

МЕТОД ПОЛУЧЕНИЯ СВЕРХТОНКИХ РЕНТГЕНОВСКИХ ПУЧКОВ

© 2000 г. А. Г. Турьянский, И. В. Пиршин

Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН
Россия, 117924, Москва, Ленинский просп., 53

Поступила в редакцию 03.03.2000 г.

Показана возможность получения рентгеновских пучков с эффективной шириной сечения $h \approx 100$ нм и угловой расходимостью $\Delta\varphi \approx 2'$. Это достигается облучением рентгеновским пучком с длиной волны ~ 0.1 нм края оптически полированной грани при угле скольжения, близком к критическому углу полного внешнего отражения, и последующим пропусканием преломленного излучения через смежную боковую грань. При условиях, обеспечивающих эффективную величину h , равную 81 и 96 нм, экспериментально наблюдаемые значения $\Delta\varphi$ на образцах GaAs и Si для длин волн 0.154 и 0.139 нм оказываются существенно меньше дифракционного предела, рассчитанного по теории призменных спектрометров. Это позволяет создать рентгеновский зонд, который может быть использован для локального анализа, например послыонного дифракционного исследования тонкопленочных структур.

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время рентгеновские методы дифрактометрии, рефлектометрии и малоуглового рассеяния широко применяются для исследования микро- и наноструктур на поверхности или в объеме различных объектов. При этом часто используют зондирующее излучение с длиной волны $\lambda \sim 1$ Å, из которого формируют жестко коллимированные ленточные пучки с эффективной шириной поперечного сечения $h = 30\text{--}100$ мкм. Очевидно, что при указанных размерах пучка избирательный контроль тонких слоев невозможен. Также затруднено исследование распределения параметров вдоль поверхности образца, поскольку измерения, как правило, проводятся при углах наклона пучка $\theta < \pi/2$ и поэтому размер облучаемой зоны возрастает пропорционально $1/\sin\theta$.

Технически изготовление тонких (например, шириной ~ 100 нм) щелевых отверстий, не представляет существенных затруднений. Однако угловая расходимость $\Delta\varphi$ рентгеновского пучка, прошедшего через такое отверстие, ограничена дифракционным пределом λ/h [1, 2]. Это подтверждается результатами, полученными на рентгеновском волноводе, образованном пленочной структурой Ni–C–Ni [3]. Кроме того, относительный вклад в боковые крылья пучка малоуглового рассеяния на шероховатостях стенок щелевого канала при прочих равных условиях возрастает приблизительно пропорционально h^{-1} , так как интенсивность прошедшего излучения падает, а рассеянного практически не изменяется. Отметим также, что щелевая конструкция с отверстием в поглощающем экране препятствует регистрации на близких расстояниях от образца

излучения, которое отражается или рассеивается под большими углами.

Проблема расходимости пучка возникает и при использовании щелевых диафрагм с оптически гладкими поверхностями внутреннего канала и системы микрокапилляров [4, 5], так как на внутренних поверхностях при углах скольжения, меньших θ_c – критического угла полного внешнего отражения (п.в.о.) материала диафрагмы, происходят зеркальные отражения с коэффициентом отражения ~ 1 . При работе, например, с характеристическими линиями CuK_α (8.05 кэВ) и FeK_α (6.40 кэВ) значения θ_c для большинства неорганических материалов находятся в диапазоне $0.2^\circ\text{--}0.6^\circ$. Поскольку $\Delta\varphi \sim \theta_c$, то при указанных величинах угловой расходимости оказываются невозможными прецизионные структурные измерения, а поперечное сечение вышедшего из канала пучка быстро возрастает.

В данной работе показано, что слабо расходящиеся ленточные пучки с предельно малой шириной поперечного сечения могут быть получены с помощью рефракции на краю оптически полированной грани. При этом существенными являются угол скольжения первичного пучка, его расходимость, а также величины действительной и мнимой частей декремента показателя преломления.

Рассмотрим в рамках геометрической оптики, как параллельный рентгеновский пучок, распространяющийся в среде с показателем преломления $n_1 = 1 - \delta_1 - i\beta_1$, проходит через угол призмы с взаимно перпендикулярными плоскими гранями, изготовленной из материала с показателем преломления $n_2 = 1 - \delta_2 - i\beta_2$ (рис. 1). Здесь δ_1 , δ_2 и $i\beta_1$, $i\beta_2$ – соответственно действительная и мнимая части декремента показателя преломления. Пусть

ось z нормальна первой границе раздела, а ось x параллельна ей и лежит в плоскости падения. Положим для определенности, что излучение является монохроматическим с длиной волны $\lambda \sim 0.1$ нм, а угол падения φ на первую границу раздела близок к $\pi/2$. Для указанных условий можно рассматривать только преломление на первой границе раздела, так как величины коэффициента отражения и относительного изменения угла преломления при пересечении второй границы ничтожно малы. Переходя от углов падения к углам скольжения в соответствии с формулой $\theta = \pi/2 - \varphi$, закон синусов [1, 2] можем преобразовать к виду

$$\frac{1 - \delta_1 - i\beta_1}{1 - \delta_2 - i\beta_2} = \frac{\sqrt{1 - \sin^2 \theta_2}}{\sqrt{1 - \sin^2 \theta_1}}, \quad (1)$$

где θ_1, θ_2 – углы скольжения падающего и преломленного излучения соответственно в среде и материале призмы.

