

06

Анизотропия дифракционных характеристик тонких пленок пиролитического графита

© А.Г. Турьянский, С.С. Гижа, В.М. Сенков

Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва

E-mail: algeo-tour@yandex.ru

Поступило в Редакцию 13 февраля 2013 г.

Исследованы полярные диаграммы и локальные дифракционные характеристики тонких пленок из высокоориентированного пиролитического графита (ВПГ), используемого для монохроматизации излучения и рентгеновской спектрометрии. Измерения проводились с помощью двухволнового рентгеновского рефлектометра. При угловом азимутальном сканировании исходных пленок ВПГ рентгеновским зондом с площадью сечения $< 0.1 \text{ mm}^2$ наблюдалась резкая анизотропия коэффициента дифракционного отражения. Показана возможность подавления влияния анизотропии, и обоснованы условия применения пленок ВПГ в качестве дисперсионного элемента для схем рентгеновской томографии и мэппирования, а также для исследования спектров по единичному импульсу рентгеновского лазера.

Рентгеновские монохроматоры из высокоориентированного пиролитического графита (ВПГ) широко используются в экспериментальной технике и аналитическом оборудовании для фокусировки и монохроматизации рентгеновских пучков, а также для рентгеноспектральных измерений [1–5]. В последнее время благодаря улучшению технологии получения ВПГ в кристаллографическом направлении [001], перпендикулярном базовой плоскости графита, достигнут размер кристаллических блоков $D \sim 1 \mu\text{m}$ [6]. Это принципиально обеспечивает получение с помощью ВПГ в спектральной области $\lambda > 0.1 \text{ nm}$ достаточно высокого спектрального разрешения $\lambda/\Delta\lambda = 10^3 - 10^4$. Однако вследствие малости величины линейного коэффициента ослабления μ графита при прохождении излучения через монохроматор происходит объемное размытие зоны дифракционного отражения, что не позволяет достичь расчетных характеристик спектрального разрешения. Для устранения указанного эффекта при спектрометрических измерениях и выделения

узкой спектральной полосы в [1,2] предложено использовать пленки ВПГ толщиной $t \leq 50 \mu\text{m}$. Поскольку для пленок с углом мозаичности $\Delta\omega < 20'$ пиковый коэффициент отражения может достигать величины $(0.6-0.7R_v)$, где R_v — пиковый коэффициент отражения для объемных монокроматоров, это обеспечивает высокую эффективность спектрометрических измерений. Пленочные ВПГ-монокроматоры позволяют также получить достаточно высокое пространственное разрешение, которое определяется шириной сечения зондирующего пучка и величиной геометрического уширения вследствие конечной толщины пленки $\Delta s \sim t / \tan \theta_B$ (θ_B — брэгговский угол дифракции). Минимизация указанных параметров требуется при монохроматизации отраженных и рассеянных пучков в различных системах сканирования с двухкоординатным приемником и регистрации угловых и пространственных распределений рентгеновского излучения. Однако для эффективного практического применения пленок ВПГ в указанных областях экспериментальной техники необходимы также данные о локальном распределении дифракционных характеристик и азимутальные зависимости коэффициента отражения.

В данной работе впервые проведены сравнительные измерения интегральных и локальных полярных диаграмм дифракционного отражения от пленок ВПГ. Рассмотрены также условия применения пленок ВПГ для импульсных измерений узкополосных рентгеновских спектров и пространственных распределений интенсивности на заданной спектральной линии.

Измерения проводились с помощью двухволнового рентгеновского рефлектометра CompeXRay (производство NEM Center) на спектральных линиях CuK_α (0.154 nm) и CuK_β (0.139 nm). Использование двух спектральных линий позволяло исключить инструментальные эффекты, возникающие при азимутальном сканировании в результате ошибки позиционирования образца. Объектами исследования являлись тонкие пленки ВПГ, толщиной 12 и $50 \mu\text{m}$, изготовленные фирмой Optigraph. В качестве источника излучения использовалась острофокусная рентгеновская трубка с размером рабочей проекции фокуса $8 \text{ mm} \times 20 \mu\text{m}$. Расстояние фокус—ось гониометра и минимальная ширина зондирующего пучка составляли соответственно 300 mm и $90 \mu\text{m}$. Для проведения локальных измерений у поверхности образца устанавливалась щелевая диафрагма шириной $50 \mu\text{m}$. Полярные диаграммы регистрировались путем вращения образца вокруг оси, нормальной к плоскости его

поверхности, при фиксированном положении приемной щели для дифракционного рефлекса (002), соответствующего первому порядку отражения для структуры графита. Кривые для линии CuK_β приведены с масштабирующим множителем 2.

