

ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ И ЧАСТИЦ С КОНДЕНСИРОВАННЫМ ВЕЩЕСТВОМ

PACS numbers: 29.30.Ep, 34.50.-s, 61.05.cf, 61.05.cp, 68.55.J-, 81.15.Cd, 82.80.Yc

Определение толщины слоёв многослойных периодических покрытий методом Резерфордского обратного рассеяния

В. Н. Коломиец, И. Н. Кононенко, С. Н. Кравченко, М. И. Захарец,
В. Е. Сторижко, В. И. Возный, А. Н. Бугай, А. Ю. Девизенко*

*Институт прикладной физики НАН Украины,
ул. Петропавловская, 58,
40030 Сумы, Украина*

**Национальный технический университет
«Харьковский политехнический институт»,
ул. Кирпичёва, 21,
61002 Харьков, Украина*

Методом Резерфордского обратного рассеяния были определены толщины слоёв кобальта и углерода в многослойном периодическом покрытии $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$, изготовленном методом магнетронного распыления. Полученные результаты хорошо согласуются (расхождение менее 6%) с толщинами слоёв из моделирования измеренного спектра малоугловой рентгеновской дифракции покрытия.

Ключевые слова: многослойное периодическое покрытие, Резерфордское обратное рассеяние, малоугловая рентгеновская дифракция.

Методом Резерфордского зворотнього розсіяння було визначено товщини шарів кобальту та вуглецю у багатошаровому періодичному покритті

Corresponding author: Vladimir Nikolaevich Kolomiyets
E-mail: vkolom8@gmail.com

*Institute of Applied Physics, N.A.S. of Ukraine,
58 Petropavlivska Str., 40030 Sumy, Ukraine
*National Technical University 'Kharkiv Polytechnical Institute',
21 Kyrpychov Str., 61002 Kharkiv, Ukraine*

V. N. Kolomiyets, I. N. Kononenko, S. N. Kravchenko, M. I. Zakharets,
V. Yu. Storizhko, V. I. Vozny, A. N. Buhay, and A. Yu. Devizenko, Determination of a
Thickness of Layers of Multilayer Periodic Coatings by a Method of the Rutherford
Backscattering, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **38**, No. 6: 815–823 (2016) (in
Russian), DOI: 10.15407/mfint.38.06.0815.

[Co/C]₁₀, виготовленому методом магнетронного розпорошення. Одержані результати добре узгоджуються (розбіжність менше 6%) з товщиною шарів за даними моделювання виміряного спектру малокутової рентгенівської дифракції покриття.

Ключові слова: багат шарове періодичне покриття, Резерфордове зворотне розсіяння, малокутова рентгенівська дифракція.

The periodic multilayer [Co/C]₁₀ coating is deposited by means of the magnetron sputtering. The thicknesses of the cobalt and carbon layers are determined by the Rutherford backscattering (RBS) method. These results are in a good agreement (with divergence less than 6%) with results of simulation of small-angle X-ray diffraction.

Key words: periodic of multilayer coating, Rutherford backscattering, small-angle X-ray diffraction.

(Получено 10 мая 2016 г.)

1. ВВЕДЕНИЕ

Развитие науки и техники требует всё более совершенных методов исследования тонкоплёночных систем. Особенно интересными представляются многослойные периодические покрытия (МПП), поскольку они играют фундаментальную роль в современной науке и технике. Одним из перспективных направлений использования таких многослойных периодических покрытий является создание элементов рентгеновской оптики: рентгеновских зеркал, дифракционных решёток и зонных пластинок для различных диапазонов мягкого и жёсткого рентгеновского излучения [1, 2]. МПП также позволяют создавать фазовые дифракционные решётки, которые дают возможность достигать более высокой дифракционной эффективности [3].

