
**ОБЩАЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ
ТЕХНИКА**

УДК 548.734.2 : 535.3

РЕНТГЕНОВСКИЙ РЕФРАКТОМЕТР

© 2001 г. А. Г. Турьянский, И. В. Пиршин

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

Поступила в редакцию 18.08.2000 г.

Предложена новая схема рентгеновского рефрактометра для исследования угловых и спектральных характеристик преломленного излучения в жестком рентгеновском диапазоне. Рефрактометр содержит два гониометра, установленных по ходу прямого рентгеновского пучка, два кристалла-анализатора и три детектора излучения. Максимальное расстояние между фокусом источника излучения и приемной щелью второго гониометра равно 1.4 м. Впервые получены рефрактограммы тонкопленочных образцов, включая напряженную структуру C/Si, и дисперсионный спектр рентгеновской трубки с медным анодом. Описана новая методика рефрактометрии путем качания образца при фиксированном положении детектирующего устройства. Приведены результаты измерения рефрактограмм качания для образцов плавленного кварца и монокристалла ZnSe.

В первых экспериментах по рефракции рентгеновских лучей [1, 2] облучение преломляющей призмы проводилось полихроматическим рентгеновским пучком. При этом показатель преломления n определялся по угловому положению пиков характеристических линий в преломленном пучке. Распределение интенсивности за призмой регистрировалось на фотопленку, а прямой пучок выбирался в качестве углового репера. Однозначность угловых измерений при указанных условиях обусловлена тем, что спектральная плотность характеристического излучения рентгеновских трубок при длине волны $\lambda \sim 0.1$ нм более чем на три порядка превосходит аналогичный параметр тормозного излучения. Однако по этой же причине при фоторегистрации невозможно исследование преломления тормозной части спектра. Дэвисом и Слэком была впервые предложена двухкристальная схема измерения углов преломления [3, 4]: исследуемый образец вводился в монохроматический пучок между первым и вторым кристаллами, и по разнице угловых положений дифракционного пика до и после введения образца определялся угол преломления. О каких-либо принципиальных изменениях рефрактометрических схем [1–4] вплоть до недавнего времени не сообщалось. В [5] нами была показана возможность измерения угловых параметров и интенсивности преломленного излучения с помощью двухволнового рефлектметра [6, 7]. При этом образец облучался полихроматическим спектром, из которого с помощью расщепителя пучка на базе полупрозрачных монохроматоров одновременно выделялись две характеристические линии. Таким образом, во всех известных рефрактометрических схемах измерения характеристик преломленного излучения проводились либо

в полихроматическом спектре, либо на одной или двух спектральных линиях.

В настоящей работе предложена новая измерительная схема, которая позволяет расширить функциональные возможности рефрактометра и реализовать оба указанных варианта измерений без какой-либо дополнительной настройки или переустройства рентгенооптической системы.

На рис. 1 показана рентгенооптическая схема рефрактометра в его измерительной плоскости. Источником излучения является острофокусная рентгеновская трубка 1 с медным анодом (видимый размер фокуса трубки в измерительной плоскости 40 мкм, в перпендикулярном направлении 8 мм). По ходу рентгеновского пучка установлены два рентгеновских гониометра. Расстояния от фокуса рентгеновской трубки до главных осей O_1 и O_2 гониометров 5 и 17 равны соответственно 330 и 1161 мм, а от осей O_1 и O_2 до приемных щелей 10 и 15 соответственно 225 и 192 мм. Расстояние между осями O_1 и O_2 может изменяться путем перемещения гониометра 17 по направляющим в диапазоне 1050–1250 мм. На поворотном кронштейне первого по ходу пучка гониометра 5 за приемной щелью 10 размещен расщепитель пучка с двумя полупрозрачными монохроматорами 8, 9 из пиролитического графита. Выделяемые монохроматорами из анализируемого пучка характеристические линии CuK_α и CuK_β регистрируются детекторами 12, 14. Это позволяет за один цикл углового сканирования получать данные в двух участках спектра. Детектор 16, расположенный на поворотном кронштейне гониометра 17, обеспечивает эффективность регистрации $\geq 90\%$ в энергетической полосе 30 кэВ и используется для регистрации полихроматического спектра. Для

