

09

Отражение рентгеновского излучения от изогнутого многослойного зеркала

© В.И. Пунегов

Физико-математический институт ФИЦ „Коми научный центр УрО РАН“, Сыктывкар, Россия

E-mail: vpunegov@dm.komisc.ru

Поступило в Редакцию 25 апреля 2023 г.

В окончательной редакции 22 мая 2023 г.

Принято к публикации 22 мая 2023 г.

Разработан новый теоретический метод для расчетов отражения рентгеновского излучения от изогнутого многослойного зеркала. Выполнено численное моделирование карт дифрагированной интенсивности от такого зеркала в обратном пространстве, а также кривых отражения в зеркальном и незеркальном направлениях.

Ключевые слова: изогнутое многослойное рентгеновское зеркало, картографирование отраженной интенсивности, двумерные рекуррентные соотношения.

DOI: 10.21883/PJTF.2023.14.55825.19605

Картографирование интенсивности рентгеновского рассеяния в обратном пространстве (*X-ray reciprocal space mapping*, RSM) широко применяется для исследования дефектов [1] и наноструктур [2] в кристаллах. В случае многослойных систем карты RSM измерялись с использованием жесткого [3] и экстремального ультрафиолетового излучения [4] с целью получения информации о межслойных шероховатостях. Методы численных расчетов были разработаны исключительно для диффузного рассеяния как от кристаллов, так и от многослойных структур. При этом когерентное рассеяние, существенно превышающее диффузную компоненту, либо не учитывали [1,3,4], либо учитывали, беря в расчет инструментальную функцию [2]. В настоящее время разработаны вычислительные методы картографирования интенсивности когерентного рассеяния в обратном пространстве с использованием двумерных рекуррентных соотношений (ДРС) [5,6] и уравнений Такаги–Топена [7]. Недавно показано, что ДРС и уравнения Такаги–Топена в случае динамической дифракции рентгеновских лучей в совершенном кристалле идентичны и полностью совпадают при переходе от дискретно-слоистой структуры к модели периодической среды с непрерывной электронной плотностью [8]. При этом было установлено, что численные расчеты на основе ДРС всегда устойчивы, в то время как вычисления с применением уравнений Такаги–Топена в ряде случаев дают неустойчивые решения.

Изогнутые многослойные рентгеновские зеркала (МРЗ) разной формы кривизны поверхности в отличие от планарных аперiodических многослойных систем [9] относятся к латеральным градиентным структурам [10]. Отметим, что упругий изгиб кристаллов может быть реализован путем механического воздействия, в то время как МРЗ создаются нанесением

многослойных покрытий на подложки с искривленным профилем поверхности. При этом, как правило, используется метод магнетронного напыления. Ранее полученные двумерные рекуррентные соотношения, так же как широко используемые одномерные рекуррентные соотношения Парратта [11], применяются исключительно для планарных периодических структур [5,6], а для расчетов отражения от изогнутых МРЗ неприменимы.

В настоящей работе на основе волновой оптики с использованием ДРС предлагается новый подход для вычисления дифракции рентгеновского излучения изогнутыми многослойными зеркалами. С этой целью двумерные рекуррентные соотношения [5,6] обобщены на случай деформированных периодических структур. С использованием модифицированных ДРС разработан алгоритм для расчетов карт RSM и их сечений в вертикальном (зеркальном) и латеральном (незеркальном) направлениях в зависимости от радиуса кривизны изогнутого МРЗ. Практически все работы по отражению рентгеновских лучей от изогнутых МРЗ связаны с исследованиями фокусировки излучения. Настоящая работа посвящена не фокусировке, а развитию нового теоретического подхода к неразрушающей рентгенодифракционной диагностике изогнутых многослойных структур.