Наибольший интерес исследователей направлен на контроль таких технологических параметров как конструкция покрытий, толщина, плотность, состав и шероховатость слоёв, толщина и состав перемешанных зон, поскольку даже небольшая их модификация в некоторых случаях может повлечь критические изменения служебных характеристик конечных приборов на основе МПП. Существует ряд методов для контроля параметров многослойных структур: просвечивающая электронная микроскопия, эллипсометрия, рентгеновская рефлектометрия, рамановская спектроскопия и др.

Для периодических систем, которые используются в рентгеновской оптике, важно знать толщины отдельных слоёв. Для тестирования метода резерфордского обратного рассеяния (РОР) было выбрано МПП Co/C, толщины отдельных слоёв которого были

определены с помощью моделирования спектров малоугловой рентгеновской дифракции (МРД). В этом случае МПП Co/C является удобным модельным объектом, поскольку такое покрытие достаточно широко исследовано и имеются представления о его толщине, составе, плотности, межслоевой шероховатости и т.д. [2, 4].

В данной работе представлены результаты по определению толщины каждого из слоёв многослойного периодического покрытия [Co/C]₁₀ методами РОР и МРД.

Метод РОР даёт возможность получать данные о структурном совершенстве и элементном составе материала образца как функции глубины (толщины) и является неразрушающим методом. В основе метода лежит использование высокоэнергетических ионов, обратно рассеивающихся от глубоко лежащего атома внутри образца (рис. 1).

Потерянная ионом энергия при рассеивании, складывается из потери энергии на торможение при движении в объёме материала образца (даёт возможность перейти от шкалы энергии к толщине) и потери энергии, собственно, в самом акте рассеяния, которая зависит от массы рассеивающего атома [5].

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

МПП [Co/C]₁₀ изготавливалось поочерёдным нанесением слоёв Co и C на кремниевую полированную подложку (со среднеквадратичной шероховатостью поверхности около 0,3 нм) методом магнетронного распыления мишеней Co (99,5%) и C (99,99%) в среде Ag при давлении 0,2 Па. МПП [Co/C]₁₀ состояло из 10 пар слоёв Co/C. Исходный вакуум составлял $1 \cdot 10^{-4}$ Па. Температура Si подложки находи-

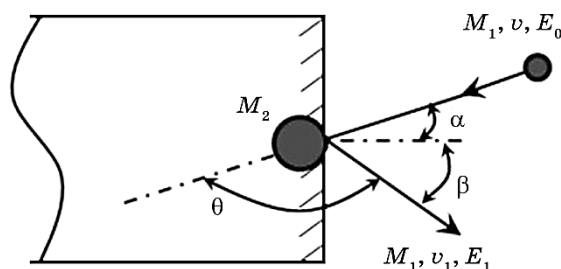


Рис. 1. Геометрия исследования методом РОР: M_1, v, E_0 — масса, скорость, энергия падающего иона, M_1, v_1, E_1 — масса, скорость, энергия иона после рассеяния, M_2 — масса атома вещества, α — угол падения, β — угол выхода, θ — угол рассеяния.

Fig. 1. Geometry of RBS technique: M_1, v, E_0 —mass, velocity, and energy of an incident ion, M_1, v_1, E_1 —mass, velocity, and energy of scattered ion, M_2 —target mass, α —incident angle, β —exit angle, θ —scattering angle.

лась вблизи 30°C . Толщина слоя покрытия задавалась временем нахождения подложки над магнетроном. Скорость осаждения материалов была около $0,1\text{ нм/с}$ [6].

Исследование образцов проводилось методом РОР на канале ядер отдачи и каналирования аналитического ускорительного комплекса «Сокол» в ИПФ НАН Украины [7]. Функционально канал ядер отдачи состоит из ионопровода, камеры рассеяния (4) и электростатического спектрометра (3) (см. рис. 2).