На рис. 1, *a* приведены полярные диаграммы интегральной интенсивности дифракционного рефлекса (002) на линиях CuK_α и CuK_β от пленки ВПГ толщиной $50\ \mu\text{m}$. Отметим, что термин интегральная интенсивность означает в рассматриваемом случае, что при измерении выполняется условие $S \gg s$, где S и s — соответственно площади облучаемой зоны при облучении ленточным пучком шириной $8\ \text{mm}$ и зондом, созданным скрещенно расположенными щелями. С учетом геометрического фактора облучаемая площадь образца при интегральных измерениях составляет $2.5\ \text{mm}^2$.

Отношение максимального значения интенсивности I_{max} к минимальному I_{min} в полном диапазоне изменения азимутального угла составляет 5:1. Однако в достаточно широком диапазоне азимутального угла χ $180\text{--}270^\circ$ относительное среднеквадратичное изменение интенсивности отражения σ_r составляет 10%. Основные особенности полярной диаграммы $I(\chi)$ на линии CuK_α повторяются на линии CuK_β . Наблюдаемые вариации интенсивности отраженного излучения, очевидно, связаны с наличием в образце разориентированных относительно друг друга кристаллических макроблоков. При этом в пределах выбранной зоны облучения статистического усреднения параметров текстуры ВПГ не происходит. Отметим, что угловая диаграмма качания образца $I(\theta)$, регистрируемая при фиксированном угле дифракции $2\theta_{\text{в}} = \text{const}$, значительно менее чувствительна к изменению азимутального угла χ , поскольку при измерении $I(\theta)$ не сказывается изменение центра тяжести углового распределения блоков мозаики ВПГ. На рис. 1, *b* показан характерный вид зависимости $I(\theta)$ на линии CuK_β при ориентации, соответствующей азимутальному углу $\chi = 0^\circ$ на рис. 1, *a*.

На рис. 2 показаны полярные диаграммы локальной интенсивности дифракционного отражения на линиях CuK_α и CuK_β от этого же образца. Кривые получены при облучении образца пучком, созданным скрещенно расположенными щелями. Размер зоны облучения составлял $300 \times 300\ \mu\text{m}$. На зависимости $I(\chi)$ для обеих спектральных линий наблюдаются резкие осцилляции сигнала. В полном диапазоне изменения азимутального угла отношение интенсивностей $I_{\text{max}}/I_{\text{min}} > 1000$. Это обусловлено тем, что в диапазоне углов $\chi = 285\text{--}300^\circ$ величина

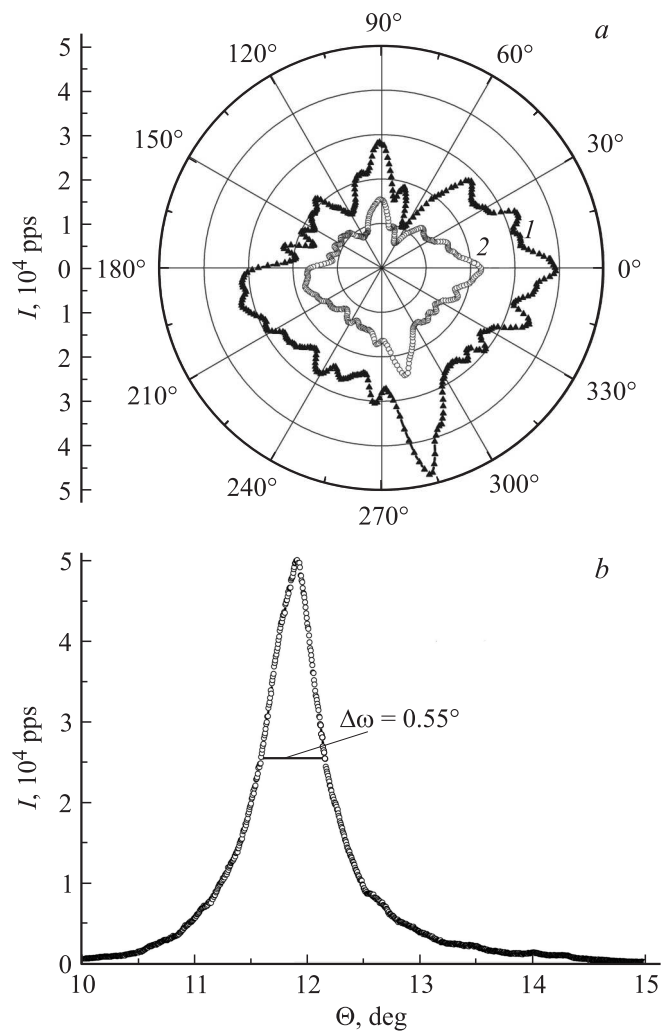


Рис. 1. Полярные диаграммы интегральной интенсивности дифракционного отражения на линиях CuK_α (1) и CuK_β (2) от пленки ВПГ толщиной $50\ \mu\text{m}$ (a). Кривая θ -качания пленки ВПГ при фиксированном азимутальном угле $\chi = 0^\circ$ (b).

