

## Зеркальное отражение рентгеновских лучей в условиях резко асимметричной некомпланарной дифракции в кристалле с аморфной пленкой

© В.А. Бушуев, А.П. Орешко

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
119899 Москва, Россия

E-mail: vab@surfsite.phys.msu.su

(Поступила в Редакцию 20 июля 2000 г.)

Проведен точный теоретический анализ угловой зависимости интенсивности зеркального отражения рентгеновских лучей в условиях скользящей некомпланарной дифракции в кристалле с аморфной пленкой на поверхности. Показано, что аномальное угловое поведение интенсивности зеркального отражения обладает уникально высокой чувствительностью к наличию тонких аморфных пленок с толщинами на уровне единиц нанометров. Наиболее оптимальные условия регистрации реализуются при углах скольжения, равных 1.5–4 критических угла полного внешнего отражения.

Дифракция рентгеновских лучей и явление полного внешнего отражения (ПВО) широко используются для анализа структуры тонких приповерхностных слоев полупроводниковых монокристаллов и кристаллов с аморфными и кристаллическими пленками [1] (см. также обзоры [2–4]). Использование резко асимметричных схем дифракции, в которых отражение осуществляется от атомных плоскостей, составляющих приблизительно угол Брэгга с поверхностью кристалла, позволяет значительно уменьшить глубину проникновения поля в кристалл и исследовать более тонкие слои с толщиной порядка 10 нм. В этих схемах либо падающий, либо дифрагированный пучок распространяется под малым скользящим углом к поверхности, сравнимым с критическим углом ПВО, поэтому важную роль в формировании дифракционной картины начинает играть явление зеркального отражения рентгеновских лучей. Динамическая теория резко асимметричной компланарной дифракции развита в работах [5–9].

В [10] впервые проведен расчет амплитуд зеркально отраженной и дифрагированной волн в принципиально новой схеме некомпланарной дифракции, в которой отражающие атомно-кристаллические плоскости перпендикулярны к поверхности кристалла (угол наклона по отношению к нормали  $\psi = 0$ ), а падающая, преломленная и дифрагированная волны не лежат в одной плоскости. В этом случае как падающий, так и дифрагированный пучки одновременно могут составлять малые углы  $\varphi_0$  и  $\varphi_h$  с поверхностью и претерпевать сильное зеркальное отражение (ЗО). Экспериментально такая геометрия дифракции была реализована позднее в [11] для исследования тонких кристаллических пленок алюминия с толщинами 7.5–200 нм, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложке GaAs.

Анализ дифракции в скользящей геометрии приводит к необходимости точного решения уравнений динамической теории в отличие от обычно используемого двухволнового приближения [1–4]. Такая теория, основанная в случае  $\psi = 0$  на решении биквадратного

дисперсионного уравнения, построена как для идеальных монокристаллов [12,13], так и для кристаллов с аморфной [14] и кристаллической [15] пленками на поверхности. Показана высокая чувствительность кривых дифракционного отражения (КДО) для анализа структурного совершенства приповерхностных слоев с толщинами от единиц нанометров и больше. Результаты многочисленных экспериментов по практической реализации выводов этой теории изложены в [1,4].

Следующий важный шаг был сделан в работах [16,17], в которых построена теория скользящей дифракции Брегга–Лауэ рентгеновских лучей на идеальном кристалле, отражающие плоскости которого уже не перпендикулярны поверхности, а составляют небольшой угол скоса  $\psi \neq 0$  по отношению к нормали. Актуальность такого анализа определяется тем, что на практике при резке и последующей обработке кристаллов трудно обеспечить строгую параллельность поверхности и атомных плоскостей, а даже малые углы скоса  $\psi$  на уровне нескольких угловых минут приводят к заметному изменению формы дифракционных кривых [1,4,16,17]. Кроме того, кристаллы с углами скоса  $\psi \sim 3\text{--}4^\circ$  специально используются в ряде полупроводниковых технологий.

В случае  $\psi \neq 0$  дисперсионное уравнение становится уравнением четвертой степени и может быть решено только численно. При углах скольжения  $\varphi_0$  или  $\varphi_h$ , которые превышают критический угол ПВО, влияние зеркально отраженной волны на дифракцию резко уменьшается и задача упрощается. В связи с этим в [18–20] развита приближенная модифицированная динамическая теория дифракции, которая позволяет решать задачу аналитически во всей области углов  $\varphi_0$ ,  $\varphi_h$ , за исключением узкого интервала вблизи критического угла ПВО, как для идеального кристалла [18,19], так и для кристалла с аморфной поверхностной пленкой [18,20].

Отметим, что во всех перечисленных выше работах анализировалось в основном лишь поведение кривых дифракционного отражения и совершенно не исследовалась угловая зависимость кривых зеркального отраже-

ния. Вместе с тем, как впервые отмечено в [4], наличие аморфной пленки на поверхности кристалла может заметным образом сказываться на поведении интенсивности ЗО в зависимости от изменения угла падения рентгеновского пучка по отношению к брэгговскому углу дифракции.

В настоящей работе на основе точного решения дисперсионного уравнения четвертой степени проведен детальный анализ угловых зависимостей зеркального и дифракционного отражений во всей области углов скольжения и углов схода отражающих плоскостей по отношению к поверхности кристалла. Важность такого анализа явления ЗО в условиях асимметричной некопланарной дифракции связана с высокой чувствительностью так называемой "зеркальной метки" [4] к тонким (порядка 1–3 nm) аморфным пленкам на поверхности. Показано, что кривые ЗО имеют ярко выраженный дисперсионный вид типа кривых выхода вторичных излучений в методе стоячих рентгеновских волн [4], однако интенсивность сигнала при этом гораздо выше, что позволяет говорить о развитии более экспрессных методов исследования тонких пленок. Основное внимание уделено рассмотрению малых углов скольжения рентгеновского излучения и анализу ситуаций, когда с приемлемой точностью можно пользоваться упрощенными уравнениями динамической теории.

## 1. Идеальный монокристалл

Рассмотрим вначале задачу о зеркальном и дифракционном отражении плоской монохроматической рентгеновской волны  $\mathbf{E}_0 \exp(i\mathbf{k}_0 \mathbf{r})$  от идеального монокристалла. Излучение падает из вакуума под произвольным углом скольжения  $\varphi_0$  по отношению к поверхности так, что одновременно имеет место дифракционное отражение от атомно-кристаллических плоскостей, которые составляют произвольный угол  $\psi$  по отношению к нормали  $\mathbf{n}$  к поверхности, направленной в глубь кристалла вдоль оси  $z$ .