Ионопровод оснащён системой откачки, обеспечивающей вакуум на уровне 10^{-6} Па, а также системой мониторинга пучка ионов. Камера взаимодействия (рассеяния) представляет собой вакуумную камеру (вакуум на уровне 10^{-7} Па), которая оснащена механизмом перемещения мишеней. Специальный механизм позволяет перемещать мишени с точностью 10 микрон по трём координатам и осуществлять поворот вокруг вертикальной оси на 360° с точностью $0,5^{\circ}$. Конструкция камеры рассеяния обеспечивает возможность её разворота вокруг вертикальной оси на углы от 0° до 135° . Это позволяет проводить на канале эксперименты как по малоугловому, так и по обратному рассеянию. Кроме этого, предусмотрена установка дополнительного оборудования (в том числе и детекторов: заряженных частиц, характеристического рентгеновского и гамма-излучения). Особенностью канала является прецизионный элек-

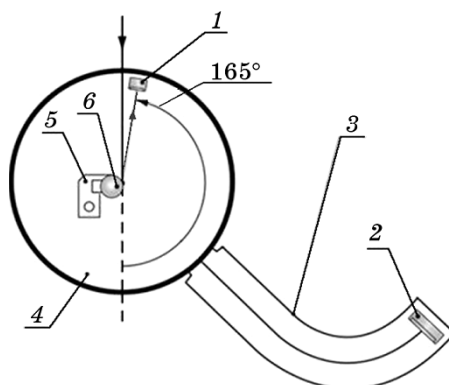


Рис. 2. Камера рассеяния с электростатическим анализатором: 1 — полупроводниковый детектор, 2 — позиционно-чувствительный детектор, 3 — электростатический спектрометр, 4 — камера рассеяния, 5 — держатель образца с нагревателем, который установлен на системе позиционирования, 6 — образец.

Fig. 2. The scattering chamber with an electrostatic analyser: 1—semiconductor detector, 2—position-sensitive detector, 3—electrostatic spectrometer, 4—scattering chamber, 5—sample holder with a heater mounted on the positioning system, 6—target.

тростатический спектрометр с энергетическим разрешением $\Delta E/E = 1,5 \cdot 10^{-3}$. Спектрометр оснащён позиционно-чувствительным детектором, автоматизированной системой управления и сбора данных.

Энергетический спектр обратного рассеяния от МПП [Co/C]₁₀ был получен с использованием ионов гелия (4He⁺): энергия 600 кэВ, ток пучка 5 нА. Геометрия эксперимента: угол рассеяния $\theta = 165^\circ$, угол падения $\alpha = 70^\circ$, угол выхода $\beta = 55^\circ$. Измерения спектров были выполнены на стандартном полупроводниковом детекторе заряженных частиц (см. рис. 2) [8].

Съёмку МРД проводили на дифрактометре ДРОН-3М в $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -излучении ($\lambda = 0,154051$ нм) по схеме $\theta/2\theta$ -сканирования. Моделирование малоугловой дифракции от МПП [Co/C]₁₀ выполнено с использованием программы, основанной на формулах Френеля [9] с учётом атомных факторов рассеяния и поглощения [10]. Варьированием толщины, плотности и шероховатости слоёв в модели периодического покрытия [Co/C]₁₀ достигалось максимальное совпадение измеренной и смоделированной кривой малоугловой дифракции. Предварительные данные о конструкции МПП Co/C с разными толщинами слоёв Co были получены в работе [4] с применением просвечивающей электронной микроскопии поперечных срезов многослойного покрытия.

Структура слоёв и межслоевых границ исследовалась на специально приготовленных поперечных срезах образцов с помощью просвечивающей электронной микроскопии на электронном микроскопе ПЭМ-У с рабочим напряжением 100 кВ. Поперечное сечение МПП Co/C изготавливалось на первой стадии путём механического утонения, а на второй — ионного травления [11].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В результате проведённого эксперимента методом ROP и последующего моделирования с помощью программы SIMNRA [12] были определены толщины каждого из слоёв МПП [Co/C]₁₀ (см. рис. 3, табл. 1). В среднем толщина кобальта составляет $h_{\text{Co}} = 5,3 \pm 0,2$ нм, углерода — $h_{\text{C}} = 5,2 \pm 0,2$ нм. Толщина покрывающего защитного слоя углерода — $5,7 \pm 0,2$ нм.

