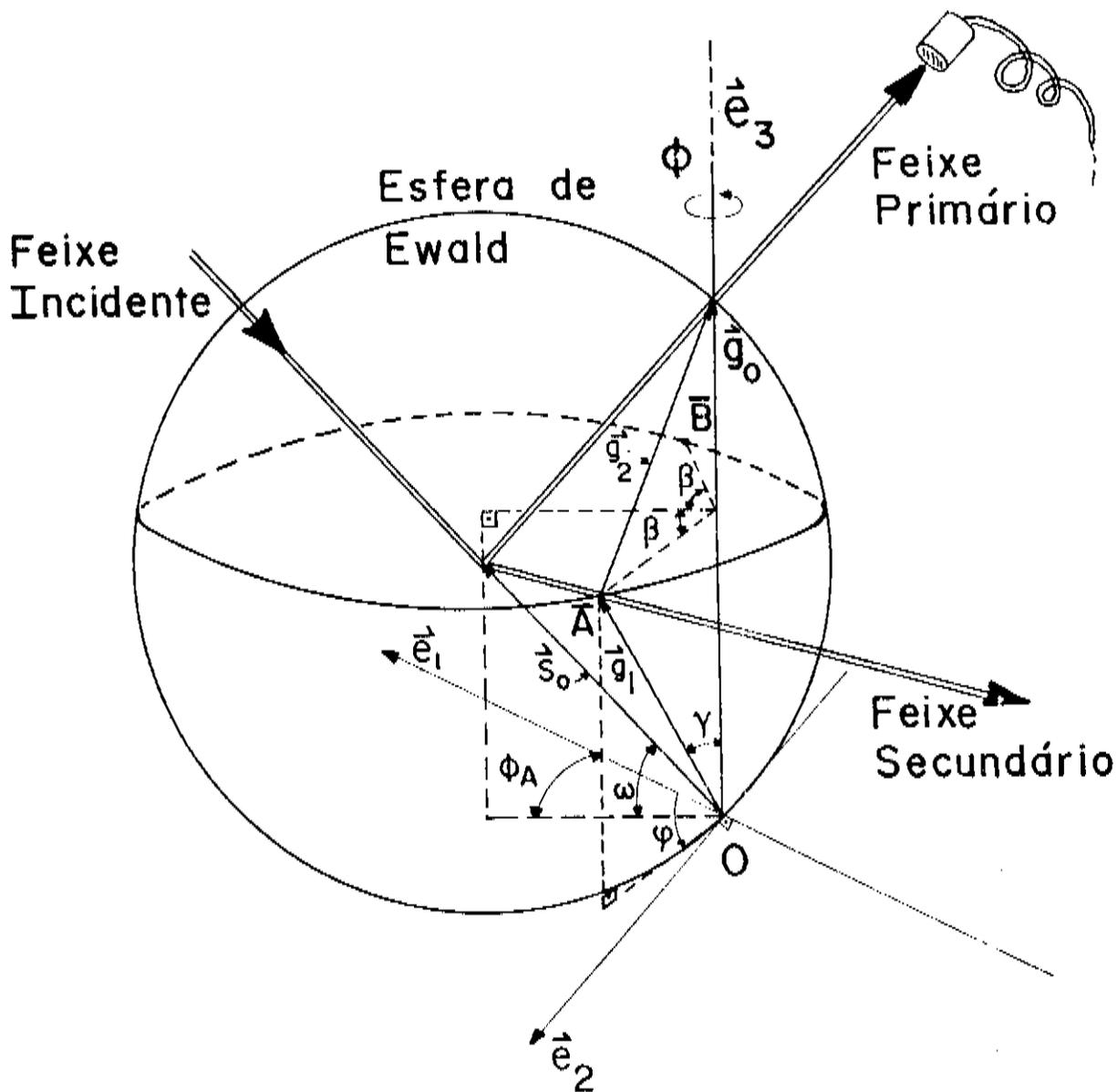


Figura 4: Construção de Ewald mostrando a posição da EE satisfazendo simultaneamente a condição de difração pelos planos representados pelos vetores recíprocos \vec{g}_0 e \vec{g}_1

Esta é a construção de Ewald equivalente à apresentada na figura 3. As condições para o feixe incidir pelos pontos A ou B (fig. 1.b), são as mesmas para o vetor \vec{g}_1 apontar para os pontos \bar{A} e \bar{B} na figura 4. Os pontos \bar{A} e \bar{B} correspondem a entrada e a saída de \vec{g}_1 da EE. A intersecção entre uma esfera centrada na origem de raio $|\vec{g}_1|$ e o plano perpendicular ao auto-vetor \vec{e}_g passando por \vec{e}_g ($|\vec{e}_g| = \frac{1}{\lambda}$) (fig. 4), gera um círculo cuja intersecção com a -EE determina os ângulos de rotação $\phi_{A,B}$ nos quais \vec{g}_1 está apontando para \bar{A} e \bar{B} . As equações do círculo e da -EE são, respectivamente:

$$X^2 + Y^2 = |\vec{g}_1|^2 \text{sen}^2 \gamma \quad (\text{II-7})$$

$$(X-X_0)^2 + (Y-Y_0)^2 + (Z-Z_0)^2 = \left(\frac{1}{\lambda}\right)^2 \quad (\text{II-8})$$

Escreve-se X, Y e Z como:

$$\begin{aligned} X &= |\vec{g}_1| \text{sen} \gamma \cos \varphi \\ Y &= |\vec{g}_1| \text{sen} \gamma \text{sen} \varphi \\ Z &= |\vec{g}_1| \cos \gamma \end{aligned} \quad (\text{II-9})$$

onde γ é o ângulo entre \vec{g}_1 e \vec{e}_g e φ é o ângulo formado pelo plano que contém \vec{g}_1 e \vec{e}_g com a direcção \vec{e}_1 .

Substituindo (II-7 e 9) em (II-8), tem-se:

$$\lambda |\vec{g}_1|^2 = 2 |\vec{g}_1| [\text{sen} \gamma \cos \omega \cos(\varphi - \phi) + \cos \gamma \text{sen} \omega] \quad (\text{II-10})$$

Da figura 4 vê-se que $\phi_{A,B} = \varphi \pm \beta$, isto é, $\cos \beta = \cos(\varphi - \phi_{A,B})$. O ângulo 2β é o ângulo de rotação do cristal entre a entrada e a saída de \vec{g}_1 da EE. De (II-10), obtém-se a

conhecida [18,19] equação para o cálculo do $\cos\beta$, que é:

$$\cos\beta = \frac{\frac{\lambda}{2} |\vec{g}_1| - \cos\gamma \operatorname{sen}\omega}{\operatorname{sen}\gamma \cos\omega} \quad (\text{II-11})$$

e de acordo com a dedução apresentada, os ângulos γ, φ e ω são dados por:

$$\cos\gamma = \frac{\vec{g}_1 \cdot \vec{e}_g}{|\vec{g}_1|} \quad (\text{II-12})$$

$$\cos\varphi = \frac{\vec{g}_1 \cdot \vec{e}_1}{|\vec{g}_1| \operatorname{sen}\gamma} \quad (\text{II-13})$$

$$\operatorname{sen}\omega = \operatorname{sen}\theta_0^{\text{Bragg}} = \frac{\lambda}{2} |\vec{g}_0| \quad (\text{II-14})$$

Nessa construção geométrica os ângulos $\phi_{A,B} = \varphi \pm \beta$ são os mesmos $\phi_{A,B}$ obtidos de (II-5), usando a solução $(\vec{r}_{A,B})$ do sistema em (II-3).

Existe uma diferença fundamental entre a construção geométrica de Kossel (item 00.1), e a construção de Ewald. A primeira construção, do modo como foi apresentada, utiliza o vetor secundário \vec{g}_1 e o vetor de acoplamento \vec{g}_2 para calcular, através de (II-3) e (II-5), as posições $\phi_{A,B}$ do diagrama Renninger onde aparecerão as contribuições devido à difração pelo caminho C2. A segunda construção, utiliza o vetor primário \vec{g}_0 para definir o correto ângulo de incidência ($\omega = \theta_0^{\text{Bragg}}$), e o vetor secundário \vec{g}_1 , para calcular através de (II-11) as posições $\phi_{A,B}$.

As duas construções apresentadas serão úteis neste trabalho. A construção de Ewald permite, de um único diagrama Renninger, caracterizar o descasamento entre as redes na direção paralela à interface, a partir da medida da separação angular $\Delta\phi$ entre o máximo da contribuição do caminho de DM envolvendo somente planos da camada, e o máximo da contribuição do caminho de DM híbrido, no qual os planos secundários estão no substrato, e os planos de acoplamento estão na camada. A construção de Kossel é usada para explicar a ocorrência, no diagrama Renninger, de picos devido aos caminhos híbridos.

000.1 - REFLEXÕES SECUNDÁRIAS DE SUPERFÍCIE NA CARACTERIZAÇÃO DE CAMADAS EPITAXIAIS - UM NOVO MÉTODO

Na construção de Ewald, a equação (II-11) pode ser aplicada a um caso mais geral, onde, o ângulo de incidência ω não coincide com o ângulo de Bragg dos planos primários. Evidentemente, quando \vec{g}_0 não está em condição de difração, os planos de acoplamento dados por $\vec{g}_2 = \vec{g}_0 - \vec{g}_1$, também não estarão em condição de reespalhar o feixe refletido por \vec{g}_1 . Portanto, nenhuma radiação deve ser detectada na direção esperada para o feixe primário. Contudo, quando a TFC é utilizada num sistema constituído de um substrato, sobre o qual está depositada uma camada epitaxial com eixos coerentes^[1] (alinhamento entre versores das redes camada/substrato), pode aparecer no diagrama Renninger picos extras devido aos caminhos de DM híbridos. Assim, de (II-11) pode-se obter a posição das contribuições dos caminhos normais (não híbridos), e também a dos caminhos híbridos para um mesmo ângulo de incidência ω , ou seja, num mesmo diagrama Renninger.

Uma camada crescida na direção 001 sobre um substrato com rede cúbica, apresenta uma deformação tetragonal caracterizada por

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha}_{\parallel} = \frac{\alpha_{\parallel} - \alpha_s}{\alpha_s}$$

e

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha}_{\perp} = \frac{\alpha_{\perp} - \alpha_s}{\alpha_s}$$

onde α_s , α_{\parallel} e α_{\perp} são os parâmetros de rede do substrato e da camada, nas direções paralela (\parallel) e perpendicular (\perp) à interface C/S. Usando os sub-índices s e c para designar respectivamente o substrato e a camada, segue de (II-11) que

$$\cos\beta_{s,c} = \frac{\frac{\lambda}{2} |\vec{g}_{s,c}| - \text{sen}\omega \cos\gamma_{s,c}}{\cos\omega \text{sen}\gamma_{s,c}}, \quad (\text{III-1})$$

e os vetores secundários \vec{g}_s e \vec{g}_c são:

$$\vec{g}_s = \frac{h}{a_s} \vec{a}^* + \frac{k}{a_s} \vec{b}^* + \frac{l}{a_s} \vec{c}^* \quad (\text{III-2})$$

e

$$\vec{g}_c = \frac{h}{a_{\parallel}} \vec{a}^* + \frac{k}{a_{\parallel}} \vec{b}^* + \frac{l}{a_{\perp}} \vec{c}^*$$

A normal à superfície é a própria direção 001, implicando que, o eixo de rotação \vec{e}_3 é paralelo a \vec{c}^* . Portanto, os planos primários terão índices 00L. De (II-12),

$$\cos\gamma_s = \frac{l}{[h^2 + k^2 + l^2]^{1/2}} \quad \text{e} \quad \cos\gamma_c = \frac{l/a_{\perp}}{[(h^2 + k^2)/a_{\parallel}^2 + l^2/a_{\perp}^2]^{1/2}} \quad (\text{III-3})$$

Substituindo (III-2 e 3) em (III-1) calcula-se os ângulos $\beta_{\bullet, \circ}$ como sendo:

$$\cos \beta_{\bullet} = \frac{\frac{\lambda}{2a_{\bullet}}(h^2 + k^2 + l^2) - l \operatorname{sen} \omega}{[h^2 + k^2]^{1/2} \cos \omega} \quad (\text{III-4})$$

e

$$\cos \beta_{\circ} = \frac{\frac{\lambda}{2} \left[(h^2 + k^2)/\alpha_{\parallel}^2 + l^2/\alpha_{\perp}^2 \right] - \frac{l}{\alpha_{\perp}} \operatorname{sen} \omega}{\left[(h^2 + k^2)/\alpha_{\parallel}^2 \right]^{1/2} \cos \omega} \quad (\text{III-5})$$

A separação $\Delta\phi$ entre os máximos dos picos das contribuições de \vec{g}_{\bullet} e \vec{g}_{\circ} no diagrama Renninger, pode ser calculada através de (III-4 e 5), pois

$$\Delta\phi = (\varphi_{\circ} \pm \beta_{\circ}) - (\varphi_{\bullet} \pm \beta_{\bullet}) = \Delta\varphi \pm \Delta\beta.$$

Para camadas com deformação tetragonal, calcula-se de (II-13), $\Delta\phi = \varphi_{\circ} - \varphi_{\bullet} = \theta$. Portanto, a separação $\Delta\phi$ é igual à $\pm \Delta\beta$, e o sinal, tem a ver com a entrada ou saída do vetor secundário da EE. A influência da deformação tetragonal $\left[\frac{\Delta\alpha_{\parallel}}{\alpha} \text{ e } \frac{\Delta\alpha_{\perp}}{\alpha} \right]$ no desvio $\Delta\beta$ é obtido diferenciando (III-5) no ponto onde $\alpha_{\parallel} = \alpha_{\perp} = \alpha_{\bullet}$, isto é:

$$\Delta(\cos \beta) = -\operatorname{sen} \beta \cdot \Delta\beta = \left[\frac{\partial(\cos \beta_{\circ})}{\partial \alpha_{\parallel}} \right]_{\alpha_{\parallel} = \alpha_{\perp} = \alpha_{\bullet}} \cdot \Delta\alpha_{\parallel} + \left[\frac{\partial(\cos \beta_{\circ})}{\partial \alpha_{\perp}} \right]_{\alpha_{\perp} = \alpha_{\parallel} = \alpha_{\bullet}} \cdot \Delta\alpha_{\perp} \quad (\text{III-6})$$

sendo:

$$\left(\frac{\partial(\cos\beta_0)}{\partial a_{\parallel}} \right)_{a_{\parallel}=\alpha_{\perp}=\alpha_{\bullet}} = - \frac{\frac{\lambda}{2a_{\bullet}}(\lambda^2+k^2-l^2) + l \operatorname{sen}\omega}{[\lambda^2+k^2]^{1/2} \cos\omega} \cdot \frac{1}{a_{\bullet}} \quad (\text{III-7})$$

$$\left(\frac{\partial(\cos\beta_0)}{\partial a_{\perp}} \right)_{a_{\perp}=\alpha_{\parallel}=\alpha_{\bullet}} = - \frac{\frac{\lambda}{2a_{\bullet}} l^2 - l \operatorname{sen}\omega}{[\lambda^2+k^2]^{1/2} \cos\omega} \cdot \frac{1}{a_{\bullet}} \quad (\text{III-8})$$

Substituindo (III-7 e 8) em (III-6), tem-se:

$$\begin{aligned} \Delta\beta = & \frac{\frac{\lambda}{2a_{\bullet}}(\lambda^2+k^2-l^2) + l \operatorname{sen}\omega}{[\lambda^2+k^2]^{1/2} \cos\omega \operatorname{sen}\beta_{\bullet}} \cdot \frac{\Delta a_{\parallel}}{a} + \\ & + \frac{l \left(\frac{\lambda l}{a_{\bullet}} - \operatorname{sen}\omega \right)}{[\lambda^2+k^2]^{1/2} \cos\omega \operatorname{sen}\beta_{\bullet}} \cdot \frac{\Delta a_{\perp}}{a} \quad (\text{III-9}) \end{aligned}$$

É necessário se fazer uma importante observação ao termo dentro do parênteses, que multiplica $\frac{\Delta a_{\perp}}{a}$. Permita primeiro calcular o ângulo ξ , que o feixe secundário $\vec{k}_{\bullet,c}$ (refletido pelos planos representados pelos vetores $\vec{g}_{\bullet,o}$) faz com a interface C/S. No instante que o nó apontado por $\vec{g}_{\bullet,o}$ está tocando a EE, a lei de Bragg fornece:

$$\vec{S}_0 + \vec{k}_{\bullet,c} = \vec{g}_{\bullet,o}$$

então $\cos\left(\frac{\pi}{2} - \xi_{\bullet,c}\right) = \lambda(\vec{g}_{\bullet,c} - \vec{S}_0) \cdot \vec{e}_g$, e usando \vec{S}_0 como dado em

(II-6), obtém-se os ângulos $\zeta_{h,c}$ como:

$$\text{sen} \zeta_{h,c} = \frac{\lambda l}{a_{\perp}} - \text{sen} \omega \quad (\text{III-10})$$

e

$$\text{sen} \zeta_{c,c} = \frac{\lambda l}{a_{\perp}} - \text{sen} \omega \quad (\text{III-11})$$

O termo dentro do parênteses acima citado, é identificado por (III-10), como sendo igual a $\text{sen} \zeta_{h,c}$. No diagrama Renninger para a camada ($\omega = \text{ângulo de Bragg da reflexão primária } 00L \text{ da camada}$), as expressões (III-10 e 11) ficam:

$$\text{sen} \zeta_{h,c} = \frac{\lambda l}{a_{\perp}} - \frac{\lambda L}{2a_{\perp}} \quad (\text{III-12})$$

e

$$\text{sen} \zeta_{c,c} = \frac{\lambda l}{a_{\perp}} - \frac{\lambda L}{2a_{\perp}} \quad (\text{III-13})$$

Dessas equações nota-se que são importantes as reflexões secundárias de superfície, isto é, aquelas reflexões com índices $(h, k, l = \frac{L}{2})$, pois assim:

$$\text{sen} \zeta_{h,c} = \frac{\lambda L}{2a_{\perp}} \cdot \frac{\frac{\Delta a_{\perp}}{a_{\perp}}}{1 + \frac{\Delta a_{\perp}}{a_{\perp}}} \quad (\text{III-14})$$

e

$$\text{sen} \zeta_{c,c} = 0 \quad (\text{III-15})$$

Dai, substituindo $\text{sen} \zeta_{h,c}$ em (III-9) obtém-se:

$$\Delta\beta = \Omega^{-1} \frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel + \frac{\frac{\lambda L^2}{4\alpha} \cdot \left(\frac{\Delta\alpha}{\alpha}\right)^2}{[\lambda^2 + k^2]^{1/2} \cos\omega \sin\beta} \cdot \frac{1}{1 + \frac{\Delta\alpha}{\alpha}} \quad (\text{III-16})$$

onde, de (III-9)

$$\Omega \equiv \frac{[\lambda^2 + k^2]^{1/2} \cos\omega \sin\beta}{\frac{\lambda}{2\alpha} (\lambda^2 + k^2 - \ell^2) + \ell \sin\omega} \quad (\text{III-17})$$

Qualquer reflexão secundária com índices $\lambda k \frac{L}{2}$ é uma reflexão secundária de superfície, porque o feixe secundário é refletido paralelo à superfície da amostra. Por exemplo, pode ser visto de (III-15), que no diagrama da camada, $\xi_0 = 0$. Em outras palavras, a trajetória do nó secundário $\lambda k \frac{L}{2}$, durante a rotação da amostra em torno de \vec{e}_3 , está contida no plano equatorial da EE.

