Письма в ЖЭТФ, том 77, вып. 2, с. 85 – 88 © 2003 г. 25 января

Сглаживание межслойных шероховатостей микронного пространственного масштаба в Ni/C многослойном рентгеновском зеркале

Н. В. Коваленко, С. В. Мытниченко[1)] *, В. А. Чернов+

Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

*Институт химии твердого тела и механохимии Сибирского отделения РАН, 630128 Новосибирск, Россия

+Институт катализа им. Г. К. Борескова Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 25 ноября 2002 г.

С помощью измерений рентгеновского диффузного рассеяния (РДР) проведено исследование корреляции шероховатостей соседних межслоевых границ (кросс-корреляция шероховатостей) в Ni/C многослойном рентгеновском зеркале (МРЗ), приготовленном лазерным напылением. Измерения интенсивности РДР вблизи первого брэгговского отражения были выполнены в зависимости от энергии фотонов: чуть ниже (8.325 кэВ) и чуть выше (8.350 кэВ) K-края фотопоглощения никеля. Эффективная экранировка вклада нижних слоев в сечение РДР вследствие сильного затухания волнового поля при энергии фотонов выше края фотопоглощения позволила, при помощи таких сравнительных измерений, получить информацию о характере кросс-корреляции шероховатостей по глубине образца. В частности, при энергии фотонов 8.325 кэВ (вклад в сечение РДР от всего объема МРЗ) величина характерной латеральной длины корреляции шероховатости оказалась равной 0.35 мкм, а при энергии 8.350 кэВ (вклад преимущественно верхних слоев) она возрастала до 0.4 мкм. Эти данные являются прямым подтверждением механизма сглаживания межслойных шероховатостей в процессе роста Ni/C МРЗ в аномально больших пространственных масштабах вплоть до микронного. Оказалось, что только шероховатые крупномасштабные дефекты с размерами ≥ 10 мкм достаточно хорошо воспроизводятся от слоя к слою. Возможным объяснением наблюдаемого явления могут быть процессы вязкого растекания и (или) реиспарения при осаждении высокоэнергетических ионов мишени, что характерно для лазерного метода приготовления МРЗ.

PACS: 61.10.Lx, 68.55.–a

Возможность сглаживания межслойных шероховатостей в процессе роста многослойных тонких пленок, в частности, многослойного рентгеновского зеркала (МРЗ) – хорошо известный факт. Более того, если бы такое сглаживание было невозможно, сложность задачи изготовления МРЗ с более или менее приемлемыми дифракционными характеристиками существенно бы возросла. Сглаживание межслойных шероховатостей в МРЗ можно наблюдать при магнетронном [1] и лазерном [2] напылении, а также при термическом напылении, с использованием дополнительной ионной полировки [3 – 6].

Наиболее последовательная феноменологическая модель эволюции границ раздела в процессе роста МРЗ предложена в работе [7], в которой амплитуда шероховатостей m-й границы раздела в обратном пространстве, f_m, выражается через амплитуду предыдущей границы раздела, f_{m-1}, следующим образом:

$$f_m(s) = h_m(s) + a_m(s) f_{m-1}(s), \qquad (1)$$

где $a_m(s)$ – репликационный фактор шероховатостей с пространственной частотой s и $h_m(s)$ – амплитуда собственной шероховатости m-й границы, причем собственные шероховатости разных слоев не коррелируют между собой, $\langle h_m h_n \rangle = \delta_{mn} \langle h_m^2 \rangle$. Ясно, что коротковолновые шероховатости должны подавляться более эффективно ($a_m(s) \to 0$ при $s \to \infty$), в то время как шероховатости очень большого размера должны полностью воспроизводиться от слоя к слою ($a_m(s) \to 1$ при $s \to 0$). Таким образом, физически оправдан выбор репликационного фактора в виде

$$a_m(s) = \exp(-M(s)), \qquad (2)$$

где $M(s)$ – некоторый многочлен, форма и коэффициенты которого определяются возможными физическими и химическими процессами, происходящими при росте МРЗ. В работе [8] было учтено, что в процессе "мягкого" осаждения атом может смещаться на некоторое расстояние, величина которого по порядку совпадает с его размерами. В работах [7, 9, 10]

