

**МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ**  
**ЧЕРНІВЕЦЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ**  
**імені Юрія Федьковича**

**Солодкий Микола Степанович**



УДК 539.261; 548.74

**БАГАТОХВИЛЬОВІ СПЕКТРИ РОЗСІЯННЯ**  
**X-ПРОМЕНІВ ТА ЕЛЕКТРОНІВ У СКЛАДНИХ**  
**КРИСТАЛІЧНИХ З'ЄДНАННЯХ**

01.04.07 – фізика твердого тіла

Автореферат  
дисертації на здобуття наукового ступеня  
кандидата фізико-математичних наук

Чернівці – 2021

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана на кафедрі інформаційних технологій та комп'ютерної фізики Чернівецького національного університету імені Юрія Федьковича  
Міністерства освіти і науки України

**Науковий керівник:** доктор фізико-математичних наук, доцент  
**Борча Мар'яна Драгошівна,**  
завідувач кафедри інформаційних технологій та  
комп'ютерної фізики Чернівецького національного  
університету імені Юрія Федьковича

**Офіційні опоненти:** доктор фізико-математичних наук, доцент  
**Лізунов В'ячеслав В'ячеславович,**  
Інститут металофізики імені Г.В. Курдюмова  
НАН України (м. Київ),  
завідувач відділу фізики багатопараметричної  
структурної діагностики

доктор фізико-математичних наук, професор  
**Яремій Іван Петрович,**  
ДВНЗ «Прикарпатський національний університет  
імені Василя Стефаника» (м. Івано-Франківськ),  
професор кафедри матеріалознавства і новітніх  
технологій

Захист відбудеться "07" травня 2021 року о 15<sup>00</sup> годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 76.051.01 у Чернівецькому національному університеті імені Юрія Федьковича за адресою: 58013, м. Чернівці, вул. Рівненська 14, корпус 8А, ауд.206.

З дисертацією можна ознайомитись у науковій бібліотеці Чернівецького національного університету імені Юрія Федьковича, вул. Лесі Українки, 23.

Відгуки на автореферат просимо надсилати за адресою: Ученому секретарю спецради Д 76.051.01, вул. Коцюбинського, 2, м. Чернівці, 58002.

Автореферат розісланий "06" квітня 2021 р.

Т.В.О. Ученого секретаря  
спеціалізованої вченої ради



В.А. Головацький

## ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

**Актуальність теми.** Двохвильова X-променева дифракція досить інтенсивно досліджувалась протягом останніх десятиліть теоретично та експериментально і є ефективним неруйнівним інструментом дослідження реальної структури кристалів. Водночас, багатохвильова дифракція X-променів (БХДХП) відрізняється від звичайної (двохвильової дифракції) тим, що одночасно декілька площин знаходяться в положенні відбивання. Проте, метод БХДХП не має такого поширеного/широкого застосування як двухвильова дифракція, хоча аналіз процесів багатохвильової дифракції може надати альтернативні підходи для визначення структурних характеристик зразків. Це насамперед пов'язано з труднощами експериментальної реалізації методу, а отже, кількість робіт, в яких метод багатохвильової дифрактометрії використовується для визначення параметрів ґратки реальних кристалів залишається незначною.

Застосування синхротронного випромінювання може докорінно змінити ситуацію. Тому для багатохвильової дифрактометрії виникає необхідність розвитку і створення нових методів та підходів для дослідження структури реальних кристалів, у тому числі і гетероструктур та багатошарових систем. Це необхідно для більш точного визначення параметрів ґратки, хімічного складу та характеру анізотропії розподілів внутрішніх напруг.

Наразі технологічний розвиток новітніх оптоелектронних пристроїв, зокрема для вирішення проблем створення надчутливих детекторів та квантових комп'ютерів, вимагає застосування нових матеріалів, які здатні забезпечити прогнозовані електрофізичні властивості вирощених на них квантових ям. Багатообіцяючими для вирішення ряду проблем можуть стати багатошарові системи групи  $A^{III}B^V$  ( $Zn_{1-x}Mn_xSe$ ) та гетероструктури  $A^{II}B^{VI}$  ( $Al_xIn_{1-x}Sb$ ).

Втім, серйозною проблемою при вирощуванні таких матеріалів стає відмінність періоду ґратки підкладки та вирощених структур, що негативно впливає на властивості багатошарових систем. Тому технологічний контроль на етапі процесу вирощування необхідний для забезпечення бажаного результату.

Надійним методом контролю може стати багатохвильова дифракція X-променів: моделюючи спектри дифракції, можна підібрати режим аналізу, що підходить для кожного окремого шару гетероструктури. Це дозволить ідентифікувати деформації в кожному шарі з урахуванням анізотропії, а також з високою точністю визначити параметри ґратки.

Отже, розвиток надійних і ефективних методів визначення періодів ґратки на основі методу БХДХП, а також розробка нових та вдосконалення традиційних методик, серед яких і багатохвильовий метод Ренінгера, та відповідних алгоритмів для розрахунку спектрів багатохвильової дифракції є важливим напрямком у фізиці напівпровідників та нанотехнологій.

В останні роки багатохвильова дифракція електронів (метод Кікучі) також є перспективним методом у процесі структурних досліджень кристалічних матеріалів. Зумовлено це, насамперед, рядом переваг над іншими методами, що базуються на дифракції X-променів та нейтронів. Зокрема, зображення дифракції

електронів (картини Кікучі) отримуються від локальних областей зразка з розмірами порядку декілька нанометрів, що дуже важливо при дослідженні неоднорідних за будовою кристалів. Інша особливість методу – електрони взаємодіють з матеріалом сильніше за X-промені та нейтрони.

Проте, переваги методу Кікучі не використовуються в повній мірі і не всі його можливості реалізовані для дослідження структури реальних кристалів, внаслідок складного дифракційного зображення. Застосування цифрового інструменту на основі енергетичного Фур'є-спектру та його параметрів значно полегшують задачу аналізу картин Кікучі, а разом з відповідним програмним забезпеченням дають можливість з високою точністю (~0,01%) визначити зміну міжплощинної відстані, зумовлену структурними порушеннями в кристалі. Також слід зазначити, що діагностика деформаційного стану кристалів, де при розрахунках використовувався аналіз параметрів енергетичного Фур'є-спектру картин Кікучі, не представлені в літературі. Водночас, існує значна кількість публікацій в яких метод Кікучі використовується для дослідження локального деформаційного стану кристалічних сполук. Викладений у них матеріал є подекуди фрагментарним, і охоплює лише певні процеси або особливості структури. Дослідження структурних змін в зварних швах NiCrFe сплаву не в повній мірі представлено в джерелах і потребують виявлення певних закономірностей. Дослідження штучних алмазів та алмазоподібних кристалів (Ge:Sb) представлено ширше, однак стосовно підходів до оцінки тонкої структури – не представлено інформації в достатньому обсязі.

Тому удосконалення і розробка нових методів оцінки параметрів структури та деформаційного стану кристалів в локальних областях, а також створення відповідного програмного забезпечення для автоматизованої обробки дифракційних зображень, що базуються на явищах дифракції зворотно розсіяних електронів є актуальним науковим завданням.

### **Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами, грантами.**

Дослідження, представлені у дисертаційній роботі, виконано відповідно до програм наукової тематики кафедри інформаційних технологій та комп'ютерної фізики Чернівецького національного університету імені Юрія Федьковича, зокрема:

- “Розробка методів прецизійної X-променевої дифрактометрії деформаційних станів епітаксціальних наноструктур з гетеровалентними переходами A<sub>3</sub>B<sub>5</sub>/A<sub>2</sub>B<sub>6</sub>” (№ державної реєстрації 0114U003702, 2014-2015 рр.).
- “Структурні та електрофізичні характеристики напівізолюючих кристалів матеріалів A<sup>II</sup>B<sup>VI</sup> (CdTe, Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te, Cd<sub>1-x</sub>Zn<sub>x</sub>Te) після впливу зовнішніх чинників” (№ державної реєстрації 0116U001451, 2016-2018 рр.).
- “Нові підходи у розвитку структурно-чутливої X-променевої спектрометрії та дифрактометрії складних кристалічних сполук, тонколіткових та нанорозмірних шаруватих систем” (№ державної реєстрації 0119U100731, 2019-2021 рр.).
- “X-променево-оптична томографія полікристалічних мереж біологічних шарів” (№ державної реєстрації 0117U001149, 2017-2019 рр.).

**Метою дисертаційної роботи** є розвиток теоретичних та експериментальних методів дослідження дво- та багатохвильового спектру розсіяння X-променів (метод Ренінгера) та електронів (метод Кікучі) у різноманітних кристалічних системах: гетероструктурах та багатошарових системах  $Al_xIn_{1-x}Sb$ ,  $Zn_{1-x}Mn_xSe$ , монокристалах Ge:Sb, штучних алмазах, зварних швах NiCrFe; розробка нових алгоритмів, програмного забезпечення та нових методів аналізу дифракційного спектру кристалів.

**Для досягнення поставленої мети було визначено наступні завдання:**

1. Удосконалити теоретичні та експериментальні методи для визначення параметрів ґратки в складних кристалічних системах, зокрема, для кожного окремого гетероструктурного шару за допомогою випадкової компланарної або некомпланарної багатохвильової дифракції X-променів.
2. Розробити та вдосконалити алгоритми і програмне забезпечення для розрахунку та аналізу багатохвильових X-променевих дифрактограм.
3. Дослідити багатохвильовий спектр розсіяння X-променів твердих розчинів  $Al_xIn_{1-x}Sb$  і  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  з різним вмістом концентрації Al та Mn, відповідно. Встановити їх вплив на зміни структурного та деформаційного станів.
4. Розробити і вдосконалити експериментальні та теоретичні методи для оцінки величини деформації в локальних областях різного роду кристалів (Ge:Sb, NiCrFe, штучні алмази), що використовуються в методі дифракції зворотно-розсіяних електронів.
5. Оцінити можливість практичного використання параметрів енергетичного спектру двомірного Фур'є-перетворення картин Кікучі кристалічних систем (Ge:Sb, NiCrFe, штучні алмази) для визначення середньоквадратичних деформацій у локальних областях окремих зерен та на границях між ними.
6. Проаналізувати і порівняти значення локальних деформацій, отриманих з аналізу зміни форми і площі профілю інтенсивності смуг Кікучі, із значеннями деформацій, отриманими за допомогою аналізу параметрів енергетичного Фур'є-спектру картин дифракції.
7. Розробити та апробувати методики цифрової обробки зображень дифракції зворотно розсіяних електронів.