Абсолютная величина декремента показателя преломления $|\delta + i\beta|$ при указанной длине волны для всех твердых тел $< 10^{-4}$, причем $\beta/\delta \ll 1$. Это позволяет в интересующей нас области малых углов скольжения ($\theta_1 \ll \pi/2$) получить следующее выражение для угла скольжения преломленного излучения θ_2 :

$$\theta_2 \cong \sqrt{\theta_1^2 - 2(\delta_2 - \delta_1)}. \quad (2)$$

Полагая, что среда является вакуумом (воздухом), т.е. $n_1 = 1$, получаем

$$\theta_2 \cong \sqrt{\theta_1^2 - 2\delta_2}. \quad (3)$$

Как видно из рис. 1, коэффициент сжатия сечения пучка S_s при переходе через первую границу раздела равен

$$S_s = h_1/h_2 = \theta_1/\theta_2 = \theta_1/\sqrt{\theta_1^2 - 2(\delta_2 - \delta_1)}. \quad (4)$$

Продифференцировав выражение (2) по θ_1 , получим для пучка с угловой расходимостью $\Delta\theta$ следующую зависимость коэффициента углового сжатия от θ_1 (здесь θ_1 – угол скольжения центрального луча):

$$S_a = \Delta\theta_1/\Delta\theta_2 = \frac{\sqrt{\theta_1^2 - 2(\delta_2 - \delta_1)}}{\theta_1} = S_s^{-1}. \quad (5)$$

Если $\theta_1 > \theta_c = (2\delta)^{-1/2}$, то при указанных условиях волновой вектор преломленной волны будет направлен под малым углом к поверхности и амплитуда волны, распространяющейся в глубь образца, уменьшается по закону $\exp[-2\pi\beta z/(\lambda\theta_2)]$. Следовательно, плоскости постоянной амплитуды будут параллельны границе раздела, а угол между плоскостью постоянной фазы и границей раздела равен $\pi/2 - \theta_2$. Линии пересечения указан-

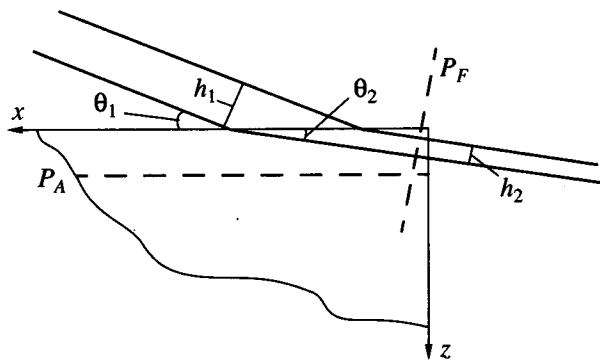


Рис. 1. Геометрия хода лучей при рефракции на краю прямоугольной призмы.

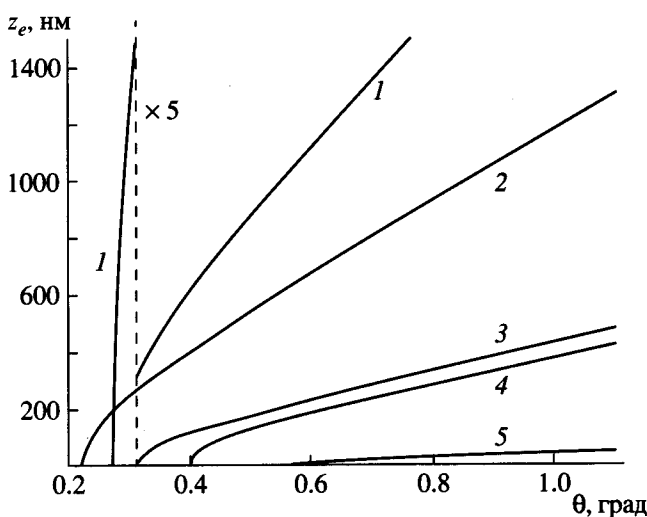


Рис. 2. Зависимости величины z_e в различных преломляющих материалах от угла скольжения θ_1 для излучения $\text{CuK}\alpha$: 1–3 – монокристаллы алмаза, Si и GaAs соответственно; 4, 5 – поликристаллы Ni ($\rho = 8.9 \text{ г/см}^3$) и W ($\rho = 19.35 \text{ г/см}^3$) соответственно.