[1)] e-mail: s.v.mytnichenko@inp.nsk.su

этот подход был математически развит и получено следующее выражение для $a_m(s)$:

$$a_m(s) = \exp(-\nu d_m s^2), \quad (3)$$

где d_m – толщина слоя для m-й границы и ν – длина диффузии. Характерный диапазон величин ν находится в пределах $10^{-3} - 1$ нм. Таким образом, согласно этим работам, сглаживание шероховатостей должно происходить в коротковолновой области. В работе [11] в $M(s)$ были добавлены члены, пропорциональные s и s^4. Как и в предыдущих работах, сглаживание, согласно этой работе, должно происходить в коротковолновой области спектра шероховатостей, за исключением сглаживания, связанного с членом $\sim s$, который, впрочем, описывает вязкое растекание при полировке ионами с высокой кинетической энергией (200–1300 эВ). В работах [12, 13] с помощью добавления константы ($\sim s^0$) в $M(s)$ учтено, что адсорбированные атомы могут перемещаться по поверхности на очень большие расстояния, что приводит к равномерному сглаживанию во всей области спектра. Согласно этим работам, репликационный фактор не стремится к единице при $s \to 0$.

Вопрос о корректности тех или иных физических моделей для описания эффекта сглаживания шероховатостей в процессе роста МРЗ может быть решен, если будут выполнены эксперименты, позволяющие непосредственно измерять репликационную функцию $a(s)$. Несмотря на то, что возможности метода рентгеновского диффузного рассеяния (РДР) в исследовании кросс-корреляции шероховатости через моделирование угловых распределений интенсивности широко постулируются в литературе, реальная возможность вычисления функции $a(s)$, исходя из данных РДР, весьма проблематична, по крайней мере, в случае использования обычных экспериментальных схем. Возникающие трудности связаны с тем, что когерентное воспроизведение шероховатых границ от слоя к слою приводит к резонансному усилению РДР, порождая так называемую "квазибрэгговскую полосу" [7, 14 – 17] при выполнении модифицированного условия Вульфа–Брэгга

$$\lambda = \Lambda(\sin\theta_0 + \sin\theta_1) = 2\Lambda\sin\theta_B,$$

где λ – длина волны рентгеновского фотона, Λ – период МТП, θ_0 и θ_1 – входной и выходной углы относительно латеральных плоскостей, соответственно, θ_B – угол Брэгга. Таким образом, вклад в сечение РДР от коррелированных от слоя к слою шероховатостей пропорционален N^2 (N – число бислоев в МРЗ), а вклад от некоррелированных пропорционален N. Как следствие, нарушения полной кросс-корреляции шероховатости оказывают достаточно слабое влияние на интенсивность диффузного рассеяния.

Как пример попытки преодоления вышеуказанной трудности можно указать на работы [18, 19], где РДР исследовалось вблизи киссиговских биений. Так как максимальная разница в поведении границ раздела достигается между поверхностью МРЗ и границей раздела МРЗ – подложка, такой подход обеспечивает увеличение чувствительности метода РДР к нарушениям полной кросс-корреляции шероховатости. Отдавая должное такому подходу, необходимо отметить, что и поверхность и граница раздела МРЗ – подложка имеют уникальный характер, их поведение может существенным образом отличаться от поведения внутренних границ раздела. Еще одна возможность получить более надежные данные о характере кросс-корреляции шероховатости – исследование МРЗ с малым количеством слоев, где усиление диффузного рассеяния за счет когерентного воспроизведения границ раздела невелико [20]. Естественно, при этом резко ограничивается класс возможных для исследования объектов.