**Об'єкт дослідження** – гетероструктури  $Al_xIn_{1-x}Sb$ , багатошарові системи  $Zn_{1-x}Mn_xSe$ , монокристал германію легований сурмою Ge:Sb, штучні алмази синтезовані у різних системах та при різних температурах і тисках, зварні шви сплаву NiCrFe з тріщинами в зоні термічного впливу.

**Предмет дослідження** – методи і підходи для визначення деформаційного стану та періодів ґраток кристалів; закономірності формування багатохвильових спектрів розсіяння X-променів і електронів твердих розчинів з різним вмістом концентрації добавок та у різних за структурною однорідністю кристалах; особливості розподілу поля напруг у кристалах Ge:Sb, NiCrFe та штучних алмазах.

**Методи дослідження:** метод багатохвильової дифрактометрії (метод Ренінгера), високороздільні методи X-променевої дифрактометрії за допомогою

дифрактометра PANalytical Philips X'Pert PRO, метод дифракції зворотно-розсіяних електронів (метод Кікучі) за допомогою мікроскопу Zeiss EVO 50 XVP, растрова електронна мікроскопія (РЕМ), катодолюмінесцентна спектроскопія, методи цифрової обробки топографічних зображень.

**Наукова новизна отриманих результатів** полягає в тому, що у ній **вперше:**

1. Для зменшення впливу інструментальних факторів на точність виміру періоду ґратки у складних багатошарових системах  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  та гетероструктурах  $Al_xIn_{1-x}Sb$  використано випадки компланарної (випадкової) і некомпланарної X-променевої дифракції, які реалізується при зміні стехіометричного складу зразків та використанні синхротронного випромінювання. Для кожного індивідуального шару даних систем підібрано експериментальні умови для реалізації компланарної і некомпланарної багатохвильової дифракції.

2. Встановлено чутливість методу Ренінгера до тетрагонального спотворення елементарної комірки релаксованих та нерелаксованих багатошарових систем. Показано динаміку зміни місцеположень багатохвильових рефлексів, що мають різну поведінку при біаксіальних деформаціях, спричинених структурними особливостями підкладки і вирощеного епітаксійного шару.

3. За даними дифракції зворотно розсіяних електронів при використанні дискретного двомірного Фур'є-перетворення картин Кікучі та параметрів їх енергетичного Фур'є-спектру відтворено профілі деформації для кристалічних систем (Ge:Sb, NiCrFe, штучний алмаз). Встановлено, що використання середньої просторової радіальної частоти (періоду) та площі радіального розподілу енергетичного Фур'є-спектру значно підвищує інформативність та однозначність трактування змін у геометрії форми профілю смуг Кікучі. Для аналізу параметрів енергетичного спектру розроблено відповідну методику та програмне забезпечення.

4. Розроблена модель, що пояснює зміну деформаційного стану в різних кристалографічних напрямках для серії із 6-ти кристалів штучного алмазу, отриманих при різних технологічних процесах. Показано, що нормування профілів смуг Кікучі та середньої просторової радіальної частоти енергетичного Фур'є-спектру картини дифракції призводить до визначення локальних деформацій без необхідності використання еталонної картини Кікучі.

5. Розроблено комплексний підхід до підвищення ступеня визначення однорідності та структурної досконалості кристалів із картин дифракції зворотно розсіяних електронів за допомогою поєднання методів швидкого дискретного двомірного Фур'є-перетворення та аналізу параметрів енергетичного Фур'є-спектру.

**Практичне значення одержаних результатів.** Отримані в роботі результати моделювання спектрів багатохвильової X-променевої дифрактометрії відкривають нові можливості для визначення періодів ґратки, їх анізотропії та вивчення структурної недосконалості кристалів, а також

можливість їх використання при навчанні нейронних мереж для здійснення швидкої неруйнівної діагностики різних кристалічних систем, гетероструктур та багатошарових систем.

Розроблені підходи для дослідження локального деформаційного стану при аналізі параметрів енергетичного Фур'є-спектру картин Кікучі можна використовувати не тільки для кристалів, що досліджувались в роботі – Ge:Sb, зварні шви сплаву NiCrFe, штучні алмази, але й будь-яких інших, що володіють високою анізотропією деформаційного стану, в малих просторових масштабах. Це дозволить контролювати умови росту, здійснювати стабілізацію фізико-хімічних характеристик в процесі росту, відбраковувати зразки, які в процесі експлуатації можуть змінити свої механічні характеристики.

**Особистий внесок здобувача.** Дисертант брав активну участь у постановці задач, обговоренні та інтерпретації результатів в усіх опублікованих у співавторстві робіт [1–17]. В роботі [2] займався моделюванням і аналізом багатохвильових X-променевих дифрактограм. В роботах [3–7] здійснював аналіз отриманих результатів, займався вдосконаленням програмного забезпечення. Автором проведено цифрову обробку усіх експериментально отриманих картин Кікучі, а також здійснено математичні розрахунки в роботах [3–7]. Результати дисертації [8–17] доповідались і обговорювались на міжнародних і всеукраїнських наукових конференціях.

**Апробація результатів дисертації.** Основні результати досліджень, викладені в дисертації, доповідались і обговорювались на:

13<sup>th</sup> Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging ХТОР 2016, 4-8 September 2016, Brno, Czech.

VII українська наукова конференція з фізики напівпровідників “УНКФН– 7”, 26-30 вересня 2016, Дніпро, Україна.

XVI міжнародна конференція з фізики і технології тонких плівок та наносистем (МКФТТПН–XVI–ICPTTFN), 15-20 травня 2017, Івано-Франківськ, Україна.

Thirteenth International Conference on Correlation Optics, 11–15 September 2017, Chernivtsi, Ukraine.

14<sup>th</sup> Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging ХТОР 2018, 2-7 September 2018, Bari, Italy.

VIII українська наукова конференція з фізики напівпровідників “УНКФН-8”, 2-4 жовтня 2018, Ужгород, Україна.

XVII міжнародна фреїківська конференція з фізики і технології тонких плівок та наносистем “МКФТТПН–XVII”, 20-25 травня 2019, Івано-Франківськ, Україна.

**Публікації.** У дисертації узагальнено наукові результати, опубліковані у 17 працях, з них – 7 статей у міжнародних та вітчизняних фахових виданнях [1– 7], 10 тез на міжнародних і всеукраїнських наукових конференціях [8–17].

**Структура та обсяг дисертації.** Дисертація складається із вступу, п'яти розділів, висновків і списку використаних джерел. Обсяг дисертації – 157

сторінок, включає 63 рисунки, 6 таблиць. Список використаних джерел містить 219 найменувань.

## ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У **вступі** обґрунтовується актуальність вибраної теми дисертаційної роботи та її зв'язок з науковими програмами і темами досліджень, сформульовано мету і основні завдання дослідження, її наукова новизна і практичне означення отриманих результатів. Наводяться дані про публікації, апробацію роботи та особистий внесок дисертанта.

**Перший розділ** присвячений огляду літератури за темою дисертації, детально висвітлені основні положення кінематичної та динамічної теорії розсіяння X-променів. Значну увагу приділено теоретичним і експериментальним методам дослідження дво- та багатохвильової дифрактометрії X-променів і електронів у ідеальних та реальних кристалах. Зокрема, розглянуто методи Ренінгера і Кікучі та їх можливості при вивченні структури кристалів.

У **другому розділі** описано теоретичні розрахунки багатохвильового спектру X-променевого розсіяння у різноманітних кристалічних системах, які включають гетероструктури ( $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{Sb}$ ) і багат шарові нанокристалічні системи ( $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ ), що проведені з метою презентації нових можливостей багатохвильової дифрактометрії. Також значна увага приділена методиці відтворення профілів деформації і визначення концентрації в твердих розчинах  $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  за зміщеннями багатохвильових дифракційних рефлексів.

У методі Ренінгера для визначення параметру ґратки потрібно виміряти кутову відстань  $\Delta\varphi_{ij}$  між двома, як правило, структурно-еквівалентними багатохвильовими максимумами ( $\varphi$ -скани), що вносить основний вклад (разом із значенням довжини хвилі  $\lambda$ ) у похибку визначення параметра ґратки. Ідея роботи полягає в тому, щоб мінімізувати похибку визначення параметру ґратки за рахунок  $\Delta\varphi_{ij}$  (коли  $\Delta\varphi_{ij} \rightarrow 0$ ) використовуючи особливі випадки дифракції, як випадкова компланарна або некомпланарна дифракції. Реалізація 3-хвильової компланарної чи 4-хвильової некомпланарної дифракції X-променів у шарах  $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{Sb}$  і  $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  може бути пов'язана з вмістом  $x$  і геометричними умовами дифракції. У випадку виконання умови компланарної/некомпланарної дифракції кутові положення двох багатохвильових структурно-еквівалентних близько розташованих максимумів співпадають. Оскільки, не потрібно виміряти кутову відстань між багатохвильовими максимумами, то виникає унікальна можливість підвищення точності виміру параметра ґратки  $a$ .

