

МЕТОД ДИФРАКЦИИ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ В УСЛОВИЯХ СКОЛЬЗЯЩЕГО ПАДЕНИЯ: ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ С ВЫСОКОЙ ТОЧНОСТЬЮ

А. Л. Головин, Р. М. Имамов, О. Г. Меликян

Предложена принципиально новая рентгеновская схема дифференциальных измерений дифракции в условиях скользящего падения. Данная схема не требует мощных источников излучения типа синхротронного ускорителя. Продемонстрирована высокая чувствительность дифракционных кривых к изменению разориентации дифракционных плоскостей, а также к наличию аморфных пленок на поверхности кристалла. Развита динамическая теория дифракции на кристаллах с аморфной пленкой с произвольной зависимостью восприимчивости χ_0 от глубины. Система дифференциальных уравнений (Максвелла) сведена к алгебраической системе рекуррентных соотношений. Определена область, в которой рассеяние рентгеновских лучей удовлетворяет кинематическому приближению.

Введение

Прогресс, который переживает микроэлектроника, тесно связан с тонкопленочной технологией. Поскольку активные слои в приборах микро- и оптоэлектроники становятся все тоньше (вплоть до десятков ангстрем), то возникает необходимость в разработке совершенно новых технологических приемов приготовления таких структур. В такой ситуации заметно повысилась роль структурной диагностики, в которой издавна используются методы, основанные на явлении дифракции рентгеновских лучей. По мере развития тонкопленочной технологии данные методы также претерпели ряд серьезных изменений. Сегодня рентгеновской диагностике доступны тонкие слои, толщиной порядка 0.1—0.05 мкм. Существенным продвижением в исследовании тонких приповерхностных слоев явилось использование принципиально новой экспериментальной схемы — так называемой рентгеновской дифракции в условиях скользящего падения (РДСП) [1, 2]. При малых углах скольжения рентгеновского пучка (скользящее падение) резко уменьшается глубина проникновения излучения в кристалл, что приводит к высокой чувствительности коэффициента рассеяния к изменению структуры тонких приповерхностных слоев. Суть метода РДСП состоит в сочетании двух явлений: дифракции на плоскостях, почти перпендикулярных поверхности кристалла, и зеркального отражения от входной поверхности. С помощью этого метода исследовались тонкие эпитаксиальные пленки Al (толщиной от 100 до 1000 Å) на подложке арсенида галлия [1], структура тонкого (500 Å) кремния, подверженная ионному легированию [3], гетероструктура типа КНС (кремний на сапфире) [4]. Более подробно суть метода РДСП описана в разделе 1.

В настоящей работе описывается одна из возможных экспериментальных схем РДСП (раздел 2) — регистрация дифрагированного излучения как функция угла скольжения при фиксированном значении отклонения от угла Брэгга. Эта схема позволяет изучать структурные изменения на поверхности кристалла (раздел 3).

1. Особенности метода РДСП

В методе РДСП пучок рентгеновского излучения (амплитуда волны E_0) падает на поверхность кристалла под малым углом Φ_0 , сравнимым с $\Phi_c = \sqrt{|\chi_0|}$ — критическим углом ПВО. Кристалл ориентируется таким образом, чтобы удовлетворить условию Брэгга для плоскостей, почти перпендикулярных к (угол разориентации $\varphi \sim 0-5^\circ$) поверхности. Выходящий из кристалла пучок также образует малый угол Φ_h с поверхностью, и поэтому для него тоже существует эффект зеркального отражения. Указанные углы связаны между собой соотношением [5, 6]

$$\Phi_h^2 = (\Phi_0 - \Psi)^2 - \alpha, \quad \alpha = -2(\theta - \theta_B) \sin 2\theta_B, \quad (1)$$

где $\Psi = 2\varphi \sin \theta_B$ — эффективный угол разориентации дифракционных плоскостей. Параметр α определяет отклонение от угла Брэгга θ_B .

Следует отметить, что за счет эффекта зеркального отражения и преломления положение брэгговского пика несколько смещается.