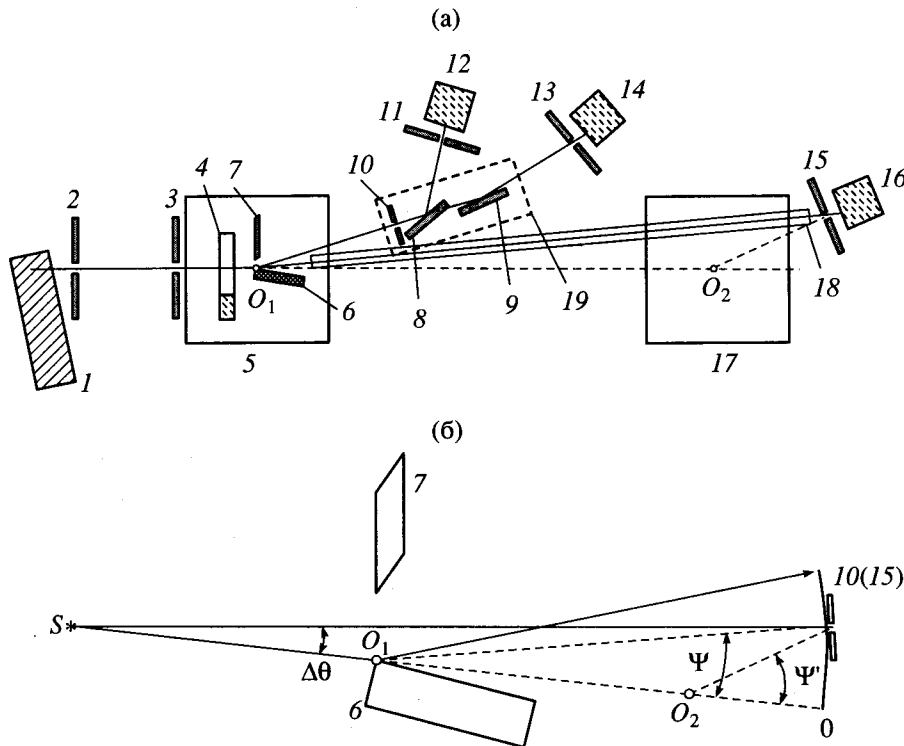


Рис. 1. а – измерительная схема рентгеновского рефрактометра. 1 – рентгеновская трубка; 2, 3 – коллимационные щели; 4 – подвижная горизонтальная щель; 5, 17 – гониометры; 6 – образец; 7 – поглощающий экран; 8, 9 – полупрозрачные монохроматоры; 10, 11, 13, 15 – приемные щели; 12, 14, 16 – детекторы излучения; 18 – откачиваемый коллиimator; 19 – кожух расщепителя пучка; б – геометрия хода излучения при рефракции на переднем крае образца.

этого поворотный кронштейн гониометра 5 отворачивается от оси прямого пучка. Для регистрации слабых сигналов в мягкой части спектра между образцом и приемной щелью 15 устанавливается откачаный коллиimator 18 с торцевыми окнами из майлара. Конструктивные параметры гониометров идентичны, что позволяет переносить расщепитель 19 и держатель образца на второй гониометр.

При использовании приемной щели шириной 30 мкм схема обеспечивает регистрацию преломленного излучения с угловым разрешением 0.0076° и 0.0017° соответственно на первом и втором гониометрах. Типичная угловая расходимость зондирующего пучка, падающего на преломляющую грань образца, составляет $20''$ – $25''$.

Как показано в [5, 8], для проведения рефрактометрических измерений может быть использована геометрия съемки, обеспечивающая последовательное пропускание рентгеновского пучка через боковой скос и оптически полированную поверхность образца или в обратной последовательности. При этом для проведения корректных угловых измерений с главной осью вращения гониометра 5 должен быть совмещен либо передний (по ходу рентгеновского пучка), либо задний край полиро-

ванной поверхности образца – в этом случае исключается перемещение преломляющего края в процессе поворота образца. В некоторых случаях, как будет показано ниже, при работе с образцами малых размеров целесообразно совмещение главной оси с центром образца. Обозначим варианты расположения образца относительно главной оси соответственно *F* (front), *B* (back) и *C* (center). Текущие углы поворота образца ω отсчитываются против часовой стрелки в плоскости падения зондирующего пучка, совпадающей с измерительной плоскостью. При $\omega = 0$ луч, выходящий из центра фокусного пятна, касателен к преломляющей поверхности. В соответствии с принятыми ранее обозначениями фиксированные углы скольжения рентгеновского пучка относительно границы раздела обозначаются θ_1 и независимо от ориентации образца отсчитываются в положительном направлении.

При установке образца в позиции *F* или *B* и последующем угловом сканировании приемной щели 10 совместно с элементами 11–14 могут непосредственно измеряться углы отклонения Ψ между направлениями первичного и преломленного пучков (рис. 1б). Для этого в качестве углового нуля приемного устройства должна быть выбрана точка пересечения линии, проходящей через центр

фокусного пятна и ребро образца, с кругом вращения щели 10.

При использовании второго гониометра необходим пересчет углов поворота Ψ' приемной щели 15 вокруг оси O_2 в углы отклонения Ψ , отсчитываемые при повороте вокруг оси O_1 . Из геометрии хода лучей, показанной на рис. 1, получаем

$$\Psi = \arctg[R_2 \sin \Psi' / (L_0 + R_2 \cos \Psi')], \quad (1)$$

где R_2 – расстояние от оси O_2 до приемной щели 15, L_0 – расстояние между главными осями O_1 и O_2 гониометров 5 и 17. При $\lambda \sim 0.1$ нм типичные значения измеряемых углов удовлетворяют условию $\Psi < \Psi' < 1^\circ$. Разлагая (1) в ряд по Ψ' вблизи точки $\Psi' = 0$, получаем

$$\Psi \approx R_2 \Psi' / (L_0 + R_2). \quad (2)$$

Оценим влияние отклонения приемной щели 15 от плоскости, нормальной к радиусу-вектору, проведенному от следа пересечения оси O_1 с измерительной плоскостью, к центру приемной щели 15. Для простоты будем полагать, что падающий на щель пучок параллелен, а материал щели абсолютно поглощающий. На практике для формирования щели обычно используют створки, имеющие форму клина с углом 84° – 85° . Угол между гранями створок, образующих щелевой зазор, составляет 8° – 10° . Эффективная ширина зазора щели 15 при ее повороте на угол Ψ' равна

$$h_e = h \cos(\Psi' - \Psi), \quad (3)$$

где h – расстояние между створками щели, а Ψ – пересчитанный по формуле (1) угол отклонения.