Двумерные рекуррентные соотношения впервые были получены для описания динамической дифракции рентгеновских лучей в латеральном кристалле прямоугольного сечения [5]. Эти соотношения для проходящей T и дифрагированной S волны в совершенной планарной периодической структуре имеют вид

$$\begin{aligned} T_{n+1}^{m+1} &= (aT_n^m + b_1S_n^m) \exp(i\varphi), \\ S_{n-1}^{m+1} &= (aS_n^m + b_2T_n^m) \exp(i\varphi), \end{aligned} \quad (1)$$

где

$$a = 1 - iq_0, \quad b_1 = -i\bar{q}, \quad b_2 = -iq, \quad q_0 = -\pi\chi_0 d / (\lambda\gamma_0),$$

$$q = C\pi\chi_1 d / (\lambda\gamma_0), \quad \bar{q} = C\pi\chi_{\bar{1}} d / (\lambda\gamma_0),$$

d — период структуры, λ — длина волны рентгеновского излучения, C — фактор поляризации рентгеновских лучей, $\gamma_0 = \sin\theta_B$, θ_B — угол Брэгга. Коэффициент $\varphi = \frac{2\pi d}{\lambda \sin\theta_B}$ в ДРС учитывает разность фаз, возникающую при распространении рентгеновского пучка в периодической структуре от одного узла до другого на сетке для численных расчетов.

Для многослойной структуры с двухслойным периодом фурье-коэффициенты рентгеновской поляризуемости для проходящей волны χ_0 , дифракционной волны χ_1 и дифракционной волны в направлении прохождения $\chi_{\bar{1}}$ запишутся как

$$\chi_0 = \frac{\chi_t d_t + \chi_b d_b}{d}, \quad \chi_1 = \frac{\chi_t - \chi_b}{\pi} \sin\left(\pi \frac{d_t}{d}\right),$$

$$\chi_{\bar{1}} = \frac{\chi_t - \chi_b}{\pi} \sin\left(\pi \frac{d_b}{d}\right),$$

где $\chi_{t,b}$ и $d_{t,b}$ — фурье-коэффициенты поляризуемостей и толщины верхнего (t) и нижнего (b) слоев периода структуры.

ДРС (1) записаны в прямоугольной системе координат, в которой ось x направлена вдоль входной поверхности планарного МРЗ, ось z направлена в глубину структуры. В двумерной периодической сетке ось z разбивается на равные отрезки d , соответствующие периоду планарного МРЗ (рис. 1). Отрезки пронумерованы сверху вниз как $1, 2, \dots, n, \dots, N_z$, где N_z соответствует расположению периода на нижней границе многослойной структуры, а n задает номер узла в вертикальном направлении. Тогда ось x разобьется на отрезки $\Delta x = d \cot\theta_B$, где θ_B — угол Брэгга для падающего рентгеновского пучка. Положения этих отрезков имеют нумерацию $1, 2, \dots, m, \dots, M_x$, где m — номер узла в горизонтальном направлении, а M_x — число узлов в этом направлении.

При переходе от планарной периодической системы к деформированной структуре в общем случае узлы (m, n) смещаются вдоль горизонтального и вертикального направлений. Пусть узел с координатами (m, n) в планарном МРЗ задается вектором $\mathbf{r}_{m,n}$, а с координатами $(m+1, n+1)$ — вектором $\mathbf{r}_{m+1,n+1}$. Тогда вектор $\Delta\mathbf{r}_{m+1,n+1}$ между этими узлами в направлении проходящей рентгеновской волны равен $\Delta\mathbf{r}_{m+1,n+1} = \mathbf{r}_{m+1,n+1} - \mathbf{r}_{m,n}$ (рис. 1). Соответственно вектор $\Delta\mathbf{r}_{m+1,n-1}$ из узла (m, n) в направлении узла дифракционной волны $(m+1, n-1)$ запишется как $\Delta\mathbf{r}_{m+1,n-1} = \mathbf{r}_{m+1,n-1} - \mathbf{r}_{m,n}$. В случае деформированной периодической структуры узлы смещаются, например