Помимо дифрагированной волны (с амплитудой E_h^S , волновым вектором \mathbf{k}_h и углом скольжения Φ_h), над поверхностью кристалла возникает также зеркально отраженная волна (параметры которой соответственно E_0^S , \mathbf{k}_h , Φ_0). Таким образом, волновое поле в вакууме определяется тремя волнами

$$E(\mathbf{r}) = E_0 \exp(i\mathbf{k}_0 \mathbf{r}) + E_0^S \exp(i\mathbf{k}_0^S \mathbf{r}) + E_h^S \exp(i\mathbf{k}_h \mathbf{r}).$$

Поле внутри кристалла ищется в виде

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \mathbf{D}_0 \exp(i\mathbf{k}_0 \mathbf{r}) + \mathbf{D}_h \exp(i\mathbf{k}_h \mathbf{r}), \\ \mathbf{k}_h = \mathbf{k}_0 + \mathbf{h},$$

где \mathbf{h} — вектор обратной решетки.

Используя динамические уравнения дифракции [6, 7], а также граничные условия на поверхности идеального кристалла, можно получить следующее выражение для амплитуды дифрагированной волны (см. например, [6]):

$$E_h^S = \frac{2\Phi_0 W_1 W_2 (u_2 - u_1) E_0}{\chi_L [W_2 (u_1 + \Phi_0) (u_2 + \Phi_h - \Psi) - W_1 (u_2 + \Phi_0) (u_1 + \Phi_h - \Psi)],} \quad (2)$$

где $W_i = u_i^2 - \Phi_0^2$ ($i = 1, 2$), а параметры u_i являются корнями дисперсионного уравнения

$$(u^2 - \Phi_0^2) [(u - \Psi)^2 - \Phi_h^2] = \chi_h \chi_L, \\ \Phi_\alpha = \sqrt{\Phi_\alpha^2 + \chi_0}, \quad \alpha = \{0, h\}, \quad (3)$$

соответствующими убыванию поля внутри кристалла, т. е. с положительной мнимой частью $\text{Im } u_i > 0$.

Коэффициент дифракционного рассеяния определяется интенсивностью дифрагированной волны и отношением потоков рассеянной и падающей волн

$$I = \left| \frac{E_h^S}{E_0} \right|^2 \frac{\Phi_h}{\Phi_0}. \quad (4)$$

В данной геометрии дифракции имеется возможность регистрации интенсивности рассеяния не только от угла α , как в стандартных дифракционных схемах, но и от углов Φ_0 и Φ_h . При этом ширина дифракционной кривой по углу Φ_h при фиксированном значении угла Φ_0 , согласно (1), определяется соотношением $\delta\Phi_h \sim \delta\alpha/\Phi_h$ и при $\Phi_h \ll 1$ составляет несколько минут, в то время как $\delta\alpha$ всего несколько секунд [5, 6].

В схеме РДСП можно измерять как дифференциальные кривые (зависимость от какого-нибудь параметра при фиксированном значении одного угла: скажем, фиксируя Φ_0 , можно снимать кривые зависимости от Φ_h [8]), так и интегральные, являющиеся суммой интенсивностей при всех значениях варьируемого параметра [2]. Экспериментально легче осуществить измерение ин-

тегральных кривых, однако они оказываются менее информативными, чем дифференциальные кривые.

Как уже отмечалось, дифракция в условиях скользящего падения весьма чувствительна к нарушениям на поверхности кристалла. Такими нарушениями могут быть шероховатость поверхности, аморфизация поверхностного слоя кристалла, а также изменение параметра решетки вблизи поверхности. В методе РДСП возможно реализовать различные экспериментальные схемы, каждая из которых удобна для изучения тех или иных искажений структуры кристалла. Перечислим вкратце особенности и преимущества трех различных схем регистрации дифференциальных зависимостей.

1. При фиксированных значениях угла Φ_0 (или Φ_h) регистрируется интенсивность дифракционного отражения от угла Φ_h (или Φ_0), т. е. $I(\Phi_0)$ (или $I(\Phi_h)$) [8]. Эта схема удобна для исследования профиля аморфизации по глубине. С другой стороны, кривые $I(\Phi_0)$ и $I(\Phi_h)$ в данной схеме оказываются малочувствительными к изменению параметра решетки кристаллической структуры.

2. При фиксированных значениях Φ_0 (или Φ_h) измеряется интенсивность дифракционного рассеяния $I(\alpha)$ как функция отклонения от угла Брэгга α [3, 4]. Такая методика полезна для анализа послойного по глубине изменения параметра решетки [4], которое существенно влияет на форму дифракционных кривых. Аморфизация же приводит в основном к изменению интенсивности, поэтому данная схема оказывается неэффективной для изучения аморфных пленок на поверхности.