Nessas reflexões de superfície dois fatos importantes ocorrem:

i) A deformação $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \perp$ contribui apenas em segunda ordem para a variação $\Delta\beta$. Então, na prática, podemos calcular $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel$ diretamente da medida de $\Delta\beta$, ou seja:

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel = \Omega \cdot \Delta\beta - \epsilon \approx \Omega \cdot \Delta\beta \quad (\text{III-18})$$

O erro ao desprezar a contribuição da deformação $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \perp$ é representado em (III-18) por ϵ , sendo:

$$\epsilon \equiv \frac{\frac{\lambda L^2}{4\alpha} + \frac{L}{2} \operatorname{sen} \omega}{\frac{\lambda}{2\alpha} (h^2 + k^2 - L^2/4)} \cdot \frac{\left(\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \right)^2}{1 + \frac{\Delta\alpha}{\alpha}} \quad (\text{III-19})$$

A figura 5 apresenta um esquema simplificado do porque a variação, na posição do nó secundário de superfície, devido à variação do parâmetro de rede na direção perpendicular à interface altera muito pouco o ângulo ϕ no qual o nó cruza a EE. Quando fazemos $\epsilon = 0$ estamos aproximando a EE, na região em torno do ponto de cruzamento, por um plano tangente à ela. Qualquer variação do nó na direção perpendicular à interface, é paralela ao plano tangente. Ficando, então, somente a deformação $\frac{\Delta\alpha}{\alpha}$ contribuindo para alterar o ângulo de cruzamento ϕ .

ii) Na camada, o feixe secundário difratado por \vec{g}_c , é paralelo à superfície ($\xi_c = 0$). Portanto, este feixe é o que mais "viaja" pela camada, conseqüentemente, interage mais com os planos de acoplamento e por isso, a intensidade difratada por esse caminho de DM, é menos sensível à redução da espessura da camada, do que os caminhos envolvendo reflexões secundárias tipo Bragg ou tipo Laue.

Assim, é proposto aqui pela primeira vez, um método para caracterizar a deformação $\frac{\Delta\alpha}{\alpha}$ de uma camada fina fazendo uso das reflexões secundárias de superfície no fenômeno da DM.

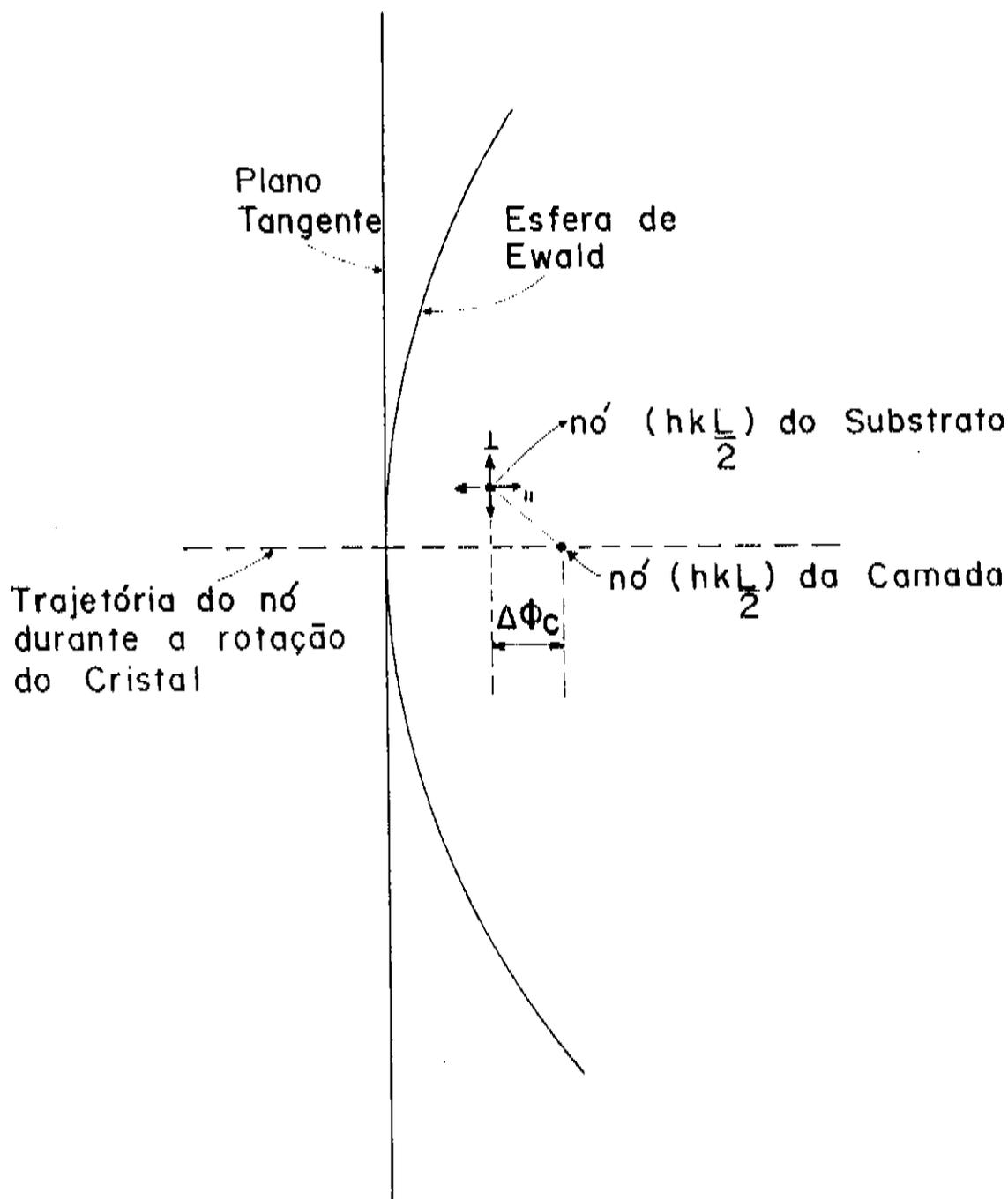


Figura 5: Ilustração no espaço recíproco, do porque a deformação perpendicular à interface influi muito pouco sobre $\Delta\beta$.

No item 00.1 usando a construção de Kossel, chegamos ao sistema de equações em (II-3), cuja solução, permite através de (II-5), saber a direção (ω, ϕ) que o feixe deve incidir para ser difratado por um determinado caminho de DM, especificado pelos vetores \vec{g}_1 e \vec{g}_2 . Esse conjunto de equações possibilita prever a ocorrência de dois tipos de caminhos híbridos: Um é aquele com o vetor recíproco secundário do substrato ($\vec{g}_1^{(s)}$), e o vetor de acoplamento da camada ($\vec{g}_2^{(c)}$). O outro tipo de caminho híbrido tem vetor secundário da camada ($\vec{g}_1^{(c)}$), e vetor de acoplamento do substrato ($\vec{g}_2^{(s)}$).

Por simplificação, todo o espaço recíproco foi normalizado pelo parâmetro recíproco do substrato $(1/a_s)$. Então, o vetor recíproco $\vec{g}^{(c)}$ representando uma camada com deformação tetragonal, é escrito como $\vec{g}^{(c)} = (h\tau, k\tau, l\sigma)$, onde $\tau = a_s/a_{\parallel}$ e $\sigma = a_s/a_{\perp}$. O raio da esfera de reflexão passa, agora, a ser $R = 2a_s/R$.

Uma vez que a reflexão primária tem índices 00L, os vetores recíprocos envolvidos nos caminhos acima citados, são:

$$\begin{aligned} \vec{g}_1^{(s)} &= (h, k, l), \\ \vec{g}_2^{(c)} &= (-h\tau, -k\tau, (L-l)\sigma), \\ \vec{g}_1^{(c)} &= (h\tau, k\tau, l\sigma) \text{ e} \\ \vec{g}_2^{(s)} &= (-h, -k, L-l). \end{aligned} \tag{III-20}$$

Os números inteiros h, k e l são os índices de Miller dos planos secundários. Como $\vec{g}_1 + \vec{g}_2 = \vec{g}_0$, os planos de acoplamento tem índices $(-h, -k, L-l) = (0, 0, L) - (h, k, 0)$.

Além desses caminhos híbridos, existem outros dois caminhos de DM envolvendo os mesmos vetores, mas que não são caminhos híbridos. Para facilitar a identificação dos caminhos, dá-se nomes a eles. Os nomes terão duas letras (S ou C); a primeira letra

indica se os planos secundários estão no substrato (S) ou na camada (C), e do mesmo modo, a segunda letra indica onde estão os planos de acoplamento. Assim,

$$\begin{aligned}
 SC &: \vec{g}_1^{(s)} + \vec{g}_2^{(c)} \\
 CC &: \vec{g}_1^{(c)} + \vec{g}_2^{(c)} \\
 SS &: \vec{g}_1^{(s)} + \vec{g}_2^{(s)} \quad e \\
 CS &: \vec{g}_1^{(c)} + \vec{g}_2^{(s)}
 \end{aligned}
 \tag{III-21}$$

De (II-3) e (II-5) obtém-se, para qualquer um dos caminhos, a direção de incidência (ω, ϕ) . Contudo, desse modo os nós recíprocos de ambas as redes são implicitamente considerados como ideais, isto é, o nó é representado por um ponto no espaço recíproco. O ângulo de incidência ω dos caminhos híbridos (SC e CS) pode não coincidir com o ângulo de Bragg da reflexão primária. Sendo assim, nenhuma contribuição deles deve ser esperada no diagrama Renninger. Porém, se a aproximação da rede cristalina do substrato por uma rede ideal pode ser aceitável, o mesmo não se aplica à rede cristalina da camada.

000.2.1 - CONSTRUÇÃO DE KOSSEL PARA CRISTAIS MOSAICOS

O cone de Bragg para um cristal ideal, define as condições para um conjunto de planos atômicos, representados pelo vetor recíproco \vec{g} , difratar uma radiação com comprimento de onda λ . O cone de Bragg é dado como já mostrado no item 00.1, por:

$$\begin{cases} \vec{r} \cdot \vec{g} = G \\ |\vec{r}| = R \end{cases}
 \tag{III-22}$$

Contudo, um cristal real muitas vezes tem uma estrutura que

está longe de ser perfeita. Quando muito, em regiões bem pequenas, a estrutura tem a regularidade proclamada pela teoria. E essas regiões estão ligadas a outras regiões também perfeitas através de fronteiras que são distorções e deslocamentos na estrutura. Um cristal real deste tipo é chamado de "cristal mosaico" e as regiões perfeitas são chamadas "blocos mosaicos". Se nos blocos mosaicos considera-se uma determinada família de planos cristalinos, as normais à essa família, nos diversos blocos, estarão distribuídas em torno de uma direção média, que é a direção das normais da maioria dos blocos (direção ideal). Espacialmente, a distribuição das normais é uma função aproximadamente gaussiana e isotrópica^[13] e, portanto, pode se dizer que a fração do número de blocos com as normais orientadas dentro de um intervalo de ângulo sólido $d\Omega$ na direção do vetor recíproco \vec{g}' , que faz um ângulo θ com a direção do vetor recíproco ideal \vec{g} , é:

$$\frac{N}{N_0} = \rho(\theta) \cdot d\Omega \propto \exp\left(-\frac{\theta^2}{2\eta^2}\right) \cdot d\Omega \quad (\text{III-23})$$

onde η é o desvio padrão da distribuição, também conhecido como largura mosaico.

Vamos imaginar $\rho(\theta)$ como uma "densidade" distribuída sobre uma superfície esférica S , de raio $|\vec{g}|$, centrada na origem O do espaço recíproco. Quando um feixe incidente é representado na EE de raio $1/\lambda$, os planos difratantes estarão nos blocos mosaicos cuja desorientação faz com que os vetores recíprocos \vec{g}' desses blocos, tenham suas extremidades designando os pontos do círculo formado pela intersecção das esferas (EE e a esfera S). Dessa maneira, todos esses vetores \vec{g}' terão origem e extremidade sobre a EE, e portanto, os correspondentes blocos mosaicos estarão em condição de difração. Assim os feixes difratados são espalhados paralelos aos segmentos que unem o centro da EE e os pontos sobre o círculo de intersecção. Em cada ponto a direção é $\vec{r}' = 2\vec{g}' - \vec{r}$ com intensidade proporcional à função $\rho(\theta)$.

Para uma determinada posição da EE, o espalhamento mais intenso é gerado para o ponto sobre o círculo de intersecção cujo ângulo θ entre \vec{g}' e \vec{g} é menor, ou seja, aquele ponto designado pelo vetor \vec{g}' que está contido no plano definido por $\vec{r} = -2\vec{k}$ e \vec{g} - o plano de incidência. A figura 6 mostra esse espalhamento quando o ângulo de incidência não satisfaz a condição de Bragg para o vetor \vec{g} .

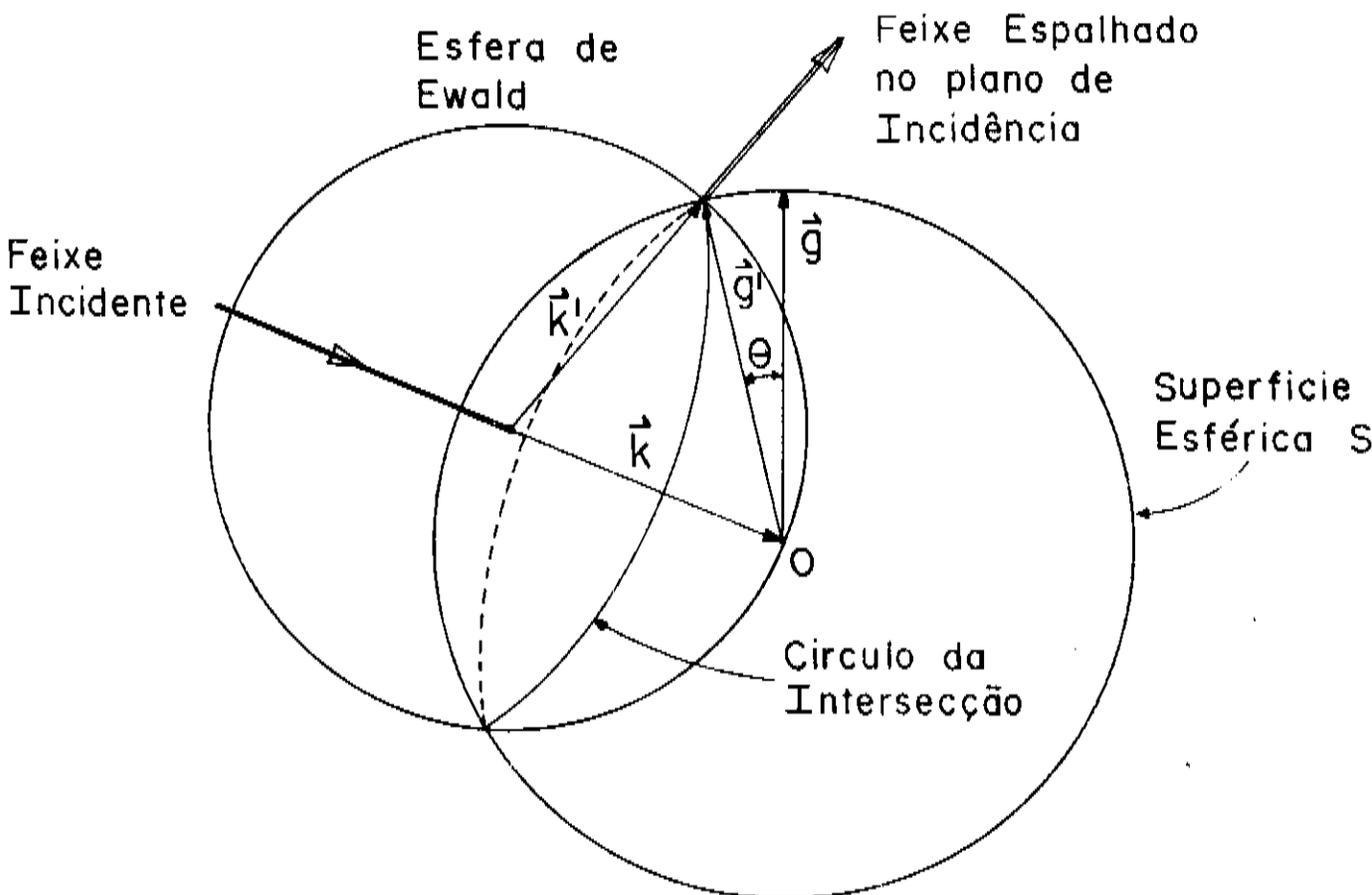


Figura 6: Intersecção da EE com a esfera S de raio $|\vec{g}|$ centrada na origem O do espaço recíproco, representando o espalhamento por um cristal mosaico.