Подставляя в (2) и (3) максимальное (0.5°) и типичное (0.2°) значения Ψ при $\lambda \sim 0.1$ нм, получаем соответственно относительные изменения h_e , равные 0.1% и 0.01%. Они значительно меньше типичной статистической ошибки счета ($\geq 1\%$) при регистрации преломленного излучения и поэтому на практике ею можно пренебречь.

При использовании монохроматоров из пирографита угловое разрешение гониометра 5 определяется размером приемной щели 10. Очевидно, что оно может быть существенно увеличено путем замены пирографита совершенным кристаллом, например Si или Ge. При этом предложенный нами вариант решетчатого монохроматора [9] сохраняет возможность регистрации одновременно двух спектральных линий, однако это приведет к снижению светосилы устройства, а также к усложнению юстировочного устройства, которое необходимо размещать на поворотном кронштейне гониометра. Поэтому такая замена целесообразна только при исследовании спектров с тонкой структурой в условиях, когда дифракционным уширением преломленного пучка можно пренебречь.

РЕЗУЛЬТАТЫ КОНТРОЛЬНЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

Исходной процедурой рефрактометрических измерений является определение нулевого положения образца и детектирующего устройства. Если зазор между поглощающим экраном 7 и образцом 6 мал по сравнению с эффективной шириной нормального сечения пучка, то распределение интенсивности по сечению зазора можно считать равномерным. Тогда центр тяжести прямого пучка, проходящего через зазор шириной d , смещен относительно луча, падающего на ребро образца, на величину

$$\Delta\Theta = d(L_1 + R_1) / (2L_1 R_1), \quad (4)$$

где L_1 – расстояние от фокуса трубки до оси O_1 ; R_1 – расстояние от оси O_1 до приемной щели 10.

Величина d может быть измерена по углу полного перекрытия прямого пучка образцом с известными размерами отражающей поверхности. Остальные параметры, входящие в (4), обычно известны с точностью ≤ 1 мм. Например, если ширина зазора равна видимому размеру фокуса (≈ 40 мкм), то для указанных выше геометрических параметров схемы $\Delta\Theta = 0.0086^\circ$.

На рис. 2 представлены две серии рефрактограмм оптически полированной пластины плавного кварца (SiO_2) на линии CuK_α , измеренных соответственно при падении прямого пучка на преломляющую грань изнутри (геометрия F) и снаружи (геометрия B). Данные получены путем сканирования поворотного кронштейна гониометра 5 с приемной щелью 10 для ряда фиксированных углов скольжения θ_1 зондирующего пучка относительно преломляющей поверхности. Угловое положение рефракционных пиков изменяется в строгом соответствии с законом синусов. Интегральная интенсивность под пиком преломленного пучка связана с величиной мнимой части декремента n . Это позволяет однозначно определить рентгенооптические константы материала в поверхностном слое образца [5].

В правой части рис. 2б показаны пики зеркального отражения, максимумы которых на угловой диаграмме должны находиться при угле $\Psi = 2\theta_1$ в геометрии C . В геометрии B указанное равенство выполняется только для образцов, видимый размер которых под углом θ_1 много меньше сечения прямого пучка. Пики зеркального отражения в геометрии F обычно не наблюдаются, так как отраженный пучок направлен внутрь образца и, как правило, почти полностью поглощается его материалом.

На рис. 3 в геометрии F показаны угловые профили преломленных пучков для полированной пластины монокристалла ZnSe , полученные на линиях CuK_α (кривая 1) и CuK_β (кривая 2). Угловые положения пиков преломленного излучения с учетом