ных плоскостей с плоскостью падения обозначены на рис. 1 как P_A и P_F .

На рис. 2 показаны зависимости значения глубины z_e , на которой интенсивность преломленного излучения падает в e раз, от угла скольжения θ_1 для монохроматического излучения $\text{CuK}\alpha$ (0.154 нм) и ряда материалов. Параметр z_e фактически является мерой эффективной ширины пучка, выходящего через боковую грань призмы.

Как видно из выражений (3–5), для максимального сжатия рентгеновского пучка необходимо, чтобы, во-первых, осуществлялся переход излучения в оптически менее плотную среду, т.е. $\text{Re}n_1 > \text{Re}n_2$, а во-вторых, угол скольжения θ_1 должен быть близок к θ_c . На практике это может быть реализовано облучением края оптически полированного образца, боковая поверхность которого получена раскалыванием по плоскости

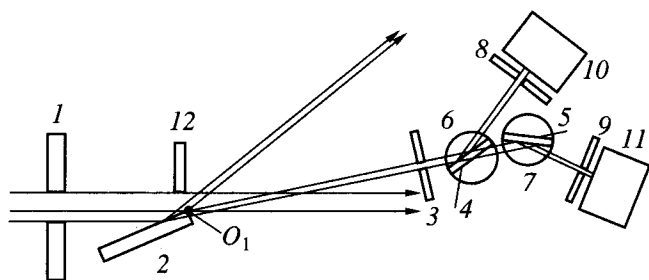


Рис. 3. Экспериментальная схема измерения рефракции на двух характеристических линиях спектра: 1 – коллимирующая щель; 2 – образец; 3 – приемная щель; 4, 5 – монохроматоры; 6, 7 – держатели монохроматоров; 8, 9 – щелевые диафрагмы; 10, 11 – детекторы; 12 – поглощающий экран.

спайности. При этом расходимость первичного пучка должна быть минимальной, так как в соответствии с (5) угловой развор преломленного пучка возрастает. Как паразитный или сопутствующий эффект рефракция в подобных условиях наблюдалась ранее в работах [6, 7].

ИЗМЕРИТЕЛЬНАЯ СХЕМА

Для экспериментальной проверки вышеизложенного мы использовали двухволновой рефлектометр на основе полупрозрачных монохроматоров из пиролютитического графита (рис. 3) [8]. На образец 2 направлялся пучок полихроматического излучения острофокусной рентгеновской трубки с медным анодом. В измерительной плоскости угловой развор пучка, падающего на участок, примыкающий к оси O_1 , составлял 24° . Расстояние от оси O_1 до приемной щели равнялось 225 мм. Монохроматоры 4, 5 были настроены соответственно на характеристические линии спектра CuK_α и CuK_β . Дифрагированное излучение регистрировалось независимыми сцинтилляционными детекторами 10, 11. Приемная щель 3, монохроматоры 4, 5 и детекторы 10, 11 располагались на поворотном кронштейне, ось вращения которого совмещена с осью вращения образца. Это позволяло одновременно измерять за один цикл углового сканирования диаграммы интенсивности для обеих указанных характеристических линий. Для оценки углового разрешения и полноты преломленных пучков распределение интенсивности в плоскости, нормальной к прямому пучку, регистрировалось на фотопленку. В качестве преломляющих элементов (рефракторов) использовались прямоугольные пластины толщиной 350–400 мкм из оптически полированных монокристаллов Si, GaAs и природного алмаза.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Прямые измерения распределения плотности рентгеновского потока по оси z непосредственно за боковой гранью образца, через которую выхо-

дит преломленное излучение, невозможны, поскольку в настоящее время нет одно- или двухкоординатных рентгеновских детекторов с пространственным разрешением ~ 10 нм. Поэтому мы сравнивали расчетную и экспериментальную величины интегральной интенсивности преломленного излучения. Для точного определения плотности рентгеновского потока образец устанавливался таким образом, чтобы ось вращения образца O_1 находилась вблизи боковой грани, через которую осуществляется выход преломленного излучения. Размер образца в измерительной плоскости равнялся 11 мм, а отношение расстояний от ближнего и дальнего краев поверхности до оси O_1 составляло 3 : 100. По ходу прямого пучка, проходящего через зазор между образцом и поглощающим экраном, устанавливалась приемная щель шириной 0.25 мм. Интенсивность прямого излучения I_0 регистрировалась в зависимости от угла поворота образца θ (рис. 4). При угловом шаге сканирования 0.001° ближний и дальний края образца должны смещаться соответственно на 5.6 и 187 нм. Это подтверждается отношением углов наклона линейных участков экспериментальной кривой слева и справа от точки излома. Отклонение от линейной зависимости вблизи нулевого положения образца обусловлено одновременным попаданием в приемную щель прямого и зеркального отраженного излучений.