A maneira mais simples de considerar a imperfeição cristalina em (III-22) é desprezar o espalhamento fora do plano de incidência. Essa aproximação é conseguida, escrevendo-se o vetor \vec{g}' como a soma parametrizada dos vetores \vec{g} e \vec{r} , isto é:

$$\vec{g}' = a\vec{g} + \delta\vec{r} \quad (\text{III-24})$$

Os parâmetros a e δ são determinados a partir de três condições básicas:

$$|\vec{g}'|^2 = G \quad (\text{III-25})$$

$$\vec{r} \cdot \vec{g}' = G \quad (\text{III-26})$$

$$|\vec{r}| = R \quad (\text{III-27})$$

A primeira, expressa o fato das distâncias interplanares dentro dos diferentes blocos mosaicos serem iguais (cristal perfeito). As outras, definem o cone de Bragg para o vetor \vec{g}' .

Substituindo (III-24 e 27) em (III-25 e 26) obtém-se o seguinte sistema:

$$\begin{cases} a^2 + \frac{\delta^2}{N^2} + 2a\delta \frac{\nu}{N} = 1 \\ a\nu + \frac{\delta}{N} = N \end{cases} \quad (\text{III-28})$$

$$\text{onde } \nu = \frac{\vec{g} \cdot \vec{r}}{R\sqrt{G}} \quad \text{e } N = \frac{\sqrt{G}}{R} = \text{sen}\theta_{\text{Bragg}}$$

A solução desse sistema fornece os valores de a e δ em termos de ν , que é uma função de θ . Daí,

$$\begin{cases} a = \sqrt{1 - N^2} / \sqrt{1 - \nu^2} \\ \delta = N(N - \nu a) \end{cases} \quad (\text{III-29})$$

Como a aproximação por gaussianas é utilizada os picos de difração são simétricos em torno do máximo. Então, sempre existem dois ângulos distintos, nos quais o feixe incidente é refletido com a mesma intensidade, exceto no exato ângulo de Bragg. A figura 7 mostra os valores de ν_+ e ν_- correspondentes a dois pontos simétricos do pico de difração, e também a função $\nu_{\pm}(\theta) = \cos[(\frac{\pi}{2} - \theta_{\text{Bragg}}) \mp \theta]$.

Para cristais com largura mosaico muito pequena ($\eta \ll 1$ radiano) os planos nos blocos mosaicos que contribuem nos espalhamentos de radiação de intensidade significativa têm normais com desorientações muito pequenas ($\theta \approx \eta$) implicando em que, em primeira aproximação, $\nu_{\pm}(\theta) \approx N \pm \theta \cdot \sqrt{1 - N^2}$. Substituindo $\nu_{\pm}(\theta)$ em (III-29), e desprezando termos de segunda ordem em θ , tem-se:

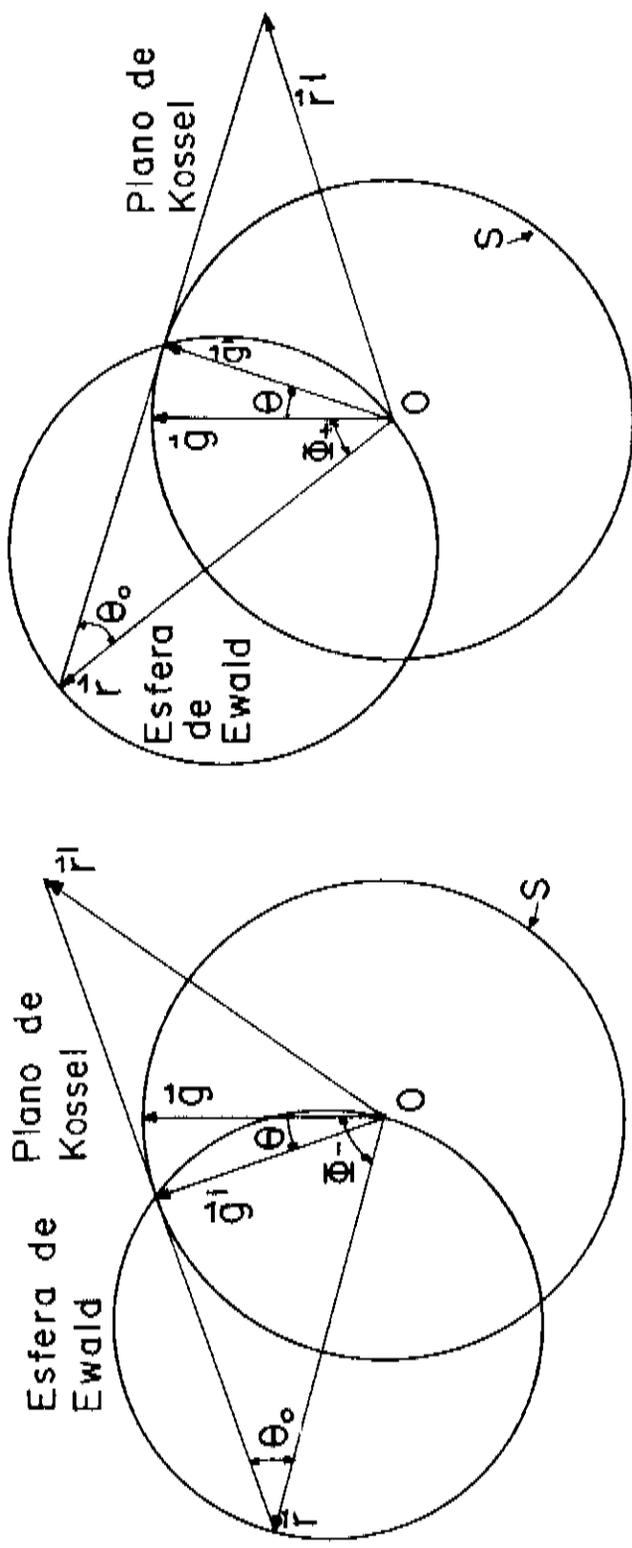
$$\begin{cases} a = 1 \pm \alpha\theta \\ \delta = \mp \alpha\theta \end{cases} \quad (\text{III-30})$$

onde $\alpha = \frac{N}{\sqrt{1 - N^2}} = \tan\theta_{\text{Bragg}}$.

A partir daí, conhece-se \vec{g}' em função de θ . Usando (III-24, 26 e 30), escreve-se (III-22) como:

$$\begin{cases} \vec{r} \cdot \vec{g}' = \frac{G \pm R^2 \alpha \theta}{1 \pm \alpha \theta} \\ |\vec{r}'| = R \end{cases} \quad (\text{III-31})$$

As equações em (III-31), definem para um escolhido ângulo θ , dois cones (cone₊ e cone₋) mostrados na figura 8. Esses cones



$$\Phi^\pm = (90 - \theta_0) \mp \theta$$

$$v^\pm = \cos \Phi^\pm$$

Figura 7: Construção de Kossel para duas situações simétricas, onde os planos difratantes estão nos blocos mosaicos com a mesma desorientação θ . Isto significa que, as 2 situações são representadas por $v^\pm = \cos(90 - \theta_0 \pm \theta)$.

determinam dois pontos simétricos do pico de difração e quando o feixe incide paralelo a um gerador do cone₊, o feixe refletido é paralelo a um gerador do cone₋, e vice-versa. Como já foi dito a intensidade do feixe espalhado é proporcional à $\rho(\theta)$. Note que para θ tendendo a zero os dois cones (+ e -), tendem a coincidir com o cone que determina o espalhamento de intensidade máxima.

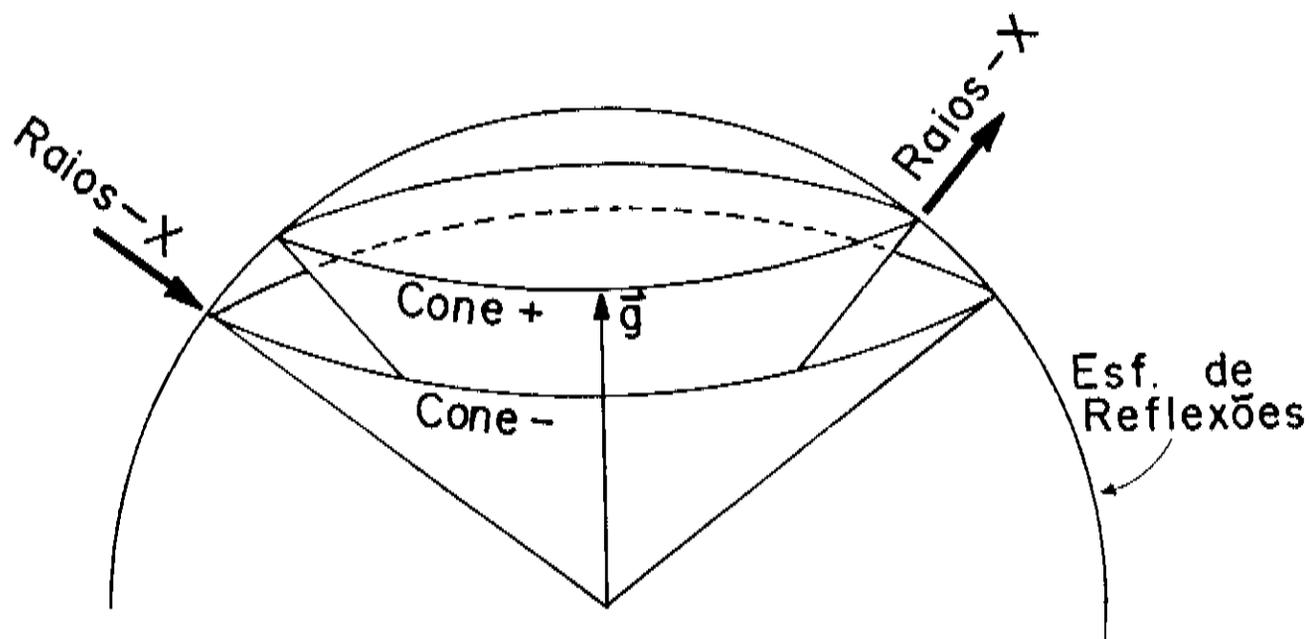


Figura 8: Representação dos cones de Bragg indicando as possíveis condições de difração, formadas por todos os blocos mosaicos com uma mesma desorientação θ .

A análise da influência que as imperfeições existentes na rede cristalina da camada causam nas condições de ocorrência de DM híbridas, será feita, através da largura mosaico, ou seja, supondo-se as desorientações dos diversos blocos mosaicos que compõem a camada. A influência das demais imperfeições tais como: dislocações, domínios de antifase, etc., será investigada oportunamente. É importante ressaltar que, com a hipótese acima, não se está tentando mostrar a existência ou não de blocos mosaicos desorientados na camada, mas simplesmente mostrar que um dos efeitos causados por essas imperfeições em um diagrama Renninger para um sistema camada/substrato, é o favorecimento da ocorrência de picos de DM híbrida.

O sistema em (II-3) foi adaptado para cada um dos caminhos SC e CS citados no item 000.2. Usando-se (III-31) para o caminho SC : $\vec{g}_1^{(a)} + \vec{g}_2^{(c)}$ o sistema fica:

$$\begin{cases} \vec{r}_1 \cdot \vec{g}_1^{(a)} = G_1^{(a)} \\ \vec{r}_1 \cdot \vec{g}_2^{(c)} = - \frac{(G_2^{(c)} + R^2 \alpha_2 \theta)}{1 + \alpha_2 \theta} \\ |\vec{r}_1| = R \end{cases} \quad (\text{III-32.a})$$

$$\vec{r} = 2\vec{g}_1^{(a)} - \vec{r}_1 \quad (\text{III-32.b})$$

e para o caminho CS : $\vec{g}_1^{(c)} + \vec{g}_2^{(a)}$ o sistema fica:

$$\begin{cases} \vec{r}_1 \cdot \vec{g}_1^{(c)} = \frac{(G_1^{(c)} + R^2 \alpha_1 \theta)}{1 + \alpha_1 \theta} \\ \vec{r}_1 \cdot \vec{g}_2^{(a)} = - G_2^{(a)} \\ |\vec{r}_1| = R \end{cases} \quad (\text{III-33.a})$$

$$\vec{r} = 2\vec{g}_1^{(c)} - \vec{r}_1 + 2(\vec{g}_1^{(c)} - \vec{r}_1)\alpha_1 \theta \quad (\text{III-33.b})$$

Onde $G_{1,2}^{(a,c)} = |g_{1,2}^{(a,c)}|^2$ e $\alpha_{1,2} = \frac{\sqrt{G_{1,2}^{(c)}}}{\sqrt{R^2 - G_{1,2}^{(c)}}}$. Note

que, aqui o ângulo θ pode ter também sinal negativo ($\pm \theta$). Mas em ambos os casos, o espalhamento é devido aos grãos com desorientação $|\theta|$ em relação à direção ideal. O sinal apenas define qual o cone (\pm) que está sendo considerado (fig. 8).

O vetor \vec{r} , para um caminho especificado, é agora uma função de θ , ou seja, $\vec{r} = \vec{r}(\theta)$. Isto implica, de (II-5), que a direção de incidência (ω, ϕ) também é uma função de θ .

III.2.3 - CONSTRUÇÃO DO DIAGRAMA DE INCIDÊNCIA

O gráfico de $\omega \times \phi$ construído a partir dos valores (ω, ϕ) , será chamado de diagrama de incidência (DI). Ele mostra as direções de incidência que deverão ser satisfeitas pelo feixe de raios-X, para que as possíveis difracções, dentro de um escolhido intervalo de ângulo sólido, ocorram. Uma reta com ω constante e valor igual ao ângulo de Bragg dos planos primários, representa as direções de incidência para a reflexão primária. As direções de incidência que o feixe deve ter para ser difratado por cada um dos caminhos SC e CS é representado por um conjunto de pontos, que indicam a existência dos blocos mosaicos na camada com desorientação entre $\theta = 0$ e $\theta \approx \eta_c$. O efeito da largura mosaico no caminho CC, apenas alarga o respectivo pico no diagrama Renninger, sem alterar sua posição de máximo. Portanto, ele será representado por um único ponto, correspondendo a sua máxima contribuição. O mesmo raciocínio pode ser usado para o caminho SS.

No DI, ainda é possível representar a divergência do feixe incidente. Considerando-se respectivamente δh e δv como as componentes da divergência no plano de incidência primário (divergência horizontal), e no plano perpendicular a ele (divergência vertical). Supondo que a direção central do feixe incidente é dada por (ω_0, ϕ_0) , ve-se na figura 9, que o intervalo angular em ω definido pelo feixe incidente é $\omega = \omega_0 \pm \delta h$. Usando a lei dos cossenos no segmento \overline{MN} , obtém-se:

$$(\overline{MN})^2 = 2R^2[1 - \cos(2\delta v)] = 2R^2 \cos^2 \omega [1 - \cos(\phi - \phi_0)]$$

Isto implica que, para $\delta v \ll 1$, o correspondente intervalo angular em ϕ definido pelo feixe incidente é $\phi \approx \phi_0 \pm \frac{\delta v}{\cos \omega}$. Por exemplo, a divergência de um feixe colimado por uma fenda circular, cujo diâmetro do orifício produz uma divergência máxima de 2δ , será representada no DI por uma área hachurada, limitada pela curva fechada centrada em (ω_0, ϕ_0) . O contorno dessa curva é dada por:

$$\begin{cases} \omega = \omega_0 + \delta \cos \psi \\ \phi = \phi_0 + \frac{\delta}{\cos \omega} \cdot \sin \psi \end{cases} \quad (\text{III-34})$$

com ψ variando de 0 até 2π .

Um desejado diagrama Renninger é obtido, quando a reta com ω constante representando uma reflexão primária é varrida por uma fenda escolhida. Todas as difrações cujas direções de incidência são satisfeitas pela fenda no DI, ocorrerão.

Foi desenvolvido um programa de computador, cujo conteúdo aparece no apêndice, que resolve os sistemas (III-32 e 33) e fornece as coordenadas (ω, ϕ) para a construção de DI desejado.

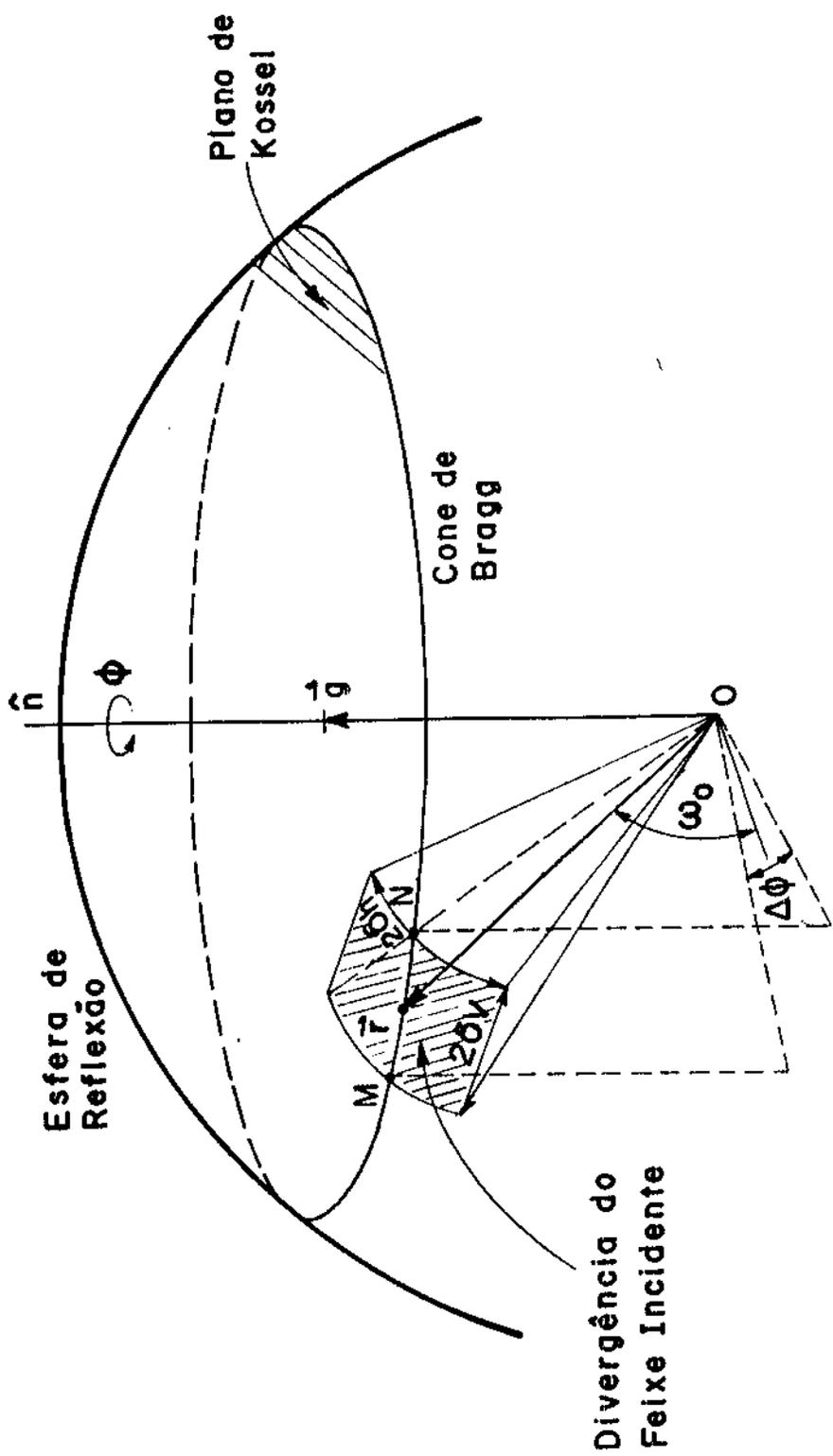


Figura 9: Representação no espaço recíproco da divergência do feixe incidente.

