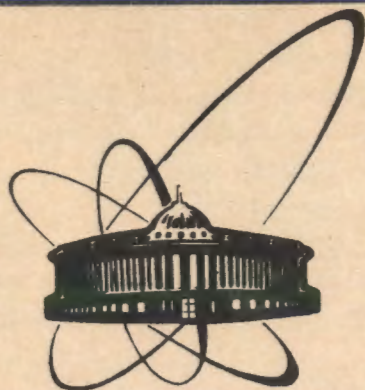


91-458



сообщения  
объединенного  
института  
ядерных  
исследований  
дубна

P14-91-458

С.М.Блохин\*, А.А.Власов\*, А.П.Кобзев,  
Д.М.Широков

РЕНТГЕНСПЕКТРАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ ТОЛЩИНЫ  
ПЛЕНОЧНЫХ МАТЕРИАЛОВ  
ПРИ ПРОТОННОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

---

\*Научно-исследовательский институт физики  
Ростовского государственного университета

1991

В процессе изготовления пленок широко используются различные физические и химические методы их технологического контроля ( см., например, [1-4]). В связи с этим является актуальным развитие подобных методов, в том числе с целью определения толщины исследуемого слоя.

В настоящей работе в развитие рентгеноспектрального анализа предлагается методика измерения толщины пленочных материалов путем возбуждения спектра характеристического рентгеновского излучения (ХРИ) пучком ускоренных ионов. В основе метода лежит известная зависимость выхода  $Y$  ХРИ атомов какого-либо элемента в составе исследуемой однородной пленки от её толщины  $h$ . Используя экспоненциальную аппроксимацию зависимости сечения ионизации  $\sigma$  от глубины проникновения ионов  $x$  [5], запишем:

$$\sigma(x) = \sigma_0 \exp\left(-\frac{\nu x}{\sin \varphi}\right), \quad (1)$$

где  $\sigma_0$  - значение сечения для начальной энергии ионов на поверхности образца,

$\nu$  - параметр, учитывающий торможение ионов в мишени,

$\varphi$  - угол входа ионов в мишень.

Зависимость  $Y(h)$  сводится в таком случае к выражению:

$$Y = \frac{kC}{\beta} \times \left(1 - \exp\left(-\frac{\beta h}{\sin \psi}\right)\right), \quad (2)$$

где  $C$  - концентрация атомов соответствующего элемента,

$$\beta = \mu \frac{\sin \varphi}{\sin \psi} + \nu,$$

$\mu$  - коэффициент поглощения регистрируемого ХРИ в материале образца,

$\psi$  - угол выхода регистрируемого излучения из образца,

$k$  - коэффициент пропорциональности, определяемый эффективностью регистрации ХРИ, количеством

возбуждающих ионов, геометрией эксперимента и сечением

возбуждения соответствующей рентгеновской линии.

Из формулы (2) следует, что для не очень толстых ("ненасыщенных") образцов

$$h = \frac{\sin \varphi}{\beta} \ln\left(1 - \frac{Y\beta}{kC}\right)^{-1}. \quad (3)$$

Прямое использование соотношения (3) для нахождения толщины  $h$  излучающего слоя повлечет большие погрешности, связанные с неточностью исходных параметров, определяющих

коэффициент  $k$ . В связи с этим более целесообразно прибегнуть к относительным измерениям выхода ХРИ. Здесь возможны два варианта.

### 1. Измерение с помощью эталонного образца

При наличии эталонного образца с известной толщиной  $h_3$  и тем же составом, что и исследуемый образец ( $C_3=C$ ), по аналогии с формулой (2) можно записать

$$Y_3 = \frac{kC_3}{\beta_3} (1 - \exp \frac{-\beta_3 h_3}{\sin \varphi_3}). \quad (4)$$

Если обеспечить в эксперименте равенство углов  $\varphi = \varphi_3$  и  $\psi = \psi_3$ , то из соотношений (2) и (4) получим

$$\frac{Y}{Y_3} = (1 - \exp \frac{-\beta h}{\sin \varphi}) / (1 - \exp \frac{-\beta h_3}{\sin \varphi}), \quad (5)$$

откуда следует

$$h = \frac{\sin \varphi}{\beta} \times \ln [1 - \frac{Y}{Y_3} \times (1 - \exp \frac{-\beta h_3}{\sin \varphi})]^{-1}. \quad (6)$$

Измеряя значения выходов  $Y$  и  $Y_3$  и зная величины углов  $\varphi$  и  $\psi$ , из (6) можно определить искомую толщину  $h$  исследуемого образца.