3. При фиксированных α регистрируются зависимости $I_\alpha(\Phi_0)$ или $I_\alpha(\Phi_h)$ (индекс α указывает на то, что этот параметр зафиксирован).

Настоящая работа посвящена исследованию особенностей дифракции рентгеновских лучей в последней схеме. В отличие от методик 1 и 2 эта схема является универсальной, так как кривые $I_\alpha(\Phi_0)$ и $I_\alpha(\Phi_h)$ чувствительны к изменению как параметра решетки приповерхностного слоя кристалла, так и к аморфизации. Кроме того, здесь удастся сравнительно легко осуществить условия кинематического рассеяния (см. раздел 3), что позволяет воспользоваться сравнительно простыми выражениями для анализа интенсивности с учетом фактора Дебая—Валлера [9].

2. Экспериментальная схема

Для осуществления измерений в схеме 3 необходимо использовать тщательно подготовленный пучок. Расходимость излучения в таком пучке должна быть ограничена в двух направлениях: по углу падения Φ_0 (минутная расходимость) и по параметру α (секундная расходимость). Подготовка пучка с такими параметрами приводит к резкому падению его интенсивности. Поиск отражения и съемка экспериментальной зависимости $I_\alpha(\Phi_0)$ также требуют использования прецизионных гониометров, поскольку для этого необходимо изменять сразу два параметра Φ_0 и α . Очевидно, что такую методику измерения [10] не следует рекомендовать для широкого использования. Нами предлагается принципиально другая экспериментальная схема (рис. 1, б). Пучок рентгеновского излучения, коллимированный по углу Φ_0 (расходимость $\sim 0.2'$, что достигается использованием кристалла-монокроматора и выходной щели ~ 50 мкм), падает на исследуемый кристалл под малым скользящим углом порядка Φ_c — критического угла ПВО. Поскольку коллимация по параметру α отсутствует, то поиск дифракционного отражения не требует ни сверхмощных источников излучения, ни достаточно прецизионной аппаратуры, так как в данном случае регистрируется интегральная интенсивность от угла $\Phi_0 - I_{\text{int}}(\Phi_0)$ (такие измерения проводились на стандартных спектрометрах типа ТРС и ДРОН [2-4, 12]). После нахождения дифракционного отражения детектором 5 в дифракционный пучок под углом Брэгга вводится кристалл-анализатор (КА) 4, детектором 6 регистрируется пучок, испытавший последовательно дифракцию от образца и кристалла-анализатора (КА). Поскольку разрешение по α определяется кривой отражения КА, то, выбирая соответствующий фактор асимметрии, можно менять разрешение по α в достаточно широких пределах (в наших экспери-

ментах разрешение составляло $\sim 6''$ для $\beta=1$ и $2''$ для $\beta=0.1$). Поскольку при увеличении разрешения по α соответственно уменьшается интенсивность пучка, то при использовании стандартных источников рентгеновского излучения лучше всего ограничиться разрешением $\sim 6''$. В настоящей работе измерения проводились с использованием генератора с вращающимся анодом с удельной яркостью 6 кВт/мм^2 .

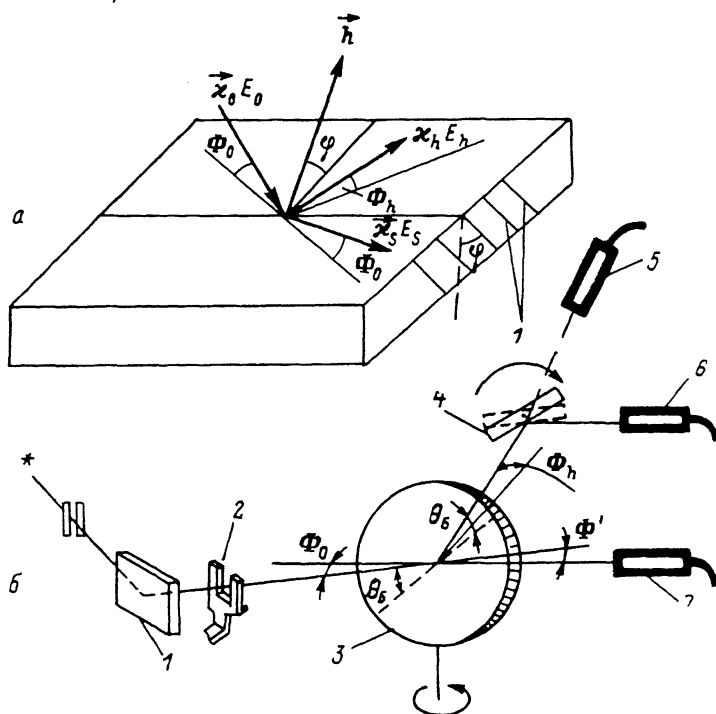


Рис. 1. Рентгенооптическая схема эксперимента.