Измеряя отношение

$$G = |I_0(\theta') - I_0(\theta'')| / l(\theta' - \theta''), \quad (6)$$

где θ' , θ'' – произвольные значения угла скольжения на линейном участке кривой $I_0(\theta)$, l – расстояние от края образца до оси O_1 , находим число квантов на единицу ширины поперечного сечения пучка в зоне преломляющего края образца.

Согласно [9], интенсивность преломленного пучка I_{rr} может быть найдена из выражения

$$I_{rr}(\theta_1) = G[1 - R(\theta_1)]\theta_1\mu^{-1}, \quad (7)$$

где $R(\theta_1)$ – экспериментально измеренная или расчетная величина коэффициента зеркального отражения, μ – линейный коэффициент ослабления излучения.

Измеренные и рассчитанные по формуле (7) величины интенсивности преломленного излучения для образцов Si и GaAs представлены на рис. 5. Принимая во внимание аппаратные ошибки и несовершенство поверхности боковой грани, полученной при раскалывании исходных дисков монокристаллов Si и GaAs, совпадение результатов является вполне удовлетворительным. Поэтому сделанные выше оценки величины эффективного сечения преломленного пучка можно считать подтвержденными.

Угловые параметры преломленного излучения определялись при фиксированных углах сколь-

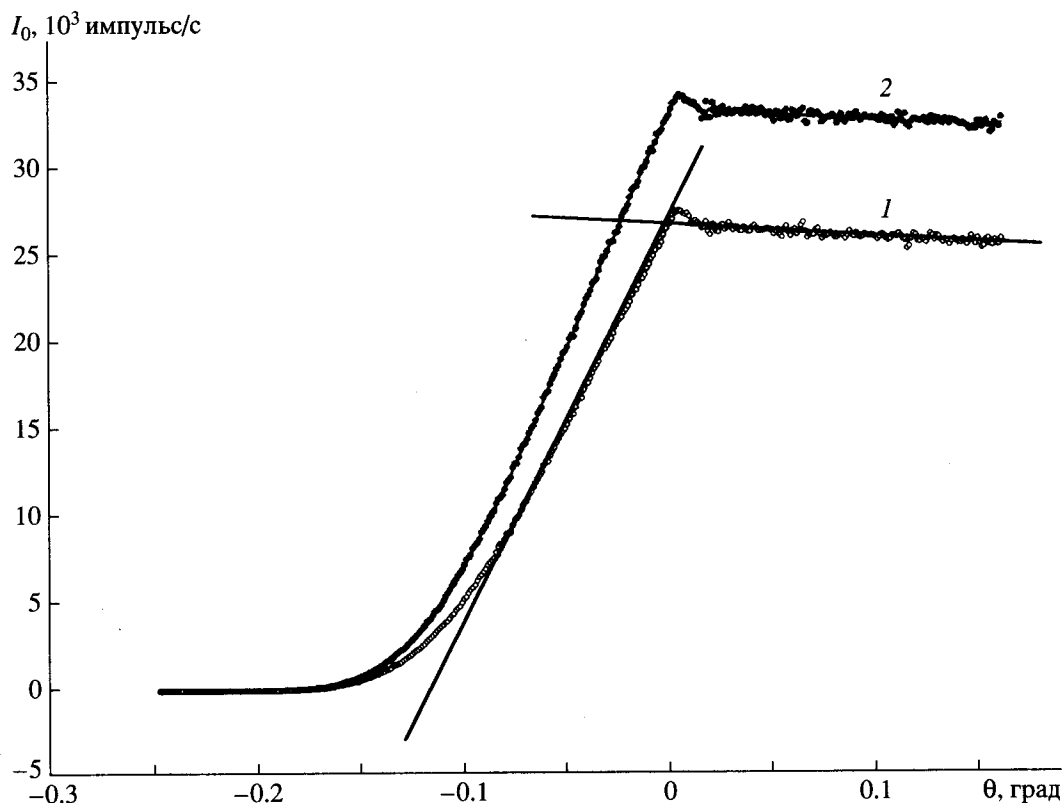


Рис. 4. Интенсивность излучения, проходящего через просвет между образцом и экраном, в зависимости от угла поворота образца θ : 1 – CuK_α ; 2 – CuK_β .