На рис. 1а показано, що найбільш вигідними конфігураціями для реалізації чотирьоххвильової некомпланарної дифракції у шарах  $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{Sb}$  є трихвильові дифракції  $(600, 31\bar{5}/3\bar{1}5)$  і  $(600, 35\bar{1}/3\bar{5}1)$  для первинного відбивання  $(600)$



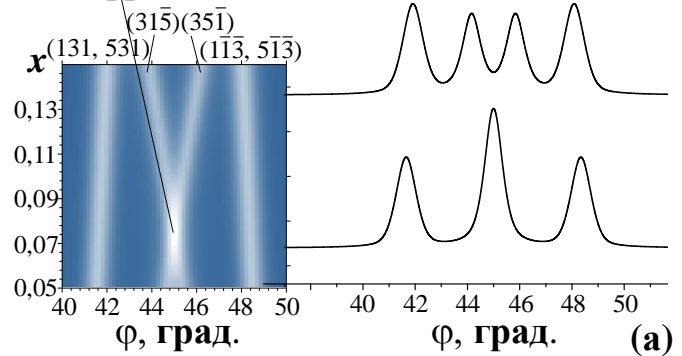
$CoK_{\alpha 1}$ - випромінювання, оскільки вони є структурно і спектрально чуттєвими і задовольняють умову  $\Delta\varphi \rightarrow 0$ .

Сукупність розрахованих багатохвильових  $\varphi$ -сканів на рис. 1а (права частина рисунку) демонструють динаміку трихвильових рефлексів  $(600, 31\bar{5}/3\bar{1}5)$  і  $(600, 35\bar{1}/3\bar{5}1)$ , тобто зміни їх кутових положень в порівнянні з концентрацією алюмінію  $x$ , і перекриваються при  $x=0.075$  (7.5% Al) з реалізацією 4-хвильової некомпланарної дифракції. Накладання цих рефлексів при  $x=7.5\%$  призводить до мінімізації інструментальних помилок при визначенні параметру ґратки. Із геометрії експерименту –  $a/\lambda = 3.607428$ , де  $\lambda$  – довжина  $CoK_{\alpha 1}$ - випромінювання (1.78896 Å). Параметр ґратки становить –  $a=6.45358$  Å.

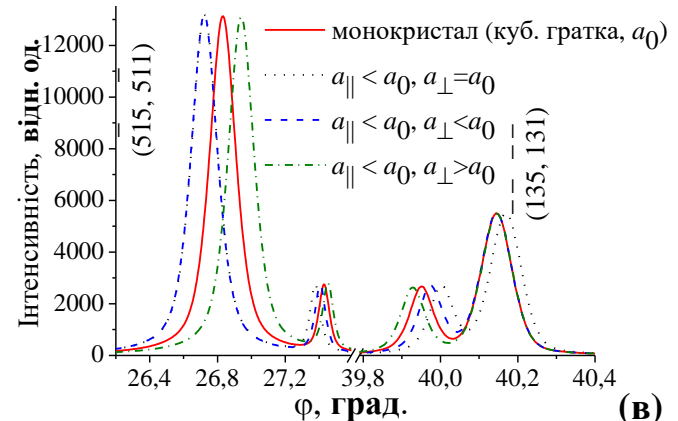
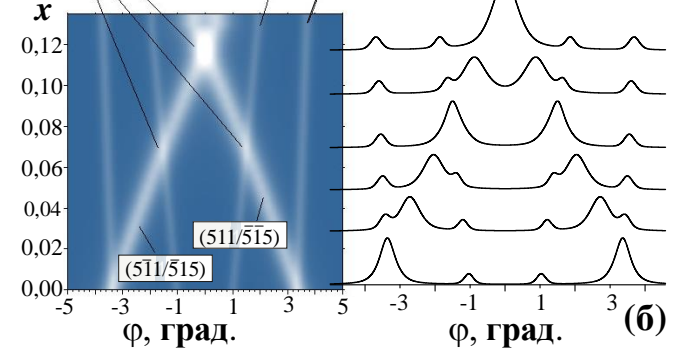
Використовуючи можливості спектрального діапазону синхротронного випромінювання виникає можливість задовільнити умову компланарної трихвильової дифракції для довільного  $x$ . Зокрема, для  $x=10.5\%$  при  $\lambda=1.78611$  Å отримуємо, що  $a=6.44326$  Å. Це створює умови для ефективного та високоточного управління хімічним складом і розподілом деформацій при рості гетероструктур.

На рис. 1б наведені змодельовані фрагменти багатохвильових  $\varphi$ -сканів для  $Zn_{1-x}Mn_xSe$ . Показано, що для реалізації чотирихвильової некомпланарної дифракції є три особливі випадки: трихвильові дифракції  $(006, 5\bar{1}1/\bar{5}15)$  і  $(006, 311/\bar{3}\bar{3}5)$ ,  $(006, 511/\bar{5}\bar{1}5)$  і  $(006, 311/\bar{3}\bar{3}5)$  та  $(006, 5\bar{1}1/\bar{5}15)$  і  $(006, 511/\bar{5}\bar{1}5)$  для первинного відбивання  $(006)$   $CoK_{\alpha 1}$ - випромінювання. Із геометрії експерименту –  $a/\lambda = 3.662328$  при  $x=0.12$ , де  $\lambda$  – це довжина  $CoK_{\alpha 1}$ - випромінювання (1.15406 Å). Параметр ґратки  $a=5.64214$  Å.

#### чотирихвильова дифракція



#### чотирихвильові дифракції



**Рис.1** Фрагменти розрахованих  $\varphi$ -сканів для  $Al_xIn_{1-x}Sb$  (а), для  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  (б), динаміка зміни місцеположень трихвильових рефлексів  $(006, 5\bar{1}1/\bar{5}15)$  і  $(006, 1\bar{3}5/\bar{1}31)$  епітаксialьного шару  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  внаслідок тетрагональних деформацій (в).

На рис. 1в продемонстровано динаміку зміни кутових положень багатохвильових рефлексів при переході шару з кубічної в тетрагональну структуру під час гетероепітаксійного росту. Ступінь тетрагонального спотворення ґратки  $\sim 0,01\%$ . Показано, що напрямок зміщення рефлексу  $(\bar{5}15, \bar{5}11)$  залежить від того, чи  $a_{\perp}$  більше чи менше від  $a_0$  в той час як рефлекс  $(\bar{1}\bar{3}5, \bar{1}\bar{3}1)$  зміщується в одному і тому самому напрямку в обох випадках.

Така інформація важлива для контролю параметрів технологічного процесу і передбачення електричних та оптичних властивостей. Регульований контроль внутрішнього поля напруг за допомогою зміни складу твердого розчину відкриває можливість вирощування гетероструктур та багат шарових систем без дислокацій невідповідності навіть із значно більшою різницею у параметрах ґраток підкладки і епітаксійного шару.

**У третьому розділі** висувається і обґрунтовується модифікований метод аналізу зображень дифракції зворотно розсіяних електронів. Для визначення середньоквадратичних деформацій у локальних областях окремих зерен та на границях між ними проводився аналіз параметрів енергетичного спектру двомірного перетворення Фур'є картин Кікучі. Водночас, для отримання інтегральних характеристик структурної досконалості зразків проведені дослідження за допомогою високороздільної Х-променевої дифрактометрії. Об'єкт дослідження – германій, легований сурмою (Ge:Sb).

Аналіз профілів інтенсивності смуг Кікучі передбачає порівняння площ профілів смуг, отриманих від різних ділянок одного кристалу, з площею профілю для еталонної картини Кікучі, отриманої від еталонної (недеформованої) ділянки кристалу. У випадку аналізу параметрів енергетичного спектру картин Кікучі також використовують одну ділянку кристалу як еталонну, відносно якої обчислюються деформації в інших областях.

Проте, розподіл інтенсивності картин Кікучі залежить не тільки від характеристик досліджуваних зразків, але й від умов проведення експерименту (інструментальних факторів), що значно ускладнює аналіз експериментальних зображень. Для зменшення впливу інструментальних факторів застосовано цифрову обробку зображень смуг Кікучі (програмно реалізовану в системі Matlab).

На рис. 2а показано розподіл середніх значень деформацій у локальних областях Ge:Sb (рис. 2б), розрахованих на основі:  $\varepsilon_A$  – аналізу площ під радіальними розподілами  $P_R$  енергетичного Фур'є-спектру  $P_S$ ;  $\varepsilon_T$  – аналізу середніх радіальних періодів  $\bar{T}_r$  (частот  $\bar{\nu}_r$ ) енергетичного Фур'є-спектру;  $\varepsilon_S$  – аналізу змін у профілях інтенсивності смуг Кікучі. Радіальний розподіл  $P_R$  розраховується шляхом лінійної інтерполяції на основі енергетичного спектра  $P_S$ . Отримані спектри  $P_S$  і їх розподіли  $P_R(\nu_r)$  (рис. 2в) мають характерну форму для кожної дослідженої області. Розподіли  $P_R$ , також як і спектри  $P_S$ , містять інформацію про значення  $\varepsilon$  в локальних областях. Узгодженість між значеннями деформацій  $\varepsilon_T$ ,  $\varepsilon_A$  та  $\varepsilon_S$  свідчить (рис. 2а), що комплексне використання різних