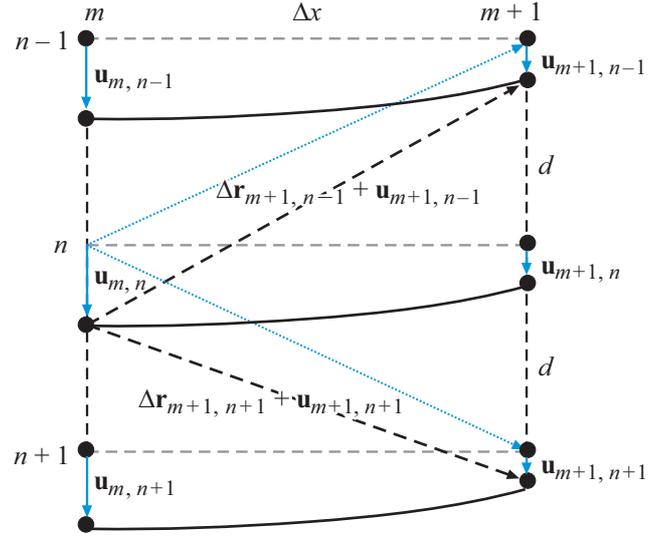


Рис. 1. Схематическое изображение расположения узлов изогнутого МРЗ. Участок сетки в виде штриховых линий относится к планарной многослойной структуре с периодом d . Пунктирные стрелки соответствуют векторам $\Delta\mathbf{r}_{m+1,n+1}$ (направление проходящей волны) и $\Delta\mathbf{r}_{m+1,n-1}$ (направление дифракционной волны) для планарной многослойной структуры. Штриховыми стрелками показаны направления проходящей и дифракционной волны в изогнутом МРЗ.

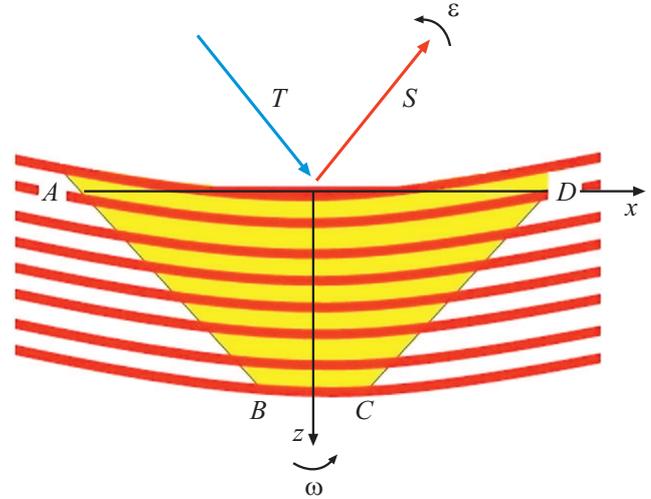


Рис. 2. Схематическое изображение дифракции рентгеновских лучей от изогнутого МРЗ. T — амплитуда падающего пучка, S — амплитуда отраженного (дифрагированного) пучка, ω — угол поворота изогнутого МРЗ, ε — угол поворота анализатора.

для (m, n) на вектор $\mathbf{u}_{m,n}$, что приводит к замене расположения узлов:

$$\mathbf{r}_{m,n} \rightarrow \mathbf{r}_{m,n} + \mathbf{u}_{m,n}, \quad \mathbf{r}_{m+1,n+1} \rightarrow \mathbf{r}_{m+1,n+1} + \mathbf{u}_{m+1,n+1}$$

и

$$\mathbf{r}_{m+1,n-1} \rightarrow \mathbf{r}_{m+1,n-1} + \mathbf{u}_{m+1,n-1}.$$