Поле в области  $z \leq 0$  над поверхностью кристалла состоит из трех волн

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0 \exp(i\mathbf{k}_0 \mathbf{r}) + \mathbf{E}_s \exp(i\mathbf{k}_s \mathbf{r}) + \mathbf{E}_h \exp(i\mathbf{k}_h \mathbf{r}), \quad (1)$$

где  $E_0$ ,  $E_s$  и  $E_h$  — амплитуды падающей, зеркально отраженной и дифрагированной волн соответственно,  $|\mathbf{k}_0| = |\mathbf{k}_s| = |\mathbf{k}_h| = k_0$ , где  $k_0 = 2\pi/\lambda$  — длина волнового вектора в вакууме,  $\lambda$  — длина волны,  $k_{sz} = -k_{0z}$ .

Рентгеновская волна возбуждает в кристалле ( $z \geq 0$ ) когерентную суперпозицию проходящей и дифрагированной волн

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{D}_0 \exp(i\mathbf{q}_0 \mathbf{r}) + \mathbf{D}_h \exp(i\mathbf{q}_h \mathbf{r}), \quad (2)$$

где  $D_{0,h}$  — амплитуды,  $\mathbf{q}_0$  и  $\mathbf{q}_h = \mathbf{q}_0 + \mathbf{h}$  — волновые векторы проходящей и дифрагированной волн в кристалле соответственно,  $\mathbf{h}$  — вектор обратной решетки. В силу непрерывности тангенциальных (вдоль

поверхности кристалла) компонент волновых векторов падающей и преломленной волн волновой вектор в среде  $\mathbf{q}_0$  изменяется лишь вдоль нормали, т. е.

$$\mathbf{q}_0 = \mathbf{k}_0 + k_0 \varepsilon \mathbf{n}, \quad (3)$$

где вследствие малости рентгеновской поляризуемости  $\chi \sim 10^{-5}$  искомая величина аккомодации отвечает условию  $\varepsilon \ll 1$ .

Из уравнения Максвелла следует, что амплитуды  $D_0$ ,  $D_h$  в (2) и величина  $\varepsilon$  в (3) удовлетворяют следующей системе динамических уравнений [1,4]:

$$(\varepsilon^2 + 2\gamma_0 \varepsilon - \chi_0) D_0 - C \chi_{\bar{h}} D_h = 0, \quad (4.1)$$

$$(\varepsilon^2 + 2\gamma_{h0} \varepsilon - \chi_0 - \alpha) D_h - C \chi_h D_0 = 0, \quad (4.2)$$

где  $\gamma_0 = k_{0z}/k_0$ ,  $\gamma_{h0} = (\mathbf{k}_0 + \mathbf{h})_z/k_0$ ,  $\chi_g$  — Фурье-компоненты поляризуемости кристалла  $\chi(\mathbf{r})$  ( $g = 0, h, \bar{h}$ ),  $C = 1$  и  $\cos 2\vartheta$  для  $\sigma$ - и  $\pi$ -состояний поляризации излучения соответственно,  $\vartheta$  — угол между падающим излучением и отражающими атомными плоскостями, величина  $\alpha = 1 - (\mathbf{k}_0 + \mathbf{h})^2/k_0^2 = 2\Delta\vartheta \sin 2\vartheta_B$  характеризует отклонение угла дифракции  $\Delta\vartheta = \vartheta - \vartheta_B$  по отношению к точному углу Брэгга  $\vartheta_B$ , который определяется из соотношения  $h = 2k_0 \sin \vartheta_B$ . Если  $\varphi_0$  — скользкий угол падения излучения на кристалл, то

$$\gamma_0 = \sin \varphi_0, \quad \gamma_{h0} = \gamma_0 - \psi_B, \quad (5)$$

где  $\psi_B = 2 \sin \psi \sin \vartheta_B$  — эффективный параметр угла наклона отражающих плоскостей ( $\psi > 0$ ,  $h_z < 0$ ). Если  $\varphi_0, \psi \ll 1$ , то  $\gamma_0 \approx \varphi_0$ ,  $\psi_B \approx 2\psi \sin \vartheta_B$ .

Пусть  $\varphi_h$  — угол выхода дифрагированного излучения в вакуум по отношению к поверхности, тогда  $z$ -проекция  $k_{hz} = -k_0 \gamma_h$ , где  $\gamma_h = \sin \varphi_h$  ( $\varphi_h > 0$ ). Дифракционное отражение в область  $z < 0$  (геометрия Брэгга) реализуется при таких углах скольжения  $\varphi_0$ , что  $\gamma_0 < \psi_B$ , т. е.  $\gamma_{h0} < 0$  в (4) и (5). Угол выхода  $\varphi_h$  при заданных углах  $\varphi_0$  и  $\psi$  определяется выражением [16]

$$\gamma_h = (\gamma_{h0}^2 + \alpha)^{1/2}, \quad (6)$$

где условие  $\alpha > -\gamma_{h0}^2$  задает допустимые отклонения  $\Delta\vartheta$  от угла Брэгга. Обратная ситуация ( $\alpha < -\gamma_{h0}^2$ ), при которой дифрагированная волна очень быстро затухает в вакууме (см. [1–3]), здесь не рассматривается.

Система (4) имеет нетривиальное решение для амплитуд  $D_{0,h}$  при условии равенства нулю определителя этой системы

$$(\varepsilon^2 + 2\gamma_0 \varepsilon - \chi_0)(\varepsilon^2 + 2\gamma_{h0} \varepsilon - \chi_0 - \alpha) - C^2 \chi_h \chi_{\bar{h}} = 0. \quad (7)$$

Уравнение (7) является уравнением четвертой степени относительно величины  $\varepsilon$ . Следовательно, оно имеет четыре корня  $\varepsilon_j$  и внутри кристалла могут распространяться четыре проходящие и четыре дифрагированные волны с амплитудами  $D_{gj}$  ( $g = 0, h; j = 1, 2, 3, 4$ ). Простое аналитическое решение (7) имеется лишь в

случае  $\psi = 0$ , когда отражающие плоскости перпендикулярны поверхности кристалла. Действительно, при этом  $\gamma_{h0} = \gamma_0$  и уравнение (7) сводится к биквадратному. Дифракция рентгеновских лучей в этой геометрии подробно рассматривалась в работах [12–15]. В общем же случае возможно лишь численное решение дисперсионного уравнения (7). При этом в случае толстого кристалла следует выбирать только такие решения, для которых  $\text{Im } \varepsilon_j > 0$ . Анализ показывает [16], что в геометрии Брэгга данному условию удовлетворяют только два корня, которые мы обозначим как  $\varepsilon_1$  и  $\varepsilon_2$ .