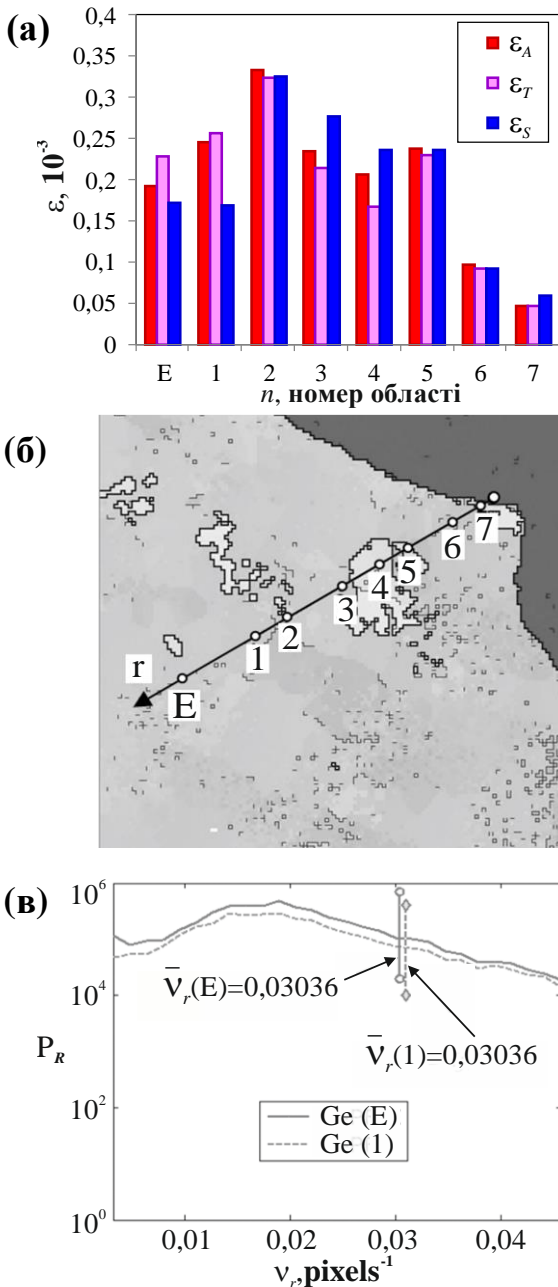
підходів до аналізу картин Кікучі підвищує ступінь достовірності отриманих даних і вказує на перспективу використання енергетичного Фур'є спектру.

Водночас, із аналізу карт оберненого простору та кривих гойдання для зразків Ge:Sb оціночні значення густин дислокацій становлять  $N_G \sim 3.0 \times 10^6 \text{ см}^{-2}$ . Така густина дислокацій зумовлює усереднену відносну деформацію в окремому блоці  $\bar{\varepsilon}_x \approx 0.87 \times 10^{-3}$ . Такі ж значення усереднених деформацій (по порядку) отримані з аналізу картин Кікучі різними методами (рис.2а).

У четвертому розділі представлено результати дослідження, пов'язані із визначенням значень середньоквадратичних деформацій за даними енергетичних Фур'є спектрів картин Кікучі в локальних областях поблизу тріщин зварного шва нікелевого сплаву NiCrFe та синтетичного алмазу (СА) отриманого методом температурного градієнту в системі Fe-Al-C при високому статичному тиску  $\sim 6 \text{ ГПа}$  і високій температурі  $\sim 1700 \text{ К}$ .

Оскільки для оцінки деформаційного стану використовувався аналіз параметрів енергетичного спектру двомірного перетворення Фур'є картин Кікучі, то продовжимо використовувати підхід запропонований у розділі 3.

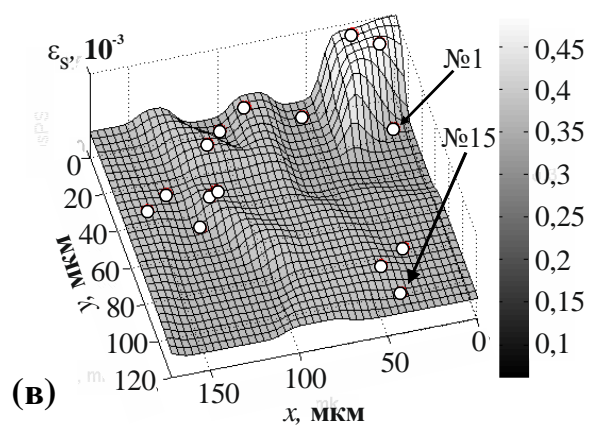
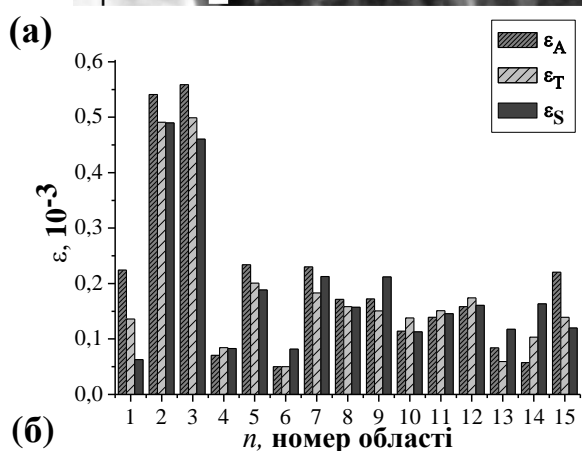
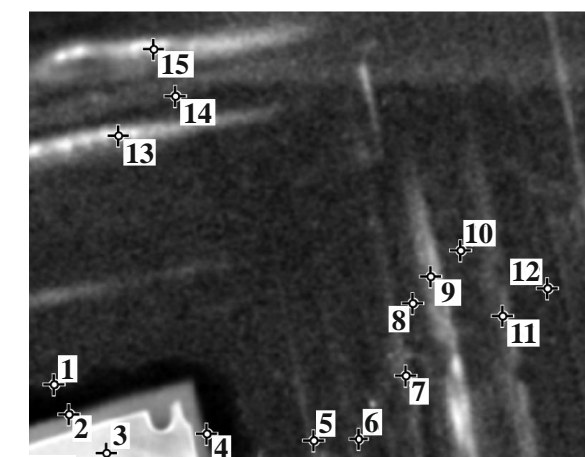
Отримані енергетичні спектри  $P_S$  і їх розподіли  $P_R(v_r)$  для СА, аналогічно до кристалу Ge:Sb, мають характерну форму для кожної дослідженої області (рис. 3а) і містять інформацію про значення деформації в досліджених локальних областях. На рис. 3б наведені значення середніх деформацій розрахованих для



**Рис. 2** Діаграма розподілу значень середніх деформацій (а), фрагмент катодолумінісцентної топограми поверхні Ge:Sb, де маркерами вказані області (№1-№7) та еталонна область (E), в яких отримані картини Кікучі (б), фрагмент радіального розподілу  $P_R$  енергетичного спектру  $P_S$  (в).

областей зразка СА (рис. 3а) за допомогою підходів запропонованих у розділі 3. Для значень деформацій виявлено характерні осциляції (з максимумами для областей №5, 7, 9 і мінімумами для областей №4, 6, 8, 10, відповідно).

Максимуми таких осциляцій відповідають на рис.3а світлим областям (№5, 7, 9) і вказують на періодичність в зміні структурних властивостей кристалів.



**Рис. 3** Фрагмент катодолумінесцентної топограми поверхні СА (маркерами вказані області №1-№15, в яких отримані картини Кікучі) (а), розподіл значень середніх деформацій  $\varepsilon_T$ ,  $\varepsilon_A$  і  $\varepsilon_S$  (б), планарний розподіл деформації  $\varepsilon_S$  в локальних областях кристала СА (в).

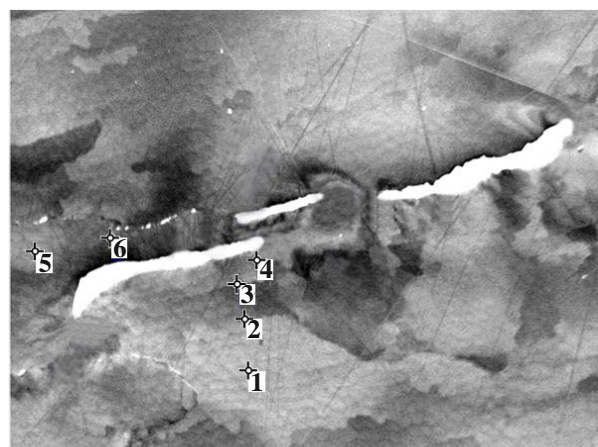
На підставі отриманих значень деформацій  $\varepsilon_S$  шляхом апроксимації обчислено планарний розподіл деформацій для кристала алмаза (рис. 3в). Планарний розподіл деформацій також підтверджує періодичність у зміні структурних властивостей кристалів, особливо для локальних максимумів в областях №5, 7, 9.

Незначну різницю між значеннями  $\varepsilon_T$ ,  $\varepsilon_A$  і  $\varepsilon_S$  можна пояснити різними підходами при їх визначенні.

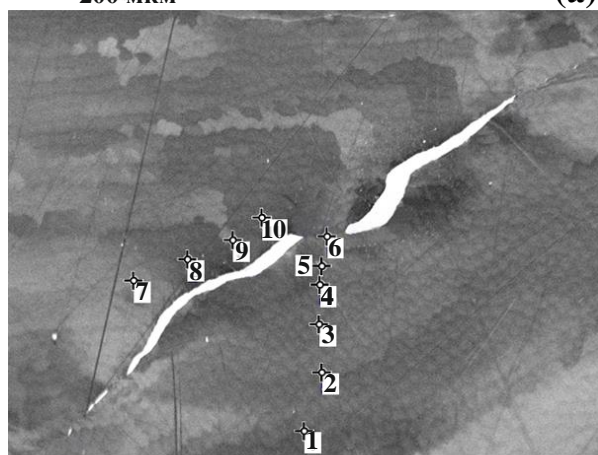
Такий підхід (метод) дозволив уточнити розподіл деформацій в зварних швах нікелевого сплаву з тріщинами. Окрім інформації про розподіл локальних деформацій додатково отримано карти розорієнтації зерен та карти локалізації напруг, а також виконаний X-променевий мікроаналіз для аналізу хімічного складу та ідентифікації домішок, що найбільше сприяють появі тріщини [1\*].