жения θ_1 путем сканирования поворотного кронштейна, на котором расположена детектирующая схема с приемной щелью шириной 30 мкм (см. рис. 3). Результаты измерения диаграмм интенсивности для линии CuK_α от угла рассеяния ψ , отсчитываемого от направления оси прямого пучка, для образца GaAs показаны на рис. 6. При $\theta_1 < \theta_c = 0.309^\circ$ (кривая 1) преломления не происходит, и наблюдаются только пики прямого и зеркально отраженного излучений. В угловом промежутке между прямым и зеркально отраженным пучками выходящее через боковую грань излучение распределено по углу без выраженного максимума. Это согласуется с известным описанием траектории потока энергии при полном внешнем (в оптике – полном внутреннем) отражении [2]. При относительно малом (0.02°) превышении критического угла дополнительно появляется пик преломленного излучения (кривая 2), который, как и следует из выражения (5), сужается при дальнейшем увеличении угла θ_1 (кривая 3).

Для удобства оценки угловой ширины на рис. 7 представлена серия рефрактограмм GaAs в линейном масштабе. Обратим внимание на следующий важный результат. Измеренная полуширина $\Delta\varphi_e$ на полувисоте рефракционных пиков при углах скольжения θ_1 , равных 0.372° ($1.2\theta_c$) и 0.403°

($1.3\theta_c$) составляет соответственно 0.041° и 0.034° . При указанных углах θ_1 эффективная ширина преломленного пучка на выходе из боковой грани, определяемая как величина, численно равная z_e , т.е. по уровню спада интенсивности в e раз, должна составлять 93.6 и 117 нм. Тогда, согласно теории призмных спектрометров [1, 10, 11], в которой, по существу, рассматривается вариант дифракции по Фраунгоферу, расчетная угловая полуширина $\Delta\varphi_c$ преломленного пучка линии CuK_α должна быть соответственно 0.094° (1.65 мрад) и 0.075° (1.31 мрад).

Экспериментально измеренные величины $\Delta\varphi_e$ больше истинных вследствие размытия аппаратной функцией щели, расходимости первичного пучка и его углового уширения при преломлении ($C_a < 1$, см. (4)). Полагая, что все указанные зависимости описываются функцией Гаусса, получаем следующие оценки величины истинного углового уширения: $\Delta\varphi_{e0} = 0.038^\circ$ при $\theta_1 = 1.2\theta_c$ и $\Delta\varphi_{e0} = 0.031^\circ$ при $\theta_1 = 1.3\theta_c$. Таким образом, полученные величины $\Delta\varphi_{e0}$ значительно ниже расчетных, причем наблюдаемая разница заведомо превосходит возможную погрешность эксперимента.

В соответствии с теорией призмных спектрометров спектральное разрешение $A = \lambda/\Delta\lambda$ связано с дифракционным пределом. Для случая,

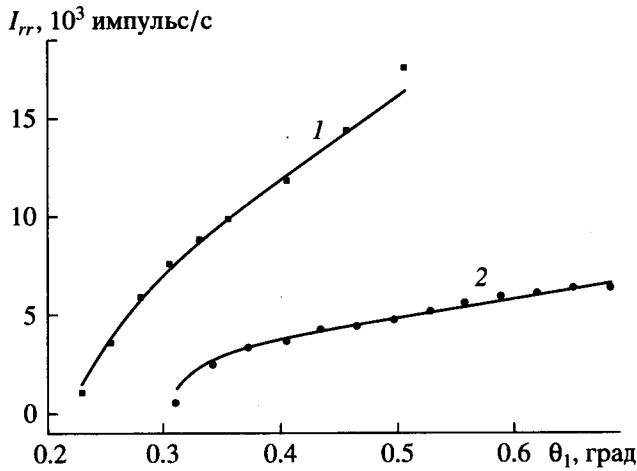


Рис. 5. Расчетная (сплошная линия) и экспериментальная (точки) зависимости интенсивности преломленного излучения от угла скольжения θ_1 для образцов: 1 – Si, 2 – GaAs.

когда преломленный пучок параллелен основанию призмы, имеем

$$\lambda/\Delta\lambda \cong bdn/d\lambda, \quad (8)$$

где b – величина основания полностью освещаемой призмы. Принимая во внимание, что в исследуемом нами случае преломление происходит только на одной границе, и выражая b через z_c , получаем

$$\lambda/\Delta\lambda \cong z_c dn/(2\theta_c d\lambda). \quad (9)$$

Выбирая пару линий с длиной волны 0.154 и 0.139 нм и подставляя соответствующие параметры в формулу (9), получаем $A \approx 3$ для GaAs и ~ 3.5 для Si. Это означает, что выбранные пары линий формально не должны разрешаться. На рис. 8 показаны экспериментальные рефрактограммы образца GaAs на линиях CuK_α и CuK_β при углах скольжения прямого пучка $1.1\theta_c$ и $1.3\theta_c$. Интенсивность сигнала линии CuK_β перемасштабирована умножением на отношение интенсивностей в максимумах. Как видно из сравнения, дисперсионные свойства используемого образца обеспечивают пространственное разделение характеристических линий CuK_α и CuK_β . Это подтверждает сделанное ранее заключение о том, что реальная угловая расходимость преломленного пучка существенно ниже формально оцененной по дифракционному пределу.