Для определения амплитуд полей в (1) и (2) запишем условия непрерывности тангенциальных компонент электрических и магнитных полей на поверхности кристалла. Учтем при этом, что в случае скользких углов непрерывность магнитного поля эквивалентна непрерывности первой производной электрического поля по координате  $z$ . В итоге получим следующую систему из четырех уравнений:

$$\begin{aligned} E_0 + E_s &= D_{01} + D_{02}, \\ \gamma_0(E_0 - E_s) &= \Gamma_{01}D_{01} + \Gamma_{02}D_{02}, \\ E_h &= R_1D_{01} + R_2D_{02}, \\ -\gamma_h E_h &= \Gamma_{h1}R_1D_{01} + \Gamma_{h2}R_2D_{02}, \end{aligned} \quad (8)$$

где

$$\gamma_0 = \sin \varphi_0, \quad \gamma_h = \sin \varphi_h,$$

$$\Gamma_{0j} = \gamma_0 + \varepsilon_j, \quad \Gamma_{hj} = \gamma_{h0} + \varepsilon_j \quad (j = 1, 2). \quad (9)$$

При выводе (8) мы использовали связь  $D_{hj} = R_j D_{0j}$  между амплитудами дифрагированных и проходящих волн в кристалле, которая следует из (4.1), где

$$R_j = (\varepsilon_j^2 + 2\gamma_0\varepsilon_j - \chi_0)/C\chi_{\bar{h}}. \quad (10)$$

Решение системы (8) для амплитудных коэффициентов  $R_s = E_s/E_0$  зеркального и  $R_h = E_h/E_0$  брэгговского отражений имеет вид

$$R_s = \frac{\gamma_0 - \gamma_1}{\gamma_0 + \gamma_1}, \quad R_h = \frac{R_1 - \rho R_2}{1 - \rho}(1 - R_s), \quad (11)$$

где введены следующие обозначения:

$$\gamma_1 = \frac{\Gamma_{01} - \rho\Gamma_{02}}{1 - \rho}, \quad \rho = \frac{R_1(\gamma_h + \Gamma_{h1})}{R_2(\gamma_h + \Gamma_{h2})}. \quad (12)$$

Величины  $\gamma_{0,h}$  и  $\Gamma_{gj}$  определены в (9), а  $R_j$  — в (10). Сомножитель  $1 + R_s$  в выражении для  $R_h$  (11) в ясном виде учитывает влияние ЗО на дифракцию. Соотношения (11) с точностью до обозначений совпадают с соответствующими выражениями, полученными в работах [1,16], в которых, однако, основное внимание уделялось лишь анализу дифракционного отражения  $R_h$ .

Соотношения (11) и (12) представляют собой точное решение задачи о зеркальном и дифракционном отражении рентгеновских лучей от идеального монокристалла. Они справедливы для любых углов скольжения  $\varphi_0$  и выхода  $\varphi_h$  при  $\gamma_0 < \psi_B$  и любых допустимых отклонений  $\Delta\vartheta$  от точного угла Брэгга.

Рассмотрим некоторые частные предельные случаи. Если излучение падает на кристалл с большой угловой отстройкой  $\Delta\vartheta$  от области сильного дифракционного отражения, т.е. при  $|\alpha| \gg |\chi_h|$ , то парциальный коэффициент отражения  $R_1$  стремится к нулю. В этом случае из (12) следует, что  $\rho \rightarrow 0$  и  $\gamma_1 \rightarrow \gamma_0 + \varepsilon_1$ , где, как видно из (10) при  $R_1 = 0$ , величина  $\varepsilon_1 = \gamma_s - \gamma_0$ . Здесь  $\gamma_s = (\gamma_0^2 + \chi_0)^{1/2}$  при произвольных углах скольжения  $\varphi_0$ . В итоге получим, что коэффициент зеркального отражения (11) сводится к известной формуле Френкеля  $R_s = r_s = (\gamma_0 - \gamma_s)/(\gamma_0 + \gamma_s)$ . Дифракционное отражение отсутствует, так как  $R_h \rightarrow R_1 = 0$ .

Рассмотрим теперь случай, когда угол скольжения  $\varphi_0$  много больше критического угла ПВО  $\varphi_c = |\text{Re}\chi_0|^{1/2}$ . Их анализа (7) с учетом малости поляризуемости  $\chi_h$  можно показать, что в области углов  $\varphi_{0,h} \gg \varphi_c$  корни дисперсионного уравнения (7) сильно различаются по величине:  $\varepsilon_1 \ll \varepsilon_2$ , где  $\varepsilon_2 \approx |\gamma_{h0}| + (\gamma_h^2 + \chi_0)^{1/2} \approx 2|\gamma_{h0}| + (\alpha + \chi_0)/2|\gamma_{h0}|$ , а  $\text{Re } \varepsilon_1 \sim \chi_{0r}/2\gamma_0 \ll \gamma_0$ . Отсюда следует, что  $R_1 \ll R_2$  (см. (10)),  $\gamma_h + \Gamma_{h1} \ll \gamma_h + \Gamma_{h2}$  в (12), т.е.  $\rho \ll 1$  и  $\gamma_1 \approx \gamma_0 + \varepsilon_1$ , а при вычислении  $\varepsilon_1$  можно пренебречь квадратичными по  $\varepsilon_1$  слагаемыми в (4) и (7). Эти же результаты вытекают и из точного численного решения уравнения (7). Поскольку  $\text{Im } \varepsilon_2 \ll \text{Im } \varepsilon_1$ , то поле с амплитудой  $D_{02}$  аномально глубоко проникает в кристалл. Поскольку в нашем случае  $\varepsilon_1 \ll \gamma_0$ , то  $R_s \ll 1$ , поэтому можно пренебречь влиянием зеркального отражения на процесс дифракции. В то же время особенности поведения суммарного волнового поля (2) в кристалле в области сильного дифракционного отражения кардинальным образом сказываются на угловой зависимости зеркального отражения. В итоге из (11) и (12) получим, что амплитудные коэффициенты зеркального и дифракционного отражений примут следующий простой вид:

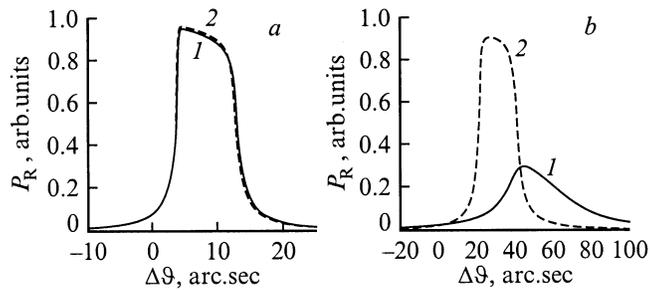
$$R_s = -\frac{\varepsilon_1}{2\gamma_0 + \varepsilon_1}, \quad R_h = \frac{2\gamma_0\varepsilon_1 - \chi_0}{C\chi_{\bar{h}}}, \quad (13)$$

где

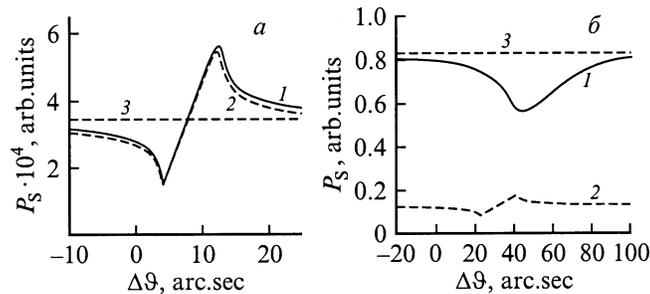
$$\begin{aligned} \varepsilon_1 &= (1/4\gamma) \left\{ \chi_0(1-b) - \alpha b \right. \\ &\quad \left. \pm [(\chi_0(1+b) + \alpha b)^2 - 4C^2b\chi_h\chi_{\bar{h}}]^{1/2} \right\}, \end{aligned} \quad (14)$$

$b = -\gamma_0/\gamma_{h0}$  — коэффициент асимметрии брэгговского отражения ( $b > 0$ ), знак в (14) выбирается из условия  $\text{Im } \varepsilon_1 > 0$ . Поскольку  $\varepsilon_1 \ll \gamma_0$ , угловая зависимость зеркального отражения  $R_s(\Delta\vartheta)$  определяется главным образом поведением функции  $\varepsilon_1(\Delta\vartheta)$ .

Этот же результат для  $R_s$  (13) можно получить и из более простых соображений. Действительно, поскольку при достаточно больших углах скольжения зеркальное отражение слабо влияет на процесс дифракции и в кристалле распространяется только одна сильная волна, вместо (8) можно записать более простые соотношения:  $E_0 + E_s = D_{01}$ ,  $\gamma_0(E_0 - E_s) = (\gamma_0 + \varepsilon_1)D_{01}$ , откуда непосредственно следует выражение (13) для  $R_s$ .



**Рис. 1.** Кривые дифракционного отражения от идеального кристалла в зависимости от угловой отстройки  $\Delta\vartheta$  от угла Брэгга при углах скольжения  $\varphi_0 = 50'$  (a) и  $13'$  (b), рассчитанные согласно точной (кривые 1) и приближенной теорий (кривые 2). Отражение Si(220),  $\text{CuK}\alpha$ -излучение,  $\psi = 4^\circ$ .



**Рис. 2.** Угловые зависимости кривых зеркального отражения от идеального кристалла при углах скольжения  $\varphi_0 = 50'$  (a) и  $13'$  (b). 1 — результаты точной теории, 2 — приближенная теория, 3 — зеркальное отражение без учета дифракции; Si(220),  $\text{CuK}\alpha$ ,  $\psi = 4^\circ$ .

На рис. 1 и 2 приведены соответственно кривые дифракционного отражения  $P_R = (\gamma_h/\gamma_0)|R_h|^2$  и кривые зеркального отражения  $P_S = |R_s|^2$ , рассчитанные для отражения (220)  $\text{CuK}\alpha$ -излучения от монокристалла кремния с углом скоса  $\psi = 4^\circ$  при различных углах скольжения  $\varphi_0$ . Сплошные кривые 1 рассчитаны в рамках точной теории (11), основанной на численном решении общего уравнения четвертой степени (7), а штриховые кривые 2 — на основе приближенных соотношений (13). Как видно из рис. 1, a и 2, a, кривые отражения, построенные при помощи точной и приближенной теорий для угла скольжения  $\varphi_0 = 50'$ , который почти в 4 раза превышает критический угол ПВО  $\varphi_c = 13.38'$ , практически совпадают. Расчеты показывают, что при углах скольжения  $\varphi_0 \geq (2-3)\varphi_c$  можно пользоваться более простой теорией.

При меньших углах  $\varphi_0 \leq (1-2)\varphi_c$  различие в кривых отражения становится значительным (рис. 1, b и 2, b) и приближенная теория дает неверный результат. Так, при большом отклонении  $\Delta\vartheta$  от угла Брэгга кривая ЗО должна асимптотически стремиться к соответствующему френелевскому значению, вычисленному без учета дифракции. Такое асимптотическое поведение имеет место

только для кривой ЗО, построенной по точной теории. В то же время при  $|\alpha| \gg |\chi_h|$  из (14) следует, что  $\varepsilon_1 \approx \chi_0/2\gamma_0$ . Подстановка этого выражения в  $R_s$  (13) приводит к соотношению  $R_s \approx -\chi_0/4\gamma_0^2$ , справедливому лишь в области достаточно больших углов скольжения.