За отриманими топографічними картами (рис. 4) і зображеннями дифракції можна зробити висновок про структурну неоднорідність і кристалічну недосконалість зразків. Порівняння катодолумінесцентної топограми (рис. 4) і карти орієнтації кристалітів показує, що тріщини сформовані уздовж границь розділу між кристалітами. Істотну роль при цьому відіграє ступінь текстурування матеріалу. Якщо для зразка Б тріщина утворена між зернами однієї природи з майже однаковою переважаючою орієнтацією зерен, то для зразка А, навпаки, тріщина утворена між зернами різної кристалічної орієнтації. У першому

випадку картини Кікучі знімалися в локальних областях зразка, тобто в межах зерна (кристаліграфічна орієнтація якого близька до [100]), і тому тут можна очікувати присутність менших за величиною деформацій, ніж для зразка Б.



(a)



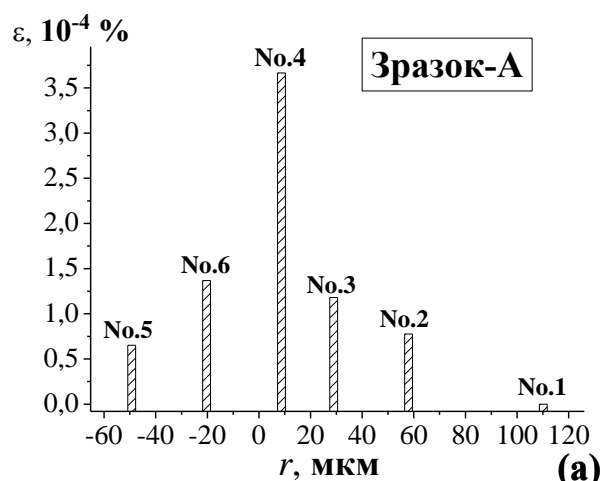
(б)

**Рис. 4** Фрагменти катодлюмінісцентних топограм поверхні зварного шва нікелевого сплаву для зразка А (а), зразка Б (б).

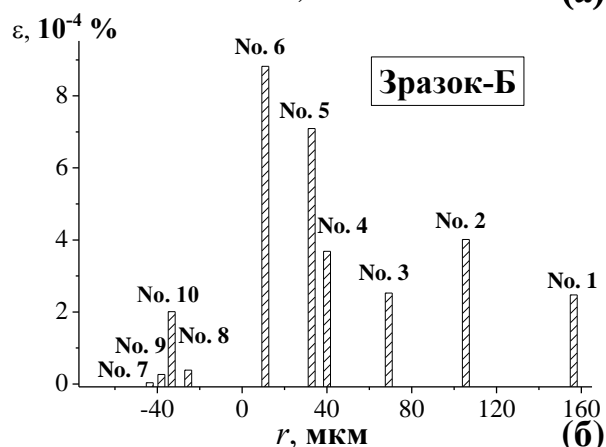
В роботі [1\*] локальні деформації поблизу тріщини зварювального шва нікелевого сплаву оцінювалися за допомогою суми  $S_F$  амплітуд гармоніки для відповідного діапазону просторових частот Фур'є-перетворення картин Кікучі. В нашому випадку деформації кристалів визначаються на основі аналізу середніх радіальних періодів  $\bar{T}_r$  енергетичного Фур'є-спектру  $P_S$  картин дифракції.

На рис. 5 наведені значення деформацій для кожної ділянки обох зразків. Для зразка Б величини  $\varepsilon$  значно більші, ніж для зразка А, що імовірно пов'язане з більш яскраво вираженою зернистістю структури. Для зразка А (рис. 5а, для областей №1-4) зміна величини деформації при наближенні до тріщини відповідає, у більшій мірі, експоненційній залежності. Зазначимо, що досліджувані локальні області знаходяться на великому зерні певної кристаліграфічної орієнтації. Такі зерна, в залежності від кристаліграфічної орієнтації, характеризуються різними за величиною областями пружної та пластичної деформації. Отримані результати добре корелюють з даними роботи [1\*], що свідчить про доцільність використання параметрів енергетичного Фур'є-спектра для аналізу картин Кікучі.

Для областей №1-№6 зразка Б залежність  $\varepsilon(r_{min})$  є іншою і носить хаотичний характер, що вказує на вплив особливостей структури, зокрема, для області №2 значення  $\varepsilon$  значно більше, чим для областей №1 і №3 та майже



(a)



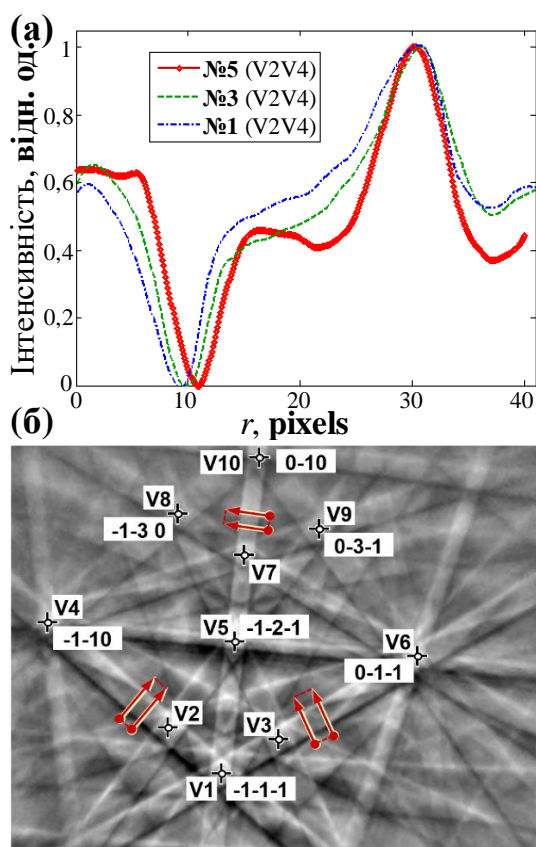
(б)

**Рис. 5** Розподіл значень середніх деформацій в локальних областях тріщини зварного шва нікелевого сплаву зразка А (а), зразка Б (б).

співмірне для області №4. Це пояснюється тим, що область №2 лежить на межі двох субзерен (рис. 4б). Також важливу роль може відігравати ступінь аустенітності сплаву. Для досліджуваних областей ступінь аустенітності  $K_a$  становить від 0.21 до 0.25, а потенційна схильність до утворення тріщин проявляється при  $K_a < 1.5$ . Найбільші значення деформацій відповідають ділянкам, через які проходять малокутові границі: ділянки 3, 4, 6 для зразка А (рис. 5а) і ділянки 2, 5 і 6 для зразка Б (рис. 5б). В межах області №9 є більш розвиненою мікроструктура зерен, чим для областей №8 та 10, тому тут значення  $\epsilon$  більші за величиною, ніж для сусідніх областей.

Дослідження хімічного складу за допомогою X-променевого мікроаналізу виявили наявність значної концентрації кисню та вуглецю в досліджуваних ділянках зразка. Наявність малокутових границь зумовлює скупчення домішок – вуглецю і кисню, що сприяють утворенню преципітатів. Дані елементи є факторами виникнення тріщини, і тому для зменшення ймовірності виникнення тріщини необхідно виключати їх з технологічного процесу [1\*].

**У п'ятому розділі** представлено результати дослідження штучних алмазів (D1-D6) синтезованих за різних умов за допомогою методу Кікучі. Розроблена



**Рис. 6.** Усереднені профілі  $I(r)$  розподілу інтенсивності ділянок смуг Кікучі для кристалу штучного алмазу D1 між вузлами V2V4 для ділянок № 5, 3, 1 (а), картина Кікучі, отримана від ділянки № 1 кристалу D1 (б).

модель для розрахунку деформаційного стану в різних кристалографічних напрямках. Запропоновано визначати деформації локальних ділянок кристалів штучного алмазу на основі картин Кікучі без використання еталонного зображення, а саме на основі нормованих профілів інтенсивності смуг Кікучі та нормованих параметрів енергетичного Фур'є-спектру.

Усереднені профілі смуг Кікучі (рис. 6а) на зображеннях  $f$  обчислені як середнє значення серії профілів для фрагменту смуги (рис. 6б) за допомогою програми «p\_Profile\_Series\_20» (розроблена в системі Matlab). За рахунок усереднення профілів  $I(r)$  (де  $r$  – довжина профілю) збільшено відношення сигнал-шум для результуючого профіля і точніше відтворено його форму. Усереднені профілі обчислено для найбільш інтенсивних смуг в різних кристалографічних напрямках, наприклад, на картині Кікучі (рис. 6б) обчислено профілі для смуг між вузлами V2V4, V3V6 та V1V5.

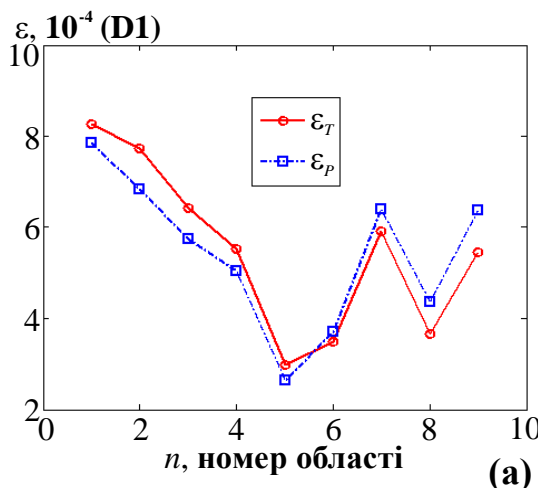
Обчислені профілі  $I(r)$  смуг Кікучі відрізняються між собою різним рівнем асиметрії відносно середини смуги,

оскільки для асиметричних профілів (рис. 6а) площа під лівою частиною профілю значно відрізняється від площі під правою частиною [2\*]. При цьому отримано, що форма асиметричних профілів (рис. 6а), наприклад, з індексами

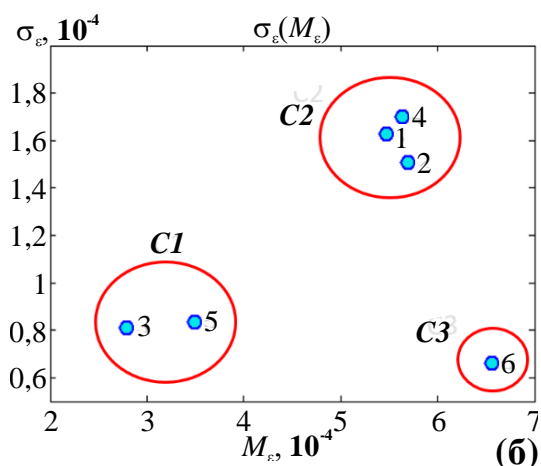
площини  $(h, k, l) = (\bar{1}10)$  значно сильніше залежить від деформацій досліджуваних кристалів, ніж форма симетричних профілів  $(h, k, l) = (\bar{1}01)$ . Тому деформації кристалів визначалися саме на основі асиметричних профілів.