Нужно отметить, что энергия рассеянных ионов от лёгких атомов довольно мала. Поэтому на рис. 3, б видны только пики, отвечающие слоям кобальта, а толщина углерода моделируется программой по разности энергий между этими пиками.

По данным моделирования МРД от МПП [Co/C]₁₀ (рис. 4) были также определены толщины слоёв $h_{\text{Co}} = 5,2$ нм, $h_{\text{C}} = 5,3$ нм, которые соотносятся приблизительно 1:1 (см. табл. 1). Из таблицы 1 видно, что максимальное расхождение толщин слоёв Co и C, определённых

методами РОР и моделирования МРД, не превышает 6%.

Низкая интенсивность 2-го дифракционного максимума подтверждает, что соотношение толщин в периодическом покрытии

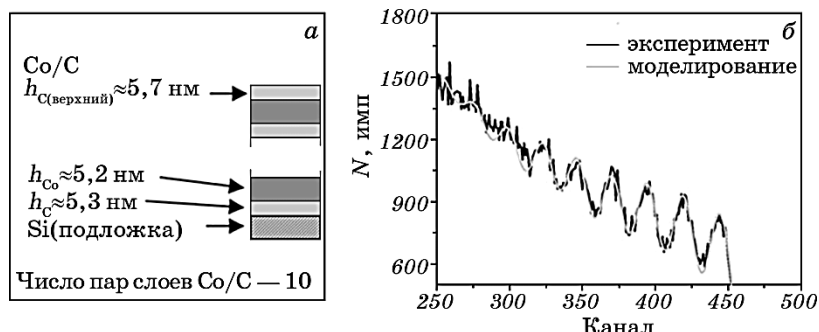


Рис. 3. Схема МПП $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$ (а) и энергетический спектр ионов гелия (4He^+) с начальной энергией 600 кэВ, которые рассеяны на МПП $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$ (б). По оси ординат отложено количество импульсов с определённой энергией, по оси абсцисс — номер канала в пересчёте на энергию.

Fig. 3. The design of the periodic multilayer $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$ (а) and energy spectrum of ion (4He^+) with an initial energy of 600 keV scattered on periodic multilayer $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$ target (б). The Y-axis represents the number of counts with certain energy; the X-axis represents the channel number in terms of energy.

ТАБЛИЦА 1. Значения толщины слоёв многослойного покрытия $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$, которые определены методом РОР и методом моделирования МРД.

TABLE 1. The layer thicknesses of the periodic multilayer $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$ coating obtained by RBS and simulating method of small-angle X-ray diffraction.

РОР		МРД		Расхождение	
$h_{\text{Co(РОР)}}$	$h_{\text{C(РОР)}}$	$h_{\text{Co(МРД)}}$	$h_{\text{C(МРД)}}$	$\frac{h_{\text{Co(РОР)}} - h_{\text{Co(МРД)}}}{h_{\text{Co(МРД)}}}, \%$	$\frac{h_{\text{C(РОР)}} - h_{\text{C(МРД)}}}{h_{\text{C(МРД)}}}, \%$
5,1	5,4			2	1
5,4	5,3			4	6
5,4	5,0			4	6
5,2	5,0			0	4
5,3	5,1	5,2	5,3	2	6
5,3	5,0			2	1
5,2	5,3			0	1
5,2	5,3			0	1
5,2	5,3			0	1
5,2	5,3			0	1

Средние значения: $h_{\text{Co(РОР)}} = 5,3 \pm 0,2$ нм, $h_{\text{C(РОР)}} = 5,2 \pm 0,2$ нм.