Отличительной особенностью ЗО в условиях дифракции является ярко выраженная аномалия в угловой зависимости  $P_s(\Delta\vartheta)$ , имеющая вид кривой дисперсионного типа с минимумом и максимумом вблизи углов дифракции  $\Delta\vartheta_{1,2} = \Delta\vartheta_0 \mp \Delta\vartheta_B$ , соответствующих краям области полного дифракционного отражения, где

$$\Delta\vartheta_0 = -\chi_0(1+b)/(2b \sin 2\vartheta_B),$$

$$\Delta\vartheta_B = C|\chi_h|/(b^{1/2} \sin 2\vartheta_B).$$

Впервые такое anomalous поведение ЗО обсуждалось в работе [4]. Отметим, что примерно такой же вид имеют кривые выхода вторичных излучений  $I_{SP} \sim 1 + |R_h|^2 + 2\sigma_i \text{Re} R_h$  с малой глубиной выхода по сравнению с длиной экстинкции  $L_{ex} = \lambda(\gamma_0|\gamma_{h0}|)^{1/2}/\pi C|\chi_h|$ , где  $\sigma_i = C|\chi_{hi}|/\chi_{0i}$ ,  $\chi_{gi} = \text{Im} \chi_{gi}$  [1,4,21]. Аналогия становится более явной, если величину  $\varepsilon_1$  в (13) выразить через коэффициент дифракционного отражения. Тогда амплитуда зеркального отражения

$$R_s \approx -(\chi_0/4\gamma_0^2)(1 + \sigma R_h), \quad (15)$$

где  $\sigma = C\chi_h/\chi_0$ . Как и в методе стоячих рентгеновских волн [1], второй сомножитель в (15) характеризует амплитуду полного поля на поверхности кристалла. Однако в отличие от  $\sigma_i$  величина  $\sigma$  для ЗО в (15) определяется отношением комплексных поляризуемостей  $\chi_h$  и  $\chi_0$ , а не их мнимых частей.

Наличие минимума и максимума на кривой ЗО  $P_s(\Delta\vartheta)$  (15) вызвано тем, что в области дифракционного отражения величина  $P_h \approx 1$ , а фаза  $R_h$  почти линейно меняется от  $\pi$  при  $\Delta\vartheta = \Delta\vartheta_1$  до нуля при  $\Delta\vartheta = \Delta\vartheta_2$ . При этом  $R_h(\Delta\vartheta_{1,2}) \approx \mp b^{1/2}$ . В случае малых углов скольжения ( $\gamma_0 \ll \psi_B$ ) коэффициент асимметрии отражения  $b \ll 1$ . С увеличением угла  $\varphi_0$ , когда  $\gamma_0 \approx \psi_B$ , величина  $b \gg 1$ , поэтому контраст кривой ЗО  $P_s$  возрастает. Одновременно с этим уменьшаются ширина КДО и угловая область аномалии на кривой ЗО.

Глубина проникновения поля в условиях зеркального отражения при больших углах скольжения  $L_s \gg L_{ex}$ , где  $L_s = \lambda/(2\pi \text{Im} \gamma_s)$ , поэтому формирование преломленной волны и поля ЗО в области сильного дифракционного отражения определяется когерентной суперпозицией проходящей и дифрагированной волн. В отличие от этого в области малых углов  $\varphi_0 \leq \varphi_c$  глубина проникновения поля  $L_s \leq L_{ex}$ , т.е. она определяется главным образом явлением ПВО. Дифракционное отражение формируется в более тонком слое и приближается к кинематическому, что приводит к уменьшению максимума КДО и к ее уширению (кривая 1 на рис. 1, b). Кривая зеркального отражения при этом также сильно сглаживается и имеет

вид неглубокого минимума (кривая 1 на рис. 2, b). Так, для параметров, которые использовались при расчетах кривых на рис. 1 и 2, глубины  $L_s = 1.9 \mu\text{m}$ ,  $L_{ex} = 0.1 \mu\text{m}$ ,  $b = 0.35$  и  $L_s = 0.03 \mu\text{m}$ ,  $L_{ex} = 0.08 \mu\text{m}$ ,  $b = 0.07$  при углах скольжения  $\varphi_0 = 50$  и  $13'$  соответственно.

## 2. Кристалл с аморфной пленкой

Рассмотрим теперь отражение рентгеновских лучей от кристалла, на поверхности которого имеется однородная аморфная пленка с произвольной толщиной  $d$  и поляризуемостью  $\chi_1$ . Поля в вакууме и кристалле определяются соотношениями (1) и (2) соответственно. Поле в пленке в общем случае состоит из четырех волн:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{A}_0 \exp(i\mathbf{a}_0\mathbf{r}) + \mathbf{A}_s \exp(i\mathbf{a}_s\mathbf{r}) + \mathbf{B}_0 \exp(i\mathbf{b}_0\mathbf{r}) + \mathbf{B}_s \exp(i\mathbf{b}_s\mathbf{r}), \quad (16)$$

где  $A_{0,s}$  — амплитуды проходящей и зеркально отраженной волн в пленке, возбужденных падающим излучением,  $B_{s,0}$  — амплитуды проходящей и зеркально отраженной волн, возбужденных в пленке брэгговской волной, выходящей в эту пленку из кристалла. Из условий непрерывности волновых векторов для тангенциальных компонент следует, что  $a_{0t} = a_{st} = k_0 \cos \varphi_0$ ,  $b_{0t} = b_{st} = k_0 \cos \varphi_h$ . Нормальные компоненты при этом имеют вид:  $a_{0z} = -a_{sz} = k_0 s_0$ ,  $b_{0z} = -b_{sz} = k_0 s_h$ , где

$$s_0 = (\gamma_0^2 + \chi_1)^{1/2}, \quad s_h = (\gamma_h^2 + \chi_1)^{1/2}. \quad (17)$$

Условия непрерывности электрического и магнитного полей на верхней и нижней границах пленки приводят к следующей системе из восьми уравнений для амплитуд волн в (1), (2) и (16). На границе вакуум–пленка

$$E_0 + E_s = A_0 + A_s, \quad \gamma_0(E_0 - E_s) = s_0(A_0 - A_s), \\ E_h = B_0 + B_s, \quad -\gamma_h E_h = s_h(B_0 - B_s). \quad (18.1)$$

На границе пленка–подложка

$$A_0 f_0 + A_s f_s^{-1} = \sum_j D_{0j} f_{0j}, \\ s_0(A_0 f_0 - A_s f_0^{-1}) = \sum_j \Gamma_{0j} D_{0j} f_{0j}, \\ B_0 f_h + B_s f_h^{-1} = \sum_j R_j D_{0j} f_{hj}, \\ s_h(B_0 f_h - B_s f_h^{-1}) = \sum_j \Gamma_{hj} R_j D_{0j} f_{hj}, \quad (18.2)$$

где  $j = 1, 2$ ,  $f_g = \exp(ik_0 s_g d)$ ,  $f_{gj} = \exp(ik_0 \Gamma_{gi} d)$  — коэффициенты, которые учитывают изменение фазы волн и их поглощение при распространении в пленке.