### 2. Безэталонный способ определения толщины пленки

При отсутствии эталонного образца измерения следует проводить для двух различных геометрий эксперимента ( $\varphi_1, \varphi_2, \psi_1, \psi_2$ ). В этом случае, согласно формуле (3), можно записать

$$h = \frac{\sin \varphi_1}{\beta_1} \times \ln (1 - \frac{Y_1 \beta_1}{kC})^{-1} = \frac{\sin \varphi_2}{\beta_2} \times \ln (1 - \frac{Y_2 \beta_2}{kC})^{-1}, \quad (7)$$

где  $\beta_1 = \mu \times \frac{\sin \varphi_1}{\sin \psi_1} + \nu$ ,

$\beta_2 = \mu \times \frac{\sin \varphi_2}{\sin \psi_2} + \nu$ .

В настоящей работе измерения проводились в камере, обеспечивающей равенство углов  $\varphi$  и  $\psi$ . В этом случае  $\sin \varphi / \sin \psi = 1$  и  $\beta_1 = \beta_2 = \beta$ . В результате из формулы (7) получим

$$1 - \frac{Y_1 \beta}{kC} = (1 - \frac{Y_2 \beta}{kC}) \sin \varphi_2 / \sin \varphi_1. \quad (8)$$

В частном случае при  $\sin \varphi_2 / \sin \varphi_1 = 2$  соотношение (8) сводится к

выражению

$$\frac{\beta}{kC} = \frac{2Y_2 - Y_1}{Y_2^2}. \quad (9)$$

Подставляя последнее равенство в формулу (3), записанную для второй геометрии, получим окончательное выражение для определения толщины исследуемого слоя путём двукратного измерения выхода ХРИ:

$$h = \frac{\sin \varphi_2}{\beta} \ln (\frac{Y_1}{Y_2} - 1)^{-1}. \quad (10)$$

Следует отметить, что формула (10) не работает для достаточно малых толщин, когда  $Y(h)$  пропорционально  $h$ , и для одних и тех же углов  $\varphi_1$  и  $\varphi_2$ , но различных значений  $h$ , отношение  $Y_1/Y_2$  перестаёт зависеть от  $h^*$ .

Поскольку диаметр пучка заряженных частиц, с помощью которого измеряется толщина приповерхностного слоя, может быть достаточно малым по сравнению с размерами исследуемого образца, то существует возможность измерения равномерности нанесения исследуемого слоя, т.е. возможность измерения относительного распределения по поверхности. Измеряя выход  $Y_i$  ХРИ в различных точках, можно получить нормированное на толщину в некоторой заданной точке  $h_0$  распределение по площади образца. В этом случае расчёт проводится по формуле:

$$\frac{h_i}{h_0} = \frac{\ln(Y_{1i}/Y_{2i} - 1)}{\ln(Y_{10}/Y_{20} - 1)}. \quad (11)$$

Рассмотренные выше методики рентгеноспектрального измерения толщины пленочных материалов были реализованы для случая пленок  $ZnO$ , нанесённых на стеклянную и сапфировую подложки. Эксперименты были выполнены на электростатическом генераторе ЭГ-5 Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ. Регистрировался выход  $K_\alpha$ -линии атомов  $Zn$ , возбуждаемых пучком

\* - Вариант рентгеноспектрального способа определения толщины очень тонких плёнок путём изменения геометрии эксперимента описан в работе /6/.

протонов с энергией 2,0 МэВ, падающих на поверхность образца под углом  $45^\circ$ . Детектор характеристического рентгеновского излучения также располагался под углом  $45^\circ$  к поверхности образца и тем самым обеспечивалось равенство углов  $\varphi$  и  $\psi$ . Параметр  $\beta$  имел значение  $934 \text{ см}^{-1}$ . Для данных экспериментальных условий формулу (2) можно переписать в виде:

$$Y \sim 1 - \exp(-1,3 \times 10^3 h). \quad (12)$$

Зависимость (12) показана на рис. 1.