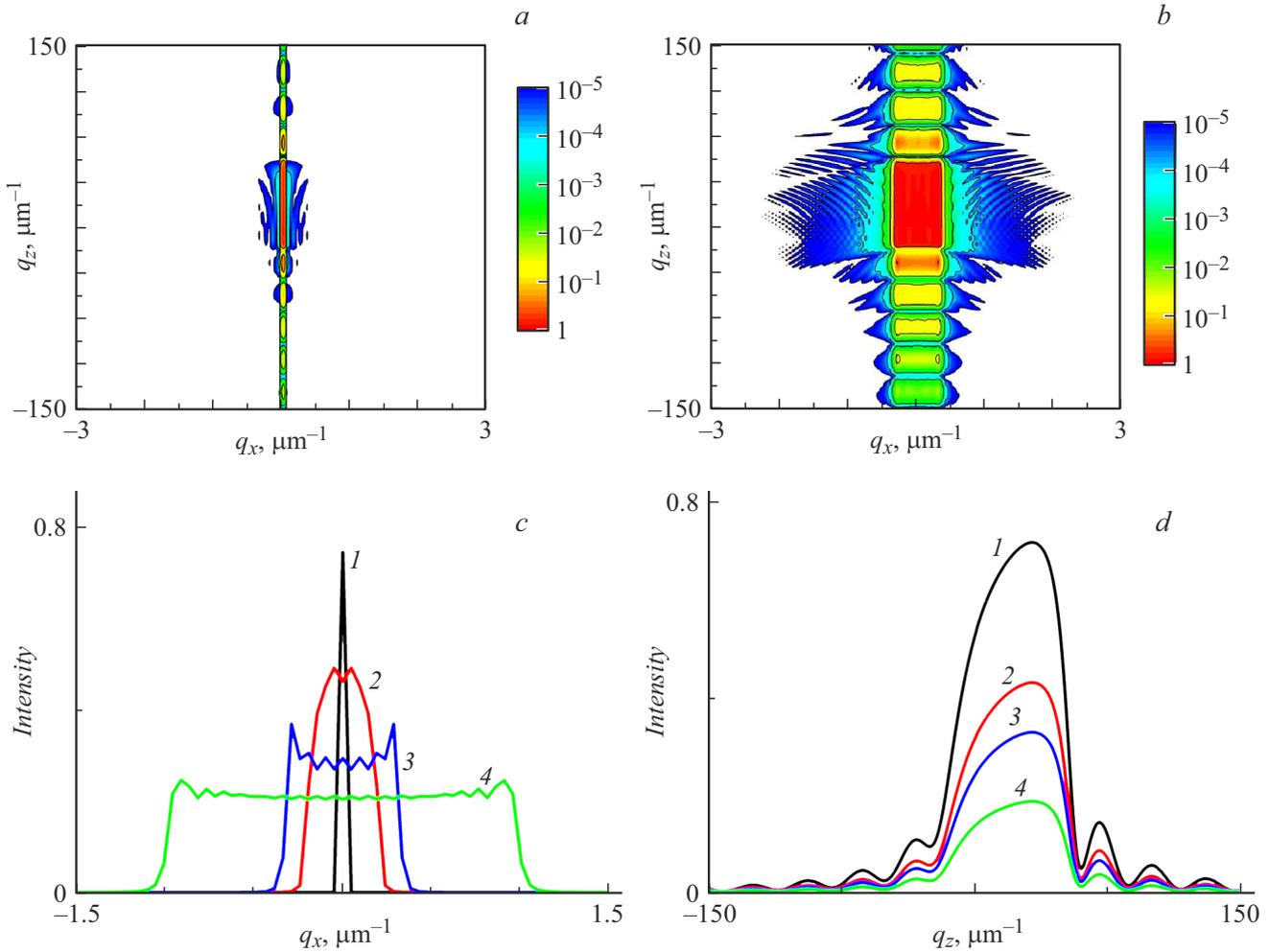


Рис. 3. Расчетные карты RSM от МРЗ Pd/B₄C (*a* — планарная многослойная структура; *b* — изогнутое МРЗ, радиус изгиба 3 м). *c, d* — кривые отражения от МРЗ Pd/B₄C в латеральном (незеркальном) и вертикальном (зеркальном) направлениях соответственно. 1 — планарная многослойная структура, 2 — радиус изгиба $R = 5$ м, 3 — $R = 3$ м, 4 — $R = 1$ м. Поперечная ширина падающего рентгеновского излучения составляет $80 \mu\text{m}$.

Поэтому претерпят изменения фазовые множители в ДРС (1)

$$\begin{aligned} T_{n+1}^{m+1} &= (aT_n^m + b_1S_n^m) \exp(i\varphi_0), \\ S_{n-1}^{m+1} &= (aS_n^m + b_2T_n^m) \exp(i\varphi_1), \end{aligned} \quad (2)$$

где

$$\begin{aligned} \varphi_0 &= \mathbf{k}_0 \Delta \mathbf{r}_{m+1, n+1} + \mathbf{k}_0 (\mathbf{u}_{m+1, n+1} - \mathbf{u}_{m, n}) \\ &= \varphi + \mathbf{k}_0 (\mathbf{u}_{m+1, n+1} - \mathbf{u}_{m, n}), \\ \varphi_1 &= \varphi + \mathbf{k}_1 (\mathbf{u}_{m+1, n-1} - \mathbf{u}_{m, n}), \end{aligned}$$