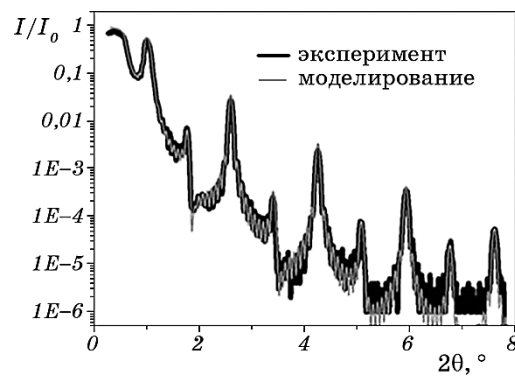


Рис. 4. Малоугловая рентгеновская дифрактограмма от многослойного периодического покрытия $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$ в $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -излучении ($\lambda = 0,154051$ нм).

Fig. 4. Small-angle X-ray diffraction pattern for the periodic multilayer $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$ coating in $\text{CuK}_{\alpha 1}$ radiation ($\lambda = 0.154051$ nm).

$[\text{Co}/\text{C}]_{10}$ действительно близко к 1:1.

Правильная форма дифракционных максимумов экспериментально полученной кривой МРД от МПП $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$, совпадающая с формой дифракционных максимумов смоделированной кривой МРД, в том числе и по ширине максимумов, свидетельствует о высокой степени периодичности толщин слоёв нанесённого покрытия. Наличие дифракционного максимума на экспериментально полученной кривой МРД на углах $2\theta > 7^\circ$ свидетельствует о низкой среднеквадратичной межслоевой шероховатости в данном покрытии, которая по данным моделирования кривой малоугловой дифракции составляет около 0,3 нм.

На рисунке 5 для иллюстрации конструкции МПП $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$ представлено электронно-микроскопическое изображение поперечного сечения близкого по конструкции МПП Co/C с несколькими толщинами слоёв Co и C . Видно, что кристаллические слои Co и аморфного C являются сплошными и гладкими с резкими межслоевыми границами.

4. ВЫВОДЫ

В результате проведённого исследования толщин слоёв кобальта и углерода многослойного периодического покрытия $[\text{Co}/\text{C}]_{10}$ методами РОР и МРД было выявлено их хорошее соответствие (расхождение в результатах не превышает 6%). Это позволяет сделать вывод о том, что неразрушающий метод РОР может быть использован для определения послойной толщины многослойных плёночных структур.

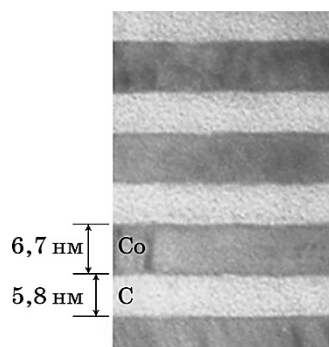


Рис. 5. Электронно-микроскопическое изображение поперечного сечения МПП Co/C с толщинами слоёв $h_{Co} = 6,7$ нм и $h_C = 5,8$ нм.