IV - DESCRIÇÃO DA GEOMETRIA INSTRUMENTAL

Na figura 10 é apresentado um esquema simplificado da geometria instrumental, com o goniostato de quatro eixos de círculo completo montado sobre a base do goniômetro. O plano contendo o círculo do goniostato é chamado de plano do goniostato. O eixo de rotação do goniostato ($\hat{\phi}$) é normal ao plano do goniostato, e passa pelo centro de seu círculo. A rotação da amostra em torno do eixo $\hat{\phi}$ é feita com um motor de passo, cujo menor passo é $0,01^\circ$. O goniômetro é dotado de um motor contínuo e um sistema de engrenagens, que permite a rotação da amostra, juntamente com o goniostato, em torno do eixo do goniômetro ($\hat{\theta}$) com velocidade pré-escolhida $\dot{\theta}$. Simultaneamente, pode-se girar o detector com velocidade $2\dot{\theta}$, ou mantê-lo fixo numa determinada posição. O centro do detector está colocado no plano de incidência, aquele que contém o feixe incidente e o eixo $\hat{\phi}$. A amostra montada numa cabeça goniométrica fixa ao círculo do goniostato estará alinhada quando os planos primários estiverem paralelos ao plano do goniostato, e conseqüentemente, o eixo de rotação $\hat{\phi}$ coincidindo com a normal à superfície da amostra ($\hat{\phi} \parallel \vec{e}_3$). Então, para um dado ângulo θ de rotação em $\hat{\theta}$, o ângulo de incidência é $\omega = \frac{\pi}{2} - |\theta|$. O mostrador do goniômetro que fornece o ângulo θ tem uma escala cuja menor divisão é $0,01^\circ$.

Os diagramas foram obtidos usando um gerador de feixe divergente de raios-X com foco efetivo de $50\mu\text{m} \times 50\mu\text{m}$. Um colimador de latão com 330mm de comprimento, com possibilidade de substituição da fenda na saída, é usado para limitar a divergência do feixe incidente.

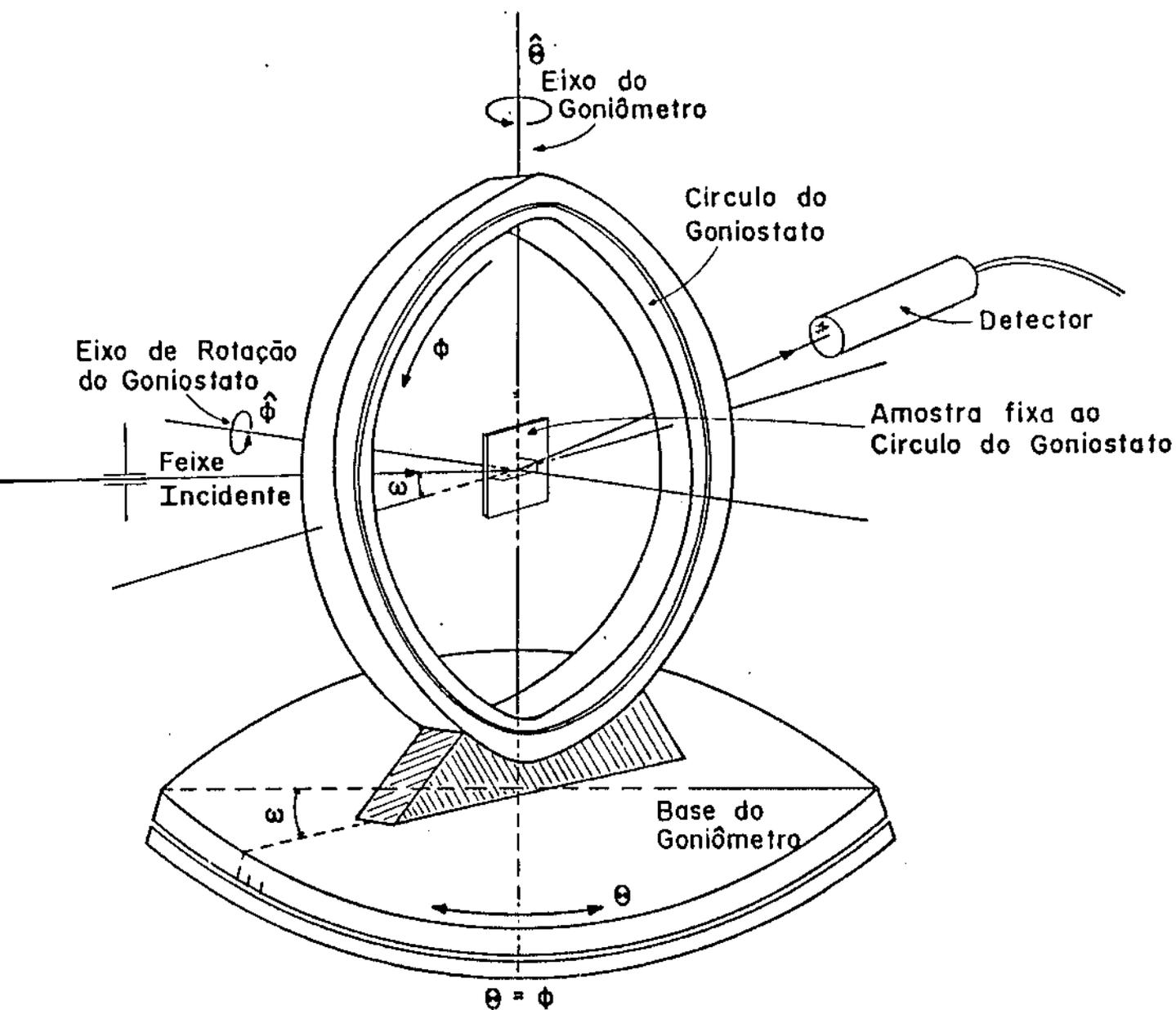


Figura 10: Esquema da geometria instrumental, a qual permite o posicionamento do cristal em função dos ângulos ω e ϕ relativos a direção do feixe incidente. A cabeça goniométrica não está mostrada nessa figura.

Todas as amostras usadas nas experiências contêm uma ou mais camadas crescidas sobre um substrato de Si[001] ou GaAs[001]. Os substratos tem $350\mu\text{m}$ de espessura e área superficial da ordem de 1cm^2 . Dois conjuntos de amostras são estudados, cada conjunto pertence a um dos sistemas GaAs/Si ou InGaAsP/GaAs.

As camadas de GaAs foram crescidas por epitaxia química em vácuo (VCE). Os detalhes das amostras e suas condições de preparação são apresentados na tabela I.

As amostras de InGaAsP/GaAs foram preparadas especificamente para as experiências usando as reflexões secundárias de superfície. Primeiro, uma camada de InGaAsP com 500Å de espessura foi crescida por epitaxia em fase líquida (LPE) sobre um substrato de GaAs. Segundo, sobre essa camada numa região que corresponde aproximadamente à metade da área superficial disponível, uma nova camada de InGaAsP com espessura de 2500Å e composição diferente à anterior é crescida sobre a primeira. Clivando ao meio essa amostra as duas amostras mostradas na figura 11 são obtidas. A composição das camadas foram determinadas por Espectroscopia Auger e as espessuras foram medidas com interferência de luz após polimento feito em ângulo e os tempos de crescimento foram 0,1 segundos e 3,0 segundos para a primeira e a segunda camada respectivamente.

Tabela I: Detalhes das camadas de GaAs crescidas sobre Si por VCE

Número Amostra	Nome Amostra	Espessura Camada (μm)	Temperatura de crescimento ($^{\circ}\text{C}$)
1	MO-65Si	1,2	680
2	MO-03Si	0,8	650
3	MO-58Si	0,05	450
4	MO-59Si	0,05	450

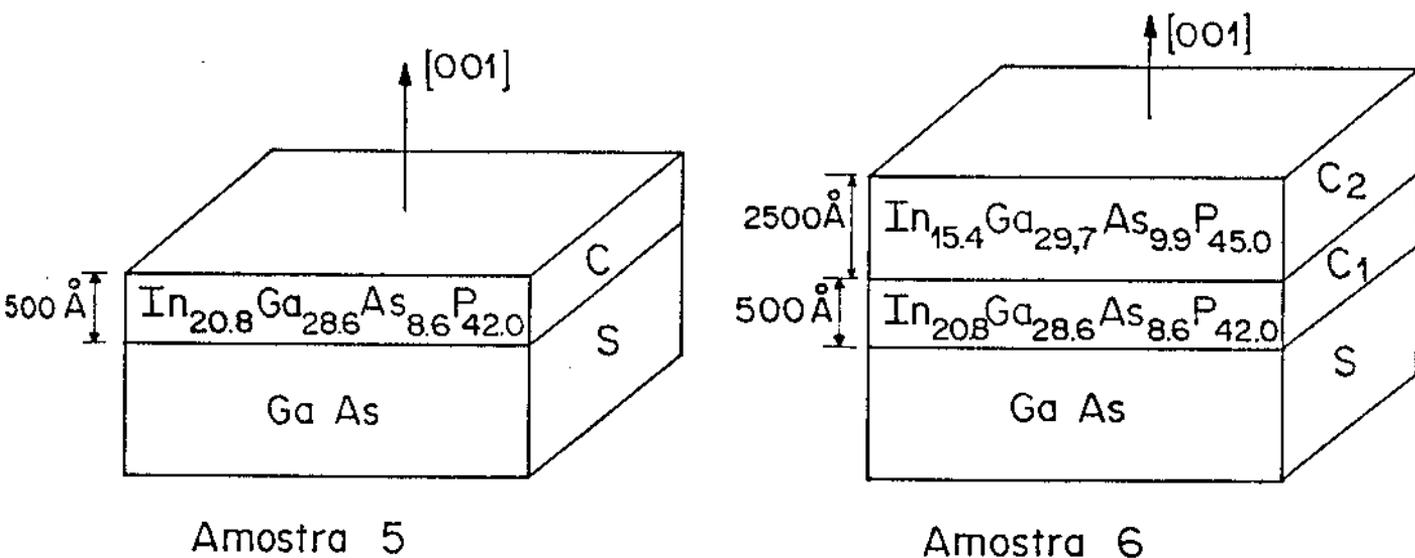


Figura 11: Esquema das amostras de InGaAsP/GaAs com as respectivas composições das camadas.

Neste capítulo vamos apresentar e discutir os resultados obtidos por difração múltipla de raios-X em geometria de Renninger, em dois tipos de amostras: i) o sistema GaAs/Si e ii) o sistema InGaAsP/GaAs.

As primeiras evidências experimentais da ocorrência de DM híbrida num diagrama Renninger, são apresentadas para o sistema GaAs/Si. A partir daí, é construído o diagrama de incidência (DI), que permite analisar os caminhos híbridos possíveis de serem responsáveis pela ocorrência das DM híbridas acima mencionadas. Uma vez explicada a ocorrência, a determinação dos máximos dos picos híbridos e dos normais da rede (não híbridos), permite a determinação da discordância entre os parâmetros das redes camada/substrato, na direção paralela à interface entre elas. Mesmo camadas pouco espessas podem ser analisadas com o método da reflexão secundária de superfície.

Também é apresentada, a aplicação do método de caracterização descrito, para o sistema InGaAsP/GaAs. Nesse caso, são analisadas amostras com 1 e 2 camadas depositadas sobre o substrato.

V.1 — DIFRAÇÃO MÚLTIPLA HÍBRIDA NO SISTEMA GaAs/Si[001]

Nos diagramas Renninger, onde os planos primários têm índices 00L, só é possível a ocorrência de uma reflexão secundária de superfície, quando $\frac{L}{2}$ for um número inteiro (ítem 000.1). A escolha da reflexão primária fica, portanto, restrita a 002, 004, 006, etc. Contudo, nas amostras de GaAs e/ou Si a maior razão entre as intensidades multiplamente espalhadas e a primária, é conseguida para a reflexão primária 002, e qualquer um dos caminhos $111+\bar{1}\bar{1}1=002$, $1\bar{1}1+\bar{1}11=002$, $\bar{1}11+1\bar{1}1=002$ e $\bar{1}\bar{1}1+111=002$.

Apresenta-se aqui, uma nomenclatura para os diagramas Renninger. O diagrama mostrado na figura 12.a é chamado

$002\text{GaAs}[110]\text{CuK}\alpha$. Deve-se entender então, que os planos primários com índices 002 pertencem a rede cristalina do GaAs, o vetor de referência \vec{m} é paralelo à direção $[110]$, e o comprimento de onda da radiação usada, é igual ao da linha característica $\text{CuK}\alpha$. Caso os planos primários sejam da rede cristalina de um substrato ou de uma camada, os índices da reflexão primária serão acompanhados de um subíndice s ou c , respectivamente. Na figura 13.a, é mostrado o diagrama $002\text{Si}[110]\text{CuK}\alpha$ também na região angular em torno do espelho de $\phi = 90^\circ$. Os índices ao lado de cada pico, especificam as reflexões secundárias envolvidas. Esses diagramas portanto, foram obtidos para substratos de GaAs e Si sem nenhuma deposição de camadas, quer dizer, amostras maciças desses materiais. Os diagramas das figuras 12.a e 13.a são mostrados para efeito de comparação com os diagramas $002_c\text{GaAs}[110]\text{CuK}\alpha$ (diagrama de uma camada de GaAs que foi crescida sobre substrato de Si) e $002_s\text{Si}[110]\text{CuK}\alpha$ (diagrama do substrato de Si sobre o qual foi crescida a camada de GaAs), obtidos para uma das amostras do sistema GaAs/Si $[\bar{0}01]$ e apresentados nas figuras 12.b e 13.b. A diferença fundamental nessa comparação é o aparecimento de picos extras (apontados por setas nas figuras 12.b e 13.b) devido às contribuições de caminhos híbridos. Esses diagramas são muito importantes, pois registram pela primeira vez, a ocorrência de DM híbrida na TFC.

Para entender melhor a ocorrência dos picos híbridos nos diagramas $002_c\text{GaAs}[110]\text{CuK}\alpha$ e $002_s\text{Si}[110]\text{CuK}\alpha$, é necessário considerar as idéias introduzidas no item 000.2. De acordo com (III-21), e considerando somente os planos 111_s , $\bar{1}\bar{1}1_s$, 111_c e $\bar{1}\bar{1}1_c$, os quatro caminhos possíveis, esquematizados na figura 14, são:

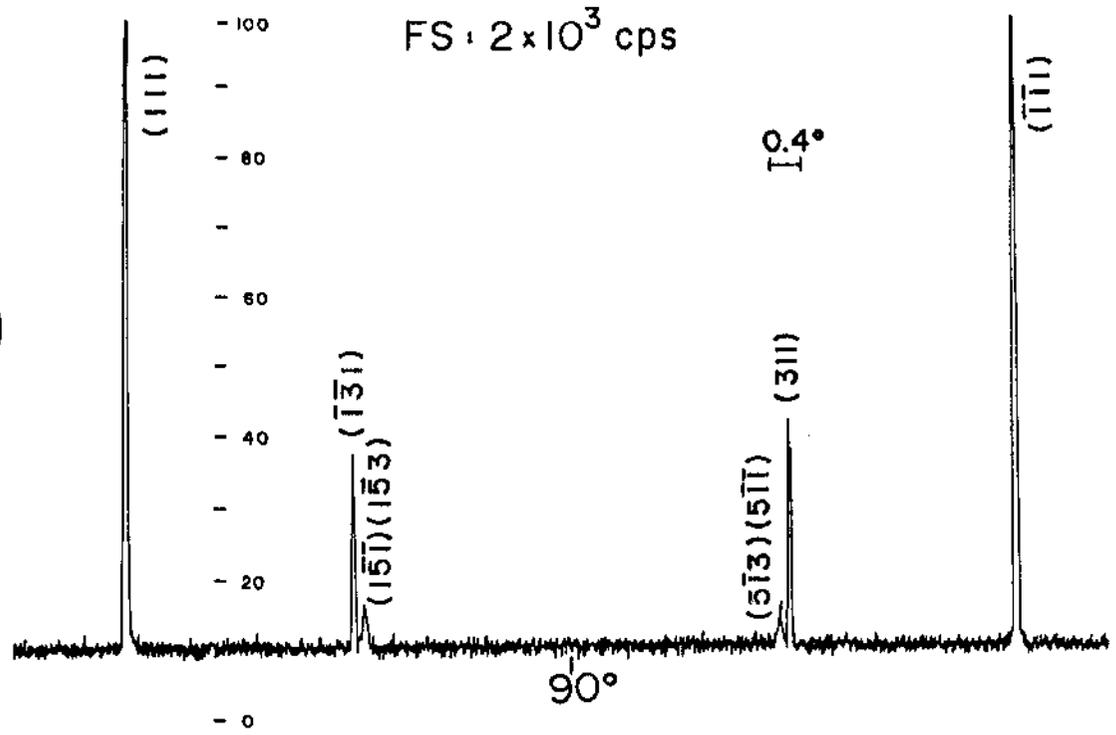
$$\text{SC} : 111_s + \bar{1}\bar{1}1_c$$

$$\text{CC} : 111_c + \bar{1}\bar{1}1_c$$

$$\text{SS} : 111_s + \bar{1}\bar{1}1_s$$

$$\text{CS} : 111_c + \bar{1}\bar{1}1_s$$

a)



b)