Для более точной оценки угловых параметров преломленного излучения целесообразно увеличить расстояние от образца до детектирующего устройства и использовать двухкоординатный приемник излучения. На рис. 9 показаны двумерные изображения распределения интенсивности рентгеновского потока в плоскости, нормальной к прямому пучку, на расстоянии 570 мм от оси O_1 при рефракции полихроматического пучка на краях пластинок Si, алмаза и GaAs. Изображения считаны цифровой видеокамерой с фотопленки. Крайние полосы являются следами пересечения прямым (D) и зеркально отраженным (RI) пучками плоскости изображения. Преломленное излучение (Rr) ха-

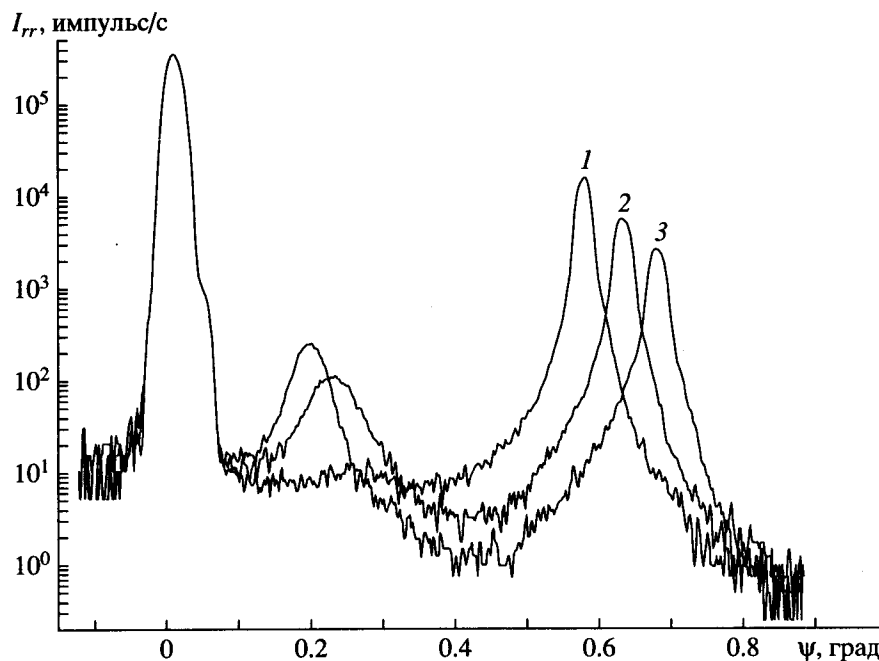


Рис. 6. Угловые диаграммы интенсивности линии CuK_α при рефракции на краю пластины GaAs для различных углов скольжения θ_1 : 1 – 0.285° ($\theta_1 > \theta_c$ (CuK_β), $\theta_1 < \theta_c$ (CuK_α)); 2 – 0.324° ($\theta_1 > \theta_c$ (CuK_α) $> \theta_c$ (CuK_β)); 3 – 0.342° .

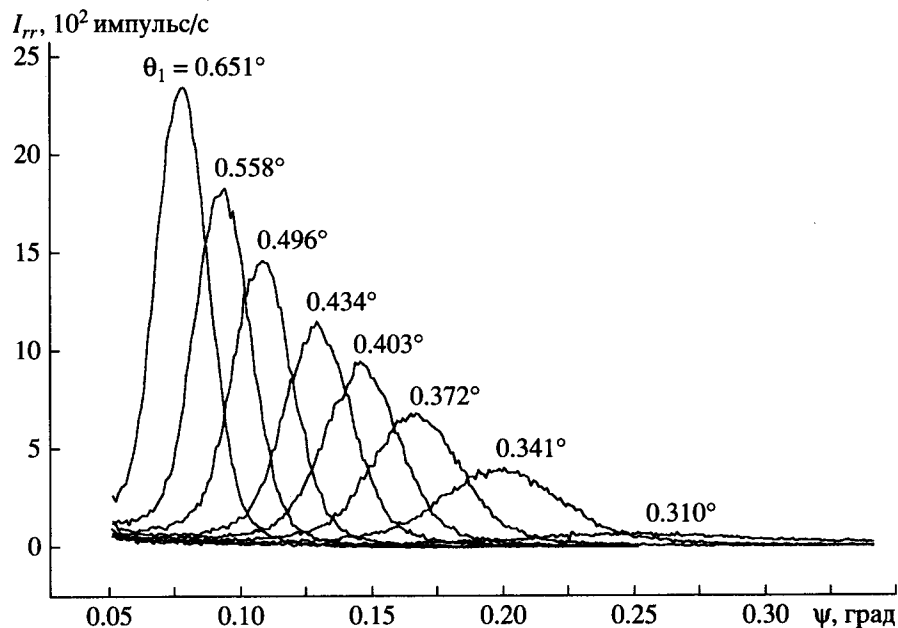


Рис. 7. Рефрактограммы пластины GaAs на линии CuK_{α} при различных углах скольжения первичного пучка.