Fig. 5. TEM cross-section of the periodic multilayer [Co/C]₁₀ coating with thicknesses of layers as follow: $h_{Co} = 6.7$ nm and $h_C = 5.8$ nm.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. *Наноструктурные материалы* (Ред. Р. Ханнинк, А. Хилл) (Москва: Техносфера: 2009).
2. И. А. Журавель, Е. А. Бугаев, А. Ю. Девизенко, Ю. П. Першин, В. В. Кондратенко, *ФИП*, **9**, № 2: 134 (2011).
3. Н. В. Коваленко, С. В. Мытниченко, В. А. Чернов, *Поверхность*, № 1: 55 (2002).
4. Е. А. Бугаев, А. Ю. Девизенко, Е. Н. Зубарев, В. А. Севрюкова, В. В. Кондратенко, *Металлофиз. новейшие технол.*, **30**, № 11: 1533 (2008).
5. К. Оура, В. Г. Лифшиц, А. А. Саранин, А. В. Зотов, М. Катаяма, *Введение в физику поверхности* (Москва: Наука: 2006).
6. Е. А. Бугаев, *ФИП*, **10**, № 1: 59 (2012).
7. О. М. Buhay, А. А. Drozdenko, М. I. Zakharets, I. G. Ignat'ev, А. В. Kramchenkov, V. I. Miroschnichenko, А. G. Ponomarev, and V. E. Storizhko, *Physics Procedia*, **66**: 166 (2015).
8. А. А. Дрозденко, В. Л. Денисенко, А. Б. Дудник, М. И. Захарец, А. Б. Крамченков, В. В. Куприенко, Н. А. Сайко, В. Е. Сторишко, *Вестник СумГУ. Серия: Физика, математика, механика*, № 2: 60 (2008).
9. А. В. Виноградов, И. А. Брытов, А. Я. Грудский, *Зеркальная рентгеновская оптика* (Ленинград: Машиностроение: 1989).
10. В. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **54**, No. 2: 181 (1993).
11. J. C. Bravman and R. Sinclair, *J. Electron Microscopy. Tech.*, **1**, No. 1: 53 (1984).
12. J. Mayer, *SIMNRA User's Guide. Report IPP 9/113* (Garching, Germany: Max-Planck-Institut für Plasmaphysik: 1997).

REFERENCES

1. *Nanostrukturnye Materialy* [Nanostructure Control of Materials] (Eds.

- R. H. J. Hannink and A. J. Hill) (Moscow: Tekhnosfera: 2009) (Russian translation).
2. I. A. Zhuravel', Ye. A. Bugayev, A. Yu. Devizenko, Yu. P. Pershin, and V. V. Kondratenko, *Physical Surface Engineering*, **9**, No. 2: 134 (2011) (in Russian).
 3. H. B. Kovalenko, S. V. Mytnichenko, and V. A. Chernov, *Poverkhnost'*, No. 1: 55 (2002) (in Russian).
 4. E. A. Bugaev, O. Yu. Devizenko, E. M. Zubarev, V. A. Sevryukova, and V. V. Kondratenko, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **30**, No. 11: 1533 (2008) (in Russian).
 5. K. Oura, V. G. Lifshits, A. A. Saranin, A. V. Zotov, and M. Katayama, *Vvedenie v Fiziku Poverkhnosti* [Surface Science: An Introduction] (Moscow: Nauka: 2006) (in Russian).
 6. Ye. A. Bugayev, *Physical Surface Engineering*, **10**, No. 1: 59 (2012) (in Russian).
 7. O. M. Buhay, A. A. Drozdenko, M. I. Zakharets, I. G. Ignat'ev, A. B. Kramchenkov, V. I. Mirosnichenko, A. G. Ponomarev, and V. E. Storizhko, *Physics Procedia*, **66**: 166 (2015).
 8. A. A. Drozdenko, V. L. Denisenko, A. B. Dudnik, M. I. Zakharets, A. B. Kramchenkov, V. V. Kuprienko, N. A. Sayko, and V. E. Storizhko, *Vestnik SumGU. Seriya: Fizika, Matematika, Mekhanika*, No. 2: 60 (2008) (in Russian).
 9. A. V. Vinogradov, I. A. Brytov, and A. Ya. Grudsky, *Zerkal'naya Rentgenovskaya Optika* [Mirror X-Ray Optics] (Leningrad: Mashinostroenie: 1989) (in Russian).
 10. B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **54**, No. 2: 181 (1993).
 11. J. C. Bravman and R. Sinclair, *J. Electron Microscopy. Tech.*, **1**, No. 1: 53 (1984).
 12. J. Mayer, *SIMNRA User's Guide. Report IPP 9/113* (Garching, Germany: Max-Planck-Institut für Plasmaphysik: 1997).