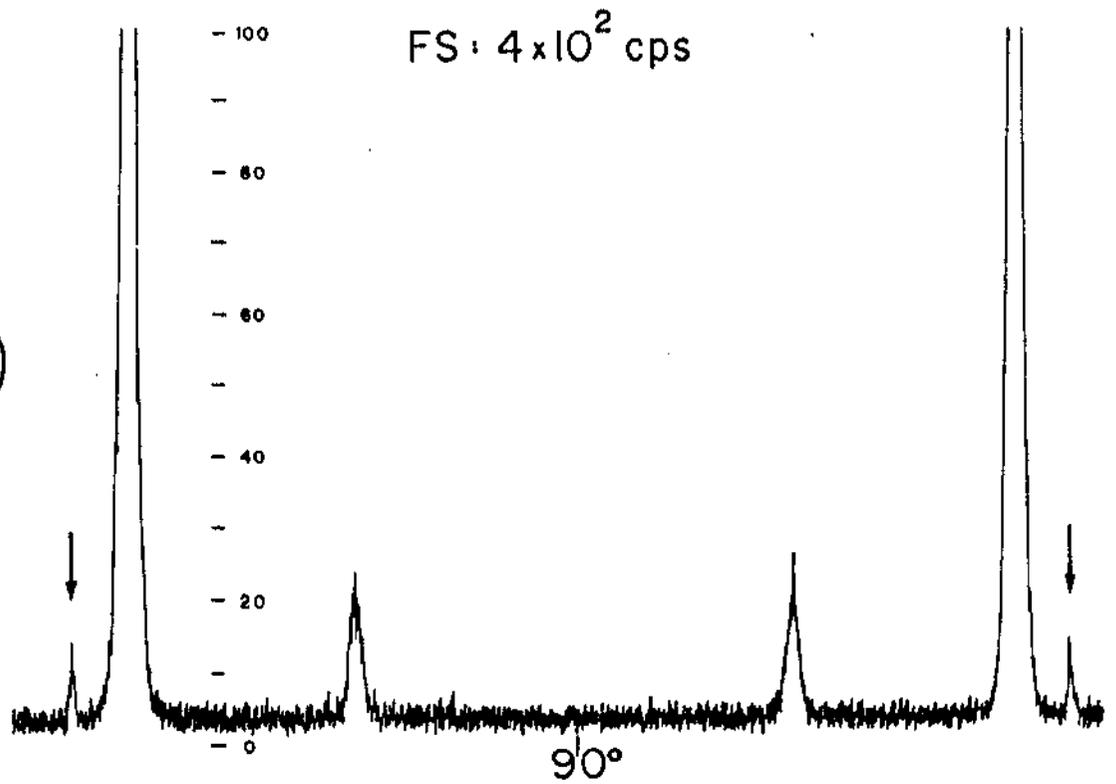
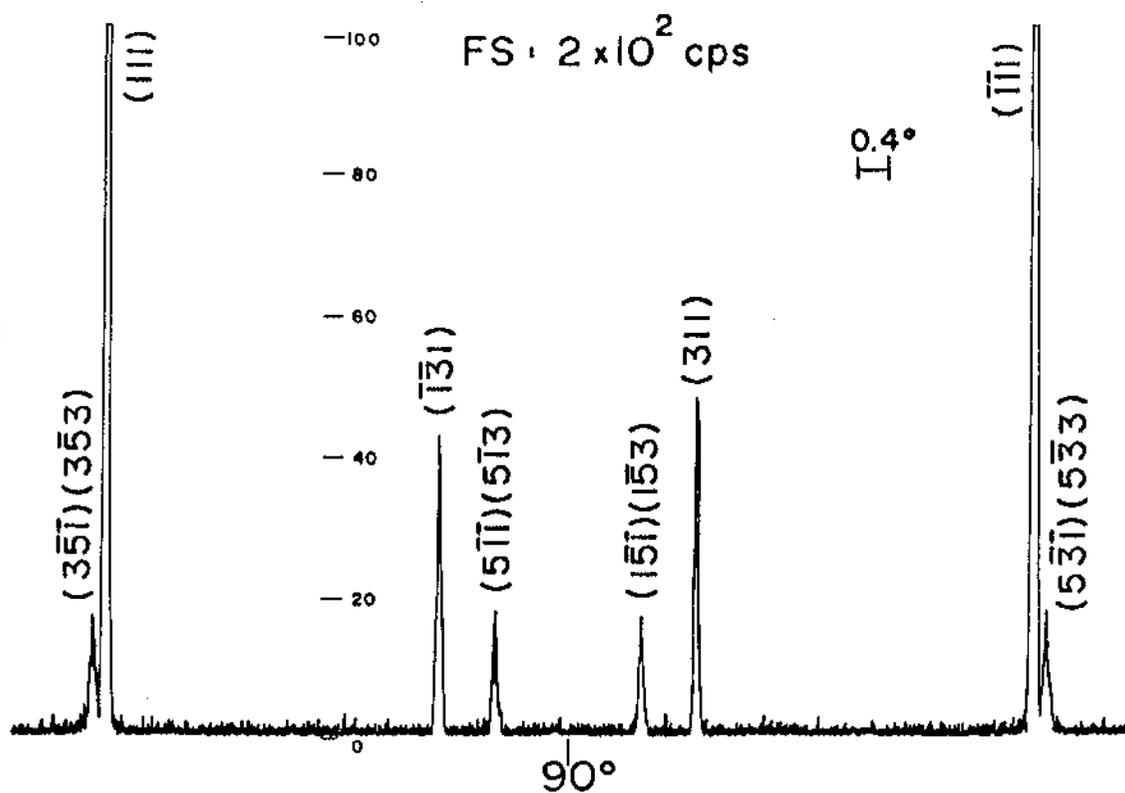


Figura 12: a) Diagrama Renninger $002\text{GaAs}[110]\text{CuK}\alpha$ — material maciço.
 b) Diagrama Renninger $002\text{GaAs}[110]\text{CuK}\alpha$ — GaAs como camada sobre substrato de Si.

a)



b)

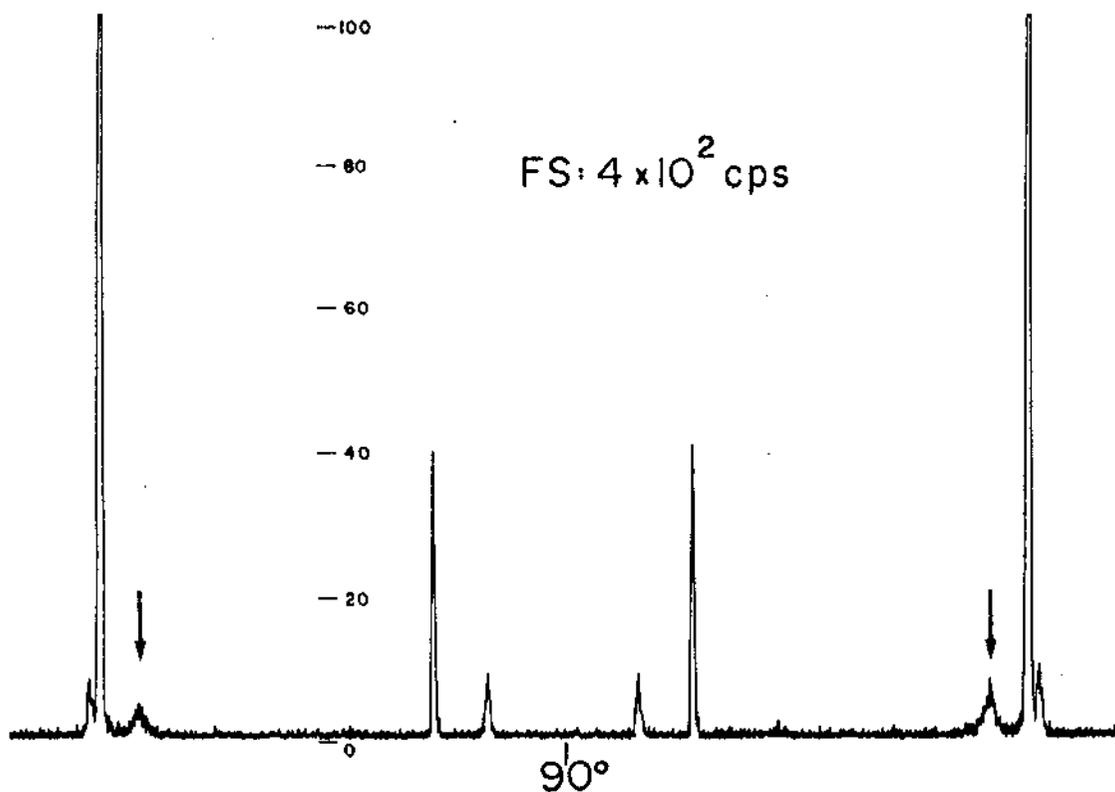
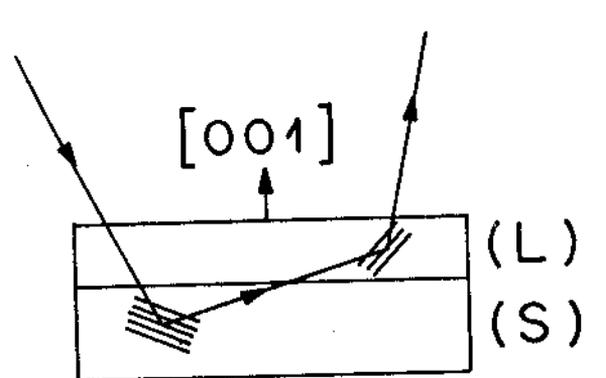
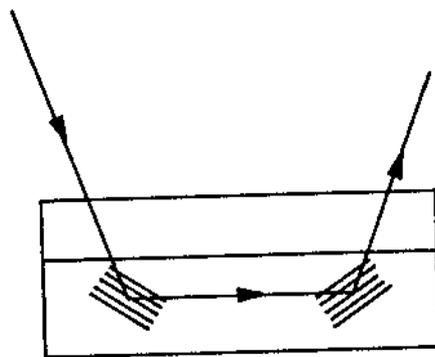


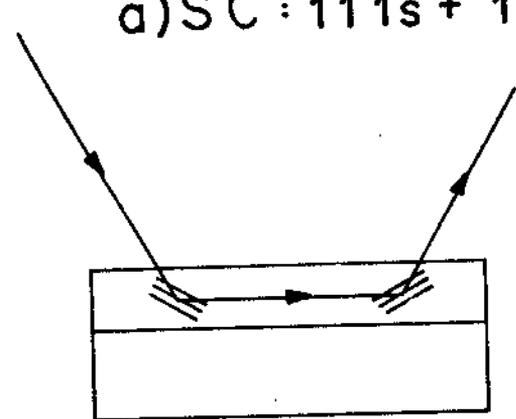
Figura 13: a) Diagrama Renninger $002\text{Si}[110]\text{CuK}\alpha 1$ — material maciço.
 b) Diagrama Renninger $002\text{Si}[110]\text{CuK}\alpha 1$ — Si como substrato da camada de GaAs.



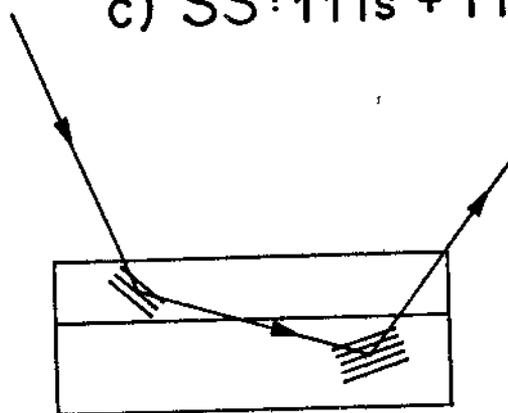
a) SC : $111_s + \bar{1}\bar{1}1_c$



c) SS : $111_s + \bar{1}\bar{1}1_s$



b) CC : $111_c + \bar{1}\bar{1}1_c$



d) CS : $111_c + \bar{1}\bar{1}1_s$

Figura 14: Caminhos de DM envolvendo apenas reflexões secundárias de superfície. São considerados os espalhamentos por planos da camada, do substrato e os híbridos.

Utilizando, os comprimentos de onda das linhas características $\text{CuK}\alpha_1$ e $\text{CuK}\alpha_2$, foi construído o DI (item 000-2.3) mostrado na figura 15 relativo ao ângulo sólido, que contém as direções (ω, ϕ) de incidência do feixe, de forma a permitir as difrações pelos caminhos SC, CC, SS e CS. Em primeira aproximação, considerou-se a camada como cúbica e os parâmetros de rede utilizados foram $a_{\perp} = a_{\parallel} = a_{\text{GaAs}} = 5,6534\text{\AA}$ e $a_{\text{Si}} = 5,4309\text{\AA}$, implicando que $\tau = \sigma = \frac{a_{\text{Si}}}{a_{\text{GaAs}}} = 0,96064$. Assim, os vetores recíprocos envolvidos são:

$$\vec{g}_1^{(a)} = (1, 1, 1)$$

$$\vec{g}_2^{(a)} = (-1, -1, 1)$$

$$\vec{g}_1^{(c)} = (\sigma, \sigma, \sigma)$$

$$\vec{g}_2^{(c)} = (-\sigma, -\sigma, \sigma)$$

No DI estão representadas também, as reflexões primárias 002_{S} e 002_{C} , e as representações das fendas circulares F1 (diâmetro de 0,2mm) e F2 (diâmetro de 0,5mm), com divergências de 2,60' e 5,72' respectivamente, foram calculadas a partir de (III-34).

Para uma camada sem imperfeições, em que a largura mosaico é desprezível apenas os dois pares de pontos (cada par indica a condição de difração das radiações $\text{CuK}\alpha_1$ e $\text{CuK}\alpha_2$ pelo mesmo caminho) sobre as retas tracejadas no DI, representam as direções únicas de incidência para os caminhos SC e CS, obtidas fazendo-se $\theta = 0$ em (III-32 e 33). Assim, nos diagramas $002_{\text{C}}\text{GaAs}[110]\text{CuK}\alpha_1$ e $002_{\text{S}}\text{Si}[110]\text{CuK}\alpha_1$, obtidos com a fenda F1, nenhum pico híbrido deverá ser observado.

A ocorrência dos picos híbridos é explicada quando se considera a existência de blocos desorientados na camada, cujo efeito é o de transformar o ponto único em um segmento de reta com sua dimensão sendo uma função da desorientação máxima desses blocos. Isso é possível quando se faz, em (III-32 e 33), o ângulo θ variar entre pelo menos -15' e +15'. A variação de θ gera no DI

os dois pares de retas tracejadas representando as várias direções de incidência para os caminhos SC e CS. As posições ϕ_{sc} e ϕ_{cs} dos máximos dos picos híbridos no diagrama Renninger, correspondem no DI, ao ponto de cruzamento entre as retas tracejadas do respectivo caminho, e, a reta representando a reflexão primária. Note que ao se prolongar o par de retas SC, elas cruzam a reta primária do substrato nos pontos que especificam as direções de incidência do caminho SS. Indicando, como esperado, que as posições das retas SC são uma função de ω , e dependem somente do parâmetro do substrato, isto é, a reta SC pode também ser calculada de (III-4) com $h = k = l = 1$.

Para as quatro amostras da tabela I, os diagramas da camada $(002_{\text{c}}\text{GaAs}[110]\text{CuK}\alpha_1)$ e do substrato $(002_{\text{s}}\text{Si}[110]\text{CuK}\alpha_1)$ são mostrados respectivamente nas figuras 16 e 17. Observando os picos SC nas figuras 16.a e 16.b, é possível identificar uma assimetria devido à contribuição da radiação $\text{CuK}\alpha_2$ que também é difratada, e vista por F_1 naquela posição. A razão de intensidades entre os picos SC e CC, varia com a espessura da amostra. Isto pode ser visto comparando as figuras 16.a,b com as 16.c,d. No caminho SC, somente a interação da radiação com os planos de acoplamento da camada é afetada pela redução da espessura da camada devido ao volume do material difratante. Sendo assim, o pico SC é menos sensível à essa redução do que o pico CC.

