



РЕНТГЕНОВСКАЯ РЕФЛЕКТОМЕТРИЯ ПОВЕРХНОСТЕЙ МОНОКРИСТАЛЛОВ, НАНОКОМПЗИТНЫХ И ОКИСНЫХ ПЛЕНОК

Д. ф.-м. н.
А. П. Петраиков

Выпускник Сыктывкарского
государственного
Д. В. Садовников

В настоящее время в дополнение к хорошо разработанным и широко применяемым методам исследования веществ при помощи рентгеновских лучей — рентгеноструктурному, рентгеноспектральному анализам и малоугловому рассеянию, стал развиваться метод рентгеновской рефлектометрии (РР), позволяющий решать некоторые специфические задачи, недоступные для других методов [1].

Этот метод позволяет с высокой точностью оценить физические и геометрические свойства приповерхностной области твердых и жидких тел, а также тонких пленок, наносимых различными способами на подложки [2—5]. В основе РР лежит измерение отражательной способности в интервале малых углов скольжения (вблизи полного внешнего отражения — ПВО) [6].

Наибольшее развитие получил интегральный метод, с помощью которого можно определить такие параметры, как плотность материала, среднеквадратичную высоту шероховатости поверхности и толщину пленки, нанесенной на гладкую поверхность.

Также широко используются исследования поверхности на основе дифференциальных кривых рентгеновской рефлектометрии. Угловое распределение коэффициента отражения определяется диэлектрической постоянной вещества и характеристиками поверхности.

Целью данной работы являлось установление зависимости шероховатости поверхности монокристаллов NaCl от времени травления, нанокompозитных пленок на основе железа и алюминия $(Fe_{40}Co_{40}Zr_{20})_x(Al_2O_3)_{100-x}$ от их состава (x), окисных пленок SiO₂ и Ta₄O₅ от условий анодного окисления. Толщина пленок определялась рефлектометрическим методом. Теоретическая интегральная кривая строилась по формуле [7]

$$R(\Theta) = \left| \frac{(s_0 - s_1 Q)}{(s_0 + s_1 Q)} \right|^2 f_1^2, \quad (1)$$

где

$$Q = \frac{1}{1+a}, \quad a = \frac{s_1 - s_2}{s_1 + s_2} f_2 \exp(i),$$

Θ — угол поворота образца; $s_0 = \sin \Theta$; $s_{1,2} = (s_0^2 + \chi_{1,2})^{1/2}$; $\chi_{1,2}$ — реальная часть поляризуемости пленки и подложки соответственно; $f_{1,2} = \exp[0.5(q_{1,2}\sigma_{1,2})^2]$ — факторы ослабления; $q_1 = 2ks_0$; $q_2 = 2kRes_1$; $k = 2\pi/\lambda$; λ — длина волны падающего излучения ($\lambda = 1.54 \text{ \AA}$); $\sigma_{1,2}$ — среднеквадратичная высота шероховатости пленки и подложки соответственно; $\varphi = 2ks_1 d$. Величина Q зависит от толщины пленки d и описывает интерференцию волн. В частности, если пленка отсутствует, то $Q = 1$. Толщина пленки приравнивается к нулю, а ее поляризуемость к соответствующей величине подложки.

Образцы монокристаллов NaCl для исследования получали скалыванием. Поверхность монокристаллов, совпадавшая с плоскостью (100), травилась в дистиллированной воде в течение 5, 15, 35, 60 и 120 секунд. Полученные значения σ приведены в табл. 1, а снятые экс-

периментально и построенные теоретические рефлектограммы показаны на рис. 1.

На поверхности монокристалла после скалывания имелась шероховатость величиной $\sigma = 20 \text{ \AA}$. После 5 с травления высота шероховатости возросла за счет большего растворения приповерхностных дефектов кристалла, которые образовались, возможно, во время скалывания. Это явление наблюдалось вплоть до 35 с травления, в дальнейшем высоты шероховатости снизилась, что указывает на уменьшении количества дефектов по мере продвижения в глубь кристалла. Неизменность высоты шероховатости во временном интервале травления 60—120 с свидетельствует о равномерном распределении дефектов в объеме.