Оскільки деформації кристалів призводять до спотворень розподілу інтенсивності смуг Кікучі, тому локальну деформацію  $\varepsilon_{PV}$  кристалу для певної кристалографічної площини можливо обчислити на основі площі під профілем  $I(r)$  інтенсивності смуги Кікучі за емпіричною формулою [3\*]:

$$\varepsilon_{PV} = k_d \ln \left( \frac{S_P}{S_{P0}} \right) \quad (1)$$



**Рис. 7** Значення середніх деформацій  $\varepsilon_P$ , обчислених на основі профілів смуг Кікучі, та деформацій  $\varepsilon_T$ , обчислених на основі енергетичного спектру картини Кікучі для кристалу штучного алмазу D1.



**Рис. 8** Кластеризація серії кристалів алмазу на основі їх параметрів деформацій  $\varepsilon$  в системі координат  $(\sigma_\varepsilon, M_\varepsilon)$ ; номери кристалів D1-D6 позначено цифрами.

де  $S_P$  – нормована площа під профілем смуги для ділянки з деформацією,  $S_{P0}$  – нормована площа під профілем смуги для ділянки без деформації.

Нормування площ під профілем смуги  $S_P$  та  $S_{P0}$  забезпечує залежність  $S_P$  і  $S_{P0}$  тільки від форми профілю та можливість аналізу профілів різної ширини для картин Кукучі, отриманих для ділянок різних кристалів.

Для кожної дослідженої ділянки кристалів алмаза на основі значень деформацій  $\varepsilon_{PV}$ , отриманих шляхом аналізу профілів смуг Кікучі для різних кристалографічних площин, обчислено середні значення деформацій  $\varepsilon_P$  (рис. 7).

Взаємозв'язок деформацій кристалів  $\varepsilon_T$  з параметрами енергетичних Фур'є-спектрів картин Кікучі, можливо описати через просторову радіальну частоту  $\bar{\nu}_R$  або період  $\bar{T}_R$  (2):

$$\varepsilon_T = k_T \cdot \ln \left( \frac{\bar{\nu}_{N0}}{\bar{\nu}_N} \right) \quad (2)$$

де  $\bar{\nu}_{N0}$  – нормована середня просторова радіальна частота для ділянки без деформації,  $\bar{\nu}_N$  – нормована середня просторова радіальна частота, для досліджуваних областей.

Завдяки нормуванню частоти  $\bar{\nu}_N$  забезпечується її незалежність від інструментальних факторів, зокрема, від впливу шумів та середнього фону

зображення. Використання однакового значення  $\bar{\nu}_{N0}$  для всіх картин Кікучі дозволяє обчислювати та порівнювати значення деформацій для ділянок різних кристалів алмазу.

Обчислення деформацій  $\varepsilon_T$  кристалів штучного алмазу (рис. 7) на основі енергетичних спектрів картин Кікучі виконано за допомогою програми «р\_Kik\_FFT\_Deform\_20» (розроблена в системі Matlab).

Задовільне узгодження між значеннями  $\varepsilon_P$  та  $\varepsilon_T$  (рис. 7) свідчить про коректність запропонованої методики визначення деформацій на основі профілів смуг Кікучі та параметрів їх енергетичних Фур'є-спектрів.

На основі отриманих значень деформацій  $\varepsilon$ , шляхом їх апроксимації обчислено просторовий розподіл деформацій у вигляді тривимірної поверхні та у вигляді ліній рівнів для локальних ділянок кристалів штучного алмазу. Також для кількісного аналізу параметрів кристалів штучного алмазу визначено такі їх параметри: мінімальне  $\varepsilon_{\min}$  та максимальне  $\varepsilon_{\max}$  значення деформації  $\varepsilon$ ; діапазон значень деформацій  $D_\varepsilon$  (визначається як різниця між максимальним і мінімальним значенням  $\varepsilon$ ), що описує максимальну зміну  $\varepsilon$ ; середнє арифметичне значення  $M_\varepsilon$  деформації  $\varepsilon$ ; середнє квадратичне відхилення  $\sigma_\varepsilon$  деформацій  $\varepsilon$ ; асиметрія  $A_{S\varepsilon}$ , що визначає симетричність значень деформацій  $\varepsilon$  відносно середнього значення  $M_\varepsilon$ ; ексцес  $K_\varepsilon$ , що описує характер відхилення значень деформацій  $\varepsilon$  від середнього значення  $M_\varepsilon$ . Для глибшого аналізу отриманих даних проведено кластеризацію в просторі параметрів деформацій досліджуваних кристалів алмазу в системі координат  $(\sigma_\varepsilon, M_\varepsilon)$  методом k-середніх з використанням евклідової відстані між точками (рис. 8) [4\*].

## ВИСНОВКИ

У дисертаційній роботі апробовано комплекс методів дво- та багатохвильової дифракції X-променів і електронів та модифіковані підходи для дослідження структурних характеристик та деформаційного стану кристалів Ge:Sb, штучних алмазів, зварних швів NiCrFe, а також напівпровідникових гетероструктур  $Al_xIn_{1-x}Sb$  та багатошарових систем  $Zn_{1-x}Mn_xSe$ . Розроблено спеціалізоване програмне забезпечення в системі Matlab для обробки зображень смуг Кікучі та визначення деформаційного стану досліджених кристалів.

Найбільш важливі результати полягають у наступному:

1. За допомогою кінематичного представлення багатохвильової X-променевої дифракції (метод Ренінгера) та програмного забезпечення "UMWEG" запропоновано метод для визначення параметрів ґратки в гетероструктурах  $Al_xIn_{1-x}Sb$  та багатошарових системах  $Zn_{1-x}Mn_xSe$ . Розглянуто випадки компланарної і некомпланарної багатохвильової дифракції, що реалізуються в процесі зближення і накладання багатохвильових структурно еквівалентних рефлексів при зміні стехіометричного складу зразків. Чотирихвильова некомпланарна дифракція у гетероструктурі  $Al_xIn_{1-x}Sb$  спостерігається в результаті накладання трихвильових дифракцій  $(600, 31\bar{5}/3\bar{1}5)$  і  $(600, 35\bar{1}/3\bar{5}1)$  при  $x=7.5\%$  та  $CoK_{\alpha 1}$ -випромінювання. Параметр ґратки в цьому випадку становить  $a=6.45358 \text{ \AA}$ . Водночас, некомпланарні чотирихвильові дифракції для системи  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  є результатом накладання трихвильових рефлексів:  $(006, 5\bar{1}1/\bar{5}15)$  і  $(006, 311/\bar{3}\bar{3}5)$ ,  $(006, 511/\bar{5}\bar{1}5)$  і  $(006, 311/\bar{3}\bar{3}5)$  та  $(006, 5\bar{1}1/\bar{5}15)$  і  $(006, 511/\bar{5}\bar{1}5)$  для  $CuK_{\alpha 1}$ -випромінювання при різних значеннях  $x$ . При  $x=12\%$  параметр ґратки  $a=5.64214 \text{ \AA}$ .



2. Для реалізації умови компланарної/некомпланарної дифракцій у гетероструктурах  $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{Sb}$  та багатошарових системах  $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  використано можливості спектрального діапазону синхротронного випромінювання. Зокрема, для  $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{Sb}$  при  $x=10.5\%$  і  $\lambda=1.78611 \text{ \AA}$ , параметр ґратки –  $a=6.443265 \text{ \AA}$ .

3. Визначено ступінь тетрагонального спотворення ґратки епітаксialьного шару  $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se} \sim 0,01\%$ . Внаслідок анізотропних напружень при переході кубічної структури шару в тетрагональну показано динаміку зміни місцеположень трихвильових структурно-еквівалентних рефлексів  $(006, \bar{5}15/\bar{5}11)$  і  $(006, \bar{1}\bar{3}5/\bar{1}\bar{3}1)$ .

4. Запропоновано спосіб підвищення точності визначення деформацій за рахунок попередньої обробки зображень Кікучі мінімізувавши вплив інструментальних факторів:

- зменшення рівня імпульсного шуму медіанним фільтром;
- зменшення рівня гаусового шуму фільтром Гауса;
- суміщення зображень за допомогою генетичних та градієнтних алгоритмів (перетворення всіх зображень серії до одного масштабу, нормалізації середньої яскравості та контрасту).

5. Використовуючи дані, отримані за допомогою параметрів енергетичного Фур'є-спектру при аналізі картин Кікучі на додаток до методу дискретного двовимірного Фур'є-перетворення досліджено локальні деформації і їхній характер анізотропії у різних кристалографічних напрямках для кристалів Ge:Sb та штучного алмазу. Отримані експериментальні картини дифракції від різних областей одного і того ж зразка (зразків) характеризуються різним ступенем розмиття дифракційних смуг. Виявлені ефекти пов'язані з деформаціями  $\varepsilon_T$  і  $\varepsilon_A$ , що можна кількісно описати через середній просторовий період і площу радіального розподілу енергетичного спектра дифракційного зображення. Усереднені деформації  $\varepsilon_T$  і  $\varepsilon_A$ , обчислені на основі аналізу параметрів енергетичного спектру, корелюють зі значеннями деформацій  $\varepsilon_S$ , отриманими на основі аналізу змін у профілях смуг Кікучі.