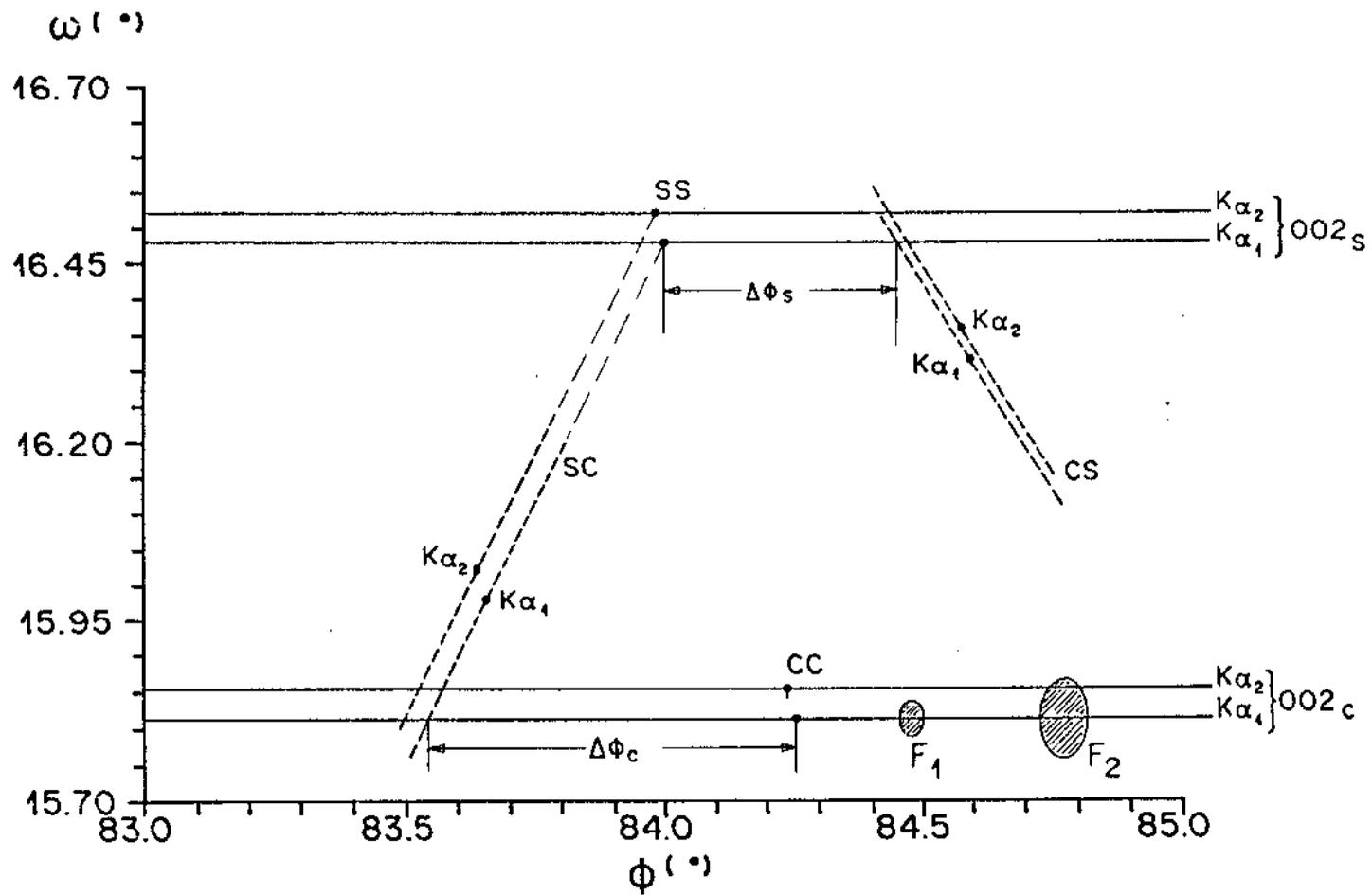


Figura 15: DI para o sistema GaAs/Si considerando ambas as redes (camada/substrato) como cúbicas.

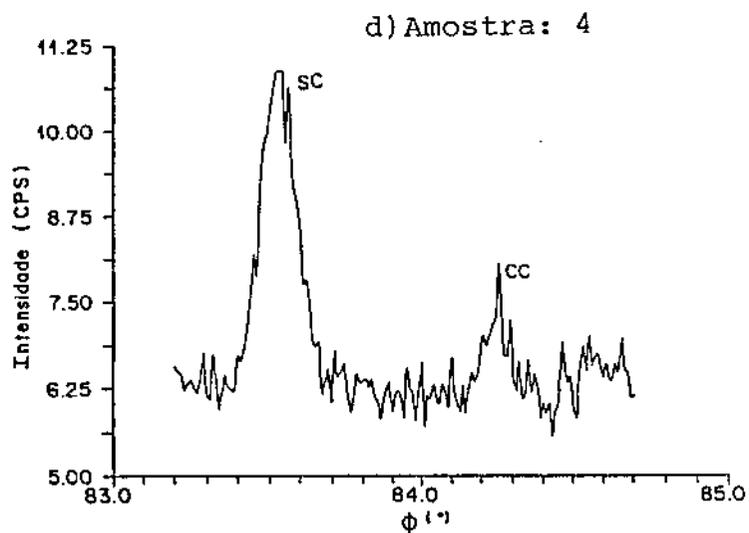
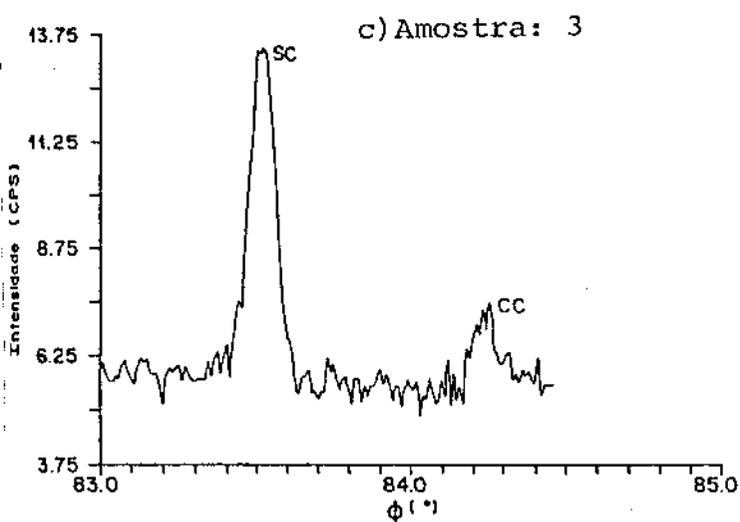
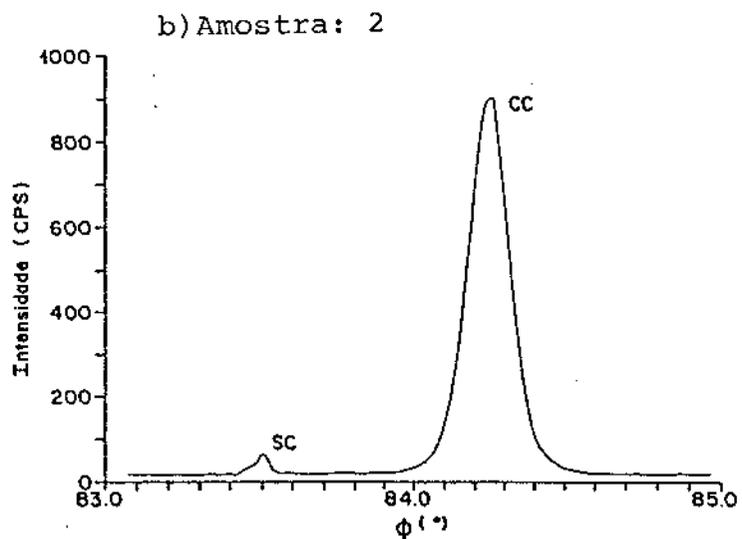
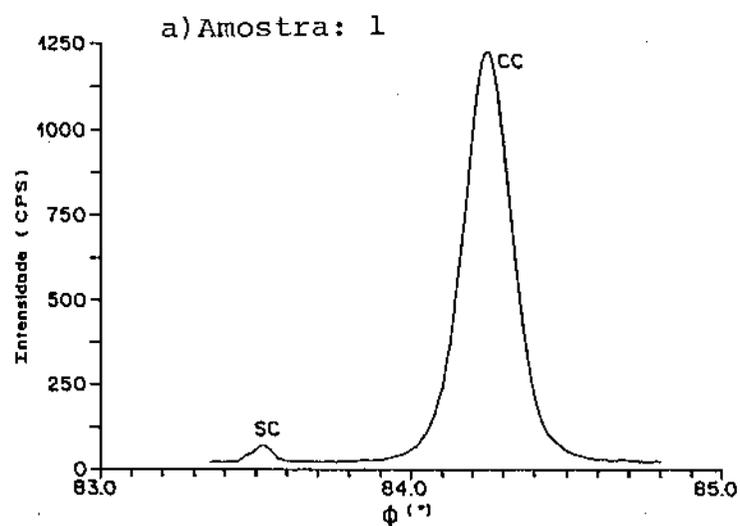


Figura.16: Diagramas Renninger - $\theta\theta 2\text{-GaAs}[110]\text{CuK}\alpha 1$ para as amostras na tabela I. Condições experimentais: passo do motor 0.01° , tempo/passo = 40seg. (amostras 1 e 2) e 80seg (amostras 3 e 4).

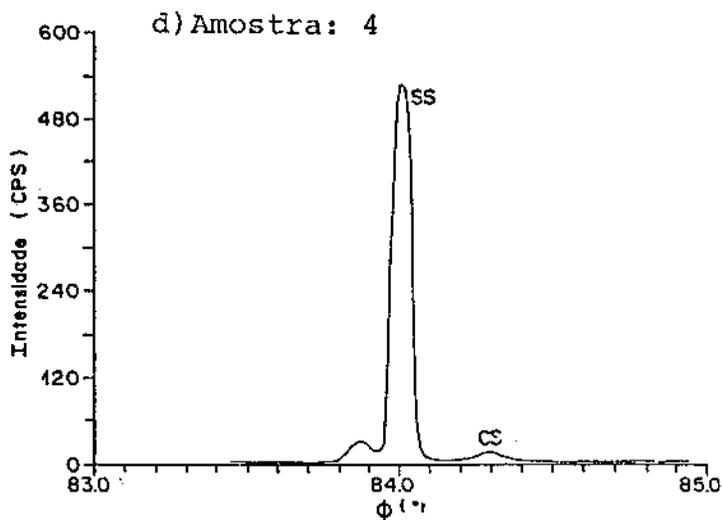
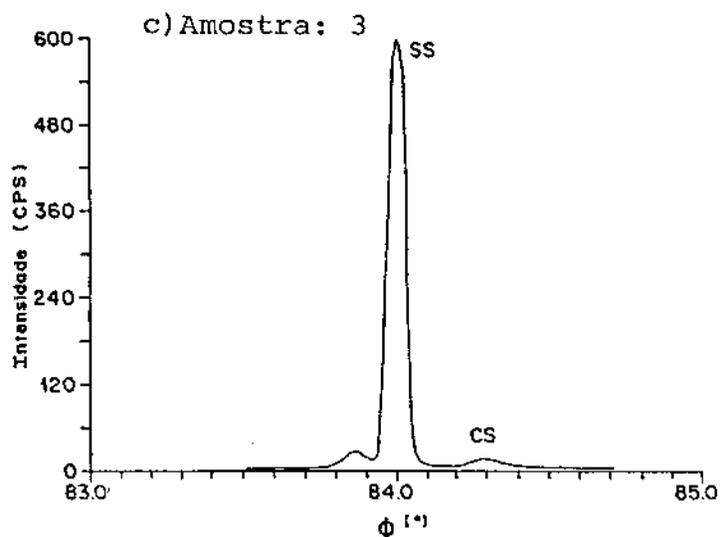
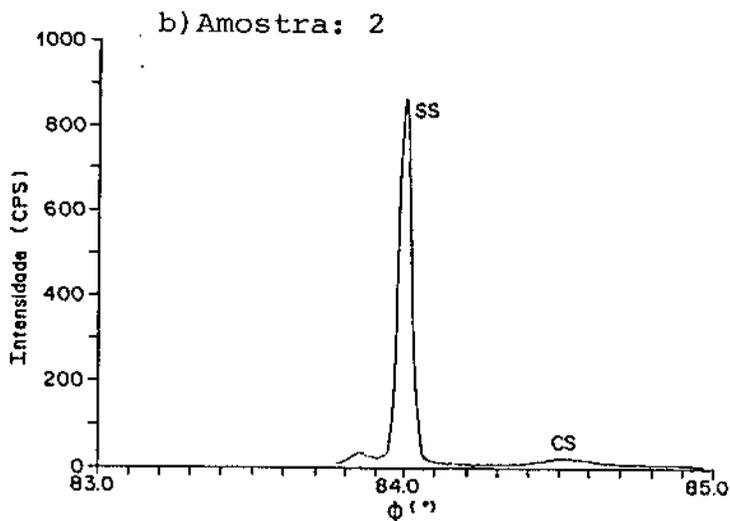
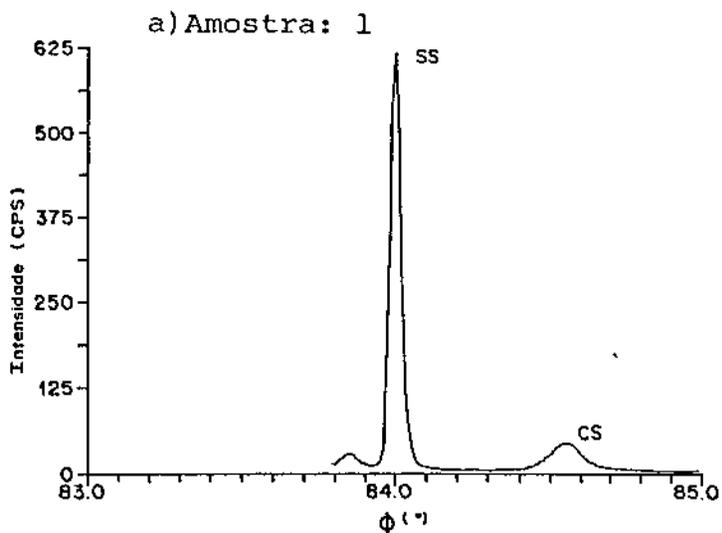


Figura.17: Diagramas Renninger — $002=Si[110]CuK\alpha_1$ para as amostras na tabela I. Condições experimentais: passo do motor 0.01° , tempo/passo = 40seg. (amostras 1 e 2) e 80seg (amostras 3 e 4).

A equação (III-18) torna possível a determinação da deformação $\frac{\Delta\alpha}{\alpha}_{\parallel}$, a partir da medida da separação $\Delta\phi_c = \phi_{cc} - \phi_{sc}$ entre os picos CC e SC no diagrama Renninger da camada. Devido à escolha do vetor de referência, $\vec{m} = (1,1,0)$, os ângulos φ_c e φ_{cc} determinados em (II-13) são nulos, e portanto, $\phi_{cc} = \beta_c$ e $\phi_{sc} = \beta_s$. Assim, (III-18) fica :

$$\boxed{\frac{\Delta\alpha}{\alpha}_{\parallel} \approx \Omega \cdot \Delta\phi_c} \quad (V-1)$$

Usando (III-4 e 17) escrevê-se Ω como:

$$\Omega = \frac{\sqrt{(h^2 + k^2) \cos^2 \omega - \left[\frac{\lambda}{2a_0} (h^2 + k^2 + \frac{L^2}{4}) - \frac{L}{2} \operatorname{sen} \omega \right]^2}}{\frac{\lambda}{2a_0} (h^2 + k^2 - \frac{L^2}{4}) + \frac{L}{2} \operatorname{sen} \omega}$$

No caso da reflexão primária 002 e secundária 111, substitui-se $L = 2$, $h = k = 1$ e a expressão acima, torna-se:

$$\Omega = \frac{\sqrt{2 \cos^2 \omega - \left(\frac{3\lambda}{2a_0} - \operatorname{sen} \omega \right)^2}}{\frac{\lambda}{2a_0} + \operatorname{sen} \omega} \quad (V-2)$$

Em todos os diagramas das camadas (das amostras 1,2,3 e 4), o ângulo de incidência foi $\omega = 15,813^\circ$, que corresponde ao ângulo de

Bragg da reflexão primária 002 do GaAs. Então, nessas condições $\Omega = 3,2632$. Para obter os diagramas das amostras 3 e 4 (camadas finas), foi necessário usar a fenda Fz de forma que as contribuições da camada pudessem ser observadas. As medidas de $\Delta\phi_c$ e os valores de $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel$ calculados de (V-1) estão na tabela II.

Tabela II: Medidas de $\Delta\phi_c$ (em graus) obtidas dos diagramas Renninger da figura 16.

Número Amostra	Divergência da Fenda	$\Delta\phi_c$ (°)	$100 \times \frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel$
1	2,60'	0,74(2)	4,2(1)
2	2,60'	0,725(15)	4,13(8)
3	5,72'	0,74(2)	4,2(2)
4	5,72'	0,73(2)	4,1(2)

O erro não experimental (aproximação $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \perp$ desprezível) é estimado de (III-19), supondo $\alpha_{\perp} = \alpha_{\text{GaAs}}$, como sendo $\epsilon = 1,1 \times 10^{-9}$. Esse erro é igual ao experimental na determinação da diferença entre os máximos dos picos, e foi desprezado no cálculo de $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel$. O sistema GaAs/Si apresenta uma deformação em ambas as direções da ordem de 4%. Essa deformação está no limite máximo em que aproximação feita ao desprezar $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \perp$ em (III-18), ainda é válida, considerando as condições experimentais disponíveis no laboratório.

Nos diagramas para o substrato dessas amostras na tabela I, também é possível medir a separação $\Delta\phi_s = \phi_{cs} - \phi_{ss}$ entre os picos CS e SS. Mas nesse caso, $\phi_{cs} \neq \beta_c$ pois, no máximo do pico CS, somente a contribuição dos planos 111_c devido a desorientação dos blocos aparece. Então, $\Delta\phi_s \neq \Delta\beta$ e portanto a equação (III-18) não pode mais ser usada para determinar $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel$. Contudo, observando-se a tabela III, nota-se que existe uma dependência de $\Delta\phi_s$ com a espessura da camada, a qual não pode ser explicada pela hipótese considerada até aqui, ou seja, a variação de $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \perp$ associada aos

efeitos da largura mosaico. A tentativa de explicar essa dependência, leva ao errôneo resultado que para maiores espessuras da camada, a influência do substrato torna-se maior. Como já se sabe^[22], os defeitos concentram-se fundamentalmente na interface entre os dois materiais, e então, as camadas finas devem conter muito mais imperfeições que as espessas. Assim, desde que a dependência aparece, é importante a análise de outras possíveis imperfeições, que consigam prover a correta explicação para esses resultados, e que fica como sugestão para um próximo trabalho.

Tabela III: Medidas de $\Delta\phi_0$ (em graus) obtidas dos diagramas Renninger da figura 17.

Número Amostra	Espessura Camada (μm)	$\Delta\phi_0$ ($^\circ$)
1	1,2	0,555(15)
2	0,8	0,485(15)
3	0,05	0,290(15)
4	0,05	0,290(15)

No sistema GaAs/Si[001], com base nos valores de $\frac{\Delta\alpha}{\alpha}$ (tabela II) obtidos com o método das reflexões secundárias de superfície, pode-se dizer que a espessura da camada tem influência desprezível sobre $\frac{\Delta\alpha}{\alpha}$.