В качестве гранулированных композитов металл-диэлектриков, представляющих собой наноразмерные (2—10 нм) металлические частицы, распределенные в диэлектрической матрице, была взята гранулированная аморфная пленка $(Fe_{40}Co_{40}Zr_{20})_x(Al_2O_3)_{100-x}$, где x — содержание металла в образце. Нанокластеры сплава $Fe_{40}Co_{40}Zr_{20}$, хаотично распреде-

Таблица 1

Зависимость среднеквадратичной высоты шероховатости поверхности монокристалла от времени травления поверхности

Время травления, с	0	5	15	35	60	120
$\sigma, \text{ \AA}$	20±1	23±1	26±1	29±1	20±1	21±1

Таблица 2

Зависимость физических свойств нанокompозитной пленки от ее состава

x	Критический угол, угл. мин	d, \AA	$\sigma, \text{ \AA}$	$\rho, \text{ г/см}^3$
30	17.31	260±7	16±2	3.989
40	18.5	220±7	12±1	4.556
52	20.08	190±7	10±1	5.373
63	19.99	170±7	10±1	5.373

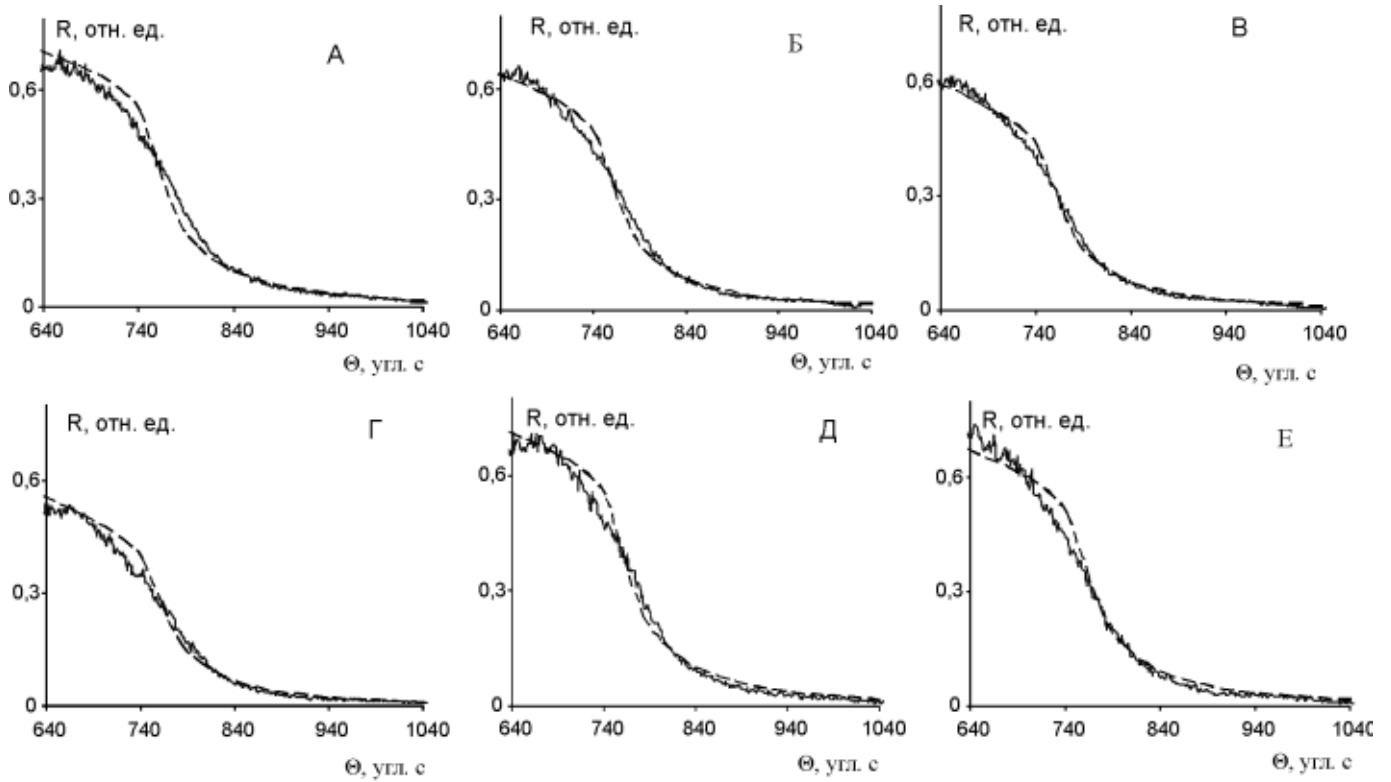


Рис. 1. Интегральные кривые рентгеновской рефлектометрии монокристаллов NaCl: А — сколотого кристалла, Б — протравленного в течение 5 с, В — 15 с, Г — 35 с, Д — 60 с, Е — 120 с. Сплошные линии — экспериментальные данные, пунктирные — теоретические