В настоящей работе мы использовали еще одну модификацию метода РДР, позволяющую, по нашему мнению, существенно увеличить возможности в исследовании поведения кросс-корреляции шероховатости границ раздела в МРЗ. Предлагаемый метод основан на сравнительном измерении интенсивности диффузного рассеяния при энергиях фотонов чуть ниже и чуть выше края фотопоглощения атомов, входящих в состав МРЗ. Если в первом случае амплитуды диффузного рассеяния от шероховатых границ раздела приблизительно одинаковы по всему объему МРЗ, во втором случае нижние границы раздела эффективно экранируются за счет сильного фотопоглощения (рис.1). Измерения относительной разности в интенсивностях РДР для первого и второго случаев позволяют значительно увеличить чувствительность эксперимента к нарушениям полной кросс-корреляции шероховатостей. Причем, выполняя такие измерения в зависимости от проекции переданного импульса в латеральном направлении, можно исследовать поведение кросс-корреляции в зависимости от латеральных пространственных размеров шероховатостей.

Исследуемое в настоящей работе Ni/C МРЗ было приготовлено с помощью лазерного напыления [2, 21] на кварцевую подложку с высокой степенью полировки нано-алмазами [22]. Предварительное исследование подложки методом рентгеновской рефлектометрии ($\lambda = 0.154$ нм) дало величину дисперсии

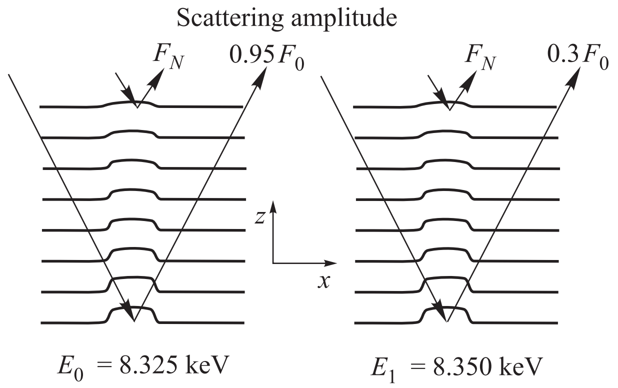

Рис.1. Сравнение интенсивности диффузного рассеяния от Ni/C МРЗ при энергии фотонов до (8.325 кэВ) и после (8.350 кэВ) K-края поглощения атомов никеля: во втором случае вклад в амплитуду диффузного рассеяния от шероховатых дефектов нижних слоев заметно ниже за счет эффективной экранировки в условиях жесткого фотопоглощения

шероховатости $\sim 0.5-0.6$ нм. Оптические параметры МРЗ были получены с помощью моделирования в динамическом приближении [23] данных рентгеновской рефлектометрии: период $-\Lambda \approx 5.2$ нм; отношение толщины никелевых слоев к периоду – $\beta \approx 0.4$; плотность никелевых и углеродных слоев, соответственно, – $\rho_{\rm Ni} \approx 8.2$ г/см^3, $\rho_{\rm C} \approx 2.3$ г/см^3; дисперсия шероховатости – $\sigma \sim 0.4-0.5$ нм. Следует обратить внимание на тот факт, что дисперсия шероховатости МРЗ оказалась меньше, чем у исходной подложки[2)]. Более того, наши прошлые исследования показали [21, 24, 25], что приведенная величина дисперсии шероховатости МРЗ отражает как истинную шероховатость, так и присутствие замешанных слоев. Оценка истинной шероховатости давала величину $\sim 0.1-0.2$ нм [26].

Дифракционные эксперименты были выполнены на трехкристалльном дифрактометре[3)] с использованием синхротронного излучения накопителя ВЭПП-3 [27]. Измерения интенсивности РДР были выполнены на двух энергиях фотонов ($E_0 = 8.325$ кэВ и $E_1 = 8.350$ кэВ) с использованием поперечного сканирования (ω-сканирования) через основное брэгговское отражение.

Экспериментально полученные ω-профили имели разную угловую ширину, что соответствует разным величинам характерных латеральных длин корреляции: ~ 0.35 мкм при энергии фотонов 8.325 кэВ и ~ 0.40 мкм при энергии 8.350 кэВ. Учитывая, что в первом случае вклад в диффузное рассеяние обеспечивают шероховатости границ раздела всего объема МРЗ, а во втором работают преимущественно границы раздела верхних слоев, полученные величины свидетельствуют о сглаживании шероховатостей в образце. На рис.2 представлены полученные