Pelo fato dos feixes secundários de superfície serem pouco sensíveis à redução da espessura, talvez seja possível detectar a radiação espalhada por uma estrutura na interface camada/substrato. Isto implica em que, além da caracterização de camadas finas, outra interessante aplicação para esse método é a possibilidade que se abre para o estudo da estrutura cristalina nessa região da interface [23].

Com esse interesse vamos aplicar o método das reflexões secundárias de superfície a um sistema constituído de uma camada fina intermediária entre uma mais espessa e o substrato. As amostras 5 e 6 da figura 11 são então utilizadas. Como já foi dito, elas foram especialmente preparadas para esse estudo. Através dos resultados obtidos para a camada (C) na amostra 5, torna-se mais fácil a interpretação dos resultados para a camada fina (C1) e a mais espessa (C2), ambas na amostra 6.

As reflexões secundárias de superfície (RSS) escolhidas são aquelas envolvidas nos caminhos $111 + \bar{1}\bar{1}\bar{1} = 002$ e $\bar{1}\bar{1}\bar{1} + 111 = 002$. Portanto, a reflexão primária tem índices 002. A razão que leva à escolha desses caminhos de DM estão descritos em V.1.

Os ângulos de Bragg da reflexão 002 com radiação $\text{CuK}\alpha_1$ para as camadas das amostras 5 e 6, são indiretamente determinados das curvas de varredura ω ("Rocking Curve") mostradas na figura 18. Esses ângulos são:

$$\theta_C^{002} = 15,740(5)^\circ$$

$$\theta_{C1}^{002} = 15,740(5)^\circ$$

$$\theta_{C2}^{002} = 15,685(5)^\circ$$

As curvas de varredura ω são feitas com a amostra já alinhada com relação ao goniostato (item IV), e o detector é posicionado para receber a radiação espalhada pelos planos 00L do substrato,

paralelos à interface da amostra. Com a rotação do goniômetro, mantendo o detector fixo, a curva de intensidade versus ângulo de incidência ω é obtida. Na curva de varredura ω , a medida da separação entre os máximos dos picos Bragg $00L_a$ e $00L_b$, permite estimar o parâmetro de rede a_{\perp} da camada. Isto, quando o substrato tiver parâmetros já conhecidos.

Na figura 18, a varredura ω para a reflexão 004 mostra as contribuições das camadas $C1$ e $C2$, sendo que a camada intermediária mais fina, aparece com uma intensidade maior que $C2$ mais externa e espessa, embora nas posições angulares esperadas para ambas. A possível explicação para esse resultado, vem do fato de que a amostra após preparada com uma região exibindo uma camada (C) e outra duas camadas ($C1$ e $C2$), foi clivada, dando origem as amostras 5 e 6. Entretanto, na amostra 6 (com duas camadas), parte de sua superfície ainda contém uma região com apenas uma camada ($C1$), e a contribuição dessa região ao espalhamento mostrou-se maior.

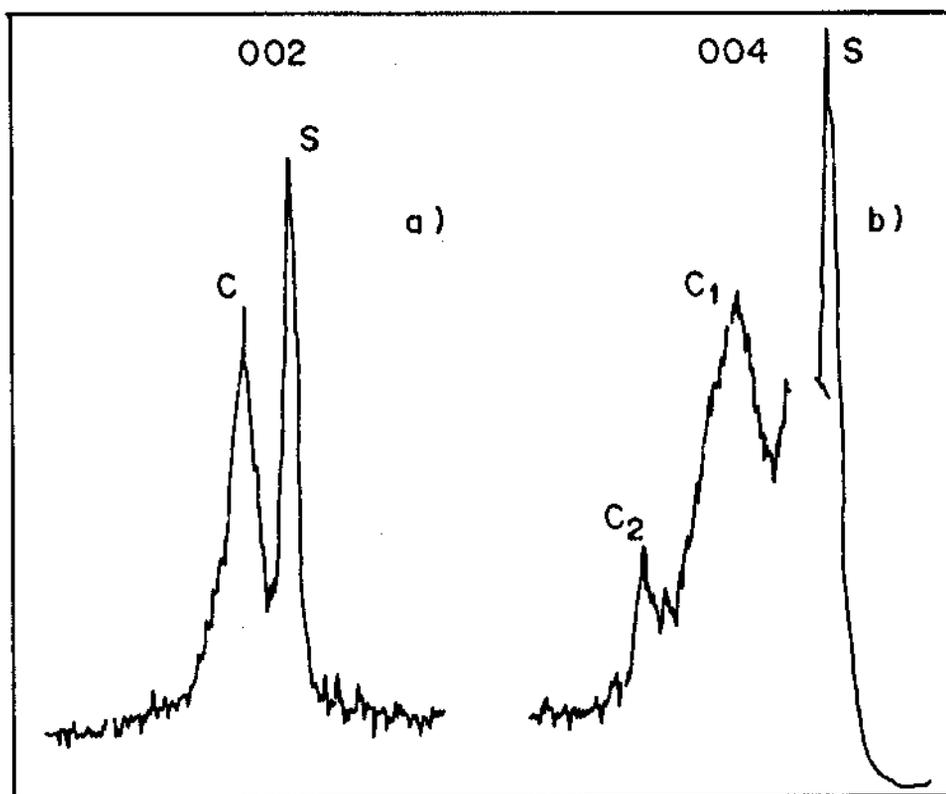


Figura 18: Curva de varredura ω com radiação $CuK\beta$
a) Para amostra 5 reflexão 002
b) Para amostra 6 reflexão 004

Os diagramas Renninger dessas camadas foram feitos com a fenda F1 (divergência = 2,60') e estão restritos ao perfil das picos que correspondem aqueles indicados por 111 e $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ na figura 12.a, simétricos ao espelho $\phi = 90^\circ$. Como o giro da amostra é feito por passos (de $0,01^\circ$) a distância entre os máximos é medida com razoável precisão. É necessária a medida da separação angular $\delta\phi = \phi_{\bar{1}\bar{1}\bar{1}} - \phi_{111}$ para a determinação do valor experimental de β_s ($\beta_s^{exp.}$ na tabela IV), e assim saber qual é a contribuição do caminho híbrido $111_s + \bar{1}\bar{1}\bar{1}_c$, pois o valor esperado de β_s ($\beta_s^{calc.}$ na tabela IV), num dado ω , é calculado de (III-4).

Na figura 19 é mostrado o diagrama $002_c \text{InGaAsP}[110]\text{CuK}\alpha_1$ para a amostra 5. Os picos devidos aos caminhos $111_s + \bar{1}\bar{1}\bar{1}_c$, $111_c + \bar{1}\bar{1}\bar{1}_c$, $\bar{1}\bar{1}\bar{1}_s + 111_c$ e $\bar{1}\bar{1}\bar{1}_c + 111_c$ são respectivamente especificados pelos índices 111_s , 111_c , $\bar{1}\bar{1}\bar{1}_s$ e $\bar{1}\bar{1}\bar{1}_c$. As posições dos picos no diagrama, para o vetor de referência adotado, são:

$$\phi_{111_{s,c}} = \phi_{111} + \beta_{s,c} = \beta_{s,c}$$

$$e \quad \phi_{\bar{1}\bar{1}\bar{1}_{s,c}} = \phi_{\bar{1}\bar{1}\bar{1}} - \beta_{s,c} = 180^\circ - \beta_{s,c}$$

onde o índice s,c significa tomar o substrato ou a camada. A medida da separação angular $\delta\phi_{s,c} = \phi_{\bar{1}\bar{1}\bar{1}_{s,c}} - \phi_{111_{s,c}} = 180^\circ - 2\beta_{s,c}$ permite a determinação experimental de $\beta_{s,c}$ como sendo:

$$\beta_{s,c} = 90^\circ - \frac{\delta\phi_{s,c}}{2}$$

Uma vez que $\Delta\beta = \beta_c - \beta_s$ pode ser medido, é possível através de (III-18) o cálculo de $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \perp$. O valor de $\Omega = 3,3229$ é fornecido por (V-2) com $\alpha_s = \alpha_{\text{GaAs}}$ e $\omega = \theta_{c,c1}^{002}$. Para conhecer o erro não experimental ϵ , dado em (III-19), é necessário estimar o valor de $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \perp$. A diferenciação da lei de Bragg aplicada a um conjunto de planos paralelos à interface, fornece $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \perp = -\cotg\theta_s \cdot \Delta\theta$, e as medidas de $\Delta\theta = \theta_{c,c1}^{002} - \theta_s^{002}$ são obtidas das curvas de varredura ω (fig. 18). Assim, para as camadas C e C1 $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \perp = 4,5 \times 10^{-3}$, implicando em $\epsilon = 1,4 \times 10^{-5}$.

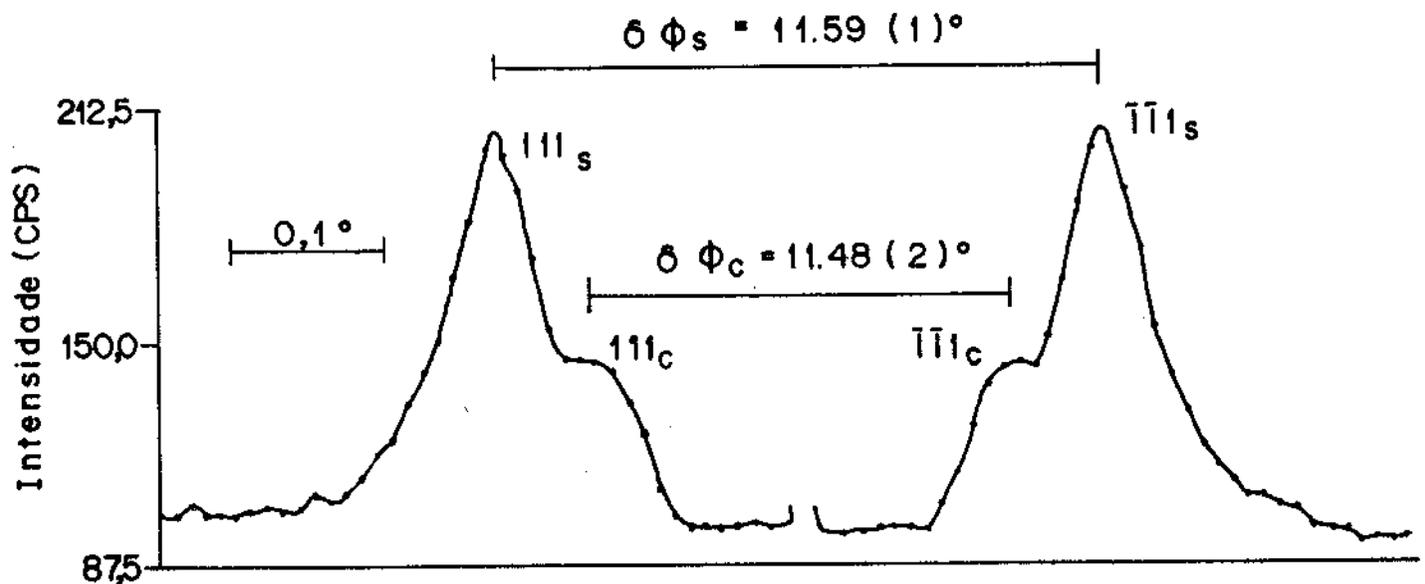


Figura 19: Regiões do diagrama Renninger — $\text{InGaAsP/CuK}\alpha$ (amostra 5, $\omega = 15,740^\circ$) contendo as RSS 111 e 111.

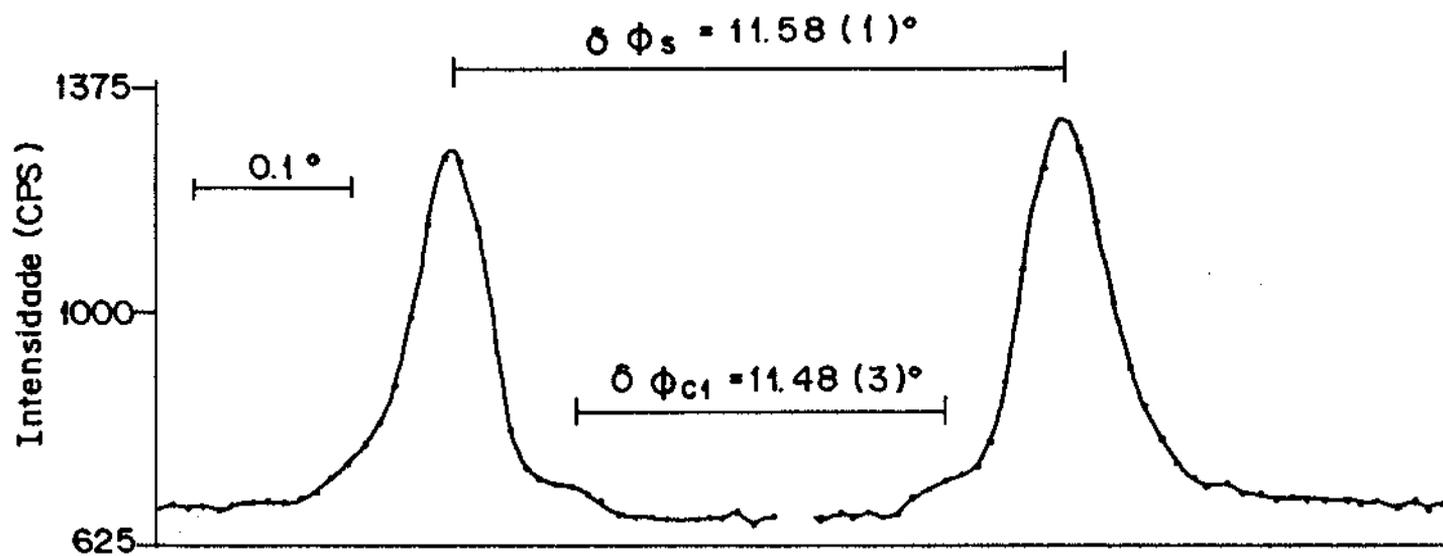


Figura 20: Regiões do diagrama Renninger — $002c_1$ InGaAsP[110]CuK α (amostra 6, $\omega = 15,740(\circ)$) contendo as RSS 111 e $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$.

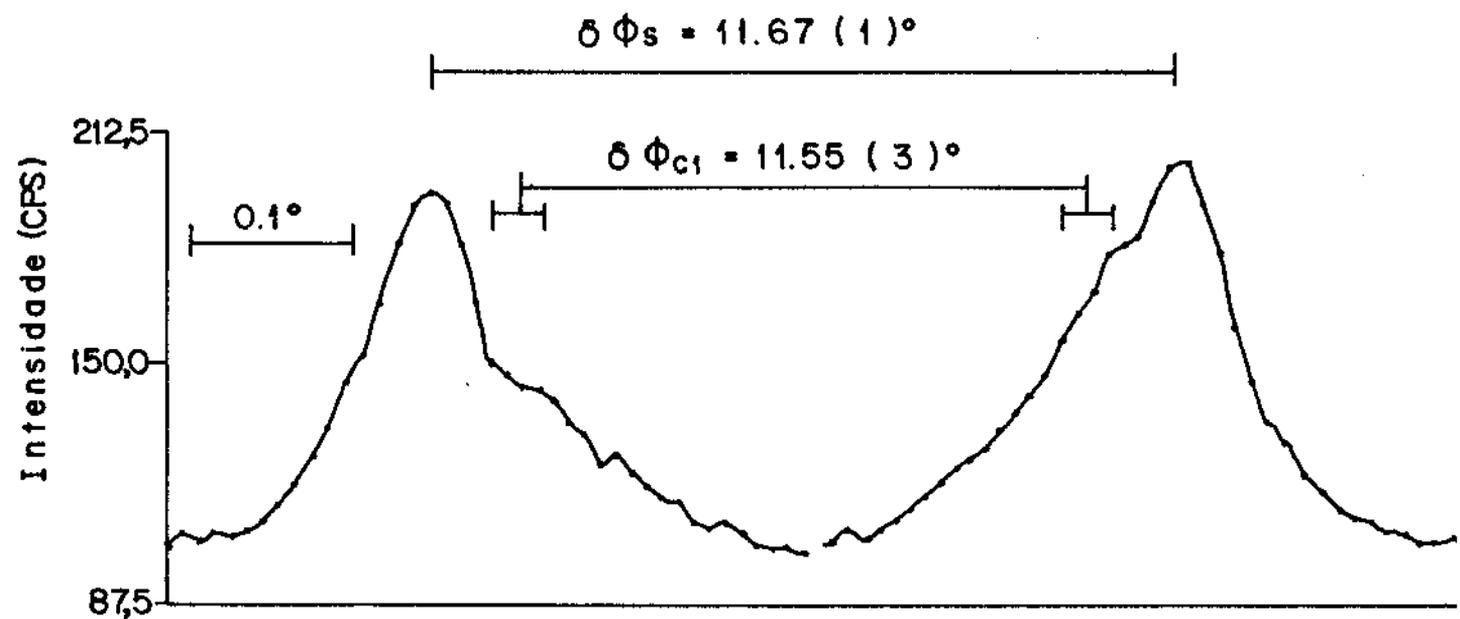


Figura 21: Regiões do diagrama Renninger — $002c_2$ InGaAsP[110]CuK α (amostra 6, $\omega = 15,685(\circ)$) contendo as RSS 111 e $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$.

Os diagramas $002_{C1,C2}$ InGaAsP[110]CuK α para a amostra 6 estão na figura 20 e 21. Na tabela IV mostra-se os resultados obtidos dos diagramas nas figuras 19, 20 e 21. Como pode ser visto, o erro experimental na determinação de $\frac{\Delta\alpha}{\alpha}$ é muito maior que ϵ , justificando mais uma vez a aproximação feita em (III-18).

Tabela IV: Resultados obtidos dos diagramas Renninger das figuras 19, 20 e 21. Os valores dos ângulos ω , β e a diferença $\Delta\beta$ estão em graus.

Número Amostra	ω (*)	β_S^{calc}	β_S^{exp}	β_C	$\Delta\beta = \beta_C - \beta_S^{calc}$	$100 \times \frac{\Delta\alpha}{\alpha}$
5	15,740	84,204(9)	84,205(5)	84,26(1)	0,056(19)	0,325(75)
6	15,740	84,204(9)	84,210(5)	84,26(15)	0,056(19)	0,325(104)
6	15,685	84,166(9)	84,165(5)	—	—	—

(*) A imprecisão instrumental em ω ($\pm 0,005^\circ$) é responsável pela imprecisão no cálculo de β_S^{calc} .