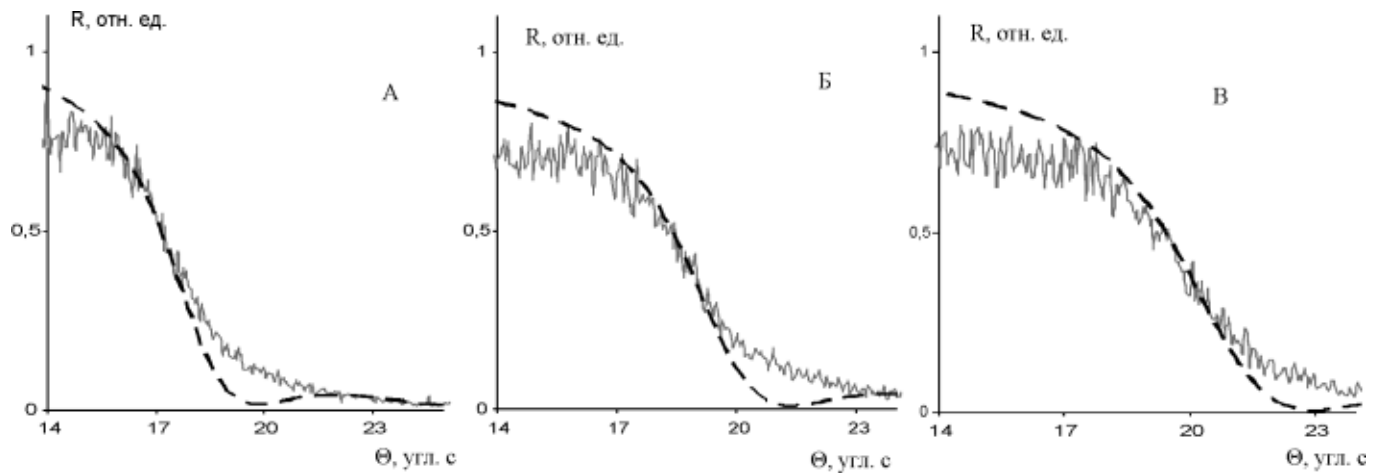


Рис. 2. Интегральные кривые рентгеновской рефлектометрии нанокompозитной пленки $(\text{Fe}_{40}\text{Co}_{40}\text{Zr}_{20})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$: А — при $x = 30$, Б — при $x = 40$, В — при $x = 52$ и 60. Сплошные линии — экспериментальные данные, пунктирные — теоретические

ленные в изолирующей аморфной матрице Al_2O_3 , были получены методом ионно-лучевого напыления в атмосфере аргона. Для этого использовались составные мишени ферромагнетика и диэлектрика, напыление производилось на неохлаждаемые подложки из ситала. Полученные таким способом образцы представляли собой пленки толщиной 0.15—6.5 мкм. Из табл. 2 видим, что каждому значению x соответствует свой критический угол.

Увеличение угла связано с возрастанием плотности. Плотность пленки, оцененная по положению критическо-

го угла, составила 3.99 и 4.56 г/см³ для $x = 32$ и 40 %, и 5.37 г/см³ для $x = 52$ и 63 %. Критический угол определялся по положению точки с интенсивностью, равной половине максимальной. Плотность пленки при минимальных значениях x немного превышала плотность Al_2O_3 (3.96 г/см³). По мере увеличения металлической фазы до 52 % плотность пленки возрастала. Прекращение повышения плотности с увеличением x наблюдалось в области выше порога перколяции (45÷50 %).

Для исследования окисных пленок были взяты две пленки SiO_2 , полученные путем анодного окисления при раз-

ной плотности тока ($j_1 = 2 \text{ мА/см}^2$, $j_2 = 10 \text{ мА/см}^2$) и одинаковом напряжении $U = 70 \text{ В}$.

Как видно на рис. 3 и в табл. 3, у окисной пленки SiO_2 , полученной при плотности тока j_2 , среднеквадратичная высота шероховатости больше, чем у пленки, образовавшейся при j_1 , незначительно отличается толщина пленки. Можно сделать вывод, что при большей плотности тока поверхность пленки сильно отличается от идеальной.

Окисная пленка SiO_2 имеет высоту среднеквадратичной шероховатости меньше, если ее окислять при ма-