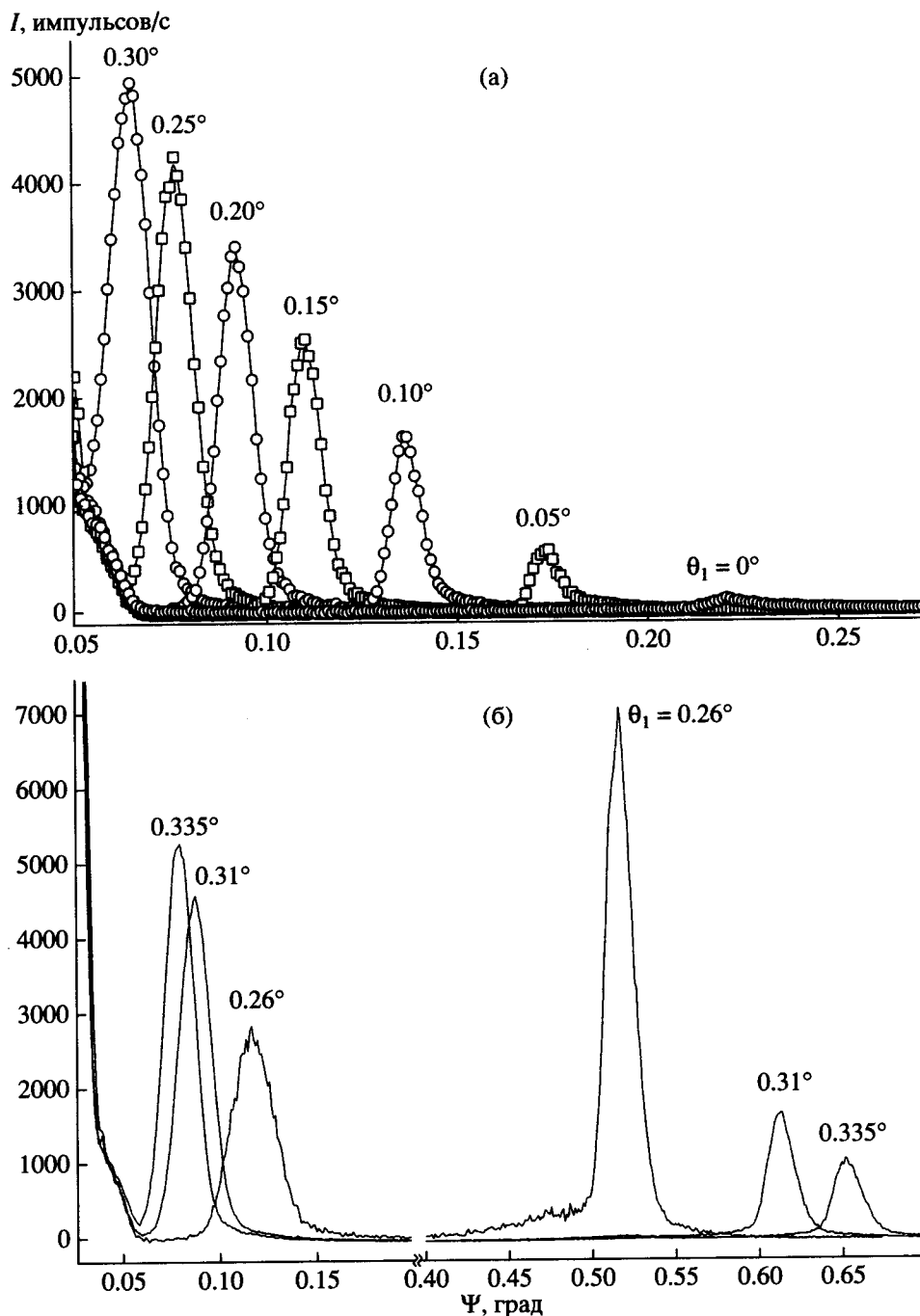


Рис. 2. Серия рефрактограмм плавного кварца (SiO_2) на линии CuK_α при различных углах скольжения первичного пучка θ_1 в геометрии F (падение изнутри) (а) и в геометрии B (падение снаружи) (б).

поправки на угловое смещение прямого пучка соответствуют расчетным позициям, полученным из закона синусов при использовании табличных значений декремента показателя преломления [10] и плотности [11]. Таким образом, уточнение рентгенооптических параметров материала может проводиться как путем сравнения данных, получен-

ных при различных углах скольжения θ_1 , так и при фиксированном θ_1 на различных длинах волн.

Если вблизи поверхности образца имеются слои с различными n , то для выбранной спектральной линии следует ожидать расщепления угловой диаграммы преломленного излучения. На рис. 4 пред-

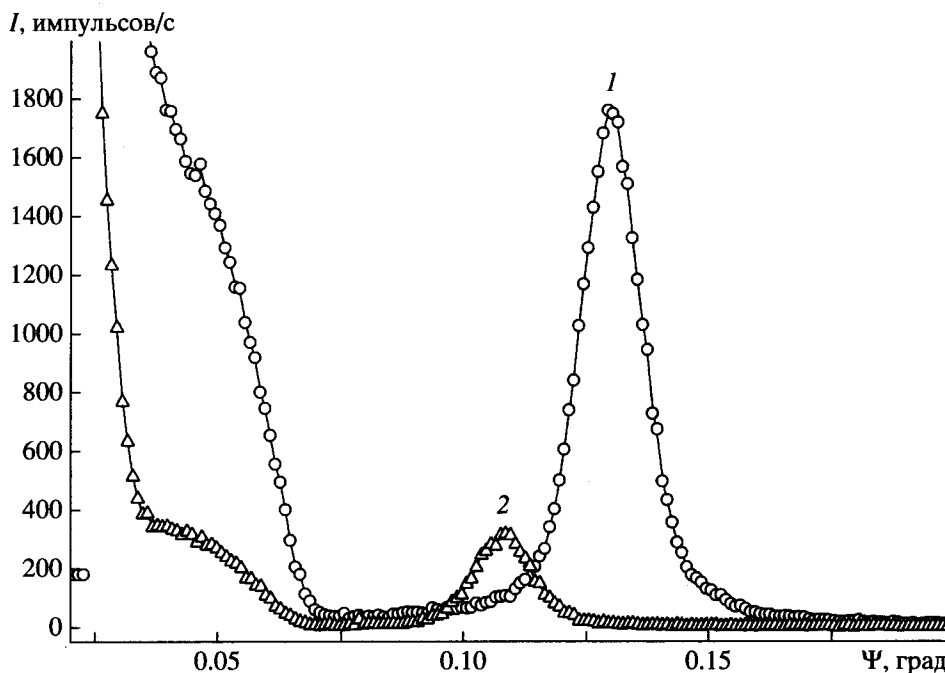


Рис. 3. Угловые профили преломленных пучков для полированной пластины монокристалла ZnSe, полученные в геометрии F на линиях CuK_α (кривая 1) и CuK_β (кривая 2) при $\theta_1 = 0.31^\circ$.