6. За даними високороздільної X-променевої дифрактометрії для Ge:Sb оціночні значення густин дислокацій становлять –  $N_G \sim 3.0 \times 10^6 \text{ см}^{-2}$ , що зумовлює усереднену відносну деформацію в окремому блоці –  $\bar{\varepsilon}_x \approx 0.87 \times 10^{-3}$ . Такі ж значення усереднених деформацій (по порядку) отримані із аналізу картин Кікучі. Встановлено, що найбільші значення деформацій характерні для локальних областей №1, №2 і №5, які розташовані на границях між субзернами або біля них. Така особливість свідчить про наявність залишкових джерел напружень поблизу малокутових границь між субзернами.

7. Використання X-променевого мікроаналізу та інформації про розподіл полів напруг та розорієнтації кристалітів з методу Кікучі дозволило дослідити деформаційний стан окремих локальних областей зразків нікелевого сплаву NiCrFe з тріщинами, які виникли в зоні термічного впливу. Показано, що для зразка А залежність деформації від відстані має виражений експоненційний характер, тоді як для зразка Б такої закономірності не простежується, що вказує на вплив особливостей структури і наявність домішок, особливо вуглецю і кисню, які можуть сприяти утворенню преципітатів. Для досліджуваних ділянок ступінь аустенітності  $K_a$  становить від 0,21 до 0,25. Найбільші значення

деформацій відповідають локальним ділянкам, через які проходять малокутові границі: ділянки 3, 4, 6 для зразка А і ділянки 2, 5 і 6 для зразка Б.

8. Проведено кластеризацію в просторі параметрів деформацій серії кристалів алмазу методом k-середніх з використанням евклідової відстані між точками в системі координат  $(\sigma_{\varepsilon}, M_{\varepsilon})$ , а також досліджено вплив умов вирощування кристалів на їх характеристики. Встановлено, що до класу  $C_1$  належать кристали D3 та D5, для яких характерні відносно низькі середні значення деформацій  $M_{\varepsilon}$  та середні квадратичні відхилення  $\sigma_{\varepsilon}$ , що пояснюється умовами синтезу; до класу  $C_2$  – кристали D1, D2 та D4 з високими значеннями  $M_{\varepsilon}$  та  $\sigma_{\varepsilon}$ , що пояснюється нерівномірним розподілом домішок азоту і бору під час росту; до класу  $C_3$  – кристал D6 з високим значенням  $M_{\varepsilon}$  та низьким  $\sigma_{\varepsilon}$ , що пояснюється неідеальним рельєфом кристалу і нерівномірним розподілом домішок.

Представлені методи і модифіковані підходи для характеристики структури та дослідження деформаційного стану у напівпровідникових гетероструктурах  $Al_xIn_{1-x}Sb$ , багат шарових системах  $Zn_{1-x}Mn_xSe$ , кристалах Ge:Sb, штучних алмазах і зварних швах NiCrFe на основі багатохвильової X-променевої дифрактометрії та дифракції зворотно розсіяних електронів можуть надати важливу інформацію для контролю технологічного процесу і передбачення електричних та оптичних властивостей при дослідженні кристалів.

### СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ЛІТЕРАТУРНИХ ДЖЕРЕЛ

1\*. Локальные деформации в окрестности трещины сварочного шва никелевого сплава, определённые с помощью Фурье-преобразования картин Кикучи / М.Д. Борча, А.В. Звягинцева, В.М. Ткач, К.А. Ющенко, С.В. Баловсяк, И.М. Фодчук, В.Ю. Хоменко // Металлофиз. новейшие технол. – 2013. – 35(10). – С. 1359–1370.

2\*. Kikuchi bandlet method for the accurate deconvolution and localization of Kikuchi bands in Kikuchi diffraction patterns / F. Ram, S. Zaefferer and D. Raabe // Journal of Applied Crystallography. – 2014. – 47(1). – P. 264–275.

3\*. Measuring strains for hematite phase in sinter ore by electron backscattering diffraction method / Y. Sasaki, M. Igushi, M. Hino // Key Eng. Mater. – 2006. – 326-328. – P. 237-240.

4\*. Інтелектуальний аналіз даних: Підручник / О.І.Черняк, П.В.Захарченко. – Київський національний університет ім. Т. Шевченка. – К.:Знання, 2014. – 599 с.

### СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. Залежність магнітної доменної структури гранатових сполук від структурних параметрів / Фодчук І.М., Довганюк В.В., Гуцуляк І.І., Коцюбинський А.О., Литвин П.М., Сафрюк Н.В., Кладько В.П., Сиворотка І.М., Бончик О.Ю., **Солодкий М.С.** // Науковий вісник Чернівецького університету. Фізика. Електроніка. – 2014. – Т. 3, Вип. 2. – С 39-45.

2. Structure diagnostics of heterostructures and multi-layered systems by X-ray multiple diffraction / M. Borcha, I. Fodchuk, **M. Solodkyi**, and M. Baidakova // Journal of Applied Crystallography. – 2017. – Vol. 50(3). – P. 722-726.

3. Визначення локальних деформацій в околі зварного шва нікелевого сплаву за даними енергетичних Фур'є спектрів картин Кікучі / Борча М. Д., **Солодкий М. С.**, Баловсяк С. В., Фодчук І. М., Кузьмін А.Р., Ткач В. М., Ющенко К. А., Звягинцева А. В. // Фізика і хімія твердого тіла. – 2018. – Т. 19, Вип. 4. – С. 307-312.

4. Determination of local deformations and their anisotropy in polycrystalline Ge by electron backscatter diffraction data / I.M. Fodchuk, **M.S. Solodkyi**, M.D. Borch, S.V. Balovsyak, V.M. Tkach // *Metallofizika i Noveishie Tekhnologii*. – 2019. – Vol. 41(3). – P. 403-415.

5. Features of structural changes in mosaic Ge:Sb according to X-ray diffractometry and electron backscatter diffraction data / M. Borch, **M. Solodkyi**, S. Balovsyak, V. Tkach, I. Hutsuliak, A. Kuzmin, O. Tkach, V. Kladko, O. Gudymenko, O. Liubchenko, Z. Świątek // *Semiconductor Physics, Quantum Electronics and Optoelectronics*. – 2019. – Vol. 22(4). – P. 381-386.

6. Determination of structural heterogeneity of crystals from electron backscatter diffraction images with use of the Fourier energy spectrum / M. Borch, I. Fodchuk, **M. Solodkyi**, S. Balovsyak, Yu. Roman, I. Hutsuliak // *Proceedings of SPIE*. – 2020. – Vol. 11369. – P. 1136911.

7. Local strain distribution in synthetic diamond crystals, determined by the parameters of the energy spectrum of the Kikuchi patterns / I.M. Fodchuk, S.A. Ivakhnenko, V.N. Tkach, S.V. Balovsyak, M.D. Borch, **N.S. Solodkii**, I.I. Gutsulyak, A.R. Kuzmin, O.V. Sumaryuk // *Journal of Superhard Materials*. – 2020. – Vol. 42(1). – P. 1-8.

8. Structure diagnostics of heterostructures and multilayered systems by X-ray multiple diffraction / M. Borch, I. Fodchuk, **M. Solodkyi**, M. Baidakova, G. Klimko, I. Sedova, R. Sokolov, S. Sorokin, M. Yagovkina // *The 13<sup>th</sup> Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging XTOP 2016*. Abstract book – Brno, Czech Republic. – 4-8 September 2016. – P. 286.

9. Структурна діагностика релаксованих і нерелаксованих багатошарових кристалічних систем з використанням багатохвильової дифракції X-променів / М. Борча, І. Фодчук, **М. Солодкий**, О. Кройтор, О. Кшевецький // VII українська наукова конференція з фізики напівпровідників “УНКФН– 7”, Збірник тез. – Дніпро, Україна. – 26-30 вересня 2016. – с. 318.

10. The peculiarity of X-ray multi-beam diffraction in heterostructures and multilayered systems / M. Borch, I. Fodchuk, **M. Solodkyi** // *Thirteenth International Conference on Correlation Optics*. – Chernivtsi, Ukraine. – 11–15 September 2017.

11. Strain analysis of heterostructures and multilayered system by X-ray multiple diffraction / M. Borch, I. Fodchuk, **M. Solodkyi**, O. Kroitor, O. Kshevetsky, O. Tkach // XVI міжнародна конференція з фізики і технології тонких плівок та наносистем, Збірник тез. – Івано-Франківськ, Україна. – 15-20 травня 2017. – с. 110.

12. Structural diagnostics of Si/SwGe heterostructures by the methods of two and multi-beam x-ray diffraction / M. Borch, I. Fodchuk, **M. Solodkyi**, V. Kladko, N. Safriuk, O. Liubchenko // *The 14<sup>th</sup> Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging XTOP 2018*. Abstract book – Bari, Italy. – 3-7 September 2018. – P. 139.

13. Strain distribution in polycrystalline germanium plates from the data of electron backscatter diffraction / M. Borch, **M. Solodkyi**, I. Fodchuk, S. Balovsyak, V. Tkach // *The 14th Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging XTOP 2018*. Abstract book – Bari, Italy. – 3-7 September 2018. – P. 170.

14. Деформаційний стан полікристалічного Ge за даними методу дифракції зворотно розсіяних електронів / І.М. Фодчук, М.Д. Борча, **М.С. Солодкий**, С.В. Баловсяк, В.М. Ткач // VIII Українська наукова конференція з фізики напівпровідників “УНКФН– 8”. Збірник тез. – Ужгород, Україна. – 2-4 жовтня 2018. – 471 с.