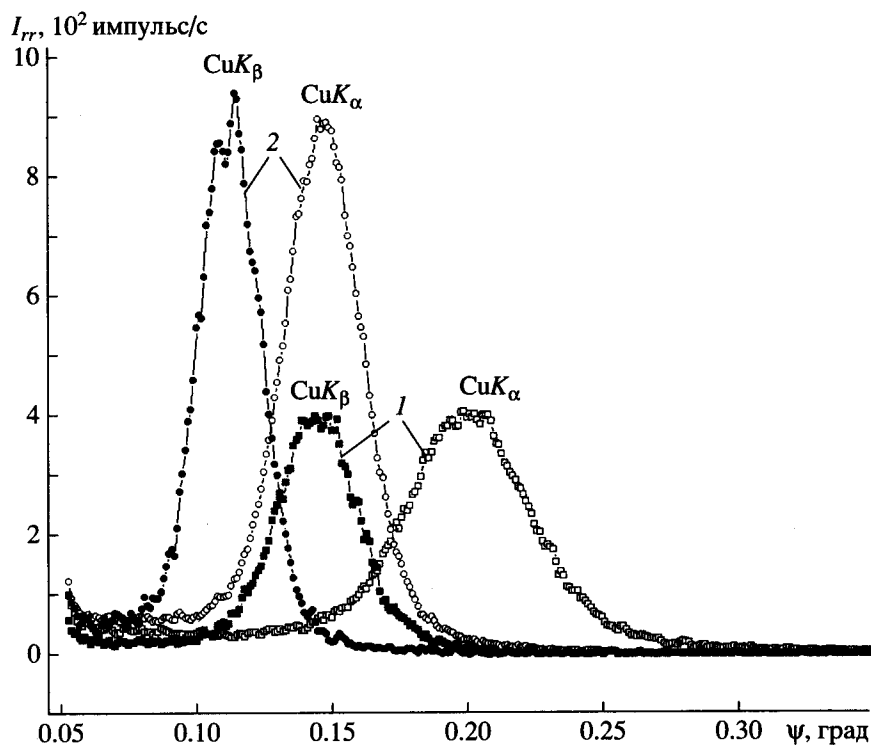


Рис. 8. Угловые диаграммы интенсивности линий CuK_{α} и CuK_{β} при рефракции на краю пластины GaAs для значений угла скольжения: $\theta_1 = 1.1\theta_c$ (1); $\theta_1 = 1.3\theta_c$ (2).

рактических линий образует пару близко расположенных полос вблизи следа прямого пучка. Величины z_e для линии CuK_{α} и соответственно эффективные ширины пучков $h = z_e$ у боковой

границы рефракторов из Si и GaAs равны 81 и 96 нм, а из алмаза – 1.8 мкм.

Наблюдаемое положение пиков преломленного излучения удовлетворительно совпадает с рас-

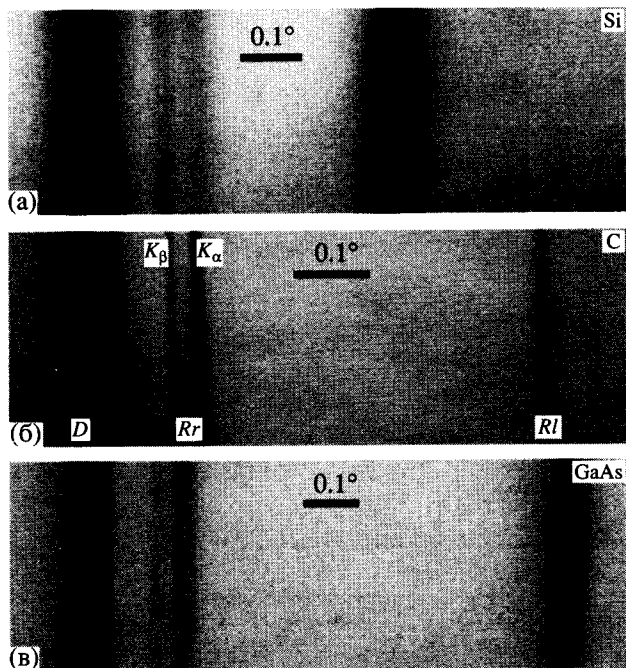


Рис. 9. Изображения прямого D , преломленных Rr и зеркально отраженного Rl пучков в плоскости yz , перпендикулярной прямому пучку, на расстоянии 570 мм от оси O_1 : а – монокристалл Si, $\theta_1 = 0.23^\circ$; б – алмаз, $\theta_1 = 0.327^\circ$; в – монокристалл GaAs, $\theta_1 = 0.374^\circ$.