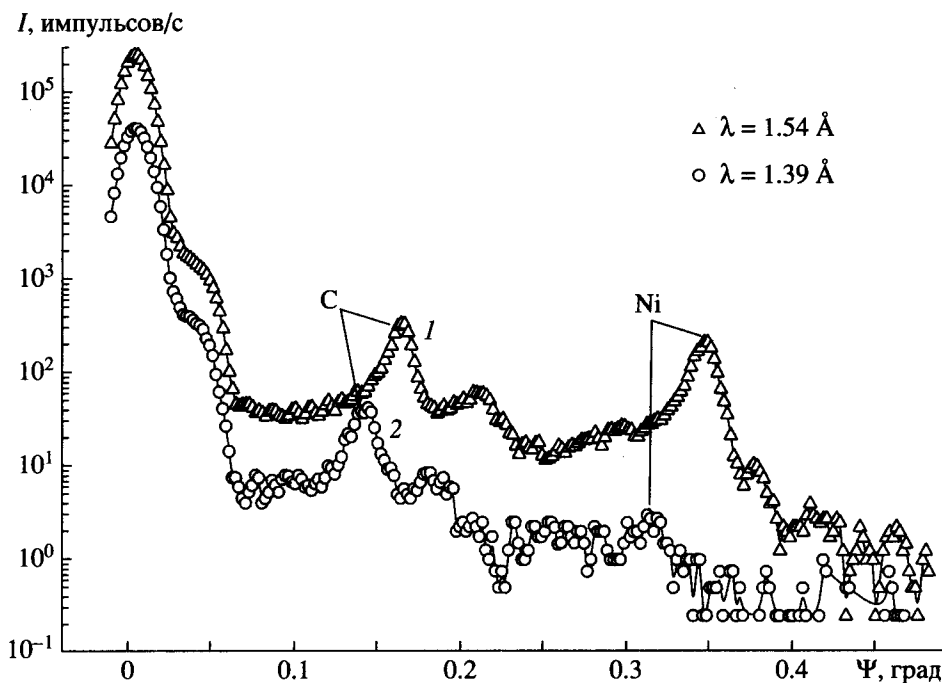


Рис. 4. Рефрактограмма бислоя C/Ni (36/110 нм) на подложке Si при $\theta_1 = 0.053^\circ$: 1 – CuK_α , 2 – CuK_β .

ставлены рефрактограммы образца Si, на поверхность которого методом термического испарения последовательно нанесены слои Ni (110 нм) и C (36 нм). Рефрактограмма на линии CuK_α (кривая 1) имеет два отчетливых максимума, обуслов-

ленных преломлением в слоях C и Ni. Величина пика Ni на линии CuK_β (кривая 2) много меньше, чем на линии CuK_α . Это обусловлено K -скачком фотопоглощения, в результате которого массовый коэффициент ослабления в Ni возрастает в 6 раз.