$\mathbf{k}_{0,1}$ — волновые векторы падающей и отраженной рентгеновской волны. ДРС (2) описывают дифракционное отражение от многослойной структуры с произвольным пространственным изменением периода. Для простоты рассмотрим цилиндрически изогнутое МРЗ, в котором величина смещения узла (m, n) запишется как

$$u_{m, n} = \mathbf{u}_{m, n} \mathbf{n} = -(\Delta x m)^2 / (2R), \quad (3)$$

где \mathbf{n} — нормаль к поверхности планарной периодической структуры, R — радиус кривизны цилиндрически изогнутого МРЗ. На рис. 1 показаны векторы смещения узлов цилиндрически изогнутого МРЗ, направленные вниз вдоль оси z . Для конкретного столбца узлов, например с номером m , величина смещений одинакова для каждого номера n в вертикальном направлении.

На примере отражения рентгеновского излучения (энергия фотонов 2.5 keV, длина волны $\lambda = 0.5$ nm) от изогнутого МРЗ Pd/B₄C с толщинами слоев $d_{\text{Pd}} = 2$ nm и $d_{\text{B}_4\text{C}} = 2$ nm [12] выполнено численное моделирование картографирования интенсивности рассеяния в обратном пространстве в зависимости от радиуса изгиба многослойной системы.

Подложка с изогнутым профилем поверхности может быть аморфной (стеклянной) или монокристаллической (кремниевой). Отражение рентгеновского излучения от аморфной среды отсутствует. Период решетки монокристаллической подложки, как правило, на порядок

меньше, чем одномерный период МРЗ. Поскольку одновременное выполнение закона Брэгга для структур с существенно разными периодами маловероятно, разумно предположить, что и от монокристаллической подложки рентгеновское отражение отсутствует. Влияние подложки в численных расчетах не учитывалось.

Угол Брэгга для многослойного рентгеновского зеркала с периодом $d = 4 \text{ nm}$ составляет 3.6° . Фурье-коэффициенты поляризуемостей слоев МРЗ равны

$$\chi_{\text{Pd}} = (-0.58 + i0.05) \cdot 10^{-3},$$

$$\chi_{\text{В}_4\text{С}} = (-0.16 + i0.001) \cdot 10^{-3}.$$

МРЗ состоит из пятидесяти периодов, его толщина равна $0.2 \mu\text{m}$. Глубина первичной экстинкции для многослойной структуры Pd/В₄С составляет $0.073 \mu\text{m}$.

На рис. 2 изображена схема для расчета картографирования интенсивности отражения от изогнутого МРЗ применительно к трехосевой дифрактометрии. Углы поворота образца (изогнутого МРЗ) ω и анализатора ε связаны с проекциями q_x и q_z вектора $\mathbf{q} = \mathbf{Q} - (2\pi/d)\mathbf{n}$ соотношениями

$$q_x = (2\pi/\lambda) \sin \theta_{\text{В}}(2\omega - \varepsilon),$$

$$q_z = -(2\pi/\lambda) \cos \theta_{\text{В}}\varepsilon,$$

где $\mathbf{Q} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_0$ — вектор дифракции.

Для падающего рентгеновского пучка с поперечной шириной $80 \mu\text{m}$ размер засветки поверхности МРЗ (длина AD на рис. 2) составляет $L_x = \Delta x d = 1.3 \text{ mm}$. Дифракционное рентгеновское поле пространственно ограниченной волны в изогнутом многослойном зеркале преимущественно формируется внутри трапеции ABCD при условии равенства размеров падающего и дифрагированного пучков [8]. Процедура вычислений карт RSM с использованием ДРС изложена в [5,8].

На рис. 3 показаны расчетные карты RSM от планарного и изогнутого МРЗ Pd/В₄С с радиусом изгиба $R = 3 \text{ m}$. Контуры равной интенсивности приведены в логарифмическом масштабе, коэффициент отражения от планарной многослойной структуры равен 0.7. Угловое распределение дифрагированной интенсивности от изогнутого МРЗ нормировано умножением на коэффициент 50. На рис. 3, c и d показаны кривые отражения от МРЗ Pd/В₄С в латеральном (незеркальном) и вертикальном (зеркальном) направлениях соответственно. С уменьшением радиуса кривизны (увеличением латеральной деформации) q_x -сечения карт RSM уширяются (рис. 3, c). Профили q_z -сечений карт по форме не изменяются, поскольку период МРЗ остается постоянным. Отметим, что профиль q_z -сечения планарной многослойной структуры Pd/В₄С совпадает с кривой отражения, показанной в [11].