a — ход лучей над поверхностью кристалла; 1 — дифракционные плоскости; *b* — схема экспериментальной установки: 1 — кристалл-монокристалл; 2 — щель коллиматора; 3 — исследуемый кристалл; 4 — кристалл-анализатор; 5, 6, 7 — детекторы рентгеновского излучения.

Таким образом, в отличие от [10] в предлагаемой схеме на исследуемый кристалл падает пучок, коллимированный в одном направлении, а соответственно коллимация по параметру α обеспечивается в дифрагированном пучке. В таком варианте данную схему можно реализовать на стандартной аппаратуре (типа ДРОН, ТРС) с добавлением блока КА.

3. Теоретическая часть

Выражение (2) для амплитуды дифрагированной волны справедливо для рассеяния от идеального кристалла. При наличии аморфной пленки с толщиной t на поверхности кристалла с таким же значением линейной восприимчивости χ_0 , что и у подложки, в выражении (4) для коэффициента рассеяния появится множитель $\exp[-2 \text{Im}(\tilde{\Phi}_0 + \tilde{\Phi}_h) t]$.

На рис. 2 представлены кривые дифракционного рассеяния при различных значениях угла разориентации Ψ . Как видно из рисунка, коэффициент рассеяния оказывается чувствительным к изменению Ψ . Наиболее сильно это проявляется для рассеяния при положительных α (рис. 2, *a*), когда в зависимости от разориентации меняется положение максимума дифракционной кривой (при отрицательных α (рис. 2, *б*) положение максимума всегда приходится на Φ_0). Таким образом, данную схему можно использовать для определения угла разориентации.

Нами были проведены расчеты с целью определения области, в которой справедливо кинематическое рассеяние. Как видно из рис. 3, кинематическое рас-

сеяние имеет место практически при всех положительных значениях $\Delta\theta$. В области кинематического рассеяния существуют [9] сравнительно простые выражения для коэффициента рассеяния с учетом искажения параметра решетки кристалла. Поэтому экспериментальные кривые дифракционного рассеяния,

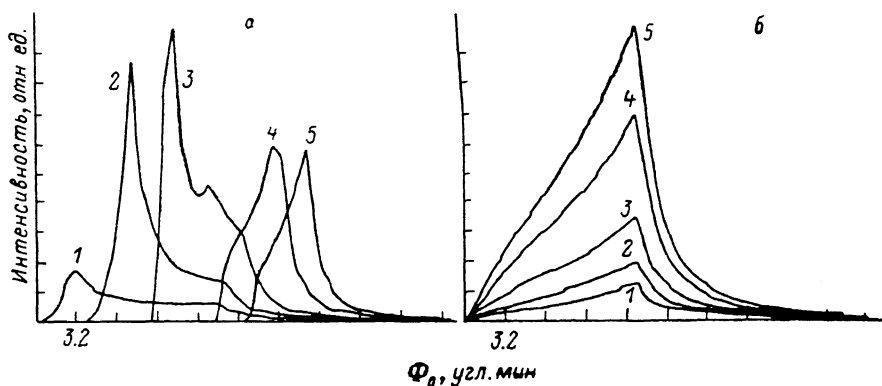


Рис. 2. Влияние разориентации Ψ на форму и положение дифракционной кривой. Si(220) $\text{CuK}\alpha$.

$\Delta\theta$ (α , угл. с: а — 4.5 (6.61), б — 4.5 (—6.61); угл. мин: 1 — 20, 2 — 15, 3 — 10, 4 — 5, 5 — 2.5. При расчетах учитывалась аморфная пленка с $t=30 \text{ \AA}$ на поверхности кристалла. Здесь и далее учитывалась конкретная геометрия эксперимента. Разрешение по α определялось полушириной кривой отражения кристалла-анализатора Si (220) порядка $6''$.