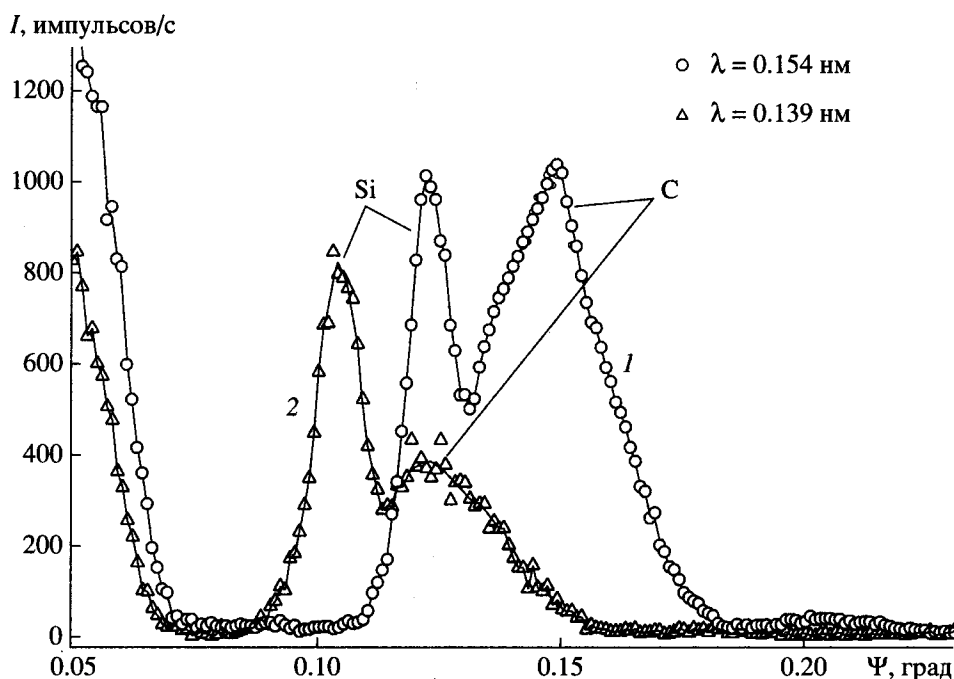


Рис. 5. Рефрактограмма напряженной структуры из алмазоподобной пленки С (56 нм) на подложке Si при $\theta_1 = 0.14^\circ$: 1 – $\text{CuK}\alpha$; 2 – $\text{CuK}\beta$.

Преломленное излучение от подложки при угле скольжения $\theta_1 = 0.053^\circ$ не может наблюдаться, так как при падении изнутри на границе Si/Ni происходит полное внутреннее отражение. Модуляция интенсивности между пиками рефракции и на их крыльях обусловлена интерференционными эффектами в пленке С. Из углового положения пиков рефракции следует, что плотности пленок С и Ni равны соответственно 2.2 и 8.9 г/см³.

Особенностью рефрактометрических измерений является сравнительно малый размер эффективной преломляющей поверхности в плоскости падения пучка, характеризующийся расстоянием l_e , на котором амплитуда падающей на границу раздела волны ослабляется в e раз. Например, для образца ZnSe на линии $\text{CuK}\alpha$ расстояние $l_e = 54$ мкм. Это на 2–3 порядка меньше типичных размеров образцов, используемых в рентгеновской рефрактометрии. Поэтому для измерения могут быть пригодны напряженные пленочные структуры, имеющие радиус кривизны ≥ 10 м, поскольку при смещении вдоль поверхности на указанную величину l_e изменением угла наклона поверхности по отношению к падающему пучку можно пренебречь.

На рис. 5 приведена рефрактограмма образца монокристаллической пластины Si толщиной 0.35 мм, на которой методом импульсного плазменного испарения выращена пленка С толщиной 56 нм. При угле скольжения $\theta_1 = 0.14^\circ$ наблюдается отчетливое разделение пиков от подложки

и пленки. Расчет плотности пленки по угловому положению пика рефракции дает значение 3.05 г/см³. Это указывает на то, что для ближнего порядка в пленке С характерна алмазоподобная структура.

Допустим, что при любом угловом положении образца в заданном интервале углов качания ω обеспечивается, во-первых, попадание прямого пучка на противоположные края поверхности образца и, во-вторых, прохождение преломленного излучения через зазор между поверхностью образца и поглощающим экраном 7 для заданной длины волны из используемого диапазона. Тогда при фиксированном угловом положении Ψ_0 приемной щели 10 за один цикл углового сканирования образца отклонение преломленного пучка на угол Ψ_0 должно наблюдаться дважды: при перемещении из области отрицательных углов ω в область положительных в приемную щель сначала будет попадать излучение, проходящее через переднюю боковую грань к преломляющей поверхности у ее переднего края, а затем падающее снаружи на другой край поверхности и выходящее через противоположную боковую грань. Очевидно, что указанные условия могут быть обеспечены для образцов малого размера при совмещении центра образца с осью O_1 (геометрии С).

На рис. 6 показаны рефрактограммы качания $I(\omega)$ образцов ZnSe и плавленого кварца, подтверждающие указанное заключение. Каждый из образцов создает два отчетливых пика при отрицательном и положительном значениях угла ω : f_1 и