В настоящей работе в рамках модели цилиндрически изогнутого многослойного рентгеновского зеркала показана процедура расчета углового распределения

интенсивности когерентного рассеяния в обратном пространстве. Ранее карты RSM от МРЗ измерялись с применением жесткого [3] и мягкого [4] рентгеновского излучения с целью изучения особенностей диффузного рассеяния на межслойных шероховатостях. В численных расчетах [3,4] более интенсивная когерентная составляющая не учитывалась, что в какой-то степени усложняло получение данных о структурных характеристиках многослойных систем. Более адекватная информация о строении МРЗ извлекается вычислением интенсивности полного рассеяния с учетом когерентной и диффузной компонент.

Разработанный подход может быть использован и для анализа рентгеновского отражения от МРЗ с разной геометрией изгиба структуры, в частности с эллиптической [10], параболической [13] и гиперболической формой кривизны [14]. Для таких многослойных структур матричные элементы смещения узлов $u_{m,n}$ будут изменяться как в латеральном, так и в вертикальном направлении согласно профилю изгиба МРЗ.

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 23-22-00062 (<https://rscf.ru/project/23-22-00062/>).

Конфликт интересов

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] P.F. Fewster, N.L. Andrew, J. Phys. D: Appl. Phys., **28**, A97 (1995). DOI: 10.1088/0022-3727/28/4A/019
- [2] В.И. Пунегов, УФН, **185** (5), 449 (2015). DOI: 10.3367/UFNr.0185.201505a.0449 [V.I. Punegov, Phys. Usp., **58**, 419 (2015). DOI: 10.3367/UFNe.0185.201505a.0449].
- [3] E. Majkova, Y. Chushkin, M. Jergel, S. Luby, V. Holy, I. Matko, B. Chenevier, L. Toth, T. Hatano, M. Yamamoto, Thin Solid Films, **497**, 115 (2006). DOI: 10.1016/j.tsf.2005.10.051
- [4] A. Haase, V. Soltwisch, S. Braun, C. Laubis, F. Scholze, Opt. Express, **25**, 15441 (2017). DOI: 10.1364/OE.25.015441
- [5] V.I. Punegov, S.I. Kolosov, K.M. Pavlov, Acta Cryst. A, **70**, 64 (2014). DOI: 10.1107/S2053273313030416
- [6] V.I. Punegov, S.I. Kolosov, K.M. Pavlov, J. Appl. Cryst., **49**, 1190 (2016). DOI: 10.1107/S1600576716008396
- [7] V.I. Punegov, K.M. Pavlov, A.V. Karpov, N.N. Falceev, J. Appl. Cryst., **50**, 1256 (2017). DOI: 10.1107/S1600576717010123
- [8] V.I. Punegov, S.I. Kolosov, J. Appl. Cryst., **55**, 320 (2022). DOI: 10.1107/S1600576722001686
- [9] C. Morawe, E. Ziegler, J.-C. Peffen, I.V. Kozhevnikov, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, **493**, 189 (2002). DOI: 10.1016/S0168-9002(02)01570-X

- [10] H. Mimura, T. Kimura, H. Yumoto, H. Yokoyama, H. Nakamori, S. Matsuyama, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, **635**, S16 (2011). DOI: 10.1016/j.nima.2010.11.047
- [11] L.G. Parratt, Phys. Rev., **95**, 359 (1954). DOI: 10.1103/PhysRev.95.359
- [12] N. An, X. Du, Q. Wang, Z. Cao, S. Jiang, Y. Ding, Proc. SPIE, **9211**, 92110I (2014). DOI: 10.1117/12.2060772
- [13] M. Schuster, H. Gobel, J. Phys. D: Appl. Phys., **28**, A270 (1995). DOI: 10.1088/0022-3727/28/4A/053
- [14] S. Matsuyama, J. Yamada, K. Hata, Y. Kohmura, M. Yabashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi, Microsc. Microanal., **24**, 284 (2018). DOI: 10.1017/S1431927618013764