полученные в этой области, позволят, по нашему мнению, извлекать информацию как о факторе Дебая—Валлера, так и об изменении параметра решетки кристалла вблизи поверхности.

Кривые на рис. 4 показывают высокую чувствительность коэффициента рассеяния к толщине аморфной пленки. С другой стороны, из рис. 5 (сравнение экспериментальных данных с теоретическим расчетом) следует, что приближение однородной аморфной пленки с таким же значением χ_0 , что и у подложки, является недостаточным. В общем случае аморфная пленка характеризуется плавно меняющейся по глубине линейной восприимчивостью $\chi_0(z)$.

Аморфную пленку с линейной восприимчивостью $\chi_0(z)$ удобно промоделировать системой слоев с по-

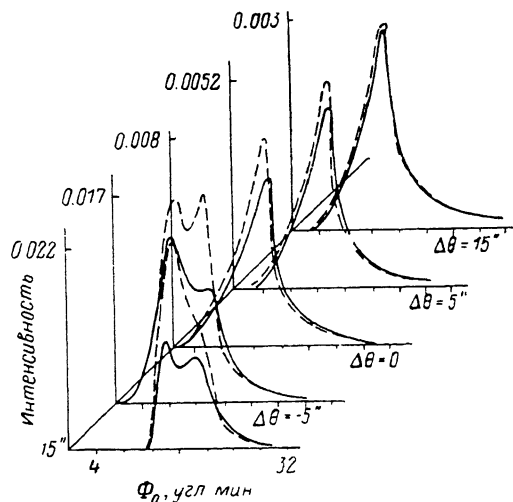


Рис. 3. Сравнение динамических и кинематических кривых.

Расчеты произведены для различных значений отклонения от угла Брэгга $\Delta\theta = -15, -5, 0, 5, 15''$. Сплошная линия — расчет по динамической теории, пунктир — по кинематической.

стоянными параметрами. Граничные условия при скользящем падении сводятся к условиям непрерывности электрических полей и их производных

$$E_{\alpha} + E_{\alpha}^S = e_{\alpha 1} + e_{\alpha 1}^S, \quad (5a)$$

$$e_{\alpha j} \exp(id_{\alpha j}) + e_{\alpha j}^S \exp(-id_{\alpha j}) = e_{\alpha j+1} + e_{\alpha j+1}^S, \quad (5б)$$

$$e_{\alpha N+1} + e_{\alpha N+1}^S = D_{\alpha}^{(1)} + D_{\alpha}^{(2)}, \quad (5в)$$

$$\Phi_{\alpha}(E_{\alpha} - E_{\alpha}^S) = \tilde{\Phi}_{\alpha 1}(E_{\alpha 1} - E_{\alpha 1}^S), \quad (6a)$$

$$\tilde{\Phi}_{\alpha j}[e_{\alpha j} \exp(id_{\alpha j}) - e_{\alpha j}^S \exp(-id_{\alpha j})] = \tilde{\Phi}_{\alpha j+1}[e_{\alpha j+1} - e_{\alpha j+1}^S], \quad (6б)$$

$$\Phi_{\alpha}(\varepsilon_{\alpha N+1} - \varepsilon_{\alpha N+1}^S) = (u_1 - \delta_{\alpha, h} \Psi) D_{\alpha}^{(1)} + (u_2 - \delta_{\alpha, h}) D_{\alpha}^{(2)}, \quad (6b)$$

$$\alpha = (0, h), \quad Eh = 0.$$

Здесь j — номер слоя ($j=0$ соответствует вакууму), меняющийся от 1 до $N+1$ сверху вниз; N — количество слоев; $\varepsilon_{\alpha j}$, $\varepsilon_{\alpha j}^S$ — амплитуды электрических полей (прошедшая и зеркально отраженная) в данной пленке. Для удобства между пленкой и подложкой введен фиктивный слой с нулевой толщиной. Индексы у полей $D_{\alpha}^{(i)}$; $i=1, 2$ означают, что они относятся соответственно к корням u_i . Кроме того, введены обозначения

$$\Phi_{\alpha j} = \sqrt{\Phi_{\alpha}^2 + \chi_{0j}}, \quad d_{\alpha j} = \frac{2\pi}{\lambda} t_j \Phi_{\alpha j},$$

где χ_{0j} и t_j — восприимчивость и толщина j -го слоя.