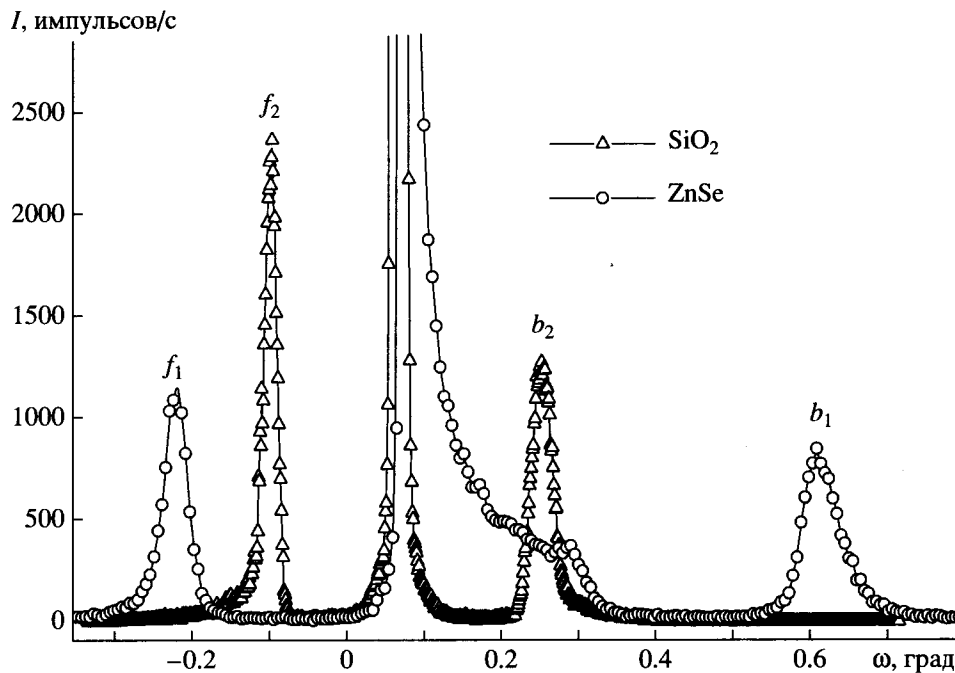


Рис. 6. Рефрактограммы качания $I(\omega)$ при фиксированном угле отклонения Ψ_0 для образцов ZnSe ($\Psi_0 = 0.16^\circ$) и стекла К8 ($\Psi_0 = 0.135^\circ$) на линии $\text{CuK}\alpha$; f_1, f_2 и b_1, b_2 — пики рефракции от ZnSe и плавяного кварца соответственно при прохождении пучка через передний и задний края образцов.

b_1 для ZnSe, f_2 и b_2 для SiO_2 . Интенсивный максимум между пиками рефракции, усеченный на уровне $I(\omega) = 3000$ импульсов/с, обусловлен зеркальным отражением при повороте образца на угол $\omega = \Psi_0/2$. С учетом поправок на конечный размер образца для SiO_2 расчетное и измеренное угловые расстояния между пиками f_2 и b_2 совпадают с ошибкой $\sim 1\%$. Пик зеркального отражения от ZnSe асимметричен и имеет крыло, смещенное в сторону больших углов. Указанная особенность может быть обусловлена завалом одного из краев отражающей поверхности в результате финишной обработки диска ZnSe в полирующем травителе. При последующем выкалывании пластины по линиям скрайбирования одна из ее сторон находилась в непосредственной близости от края исходного диска. Это заключение подтверждается увеличением углового расстояния между пиками рефракции f_1 и b_1 на 0.21° по сравнению с расчетным значением для плоского образца ZnSe.

Измерения в полихроматическом излучении позволяют сравнить изменения спектра рентгеновского излучения до и после прохождения через образец в широком спектральном диапазоне. При выборе эталонного образца может быть решена обратная задача, а именно: по угловому распределению интенсивности восстановить спектр первичного излучения. Если измерения проводятся на воздухе, то вследствие интенсивного поглощения мягкой части спектра при длине пути ~ 1 м

длинноволновая граница будет находиться в пределах $0.25\text{--}0.30$ нм. Коротковолновая граница формально ограничена только угловой разрешающей способностью рефрактометра и дисперсионными характеристиками исследуемого образца.

На рис. 7 приведены рефрактограммы природного алмаза (кривая 1) и монокристаллов Si (кривая 2) и GaAs (кривая 3). Результаты получены путем углового сканирования детектора 1б с приемной щелью шириной 30 мкм, размещенных на поворотном кронштейне второго гониометра. Образцы Si и GaAs позволяют разрешить линии $\text{CuK}\alpha$ и $\text{CuK}\beta$. Однако коротковолновая граница спектра не отделяется от крыла прямого пучка. Образец алмаза в аналогичных условиях измерения обеспечивает более чем на порядок большую среднюю интенсивность преломленного излучения и возможность анализа спектра в области длин волн < 0.05 нм.

Как видно из приведенных выше результатов, описанная схема обеспечивает возможность прецизионных измерений углов преломления и распределения интенсивности в монохроматическом и полихроматическом излучении. Для исследования пригоден сравнительно широкий круг оптически полированных образцов независимо от их структуры и состава. Рефрактометр может быть использован для решения двух основных типов задач: определение параметров поверхностных слоев и геометрии поверхности при использова-