Comparando os diagramas 002_C InGaAsP[110]CuK α (fig. 19) e 002_{C1} InGaAsP[110]CuK α (fig. 20), nota-se que a única influência visível da camada C2, foi alterar a razão de intensidades entre o pico 111_S e o 111_{C1} . Isto porque, a intensidade do pico 111_S é, agora, devido às contribuições simultâneas dos caminhos $111_S + \bar{1}\bar{1}\bar{1}_{C1}$ e $111_S + 111_{C2}$, enquanto que, a intensidade do pico 111_{C1} continua sendo devido somente ao caminho $111_{C1} + \bar{1}\bar{1}\bar{1}_{C1}$. Raciocínio análogo pode ser utilizado para explicar os picos $\bar{1}\bar{1}\bar{1}_S$ e $\bar{1}\bar{1}\bar{1}_{C1}$. No diagrama 002_{C1} InGaAsP[110]CuK α , de acordo com (III-11), o ângulo do feixe secundário difratado pelos planos 111_{C2} ou $\bar{1}\bar{1}\bar{1}_{C2}$ com a interface, é $\xi_{C2} = \sin^{-1} \left[\text{sen} \theta_{C2}^{002} - \text{sen} \omega \right] = -9,2 \times 10^{-4}$ radianos. O sinal (-) indica que esse feixe penetra no cristal em direção ao substrato (caso Laue em relação a interface). Sendo assim, deveria aparecer também um pico devido aos caminhos $111_{C2} + \bar{1}\bar{1}\bar{1}_S$ e $111_{C2} + \bar{1}\bar{1}\bar{1}_{C1}$. Contudo, esse pico não é observado, provavelmente

porque ocorre reflexão total do feixe secundário na interface C2/C1, uma vez que $\xi_{c2} \ll 1$.

Do diagrama 002_{c2} InGaAsP[110]CuK α_1 (fig. 21), somente β_s^{*xp} pode ser medido. A assimetria dos picos é devido à proximidade das contribuições dos caminhos $111_{c2} + \bar{1}\bar{1}\bar{1}_{c2}$ e $111_{c1} + \bar{1}\bar{1}\bar{1}_{c2}$. Mas infelizmente, não é possível distinguir os máximos dessas contribuições, e nada podemos inferir.

Neste trabalho foi desenvolvido um método para caracterizar camadas epitaxiais tensionadas, que utiliza as reflexões secundárias de superfície da difração múltipla de raios-X, associadas as difrações múltiplas híbridas, oriundas da interação entre as redes da camada e do substrato. Este novo método, exigiu então, o estudo mais detalhado das DM híbridas, que levou ao desenvolvimento de uma nova maneira de tratar a geometria da DM, utilizando a construção de Kossel.

Decidiu-se por apresentar as contribuições deste trabalho em duas partes : 1) A geometria do fenômeno da difração múltipla de raios-X, tanto para diagramas Renninger (técnica do feixe colimado - TFC) quanto para diagramas com feixe divergente (técnica do feixe divergente - TFD), e 2) a aplicação dos desenvolvimentos teóricos no método de caracterização de camadas. Também são discutidos, a seguir, a possibilidade de futuros trabalhos no tema.

VO.1 - CONTRIBUIÇÕES AO ESTUDO DA GEOMETRIA DE DIFRAÇÃO MÚLTIPLA

1) Uma nova maneira de tratar as equações básicas da construção de Kossel, que utiliza os planos secundários e de acoplamento, ao invés dos primários e secundários como é feito na literatura, foi idealizada para prever o caminho do feixe na ocorrência de difração múltipla.

2) Esta nova maneira apresentada, permite incluir o efeito da largura mosaico dos planos difratantes facilmente, através das equações (II-3) como foi mostrado em (III-32 e 33). Este resultado é geral, pois, sempre que o efeito de qualquer imperfeição cristalina aos planos difratantes puder ser descrita no espaço recíproco (alterações nos vetores recíprocos), a sua influência na difração múltipla poderá ser estudada.

3) Desde que o caminho do feixe no fenômeno de difração múltipla é conhecido, pode-se prever a contribuição ao espalhamento, devido à interação entre diferentes redes, por exemplo camada e substrato, conhecida como difração múltipla híbrida. A correta localização dessas reflexões híbridas pode agora, ser prevista tanto na TFC (Renninger), quanto na TFD.

4) Na aplicação da construção de Kossel à TFC, foi necessário desenvolver a idéia do diagrama de incidência (DI), para através dele, fazer a escolha das direções de incidência, que permitam a observação de difrações múltiplas híbridas, considerando a divergência do feixe incidente, além da visualização direta da influência de imperfeições cristalinas na difração múltipla.

(5) Observando as equações (II-3.b) vê-se que as direções $-\vec{r}$ (incidência) e \vec{r}' (espalhamento) são obtidas a partir de \vec{r}_1 . Isto significa, que não só um diagrama de incidência pode ser construído, como também um diagrama de saída. Quando uma grande área do diagrama de incidência é iluminada (TFD), todas as difrações possíveis nessa área, ocorrem, e o diagrama de saída, projetado no plano de um filme, vai conter as imagens dos feixes difratados. O estudo dos diagramas de saída foi feito no meu Exame de Qualificação ao Mestrado (EQM) do IFGW (Dezembro/1989), e mostrou que é possível através deles, simular diagramas obtidos com a TFD, como nunca feito antes. No trabalho para o EQM, foram feitas aplicações para amostras contendo uma ou duas interfaces entre camadas e/ou camada/substrato, e mesmo aquelas reflexões que são híbridas, puderam ser simuladas. A reprodução dos diagramas experimentais foi feita com um excelente acordo e os resultados estão sendo submetidos à publicação [24].

6) Foi desenvolvida uma expressão para o cálculo do ângulo ξ entre os feixes secundários e os planos primários em função do ângulo de incidência ω (III-10 e 11). Este ângulo ξ é importante, pois estabelece um critério para a investigação da possibilidade de ocorrência de uma determinada reflexão híbrida, isto é, se em um diagrama Renninger feito com um determinado ângulo ω , o feixe

secundário envolvido num caminho híbrido cruza ou não a interface camada/substrato, para produzir uma contribuição no diagrama Renninger, devido à esse caminho híbrido.

VO. 2 - CONTRIBUIÇÕES À CARACTERIZAÇÃO DE CAMADAS EPITAXIAIS

7) Foi desenvolvido um novo método para caracterização de camadas epitaxiais, utilizando as reflexões secundárias de superfície da técnica de difração múltipla de raios-X, em geometria Renninger (TFC), e as reflexões híbridas que ocorrem num mesmo diagrama Renninger. Este método permite determinar a discordância $\left[\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel \right]$ na direção paralela à interface camada/sustrato. Dessa maneira, a investigação numa razoavelmente pequena região em torno de um espelho, é suficiente para a determinação da discordância mencionada.

8) Devido à geometria das reflexões secundárias envolvidas no método - espalhamento paralelo aos planos cristalográficos primários, o efeito da espessura não é crítico. Portanto, mesmo camadas pouco espessas (da ordem de 500\AA neste trabalho) podem ser analisadas pelo método, sem o uso de equipamentos sofisticados.

9) A equação (III-18) permite obter $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel$ diretamente das medidas. Além disso, mostra que experiências de difração múltipla de raios-X com bastante resolução para evidenciar a detecção de reflexões secundárias de superfície com grandes valores de $h^2 + k^2$, fornecerão condições para uma determinação mais precisa de $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel$.

10) O excelente resultado mostrado na figura 20, fornece pela primeira vez, a possibilidade de analisar por difração múltipla de raios-X, um fina camada epitaxial intermediária, posicionada entre uma camada mais externa e o substrato.

11) A expressão (II-11) que é sempre utilizada na literatura com o ângulo de incidência ω , identificado como o ângulo de Bragg da reflexão primária, pode ser empregado num diagrama Renninger para o substrato, contendo picos extras negativos, devido a absorção da intensidade primária, por difração em planos Bragg da camada (chamados MORSI por Greenberg & Ladell [17]), de forma a permitir em princípio, a caracterização da camada a partir do diagrama para o substrato.

VI.3 - POSSÍVEIS EXTENSÕES DESTE TRABALHO.

Aqui, são apresentadas algumas das idéias que passam a figurar como possíveis extensões deste trabalho.

1) Como primeira proposição, aparece a aplicação do método desenvolvido aqui, na caracterização de outras camadas epitaxiais. Vale a pena salientar, que as particularidades de cada caso devem ser respeitadas, e cada análise tem que ser realizadas de per si. Como ilustração, citar-se o caso de camadas epitaxiais com $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \perp \langle 0 \rangle$, que não favorece a ocorrência de difrações múltiplas híbridas, envolvendo reflexões secundárias de superfície no diagrama Renninger da camada. Nesse caso, o feixe secundário do caminho SC torna-se Laue e não cruza a interface (equação III-14). Assim, somente as contribuições da camada (caminho CC) serão observadas isoladamente, permitindo uma determinação mais precisa de $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \parallel$.

2) A investigação de outras imperfeições cristalinas no caso do sistema GaAs/Si, como por exemplo: dislocações, domínios de antifase, etc, é também importante e oportuna, pois a inclusão dos seus efeitos, em forma análoga ao efeito da largura mosaico, poderá explicar a influência da espessura da camada na posição angular do pico de difração múltipla híbrida CS, nos diagramas Renninger obtidos para o substrato (Si).

3) Outra possibilidade de trabalho futuro é a investigação da dependência do perfil dos picos de difração múltipla no diagrama de Renninger, com a divergência do feixe incidente, a largura mosaico e a largura espectral, utilizando as contribuições para a geometria de difração múltipla apresentadas neste trabalho. Pretende-se então, simular picos de difração múltipla, incluindo os parâmetros acima. Uma dependência deste tipo, que considera a expansão volumétrica do nó secundário da rede recíproca, foi proposto em 1975 por S.Caticha-Ellis [19].

4) A realização de experiências de difração múltipla de raios-X utilizando equipamentos otimizados para permitir menos ruído de fundo e portanto, maior resolução nas medidas, pode em princípio, tornar possível a caracterização de camadas mais finas que as utilizadas neste trabalho (500Å).

Neste apêndice são apresentados os cálculos básicos feitos por um programa de computador, para a obtenção das coordenadas (ω, ϕ) utilizadas na construção do diagrama de incidência DI.

Para se determinar as direções de incidência (ω, ϕ) usando a construção de Kossel, é necessário solucionar um sistema do tipo:

$$\begin{cases} \vec{r}_i \cdot \vec{g}_1 = \Omega_1 \\ \vec{r}_i \cdot \vec{g}_2 = -\Omega_2 \\ |\vec{r}_i| = R \end{cases} \quad (A-1)$$

onde $\Omega_1 = \frac{G_1 + R^2 \alpha_1 \theta_1}{1 + \alpha_1 \theta_1}$ e $\Omega_2 = \frac{G_2 + R^2 \alpha_2 \theta_2}{1 + \alpha_2 \theta_2}$.

Esse sistema calcula os valores de \vec{r}_i (ver figura 2, mas com $\vec{r}_i = \vec{r}_1$) levando em conta a possibilidade de ocorrer apenas espalhamento por planos secundários (\vec{g}_1) e por planos de acoplamento (\vec{g}_2), com desorientações θ_1 e θ_2 em relação as respectivas direções ideais, que ocorrem quando $\theta_1 = 0$ e $\theta_2 = 0$.

Os estudos dos caminhos híbridos SC e CS são feitos a partir de (A-1), tomando-se θ_1 ou θ_2 igual à zero, respectivamente.

Rescrevendo os vetores $\vec{r}_i = (x_i, y_i, z_i)$, $\vec{g}_1 = (x_1, y_1, z_1)$ e $\vec{g}_2 = (x_2, y_2, z_2)$ com suas componentes, o sistema (A-1) é escrito como:

$$\begin{cases} x_i x_1 + y_i y_1 + z_i z_1 = \Omega_1 \\ x_i x_2 + y_i y_2 + z_i z_2 = -\Omega_2 \\ x_i^2 + y_i^2 + z_i^2 = R^2 \end{cases} \quad (A-2)$$

Manipulando as duas primeiras equações em (A-2) pode-se

expressar y_i e z_i em função de x_i , isto é:

$$\begin{cases} y_i = \frac{(z_1 \Omega_2 + z_2 \Omega_1) - x_i (x_1 z_2 - x_2 z_1)}{y_1 z_2 - y_2 z_1} \\ z_i = \frac{-(y_1 \Omega_2 + y_2 \Omega_1) + x_i (x_1 y_2 - x_2 y_1)}{y_1 z_2 - y_2 z_1} \end{cases}$$

Para facilitar o tratamento algébrico feito a seguir, é necessário definir alguns valores, que são:

$$A \equiv x_1 z_2 - x_2 z_1 ,$$

$$B \equiv x_1 y_2 - x_2 y_1 ,$$

$$C \equiv y_1 z_2 - y_2 z_1 ,$$

$$D \equiv z_1 \Omega_2 + z_2 \Omega_1 ,$$

$$E \equiv y_1 \Omega_2 + y_2 \Omega_1 ,$$

$$K \equiv A^2 + B^2 + C^2 ,$$

$$\Gamma \equiv \frac{AD + BE}{K} \quad e$$

$$\Delta \equiv \frac{D^2 + E^2 - R^2 C^2}{K} .$$

Substituindo y_i e z_i na equação da esfera de reflexões em (A-2), o valor da componente x_i é determinado, de modo que as componentes do vetor \vec{r}_i são:

$$\begin{cases} x_i = \Gamma \pm \sqrt{\Gamma^2 - \Delta} \\ y_i = \frac{D - Ax_i}{C} \\ z_i = \frac{-E + Bx_i}{C} \end{cases} \quad (\text{A-3})$$

As direções ($-\vec{r}$) que o feixe deve incidir para ser difratado pelo caminho ($\vec{g}_1 + \vec{g}_2$) são calculadas a partir de \vec{r}_i como:

$$\vec{r} = 2\vec{g}_1 - \vec{r}_i + 2(\vec{g}_1 + \vec{r}_i)\alpha_1\theta_1$$

Assim, as componentes de $\vec{r} = (x, y, z)$ são:

$$\begin{cases} x = 2x_1 - x_i + 2(x_1 - x_i)\alpha_1\theta_1 \\ y = 2y_1 - y_i + 2(y_1 - y_i)\alpha_1\theta_1 \\ z = 2z_1 - z_i + 2(z_1 - z_i)\alpha_1\theta_1 \end{cases} \quad (\text{A-4})$$

Uma vez que, \vec{r} é conhecido, calcula-se através de (II-5) correspondente direção de incidência (ω, ϕ), que é:

$$\begin{cases} \omega = \text{sen}^{-1}\left(\frac{z}{R}\right) \\ \phi = \text{tan}^{-1}\left(\frac{y}{x}\right) \end{cases} \quad (\text{A-5})$$

Os dados de entrada ao programa são: componentes de \vec{g}_1 e \vec{g}_2 , comprimento de onda da radiação utilizada, parâmetro de rede do substrato e os ângulos θ_1 e θ_2 .

REFERÊNCIAS

- [1] - B.J.Isherwood, B.R.Brown, M.A.G.Halliwel:
J. Cryst. Growth 54, 449 (1981)
- [2] - K.Ishida, J.Matsui, T.Kamejima, I.Sakuma:
Phys. Status Solidi (a)31, 255 (1975)
- [3] - C.A.Lucas, P.D.Hatton, S.Bates, T.W.Ryan, S.Miles, B.K.Tanner:
J. Appl. Phys 03(5) 1936 (1988)
- [4] - M.Renninger: Z. Kristallogr. 106, 141 (1937)
- [5] - K.Lonsdale: Philos. Trans. A240, 219 (1947)
- [6] - D.R.Schwartzemberger: Philos. Mag. 47, 1242 (1959)
- [7] - J.P.Hannon, G.T.Trammell: Phys. Rev. 169, 315 (1968); 186, 306 (
- [8] - B.J.Isherwood: J. Appl. Cryst. 1, 299 (1968)
- [9] - B.J.Isherwood, C.A.Wallace: J. Appl. Cryst. 3, 66 (1970)
- [10] - T.C.Huang, B.Post: Acta Cryst. A29, 35 (1973)
- [11] - F.J.Spooner, C.G.Wilson: J. Appl. Cryst. 6, 132 (1973)
- [12] - B.Post: J. Appl. Cryst. 8, 452 (1975)
- [13] - S.Caticha-Ellis: Acta Cryst. A25, 666 (1969)
- [14] - S.L.Chang: Appl. Phys. Lett. 34, 239 (1979); 37, 819 (1980)
- S.L.Chang: "Multiple Diffraction of X-Rays in Crystals"
ed. H.J.Queisser - Springer Ser. Solid-State Sci., Vol 50
(Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo 1984)
- [15] - C.Campos, K.J.Roberts: Z. Kristallogr. 185, 629 (1988)

- [16] - S.L.Chang: Acta Cryst. A37, 876 (1981)
- [17] - B.J.Greenberg, J.Ladell: Appl. Phys. Let. 50, 436 (1987)
- [18] - H.Cole, F.W.Chambers, H.M.Dunn: Acta Cryst. 15, 138 (1962)
- [19] - S.Caticha-Ellis: Jpn. J. Appl. Phys. 14, 603 (1975)
- [20] - W.Kossel: Ann. Phys. 25, 512 (1936); 26, 536 (1936)
- [21] - B.J.Isherwood, C.A.Wallace: Acta Cryst. A27, 119 (1971)
- [22] - M.Akiyama, Y.Kawarada, T.Ueda, S.Nishi, K.Kaminishi:
J. Cryst. Growth 77, 490 (1986)
- [23] - S.L.Morelhão, L.P.Cardoso, J.M.Sasaki, A.C.Sachs:
Aceito para publicação em Proceedings of the International
Conference on the Science and Technology of Defect Control
in Semiconductors, Yokohama, Japan, Sept./89 - North Holland
- [24] - S.L.Morelhão, L.P.Cardoso: Submetido J. Cryst. Growth (1990)