Соотношения (5a), (6a) являются граничными условиями на поверхности пленки, а (5b), (6b) — на границе пленка—кристалл. Соотношение (5b), (6b) представляют собой граничные условия на границе j -го и $j+1$ -го слоев.

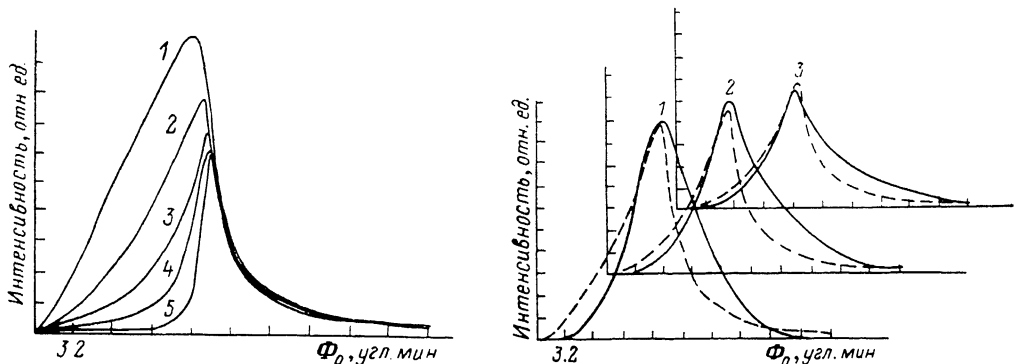


Рис. 4. Влияние аморфной пленки различной толщины t на интенсивность дифракционного рассеяния при $\alpha=0$.

t , Å: 1 — 0, 2 — 30, 3 — 60, 4 — 100, 5 — 200.

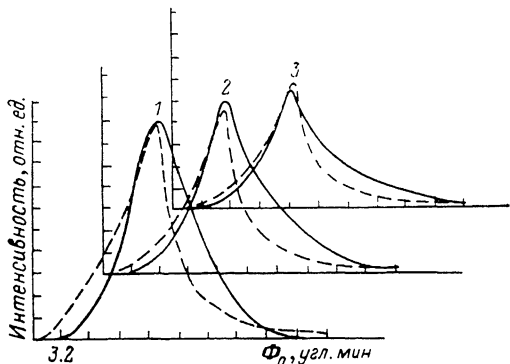


Рис. 5. Дифракционные кривые в зависимости от отклонения от угла Брэгга α .

Сплошная кривая — эксперимент, пунктир — теоретический расчет. $\Delta\theta$ (α , угл. с: 1 — 0 (0), 2 — 4.5 (—6.61), 3 — 9 (—13.23)).

Введем обозначения

$$R_{\alpha j}^{(+)} = \varepsilon_{\alpha j} / E_h^S, \quad R_{\alpha j}^{(-)} = \varepsilon_{\alpha j}^S / E_h^S, \quad \beta_j = \frac{\Phi_{hj}}{\Phi_{hj+1}}, \quad \gamma_j = \frac{\Phi_{0j+1}}{\Phi_{0j}}. \quad (7)$$

Из соотношений (5), (6) с $\alpha=h$ нетрудно получить следующую систему рекуррентных уравнений:

$$R_{hj+1}^{(\pm)} = \frac{1}{2} e^{i\delta h j} (1 \pm \beta_j) R_{hj}^{(+)} + \frac{1}{2} e^{-i\delta h j} (1 \mp \beta_j) R_{hj}^{(-)} \quad (8)$$

с естественным начальным условием

$$R_{h0}^{(+)} = 0, \quad R_{h0}^{(-)} = 1. \quad (9)$$

Эта система решается последовательно от верхнего слоя ($j=1$) к нижнему ($j=N+1$).

Далее из соотношений (5), (6) при $\alpha=0$ можно получить рекуррентную систему уравнений для $R_{0j}^{(\pm)}$

$$R_{0j}^{(\pm)} = \frac{1}{2} e^{\mp i\delta_0 j} [(1 \pm \gamma_j) R_{0j}^{(+)} + (1 \mp \gamma_j) R_{0j}^{(-)}], \quad (10)$$