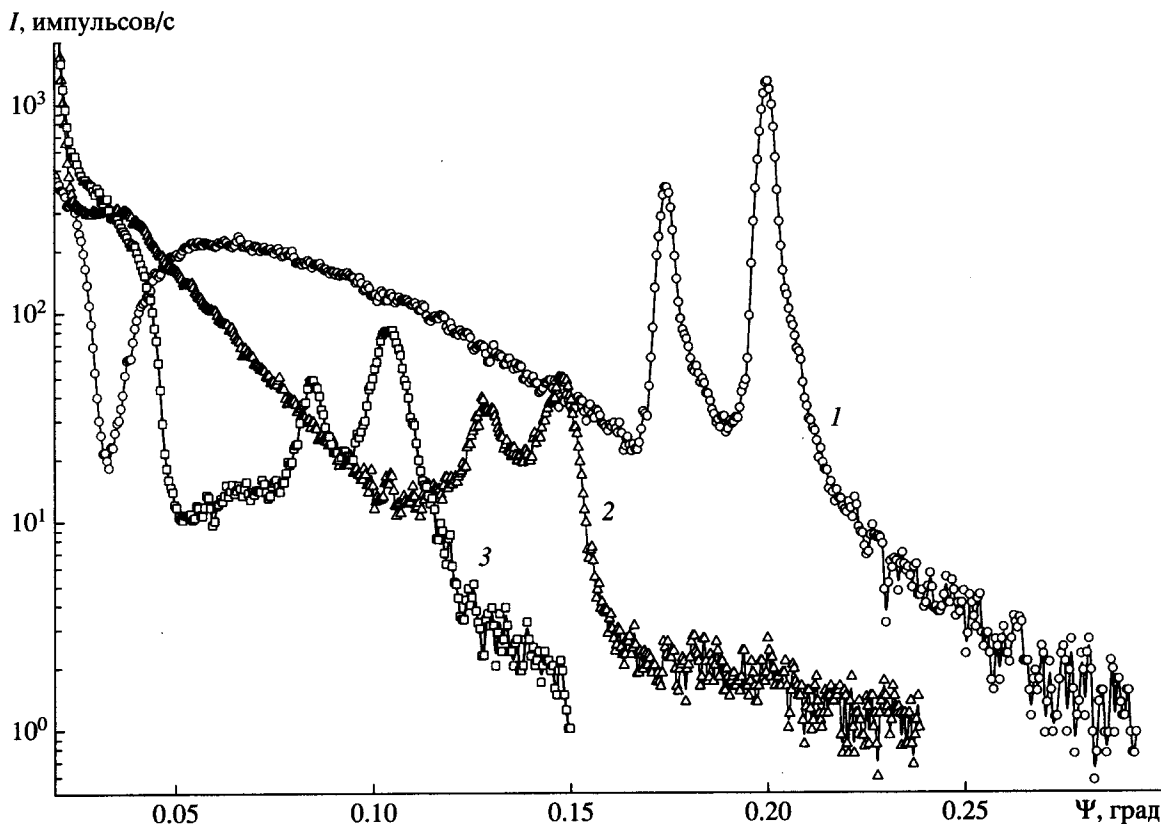


Рис. 7. Рефрактограммы в полихроматическом излучении трубки с медным анодом при $U = 25$ кВ: 1 – природный алмаз ($\theta_1 = 0.08^\circ$); 2 – монокристалл Si ($\theta_1 = 0.08^\circ$); 3 – монокристалл GaAs ($\theta_1 = 0.4^\circ$).

нии спектральных линий, для которых достоверно известны рентгенооптические параметры всех химических элементов; измерение в малом телесном угле интенсивных рентгеновских спектров с помощью преломляющего образца, для которого скачки поглощения находятся вне исследуемой области спектра, а рентгенооптические параметры протабулированы во всем спектральном диапазоне.

Для аналитических задач первого типа особый интерес представляет определение параметров тонкопленочных и, в особенности, напряженных структур с радиусом кривизны $R < 10$ м, получаемых при гетероэпитаксии и с помощью других методов осаждения. Возможность таких измерений впервые показана в настоящей работе на примере образцов с бислоем C/Ni и алмазоподобной пленкой C на подложке Si.

Рефрактометрия в режиме углового качания образца позволяет получить дополнительную информацию не только о среднем значении R , но и об изменении R вдоль линии пересечения контролируемой поверхности с измерительной плоскостью. Данные, полученные по такой методике, также

впервые представлены на примере образцов плавленого кварца и монокристалла ZnSe.

Возможность решения задач второго типа, связанных с рентгеновской спектрометрией, подтверждают результаты, полученные в полихроматическом спектре при использовании в качестве преломляющего элемента образца природного алмаза. Очевидно, что при установке на второй гониометр одномерного координатно-чувствительного детектора могут быть получены спектры импульсных источников излучения.

Работа поддержана грантом РФФИ (проект № 00-02-16470).

Выражаем признательность И.П. Казакову, Ю.В. Коростелину, Ю.П. Першину, В.М. Рошину и Р.А. Хмельницкому за предоставленные образцы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Larsson A., Siegbahn M., Waller T. // Phys. Rev. 1925. V. 25. P. 235.
2. Larsson A., Siegbahn M., Waller T. // Naturwiss. 1924. V. 12. P. 1212.
3. Davis B., Slack C.M. // Phys. Rev. 1925. V. 25. P. 18.
4. Slack C.M. // Phys. Rev. 1926. V. 27. P. 691.

5. Турьянский А.Г., Пиршин И.В. // ПТЭ. 1999. № 6. С. 104.
6. Турьянский А.Г., Виноградов А.В., Пиршин И.В. // ПТЭ. 1999. № 1. С. 105.
7. *Touryanski A.G., Vinogradov A.V., Pirshin I.V.* Patent USA № 6.041.098. Class 378-70.
8. Турьянский А.Г., Казаков И.В., Пиршин И.В., Рзаев М.М. // Нац. конф. по применению рентгеновского и синхротронного излучений, нейтронов и электронов (РСНЭ-97). 25–29 мая. 1997. Дубна: ОИЯИ. Тез. докл. 1997. С. 145.
9. Турьянский А.Г., Пиршин И.В. // ПТЭ. 2000. № 4. С. 117.
10. *Henke B.L., Gullikson E.M., Davis J.C.* // Atomic Data and Nuclear Data Tables. July 1993. V. 54. № 2. P. 181.
11. Физические величины. Справочник / Под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. М.: Энергоатомиздат, 1991.