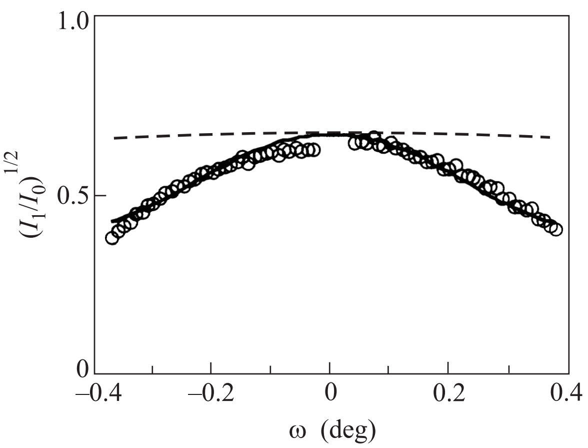

Рис.2. Экспериментальные данные (кружки) и теоретические расчеты в борновском приближении метода искаженных волн для случая полной кросс-корреляции шероховатостей (штриховая линия) и сглаживания шероховатостей (сплошная линия)

экспериментальные данные (кружки) в виде величин отношения $(I_1/I_0)^{1/2}$ (I_0 и I_1 – интенсивности диффузного рассеяния при соответствующих энергиях фотонов) в зависимости от угла асимметрии дифракции, $\omega = \theta_0 - \theta_1$, прямо пропорционального переданному в латеральном направлении импульсу q_x ($q_x \approx k\theta_{\rm B}\omega$). На рисунке хорошо видно, что экспериментальные данные заметно отклоняются от теоретической кривой (штриховая линия), рассчитанной в рамках борновского приближения метода искаженных волн [17], при этом предполагается полная кросс-корреляцию шероховатостей. Знак отклонения соответствует уменьшению амплитуд шероховатостей в процессе роста МРЗ, а величина отклонения тем

[2)]Из нашего опыта изготовления Ni/C МРЗ с помощью лазерного напыления можно привести интересный факт. Хотя дисперсия шероховатости исходных подложек, согласно данным рентгеновской рефлектометрии, может меняться в широких пределах, оптическое качество изготовленных Ni/C МРЗ оказывается приблизительно одинаковым. Этот факт наглядно свидетельствует в пользу сильного сглаживания шероховатостей в процессе напыления.

[3)]Можно отметить, что при измерениях выше K-края поглощения никеля использование вторичного кристалла-коллиматора позволило избежать искажения экспериментальных данных за счет возбуждения флуоресцентного излучения. Так, экспериментально измеренная величина флуоресцентного фона оказалась $\sim 10-20$ Гц, в то время как полезный сигнал составлял величину не менее нескольких кГц.

сильнее, чем больше величина переданного момента импульса.

Учитывая, что охватываемый в наших измерениях диапазон латеральных размеров шероховатых дефектов находится в небольших пределах от долей микрона до нескольких десятков микрон, разница в величинах характерных длин корреляции свидетельствует о сглаживании в таких больших пространственных масштабах, как микронный. Это хорошо видно на рис.2, где сплошной кривой представлены модельные расчеты, в которых формально используется выражение (3) для репликационного фактора и пренебрегается собственной шероховатостью $h_m(s)$. Несмотря на видимое хорошее согласие, полученная величина параметра $\nu \sim 0.5$ мкм на три порядка превышает ожидаемую в работах [7 – 10] величину. В то же время, хотя в теоретических работах [12, 13] предсказывается сглаживание в очень больших пространственных масштабах, такое сглаживание должно быть равномерным по всему спектру шероховатости, что тоже противоречит нашему эксперименту. Действительно, величина отношения интенсивностей РДР при разных энергиях фотонов в непосредственной близи от зеркального брэгговского отражения соответствует полной воспроизводимости от слоя к слою шероховатых крупномасштабных дефектов с размерами ≥ 10 мкм.