Решение системы (18) для амплитудных коэффициентов зеркального и дифракционного отражений можно представить в следующем компактном виде, удобном для анализа:

$$R_s = \frac{r_0 + Q_0 f_0^2}{1 + r_0 Q_0 f_0^2}, \quad R_h = \frac{R_1 - \rho_d R_2}{1 - \rho_d} (1 + R_s) F, \quad (19)$$

где

$$Q_0 = \frac{s_0 - \gamma_1}{s_0 + \gamma_1}, \quad \gamma_1 = \frac{\Gamma_{01} - \rho_d \Gamma_{02}}{1 - \rho_d},$$

$$\rho_d = \frac{R_1(s_h + \Gamma_{h1} Q_h)}{R_2(s_h + \Gamma_{h2} Q_h)},$$

$$Q_h = \frac{1 - r_h f_h^2}{1 + r_h f_h^2}, \quad r_g = \frac{\gamma_g - s_g}{\gamma_g + s_g}, \quad (g = 0, h),$$

$$F = \frac{1 - r_h}{1 - r_h f_h^2} \frac{1 + Q_0}{1 + Q_0 f_0^2} \exp[ik_0(s_0 + s_h - \psi_B)d].$$

Здесь  $s_g = (\gamma_g^2 + \chi_1)^{1/2}$ ,  $r_{0,h}$  — френелевские коэффициенты отражения от полубесконечной среды с поляризуемостью пленки  $\chi_1$  при углах скольжения  $\varphi_0$  и  $\varphi_h$  соответственно.

Как и в предыдущем разделе, рассмотрим вначале некоторые частные случаи. Если  $d = 0$  (пленка отсутствует), то  $f_g, f_{g,j} = 1$ ,  $F = 1$ ,  $\rho_d = \rho$  и общие формулы (19) сводятся к (11) для идеального кристалла. В случае толстой пленки ( $k_0 \text{Im} s_0 d \gg 1$ ) факторы поглощения стремятся к нулю ( $f_0 \rightarrow 0$ ,  $F \rightarrow 0$ ), поэтому дифракция отсутствует ( $R_h = 0$ ), а зеркальное отражение  $R_s = r_0$  определяется френелевским коэффициентом отражения от среды с поляризуемостью пленки  $\chi_1$ .

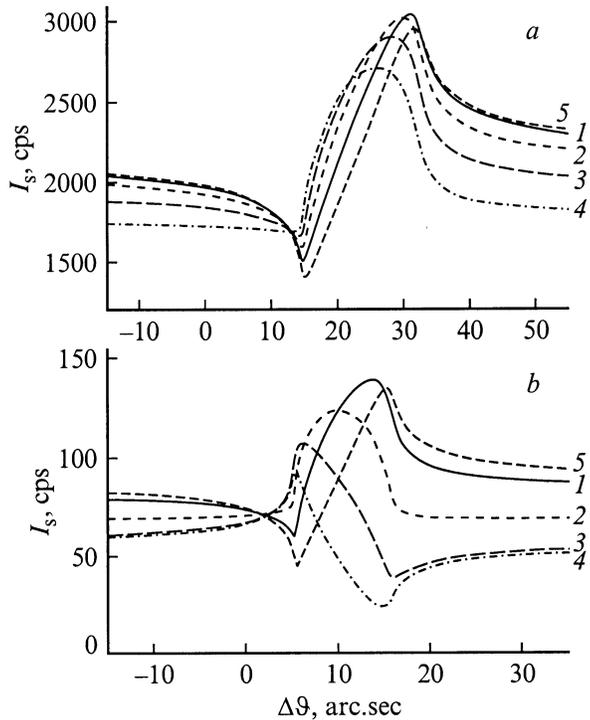
Если  $|\alpha| \gg |\chi_h|$  (пренебрежимо слабая дифракция), то  $\rho_d \ll 1$  (см. раздел 2),  $\gamma_1 = (\gamma_0^2 + \chi_0)^{1/2}$  и мы приходим к известной формуле Эйри [22], описывающей толщинные осцилляции на кривой зеркального отражения от системы пленка–подложка,

$$R_s = (r_0 + r_1 f_0^2) / (1 + r_0 r_1 f_0^2), \quad (20)$$

где  $r_1 = (s_0 - \gamma_s) / (s_0 + \gamma_s)$  — френелевский коэффициент отражения от границы пленка–подложка,  $\gamma_s = (\gamma_0^2 + \chi_0)^{1/2}$ . Если  $\chi_1 = \chi_0$ , т.е. рентгенооптические плотности пленки и подложки совпадают, то  $r_1 = 0$ ,  $r_0 = r_s$ , и из (20) следует, что  $R_s = r_s$ . Иными словами, вдали от области дифракции зеркальное отражение от такой системы пленка–подложка, образно говоря, ”не замечает” присутствия пленки на поверхности кристалла. В то же время, как показано будет далее, в условиях дифракции угловая зависимость ЗО от этой же системы весьма сильно отличается от ЗО от кристалла без пленки (рис. 4).

Наиболее интересная ситуация реализуется при углах скольжения  $\varphi_{0,h} > \varphi_c$ . В этом случае кривые зеркального отражения демонстрируют уникально высокую чувствительность к наличию очень тонкого аморфного слоя на поверхности, толщина которого может составлять единицы нанометров.

На рис. 3 показаны кривые интенсивности зеркального отражения  $I_s = |R_s|^2 I_0$ , где  $I_0$  — интенсивность падающего рентгеновского пучка, от монокристалла кремния с аморфной пленкой  $\text{SiO}_2$  на поверхности при различных толщинах пленки и разных углах скольжения ( $\text{CuK}\alpha$ -излучение, отражение (220),  $\psi = 4^\circ$ ). Для окисной пленки кремния критический угол ПВО равен



**Рис. 3.** Влияние толщины аморфной пленки на угловые аномалии в интенсивности зеркального отражения. Угол скольжения  $\varphi_0$  (arc.min): *a* — 20, *b* — 40. Толщина пленки  $d$  (nm): 1 — 1, 2 — 2, 3 — 3, 4 — 4, 5 — 0 (идеальный кристалл). Интенсивность падающего излучения  $I_0 = 10^5$  cps, пленка  $\text{SiO}_2$ , отражение (220),  $\text{CuK}_\alpha$ -излучение,  $\psi = 4^\circ$ .