15. Two- and multi-beam X-ray diffraction diffractometry of Si/SiGe heterostructures / M. Borch, **M. Solodkiy**, I. Fodchuk, V. Kladko, O. Liubchenko, N. Safriuk // XVII міжнародна фреїківська конференція з фізики і технології тонких плівок та наносистем “МКФТТПН–XVII”. Збірник тез. – Івано-Франківськ, Україна. – 20-25 травня, 2019. –

102 с.

16. Determination of the magnitude of local deformations in synthesized diamonds from the data of electron backscatter diffraction // S. Balovsyak, M. Borcha, **M. Solodkyi**, A. Kuzmin, T. Kazemirskyi, V. Tkach // XVII міжнародна фреїківська конференція з фізики і технології тонких плівок та наносистем “МКФТТПН–XVII”. Збірник тез. – Івано-Франківськ, Україна. – 20-25 травня, 2019. – 298 с.

17. Distribution of local deformation in germanium plates defined by the power fourier spectrum of Kikuchi patterns / **M. Solodkyi**, S. Balovsyak, M. Borcha, I. Fodchuk, A. Kuzmin, V. Tkach // XVII міжнародна фреїківська конференція з фізики і технології тонких плівок та наносистем “МКФТТПН–XVII”. Збірник тез. – Івано-Франківськ, Україна. – 20-25 травня, 2019. – 332 с.

## АНОТАЦІЯ

**Солодкий М.С. Багатохвильові спектри розсіяння X-променів та електронів у складних кристалічних з'єднаннях.** – На правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук (доктора філософії) за спеціальністю 01.04.07 – фізика твердого тіла. – Чернівецький національний університет імені Юрія Федьковича, Чернівці, 2021.

В дисертації викладено результати теоретичного дослідження багатошарових гетероструктур модифікованою методикою розрахунку багатохвильових X-променевих ренінгерівських дифрактограм. Метод базується на кінематичній теорії дифракції у випадку геометрії Брегга. Гетероструктура  $Al_xIn_{1-x}Sb$  та багатошарова система  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  використовувались як моделі для визначення умов виникнення випадкової компланарної трихвильової або некомпланарної чотирихвильової дифракції. Показано теоретичну чутливість багатохвильової дифракції до деформацій і хімічного складу епітаксціальних шарів. Визначено параметри ґраток для кожного індивідуального шару систем  $Al_xIn_{1-x}Sb$  і  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  та ступінь тетрагонального спотворення ґратки релаксованих або нерелаксованих систем. Розроблений модифікований метод дозволяє швидко і достовірно визначати параметри ґраток, хімічний склад та розподіл деформацій у різних шарах напівпровідникових гетероструктур та багатошарових систем.

На основі даних дифракції зворотно розсіяних електронів (метод Кікучі) запропоновано підхід для визначення розподілу середньоквадратичних деформацій в локальних областях моно- і полікристалів. Підхід базується на аналізі параметрів енергетичного спектру двомірного Фур'є-перетворення дифракційного зображення. Встановлено, що ступінь розмиття дифракційних смуг і їх перетинів на дифракційних зображеннях викликані деформаціями, які кількісно описані через середній просторовий період та площу радіального розподілу енергетичного Фур'є спектру. Показано, що розмиття дифракційних смуг залежить не тільки від характеристик досліджуваних зразків, але й від умов проведення експерименту. Запропоновано модель попередньої обробки дифракційного зображення, яка зменшує вплив інструментальних факторів при визначенні характеристик досліджуваних кристалів. На прикладі декількох зразків ( $Ge:Sb$ ,  $NiCrFe$ , алмази, синтезовані у різних системах) проведено детальний аналіз розподілу деформаційних полів на поверхні кристалів. Високороздільна X-променева дифрактометрія та аналіз форми профілів дифракційних смуг розрахованих за допомогою методу дискретного двомірного Фур'є-перетворення картини Кікучі підтверджують правильність розробленого підходу оцінки деформаційного стану структури кристалів. Продемонстровано, що комплексне використання методу енергетичного Фур'є-спектру на додаток до методу дискретного двовимірного Фур'є-перетворення створює додаткові можливості для визначення впливу технологічних параметрів на структурну однорідність та ступінь досконалості

досліджених кристалів.

**Ключові слова:** багатохвильова дифракція X-променів, метод дифракції зворотно-розсіяних електронів, Фур'є-перетворення штучні алмази, зварні шви сплавів NiCrFe, кристали Ge:Sb, деформації.

## ABSTRACT

**Solodkyi M. S. Multi-beam spectra of X-ray and electron scattering in complex crystalline compounds.** – Manuscript.

The Ph.D. thesis for a scientific degree of the candidate of science (Doctor of Philosophy) on physics and mathematics, field 01.04.07 – solid state physics – Yuriy Fedkovych Chernivtsi National University, Chernivtsi, 2021.

The dissertation presents the results of a theoretical investigation of multi-layered heterostructures with a modified method of X-ray Renninger scans simulation. The method is based on the kinematic theory of X-ray diffraction in Bragg geometry.  $Al_xIn_{1-x}Sb$  heterostructure and  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  multi-layered system were used as models to determine the conditions when coincidental coplanar three-beam and noncoplanar four-beam X-ray diffraction occur. Theoretical sensitivity of multi-beam diffraction to deformations and chemical composition of epitaxial layers is shown. Lattice parameters for each individual layer of the  $Al_xIn_{1-x}Sb$  and  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  systems and the degree of tetragonal lattice distortion of relaxed or non-relaxed systems are determined. The developed modified method allows to determine lattice parameters, chemical composition and distribution of deformations in different layers of semiconductor heterostructures and multi-layered systems quickly and reliably.

The approach for determining the distribution of RMS (root mean square) deformations in local regions of single crystals and polycrystals according to electron backscatter diffraction data (Kikuchi method) is proposed. The approach is based on the analysis of energy spectrum parameters of the diffraction image two-dimensional Fourier transform. It is established that the degree of blurring of the diffraction bands and their intersections in diffraction images is caused by deformations, which are quantitatively described through the average spatial period and the area of the radial distribution of the energy Fourier spectrum. It is shown that the diffraction bands blurring depends not only on the characteristics of studied samples, but also on the conditions of the experiment. A model of pre-processing of the diffraction image, which reduces the influence of instrumental factors in determining the characteristics of the crystals under study, is proposed. A detailed analysis of the distribution of deformation fields on crystal surface was performed on the example of several samples (Ge:Sb, NiCrFe, diamonds, synthesized in different systems). High-resolution X-ray diffractometry and analysis of shape of the diffraction band profiles, which were calculated using the method of discrete two-dimensional Fourier transform of the Kikuchi pattern, confirm the correctness of the developed approach for estimation of deformation state of the crystal structure. It is demonstrated that the complex use of the energy Fourier spectrum method in addition to the discrete two-dimensional Fourier transform method creates additional opportunities for determination of the influence of technological parameters on the structural homogeneity and the degree of perfection of the crystals under study.

**Key words:** multi-beam X-ray diffraction, electron backscatter diffraction, synthetic diamond crystals, welds of NiCrFe alloys, Ge:Sb crystals, deformations.

## АННОТАЦИЯ

**Солодкий Н. С. Многоволновые спектры рассеяния рентгеновских лучей и электронов в сложных кристаллических соединениях.** – На правах рукописи.

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук (доктора философии) по специальности 01.04.07 – физика твердого тела – Черновицкий национальный университет имени Юрия Федьковича, Черновцы, 2021.

В диссертации изложены результаты теоретического исследования многослойных гетероструктур модифицированной методикой расчета многоволновых рентгеновских дифрактограм. Метод основан на кинематической теории дифракции в случае геометрии Брэгга. Гетероструктура  $Al_xIn_{1-x}Sb$  и многослойная система  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  использовались как модели для определения условий возникновения случайной компланарной 3–лучевой или некомпланарной 4–лучевой дифракции. Показано теоретическую чувствительность многоволновой дифракции к деформациям и химическому составу эпитаксиальных слоев. Определены параметры решеток для каждого индивидуального слоя систем  $Al_xIn_{1-x}Sb$  и  $Zn_{1-x}Mn_xSe$  и степень тетрагонального искажения решетки релаксированных или нерелаксированных систем. Разработанный модифицированный метод позволяет быстро и достоверно определять параметры решетки, химический состав и распределение деформаций в различных слоях полупроводниковых гетероструктур и многослойных систем.

На основе данных дифракции обратно рассеянных электронов (метод Кикучи) предложен подход для определения распределения среднеквадратичных деформаций в локальных областях моно- и поликристаллов. Подход базируется на анализе параметров энергетического спектра двумерного Фурье-преобразования дифракционного изображения. Установлено, что степень размытия дифракционных полос и их сечений на дифракционных изображениях определяется деформациями, которые количественно описаны через средний пространственный период и площадь радиального распределения энергетического Фурье-спектра. Показано, что размытие дифракционных полос зависит не только от характеристик исследуемых образцов, но и от условий проведения эксперимента. Предложена модель предварительной обработки дифракционного изображения, которая уменьшает влияние инструментальных факторов при определении характеристик исследуемых кристаллов. На примере нескольких образцов (Ge:Sb, NiCrFe, алмазы синтезированные в различных системах) проведен подробный анализ распределения деформационных полей на поверхности кристаллов. Высокоточная рентгеновская дифрактометрия и анализ формы профилей дифракционных полос, рассчитанных с помощью метода дискретного двумерного Фурье-преобразования картины Кикучи, подтверждают правильность разработанного подхода оценки деформационного состояния структуры кристаллов. Продемонстрировано, что комплексное использование метода энергетического Фурье-спектра в дополнение к методу дискретного двумерного Фурье-преобразования создает дополнительные возможности для определения влияния технологических параметров на структурную однородность и степень совершенства исследованных кристаллов.

**Ключевые слова:** многолучевая дифракция рентгеновских лучей, метод дифракции обратно-рассеянных электронов, искусственные алмазы, сварные швы сплавов NiCrFe, кристаллы Ge:Sb, деформации.