считанным по табличным данным [12–14]. Угловые ширины преломленных пучков линий CuK_α и CuK_β с эффективным сечением ~ 100 нм значительно меньше дифракционного предела $\Delta\varphi$, рассчитываемого по теории оптических спектрометров [1, 10, 11], что и обеспечивает разделение характеристических линий. Это подтверждают полученные выше данные измерения рефрактограмм при сканировании узкой щелью. Подробный анализ всех возможных причин, которые приводят к такому результату, выходит за рамки данной работы. Укажем только, что в отличие от дифракции Фраунгофера в рассматриваемом случае распределение интенсивности I и амплитуды электрического вектора E по фронту преломленной волны не совпадают. В направлении оси z в материале образца наблюдается спад $|E|$ по закону $\exp(-2\pi\beta_2 z/\lambda\theta_2)$, а $I = |E|^2$ по закону $\exp(-4\pi\beta_2 z/\lambda\theta_2)$. Поскольку угловое распределение интенсивности в дальней зоне зависит от более медленно изменяющегося распределения $E(z)$, то угловая ширина пучка должна быть значительно меньше дифракционного предела, оцениваемого как $\Delta\varphi = \lambda/h$ при $h = z_e$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Одной из наиболее интересных областей применения предложенного метода является послыонное зондирование через боковую грань тонкопленочных структур.

Структурные исследования монокристаллических пленок могут осуществляться с пропусканием части прямого излучения над поверхностью рефрактора, так как при длине волны 1.5–2 Å угловое отклонение преломленного пучка от прямого может достигать 0.2° – 0.4° . Это обычно существенно больше дифракционной полуширины структурных рефлексов. Для анализа состава пленок по спектру рентгеновской флуоресценции необходимо подавление прямого излучения с помощью поглощающего экрана, расположенного вблизи выводной грани рефрактора. Важным достоинством рефракционного метода является возможность управления сечением и угловой расходимостью зондирующего пучка.

Как видно из полученных нами результатов, ленточные пучки сечением 300–500 мкм² с эффективной толщиной ~ 0.1 мкм и интенсивностью $>10^4$ квант/с на основной характеристической линии спектра могут быть получены при использовании обычных рентгеновских трубок со стационарным анодом. Для получения игольчатых пучков необходимы синхротронные источники излучения.

Выражаем признательность И.П. Казакову и Р.А. Хмельницкому за предоставленные образцы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ландсберг Г.С. Оптика. М.: Наука, 1976.
2. Калитеевский Н.И. Волновая оптика. М.: Наука, 1971.
3. Lagomarsino S., Jark W., Fonzo S.Di. et al. // Journ. Appl. Phys. 1996. V. 49. № 8. Pt. 1. P. 4471.
4. Блохин М.А. Физика рентгеновских лучей. М.: ГИТТЛ, 1957.
5. Gao N., Ponomarev I.Yu., Xiao Q.F. et al. // Appl. Phys. Letters. 1997. V. 71. № 23. P. 3441.
6. Nikulin A.Yu., Davis J.R. // Opt. Commun. 1998. V. 155. № 4–6. P. 231.
7. Ioneda I. // Phys. Rev. 1963. V. 131. P. 2010.
8. Турьянский А.Г., Виноградов А.В., Пиршин И.В. // ПТЭ. 1999. № 1. С. 105.
9. Турьянский А.Г., Пиршин И.В. // ПТЭ. 1999. № 6. С. 104.
10. Зайдель А.Н., Островская Г.В., Островский Ю.И. Техника и практика спектроскопии. М.: Наука, 1976.
11. Тарасов К.И., Блох А.А., Голяндин Н.С., Коссова Н.Ф. Проектирование спектральной аппаратуры. Л.: Машиностроение, 1980.
12. Блохин М.А., Швейцер И.Г. Рентгеноспектральный справочник. М.: Наука, 1982.
13. Henke B.L., Gullikson E.M., Davis J.C. X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $E = 50$ –30000 eV, $Z = 1$ –92. Atomic Data and Nuclear Data Tables. July 1993. V. 54. (№ 2). P. 181–342.
14. Физические величины. Справочник / Под ред. И.С. Григорьева и Е.З. Мейлихова. М.: Энергоатомиздат, 1991.