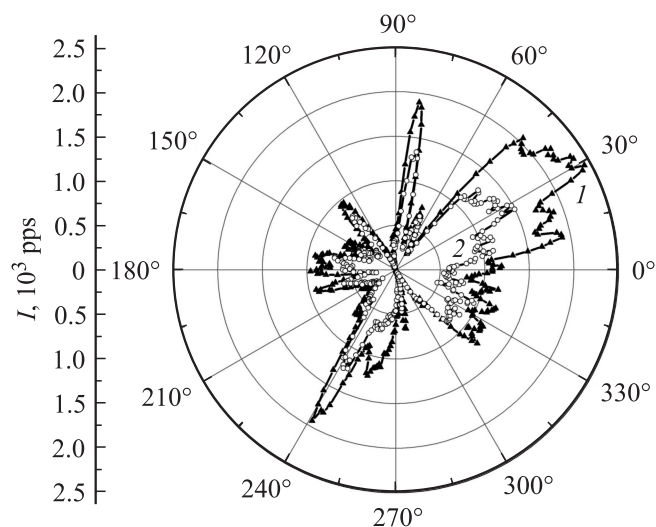


Рис. 2. Полярные диаграммы локальной интенсивности дифракционного отражения от пленки ВПГ толщиной $50 \mu\text{m}$ на линиях CuK_α (1) и CuK_β (2).

$I(\chi) \rightarrow 0$. По характерному виду изменения зависимости $I\chi$ можно заключить, что в пределах облучаемой зоны площадью 0.09 mm^2 находится сравнительно малое количество макроблоков пленки ВПГ. При дальнейшем уменьшении площади поперечного сечения зонда s с высокой долей достоверности можно утверждать, что число пиков m на полярной диаграмме будет соответствовать примерно удвоенному числу макроблоков, поскольку в процессе полного поворота дифракционные условия для каждого макроблока выполняются дважды (если угол отклонения нормали от базовой кристаллографической плоскости не равен 0); средняя площадь макроблока равна $\Delta s \approx 2s/m$.

Вследствие высокой пластичности ВПГ можно ожидать, что при переносе тонкой пленки на плоскую оптически полированную подложку анизотропия полярной диаграммы будет снижена. Это подтверждается результатами, полученными для пленки ВПГ толщиной $12 \mu\text{m}$, накатанной на полированную пластину из плавленого кварца под давлением $\sim 10 \text{ N/mm}^2$. На рис. 3, а приведена полярная диаграмма дифракционного отражения (002) на линиях CuK_α (кривая 1) и CuK_β (кривая 2) соот-