Как уже упоминалось выше, в работе [11] был рассмотрен механизм сглаживания шероховатостей за счет вязкого растекания при полировке ионами с высокой кинетической энергией. Было показано, что такой процесс приводит к сглаживанию в достаточно больших пространственных масштабах. Хотя кинетическая энергия осаждаемых атомов при лазерном напылении заметно ниже энергии ионов при полировке, аналогичный процесс вязкого растекания все же может иметь место. Еще одним вариантом объяснения сглаживания шероховатостей в микронном пространственном масштабе могут служить возможные процессы реиспарения при осаждении атомов мишени. "Разбрызгивание" атомов по поверхности МРЗ может привести, с одной стороны, к залечиванию "долин", а с другой, к эффективному разравниванию "холмов" на поверхности МРЗ.

Резюмируя, отметим, что предложенный в настоящей работе структурный метод исследования кросс-корреляции шероховатостей в МРЗ позволил нам наблюдать сглаживание шероховатостей в аномально большом, микронном пространственном масштабе.

Авторы благодарны В. А. Бушуеву за полезные консультации, коллективу Сибирского центра СИ во главе с Г. Н. Кулипановым, а также экспериментаторам ускорительного комплекса ВЭПП-3 за внимание и поддержку.

---

1. T. W. Barbee, Opt. Eng. **25**, 893 (1986).
2. S. V. Gaponov, F. V. Garin, S. A. Gusev et al., Nucl. Instrum. and Meth. **208**, 227 (1983).
3. E. Spiller, A. Segmuller, J. Rife et al., Appl. Phys. Lett. **37**, 1048 (1980).
4. E. Spiller, Appl. Phys. Lett. **54**, 2293 (1989).
5. M. P. Bruijn, P. Chakraborty, H. W. van Essen et al., Proc. SPIE **563**, 36 (1985).
6. E. J. Puik, M. J. van der Wiel, H. Zeijlemarker et al., Rev. Sci. Instrum. **63**, 1415 (1992).
7. D. G. Stearns, J. Appl. Phys. **71**, 4286 (1992).
8. S. F. Edwards and D. R. Wilkinson, Proc. Roy. Soc. (London) **A381**, 17 (1982).
9. D. G. Stearns, Appl. Phys. Lett. **62**, 1745 (1993).
10. E. Spiller, D. Stearns, and M. Krumrey, J. Appl. Phys. **74**, 107 (1993).
11. R. Schlatmann, J. D. Shindler, and J. Verhoeven, Phys. Rev. **B54**, 10880 (1996).
12. В. А. Бушуев, В. В. Козак, Кристаллография **42**, 809 (1997).
13. В. А. Бушуев, В. В. Козак, Поверхность №2, 96 (1999).
14. A. V. Andreev, A. G. Michette, and A. Renwick, J. Modern Opt. **35**, 1667 (1988).
15. A. Bruson, C. Dufour, B. George et al., Solid State Commun. **71**, 1045 (1989).
16. D. E. Savage, N. Schimke, Y.-H. Phang et al., J. Appl. Phys. **71**, 3283 (1992).
17. V. Holy and T. Baumbach, Phys. Rev. **B49**, 10668 (1994).
18. I. Pape, T. P. A. Hase, B. K. Tanner et al., Physica **B253**, 278 (1998).
19. H. Laidler, I. Pape, C. I. Gregory et al., J. Magn. Magn. Mater. **154**, 165 (1996).
20. В. Е. Асадчиков, А. Ю. Карабеков, В. В. Клечковская и др., Кристаллография **43**, 119 (1998).
21. V. A. Chernov, N. I. Chkhalo, M. V. Fedorchenko et al., J. X-Ray Sci. Technol. **5**, 65 (1995).
22. А. И. Волохов, Э. П. Кругляков, Н. И. Чхало, Поверхность №1, 130 (1999).
23. L. G. Parratt, Phys. Rev. **95**, 359 (1954).
24. V. A. Chernov, N. I. Chkhalo, M. V. Fedorchenko et al., J. X-Ray Sci. Technol. **5**, 389 (1995).
25. V. A. Chernov, N. I. Chkhalo, and S. G. Nikitenko, J. Phys. IV **7**, C2-699 (1997).
26. V. A. Chernov, E. D. Chkhalo, N. V. Kovalenko et al., Nucl. Instrum. and Meth. **A448**, 276 (2000).
27. *Brief Description of the SR Experimental Station*, Preprint, INP, 90-92, Novosibirsk (1990).