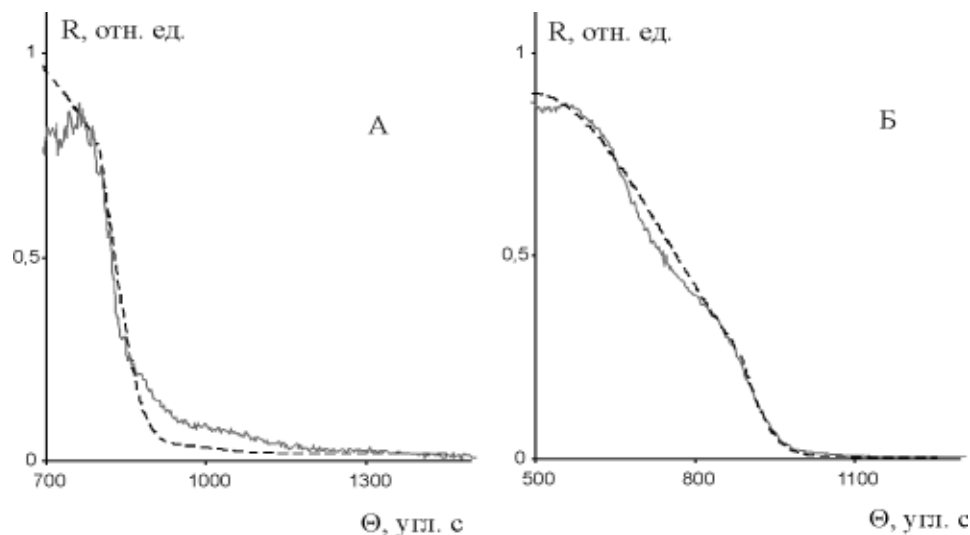


Рис. 3. Интегральные кривые рентгеновской рефлектометрии окисной пленки SiO₂: А — пленка при j₂ = 10 мА/см², Б — пленка при j₁ = 2 мА/см². Сплошные линии — экспериментальные данные, пунктирные — теоретические

Таблица 3

Зависимость физических свойств окисной пленки SiO₂ от величины плотности тока при анодном окислении

Плотность тока, мА/см ²	Критический угол, угл. с	d, Å	σ _{пленки} , Å	ρ, г/см ³
2	835	250±7	20±2	2.75
10	774	220±7	35±4	2.65

лой плотности тока, возможно, при этом уменьшается влияние неровностей поверхности. Так же при малой плотности тока анодного окисления плотность пленки по глубине более равномерна.

Для исследования окисных пленок Ta₄O₅ были взяты две пленки, полученные при анодном окислении с разным напряжением (U₁ = 50 В, U₂ = 80 В).

У пленок Ta₄O₅ по сравнению с пленками SiO₂ сильно отличается их толщина. Из рис. 4 видно, что критический угол у интегральной кривой рентгеновской рефлектометрии, снятой у пленки, окисленной при напряжении U₁ = 50, значительно больше, чем у пленки, окисленной при напряжении U₂ = 80.

Толщина окисной пленки Ta₄O₅ сильно зависит от напряжения анодного окисления. С ростом напряжения критический угол смещается в сторону больших углов, что указывает на возрастание плотности пленки. Величина напряжения не влияет на высоту шероховатости пленки.

Литература

1. Sinha S. K., Sirota E. B., Garoff S., Stanley H. B. X-ray and neutron scattering from rough surfaces // Phys. Rev. B, 1988. V. 38. № 4. P. 2297—2311.
2. Петраков А. П. Рентгеновские рефлектометрические исследования нефтяных дисперсных систем // Поверхность, 2003. № 12. С. 75—77.
3. Петраков А. П., Крайнев А. А. Восстановление микрогеометрии поверхности по данным рентгеновской рефлектометрии // Зав. лаб. Диаг. мат., 2003. Т. 69, № 8. С. 26—31.
4. Петраков А. П. Метод рентгеновской рефлектометрии и его применение для исследования лазерного испарения окисной пленки с поверхности кремния // ЖТФ, 2003. Т. 73. В. 4. С. 129—134.
5. Петраков А. П., Голубев Е. А. Рентгеновская рефлектометрия фуллереносодержащих углеродных пленок // Поверхность, 2000. № 9. С. 15—16.
6. Андреев А. В. Рентгеновская оптика поверхности // УФН, 1985. Т. 145. В. 1. С. 113—136.
7. Бушуев В. А., Петраков А. П. Рентгеновская рефлектометрия пленок бора, полученных лазерным напылением на кремниевые подложки // Сб. докл. Национальной конференции по применению рентгеновского и синхротронного излучений, нейтронов и электронов. Т. II. Дубна, 1997. С. 188—193.

Таблица 4

Зависимость физических свойств окисной пленки Ta₄O₅ от величины напряжения при анодном окислении

Напряжение, В	Критический угол, угл. с	d, Å	σ _{пленки} , Å	ρ, г/см ³
50	1800	1000±20	22±2	11,7
80	1390	700±10	21±2	8,71

Рис. 4. Интегральные кривые рентгеновской рефлектометрии окисной пленки Ta₄O₅: А — пленка при U₁ = 50 В, Б — пленка при U₂ = 80 В. Сплошные линии — экспериментальные данные, штриховые — расчетные