12.67'. Из рис. 3 видно, что поведение кривых ЗО весьма заметным образом зависит от наличия пленки и от ее толщины. Более ярко эта зависимость проявляется при увеличении угла скольжения (сравни кривые на рис. 3, *b* и 3, *a*). Впервые на возможность использования ЗО для анализа структуры тончайших приповерхностных слоев было указано в обзоре [4] (метод "зеркальной метки"), в котором, однако, отсутствует подробное теоретическое рассмотрение этого интересного явления. Кривые ЗО в целом близки к кривым выхода фотоэлектронов и флуоресцентного излучения из тонких слоев, в связи с чем зеркально отраженную волну можно рассматривать как один из каналов вторичного излучения [4]. Несмотря на то что при углах скольжения  $\varphi_0 > \varphi_c$  коэффициент ЗО очень мал, тем не менее интенсивность этого отражения может быть достаточно высокой и значительно (на 1–3 порядка при прочих равных условиях) превышать скорость счета фотоэлектронов или флуоресцентных квантов в методе стоячих рентгеновских волн.

Оценим отношение интенсивности флуоресцентного излучения  $P_F$  из пленки к интенсивности ЗО  $P_s = \chi_{1i}^2 / 16\gamma_0^4$  на ближнем участке хвоста кривой ПВО ( $\varphi_0 \sim (2-4)\varphi_c$ ). Поскольку  $P_F$  определяется величиной поглощенной энергии в пленке с толщиной  $d$ , то  $P_F \approx (ck_0\chi_{1i}d/\gamma_0\beta)(\Delta\Omega/4\pi)$ , где  $\chi_{1i}$  — мнимая часть

поляризуемости пленки,  $c$  — относительная концентрация атомов, флуоресцентное излучение которых регистрируется,  $\beta$  — коэффициент электронной конверсии,  $\Delta\Omega$  — телесный угол регистрации. В итоге получим, что

$$P_F/P_s \approx 8c\beta^{-1}(d/\lambda)(\gamma_0^3\chi_{1i}/\chi_{1i}^2)\Delta\Omega.$$

Если, например,  $d \approx 1$  nm,  $\lambda \approx 0.1$  nm,  $\beta \sim 10-50$ ,  $c \approx 0.5$ ,  $\Delta\Omega \approx 2\pi$  и угол скольжения  $\varphi_0 \sim 2\varphi_c$ , то для типичных значений поляризуемости  $|\chi_{1i}| \sim 10^{-5}$  и  $\chi_{1i} \sim 0.02|\chi_{1i}|$  получим, что  $P_F/P_s \sim 3 \times (10^{-3}-10^{-2})$ , т.е. интенсивность зеркально отраженной волны более чем на 1–2 порядка превышает интенсивность выхода рентгеновской флуоресценции. Именно с этим обстоятельством связаны ожидаемые перспективы по использованию метода "зеркальной метки".

При углах скольжения  $\varphi_{0,h} > \varphi_c$  из общих соотношений (19) можно получить более простое приближенное выражение для коэффициента зеркального отражения  $R_s$ . Поскольку в этом случае  $\rho_d \ll 1$ , то  $\gamma_1 = \varphi_0 + \varepsilon_1$ , следовательно,

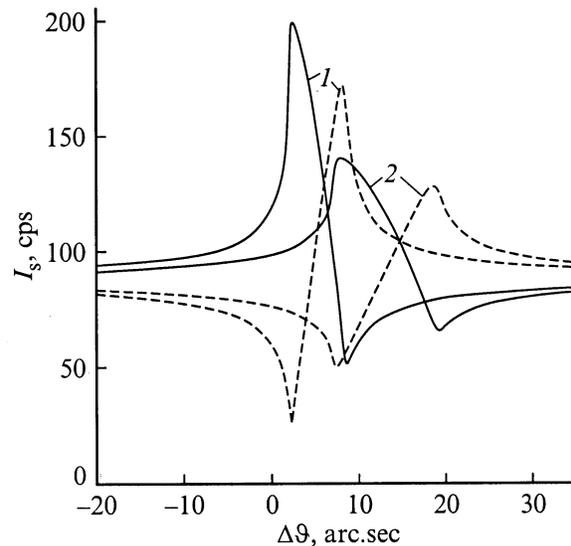
$$R_s \approx (r_0 + R_e)/(1 + r_0R_e), \quad (21)$$

где

$$R_e = (\chi_{1i} - 2\varphi_0\varepsilon_1) \exp(2ik_0s_0d) / [2\varphi_0(2\varphi_0 + \varepsilon_1)].$$

Здесь  $r_0 \approx -\chi_{1i}/4\varphi_0^2$ ,  $s_0 \approx \varphi_0 + \chi_{1i}/2\varphi_0$ .

Чувствительность кривых ЗО к наличию аморфной пленки на поверхности кристалла объясняется тем, что в области сильного дифракционного отражения



**Рис. 4.** Влияние угла наклона атомных плоскостей  $\psi$  на угловую зависимость интенсивности зеркального отражения от кристалла с пленкой (сплошные линии) и от идеального кристалла (штриховые линии). Толщина пленки аморфного кремния  $d = 3$  nm, угол скольжения  $\varphi_0 = 40'$ , угол наклона  $\psi = 2^\circ$  (1) и  $5^\circ$  (2). Интенсивность пучка  $I_0 = 10^5$  cps,  $\text{Si}(220)$ ,  $\text{CuK}_\alpha$ .

резко изменяется зеркальное отражение от границы пленка–кристалл. Действительно, вне области дифракции  $\varepsilon_1 \approx \chi_0/2\varphi_0$  и величина  $R_e$  в (21) пропорциональна разности поляризуемостей  $\chi_1 - \chi_0$ , тогда как в области дифракции поляризуемость кристалла  $\chi_0$  заменяется на эффективную поляризуемость  $2\varphi_0\varepsilon_1(\Delta\vartheta)$ , причем  $\text{Im}(\varepsilon_1) \gg \chi_{0i}/2\varphi_0$ . В итоге  $R_e \neq 0$  даже в случае равенства поляризуемостей  $\chi_1 = \chi_0$  пленки и подложки и, кроме этого, резко возрастает также и роль фазового фактора  $\exp(2ik_0s_0d)$ , зависящего от толщины пленки.