которая решается последовательно снизу вверх (от N -го слоя до нулевого). Начальные условия для системы (10) имеют более сложный вид (при выводе их использовались также динамические уравнения дифракции внутри кристалла [6])

$$R_{0N+1}^{(+)} = \frac{\chi_h}{2\Phi_0} \left\{ \frac{\Phi_0 \pm u_1}{u_1^2 - \Phi_0^2} \frac{D_h^{(1)}}{E_h^S} + \frac{\Phi_0 \pm u_2}{u_2^2 - \Phi_0^2} \frac{D_h^{(2)}}{E_h^S} \right\}, \quad (11a)$$

где

$$\frac{D_h^{(j)}}{E_h^S} = \frac{1}{u_2 - u_1} \{ (u_2 - \Psi) (R_{hN+1}^{(+)} + R_{hN+1}^{(-)}) + \Phi_h (R_{hN+1}^{(+)} - R_{hN+1}^{(-)}) \}. \quad (11b)$$

Выражение для $D_h^{(2)}/E_h^S$ получается из (11б) заменой $u_1 \leftrightarrow u_2$. Напомним, что $u_{1,2}$ являются корнями дисперсионного уравнения (3) с положительной мнимой частью. Под Φ_0 мы понимаем значение этого параметра для кристаллической подложки в соответствии с (3).

Согласно (4) и (7), коэффициент дифракционного рассеяния

$$I = \frac{\Phi_h}{\Phi_0} |R_{00}^{(+)}|^2. \quad (12)$$

Соотношения (8)—(12) являются замкнутой системой для определения интенсивности дифрагированной волны. Для этого сперва решается система рекуррентных уравнений (8) последовательно от верхнего слоя ($j=1$) к нижнему ($j=N+1$) с начальным условием (9), затем решается система уравнений (10) снизу вверх (от $j=N$ до $j=0$) с начальным условием (11). Интенсивность дифракционного рассеяния вычисляется по формуле (12).

Заключение

Сведение системы дифференциальных уравнений дифракции (уравнений Максвелла) к системе алгебраических уравнений (8)—(12) существенно упрощает автоматизированную обработку экспериментальных данных с целью восстановления профиля аморфизации.

Как известно [11, 12], обратные задачи являются, как правило, неоднозначными и неустойчивыми. Для стабилизации решения обратной задачи необходимо пользоваться дополнительной информацией [12]. С этой точки зрения, предложенная нами схема РДСП может быть полезна для решения обратных задач (определения профиля аморфизации χ_0 , изменения параметра Дебая—Валлера и параметра решетки по глубине), так как позволяет накопить достаточную информацию, а именно измерять кривые $I_\alpha(\Phi_0)$ при различных значениях параметра α . Отметим также, что данная методика может быть реализована с использованием стандартных источников излучения.

В заключение авторы благодарят А. М. Афанасьева за интерес к работе и многочисленные обсуждения.

Список литературы

- [1] Marra W. C., Eisenberger P., Cho A. Y. // J. Appl. Phys. 1979. Vol. 50. N 11. P. 6927—6933.
- [2] Golovin A. L., Imatov R. M. // Phys. Stat. Sol. A. 1983. Vol. 77. N 1. P. K91—K94.
- [3] Golovin A. L., Imatov R. M., Kondrashkina E. A. // Phys. Stat. Sol. A. 1985. Vol. 88. N 2. P. 505—514.
- [4] Васильев А. Л., Головин А. Л., Манафов К. М. и др. // Поверхность. 1987. Т. 1. С. 123—132.
- [5] Afnasjev A. M., Melkonyan M. K. / Acta Cryst. A. 1983. Vol. 39. N 2. P. 207—210.
- [6] Aleksandrov P. A., Afnasjev A. M., Stepanov S. A. // Phys. Stat. Sol. A. 1984. Vol. 86. N 1. P. 143—154.
- [7] Farwig P., Shürmann H. W. // Z. Physik. 1967. Vol. 204. N 5. P. 489—500.
- [8] Golovin A. L., Imatov R. M., Stepanov S. A. // Acta Cryst. A. 1984. Vol. 40. N 3. P. 225—228.
- [9] Степанов С. А. Канд. дис. М., 1984. 128 с.
- [10] Cowan P. L., Brennan S., Jach T. et al. / Phys. Rev. Lett. 1986. Vol. 57. N 19. P. 2399—2402.
- [11] Афанасьев А. М., Фанченко С. С. // ДАН СССР. 1986. Т. 287. № 6. С. 1395—1400.
- [12] Головин А. Л., Имамов Р. М., Меликян О. Г. и др. // Поверхность. 1989. № 8. С. 78—87.