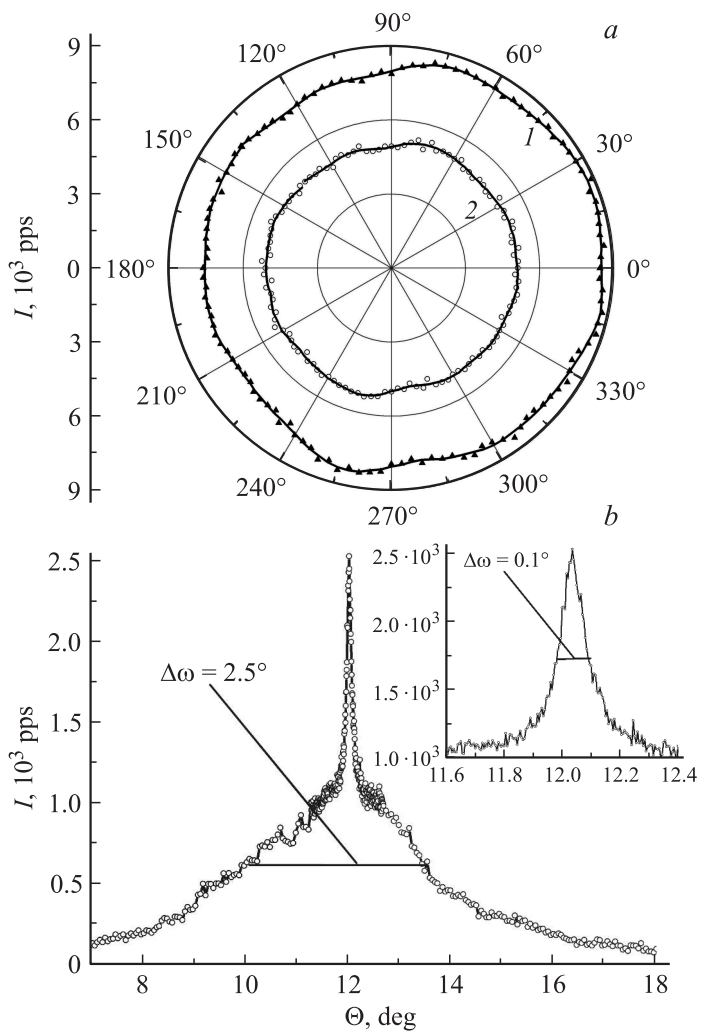


Рис. 3. Полярные диаграммы интенсивности дифракционного отражения от пленки ВПГ ($12\mu\text{m}$) на подложке плавленого кварца на линии $\text{CuK}\alpha$ (a). Кривая θ -качания пленки ВПГ ($12\mu\text{m}$) на подложке плавленого кварца на линии $\text{CuK}\beta$ (b).

ветственно. При измерениях вся поверхность пленки ВПГ (1×2 mm) находилась в рентгеновском пучке. Кривые $I(\chi)$ представляют собой почти изотропные диаграммы. Отношение I_{\max}/I_{\min} и относительное среднеквадратичное отклонение составляют соответственно 1.13 и 2.5%.

На рис. 3, *b* показана кривая качания $I(\theta)$ пленки толщиной $12 \mu\text{m}$ на рефлексе (002). Видны два характерных распределения блоков текстуры ВПГ: интенсивный пик с полушириной $\Delta\omega = 0.10^\circ$ и сравнительно широкое распределение с полушириной $\Delta\omega = 2.5^\circ$. Малая полуширина пика свидетельствует о создании хорошей текстуры при накатывании тонкого образца на оптически полированную подложку. Наличие пьедестала обусловлено остаточной разориентацией мелких блоков в образце, которые, как видно из полярной диаграммы (рис. 3, *a*), слабо влияют на угловую анизотропию коэффициента дифракционного отражения.

Полученные нами результаты показывают, что исходные пленки ВПГ имеют резко анизотропную зависимость коэффициента дифракционного отражения от азимутального угла поворота. Указанная зависимость обусловлена тем, что пленка состоит из макроблоков, развернутых относительно друг друга на углы в пределах интегрального значения угла мозаичности $\Delta\omega$. Интегральное распределение областей когерентности по угловым направлениям формируется как их распределением внутри макроблоков, так и случайным поворотом смежных макроблоков. Измерение полярной диаграммы интенсивности дифракционного отражения $I(\chi)$ является достаточной для характеристики углового распределения блоков в пленке ВПГ. Степень анизотропии полярной диаграммы $I(\chi)$ резко снижается при переносе пленки ВПГ на плоскую оптически полированную подложку. Это позволяет их использовать в измерительных системах двумерного сканирования и экспериментальных схемах регистрации угловых и пространственных распределений рентгеновского излучения.

Одним из наиболее интересных приложений может быть применение тонких пленок ВПГ при работе с мощными импульсными источниками для измерения спектра в узкой спектральной полосе при статическом положении монохроматора. Так, при величине угла мозаичности ВПГ 4 mrad в области спектрального участка со средним значением длины волны $\lambda \approx 0.1 \text{ nm}$ может быть проанализирована полоса с энергетической шириной 0.5 keV , что достаточно, например, для XAFS измерений.

Список литературы

- [1] Турьянский А.Г., Пиршин И.В. // ПТЭ. 2011. № 4. С. 120–129.
- [2] Legall H., Stiel H., Schnürer M., Pagels M., Kanngießner B. et al. // J. Appl. Cryst. 2009. V. 42. P. 572–579.
- [3] Yuan X.H., Carroll D.C., Coury M., Gray R.J., Brenner C.M. et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 2011. V. A 653. P. 145–149.
- [4] Симицына О., Яминский И. // Наноиндустрия. 2011. Т. 30. № 6. С. 32–33.
- [5] Ohler M., Sanchez M. del Rio, Tuffanelli A., Gambaccini M., Taibi A., Fantin A., Pareschi G. // J. Appl. Cryst. 2000. V. 33. P. 1023–1030.
- [6] Legall H., Stiel H., Antonov A. et al. // Proc. FEL. 2006. P. 798. BESSY. Berlin. Germany.