На рис. 4 представлены кривые ЗО в случае пленки аморфного кремния на поверхности монокристалла кремния ( $\chi_1 = \chi_0$ ) при двух различных углах скоса  $\psi$ . Видно, что чувствительность зеркального отражения к наличию пленки увеличивается с уменьшением угла  $\psi$ . Расчеты показывают, что кривые ЗО от идеального кристалла и от кристалла с пленкой отличаются на 10–30% даже в случае сверхтонких пленок с толщиной  $\sim 0.5$  nm.

Основная трудность для практической реализации данного метода заключается в необходимости достаточно высокой коллимации падающего излучения как по углу скольжения ( $\delta\varphi \sim 1'$ ), так и по углу дифракции ( $\delta\vartheta \sim 1''$ ). Требуемые условия на расходимость рентгеновских лучей в горизонтальной плоскости могут быть достигнуты путем использования резко асимметричного монохроматора с коэффициентом асимметрии  $b \sim 1/40$ , а в вертикальной плоскости — за счет использования микрофокусных трубок и узких щелей на выходе коллиматора (см. работы [1,18] и приведенные в них ссылки).

### 3. Основные результаты и выводы

Таким образом, в настоящей работе развита точная динамическая теория зеркального отражения рентгеновских лучей от кристалла с аморфной пленкой в условиях резко асимметричной некомпланарной брэгговской дифракции, т. е. теория, основанная на решении полного дисперсионного уравнения четвертой степени. Задачи дифракции и зеркального отражения решены в самом общем виде, и полученные результаты справедливы для всего интервала углов скольжения падающего пучка и углов выхода дифрагированного излучения. На основе развитой теории показано, что угловая зависимость интенсивности зеркального отражения обладает высокой чувствительностью к наличию и толщине тонкой (единицы нанометров) аморфной пленки на поверхности кристалла. Задача легко обобщается на случай ЗО от неоднородной пленки с произвольным распределением электронной плотности по глубине с помощью введения системы рекуррентных соотношений, обобщающих известные формулы Паррата.

Интенсивность зеркального отражения достаточно высока для проведения экспрессного анализа тонких приповерхностных и переходных слоев. Чувствительность метода к толщине пленки составляет примерно 0.5 nm и повышается с увеличением угла скольжения, однако при

этом уменьшается интенсивность отраженного сигнала. Наиболее оптимальными являются углы скольжения в области от 1.5 до 3–4 критических углов полного внешнего отражения. При меньших углах скольжения чувствительность резко снижается. На практике более предпочтительно использовать кристаллы с углом наклона отражающих плоскостей на уровне 1–5°. Использование излучения с длиной волны 0.15–0.2 nm снижает требования к коллимации излучения и к угловому разрешению метода.

Рассмотренный в работе метод показывает возможность проведения неразрушающего анализа структуры сверхтонких поверхностных слоев и границ раздела по данным зеркального отражения в условиях брэгговской дифракции.

Авторы признательны Р.М. Имамову за стимулирующие и полезные обсуждения проблемы и основных результатов настоящей работы.

### Список литературы

- [1] А.М. Афанасьев, П.А. Александров, Р.М. Имамов. Рентгенодифракционная диагностика субмикронных слоев. Наука, М. (1989). 152 с.
- [2] А.В. Андреев. УФН **145**, 1, 113 (1985).
- [3] М.А. Андреева, С.Ф. Борисова, С.А. Степанов. Поверхность. Физика, химия, механика **4**, 5 (1985).
- [4] А.М. Афанасьев, Р.М. Имамов. Кристаллография **40**, 3, 446 (1995).
- [5] P. Farwig, H.W. Schurmann. Z. Phys. **204**, 2, 489 (1967).
- [6] S. Kishino. J. Phys. Soc. Japan. **31**, 6, 1168 (1971).
- [7] T. Bedynska. Phys. Stat. Sol. (a) **19**, 1, 365 (1973).
- [8] S.F. Rustichelli. Phil. Mag. **31**, 1, 1 (1975).
- [9] J. Hartwig. Phys. Stat. Sol. (a) **37**, 2, 417 (1976).
- [10] В.Г. Барышевский. Письма в ЖТФ **2**, 3, 112 (1976).
- [11] W.C. Marra, P. Eisenberger, A.Y. Cho. J. Appl. Phys. **50**, 11, 6927 (1979).
- [12] А.М. Афанасьев, М.К. Melkonyan. Acta Cryst. **A39**, 2, 207 (1983).
- [13] П.А. Александров, М.К. Мелконян, С.А. Степанов. Кристаллография **29**, 2, 376 (1984).
- [14] P.A. Aleksandrov, A.M. Afanasiev, M.K. Melkonyan, S.A. Stepanov. Phys. Stat. Sol. (a) **81**, 1, 47 (1984).
- [15] П.А. Александров, А.М. Афанасьев, С.А. Степанов. Поверхность. Физика, химия, механика **8**, 9 (1984).
- [16] П.А. Александров, А.М. Афанасьев, С.А. Степанов. Кристаллография **29**, 2, 197 (1984).
- [17] P.A. Aleksandrov, A.M. Afanasiev, S.A. Stepanov. Phys. Stat. Sol. (a) **86**, 1, 143 (1984).
- [18] А.М. Афанасьев, С.М. Афанасьев, А.В. Есаян, Ф.Р. Хашимов. Поверхность. Физика, химия, механика **12**, 35 (1988).
- [19] А.М. Afanasiev, O.G. Melikyan. Phys. Stat. Sol. (a) **122**, 2, 459 (1990).
- [20] А.М. Afanasiev, A.V. Esayan. Phys. Stat. Sol. (a) **126**, 2, 303 (1991).
- [21] В.А. Бушуев, Р.Н. Кузьмин. Вторичные процессы в рентгеновской оптике. Изд-во МГУ, М. (1990). 112 с.
- [22] М. Борн, Э. Вольф. Основы оптики. Наука, М. (1973). 719 с.