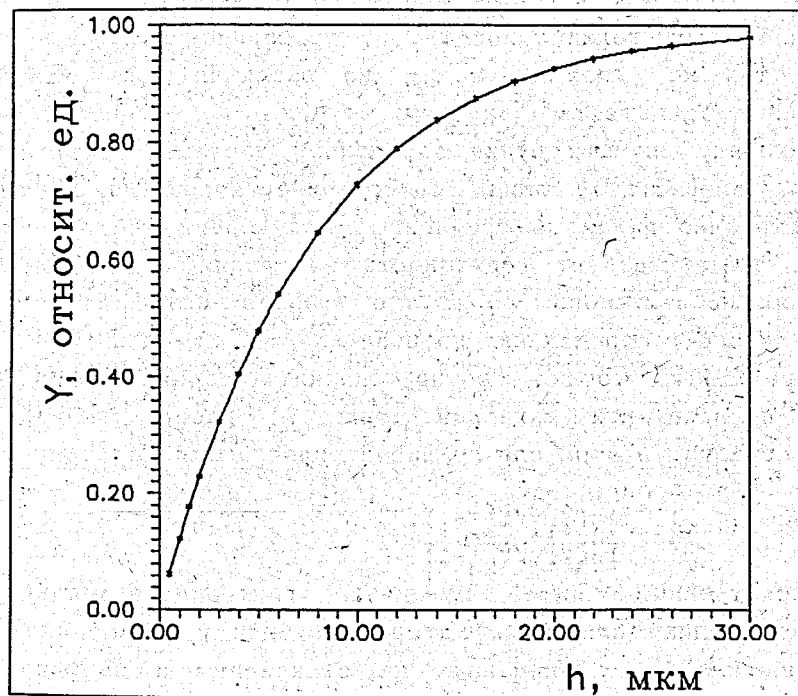


Рис. 1. Соотношение между толщиной пленки ZnO и интенсивностью  $K_\alpha$ -линии цинка, возбуждаемой протонами с энергией 2,0 МэВ.

Максимальная толщина плёнки, которая может быть измерена с точностью несколько процентов, очевидно, не превышает 25 мкм. При этом будет зарегистрировано не менее 95% интегрального

выхода рентгеновского излучения со всей длины пробега протона.

Методика эксперимента позволяла наряду со спектрами характеристического рентгеновского излучения одновременно регистрировать спектры упругого рассеяния протонов под углом  $135^\circ$  к пучку. Из спектров обратного рассеяния протонов (ОРП) путём моделирования [7] также извлекалось значение толщины плёнки. Эти данные будут приводиться ниже в сопоставлении с рентгеноспектральными.

Для проверки методики с использованием эталонных образцов плёнок ZnO толщина последних определялась оптическим методом, моделированием спектров ОРП и "безэталонным" рентгеноспектральным методом (по формуле (10)). В последнем случае спектры ХРИ измерялись под углами  $\varphi_1 = 16^\circ$  и  $\varphi_2 = 33,5^\circ$ , для которых  $\sin \varphi_2 / \sin \varphi_1 = 2$ . Результаты измерений для двух эталонных образцов приведены в таблице 1. Максимальный разброс значений толщины не превышает 7%.

Таблица 1

№ образца	Подложка	Y <sub>1</sub> отн. ед.	Y <sub>2</sub> отн. ед.	h, МКМ		
				оптич.	рентг.	ОРП
3	стекло	1,90	1,00	1,70	1,58	1,70
7	сапфир	1,39	0,78	4,00	4,17	4,00

Измеренные таким образом эталонные образцы были использованы для проверки рентгеноспектральной методики с применением эталонов. Результаты приведены в таблице 2. При измерении толщины образцов №4-6 в качестве эталонного использовался образец №3, а при измерении образца №8 - эталон №7. Абсолютные значения выхода ХРИ для различных толщин плёнок находились в пределах от 15000 до 80000 импульсов. Время набора одного спектра составляло 5-10 минут.

Методика измерения относительного изменения толщины

плёнки вдоль поверхности проверялась на образце №6 (табл.2).  
Таблица 2

№ образца	Подложка	Y, отн.ед.	Y <sub>э</sub> , отн.ед.	h, мкм	
				рентг.	ОРП
4	стекло	298	159	3,50	3,58
5	стекло	82,1	159	0,84	0,86
6	стекло	9,8	159	0,09	0,12
8	сапфир	160	331	1,60	1,89

Этот образец при напылении слоя ZnO располагался под некоторым углом к направлению на испаритель. Измерения проводились под углом  $\varphi=45^\circ$  путём сканирования по прямой линии с шагом 2 мм (диаметр пучка 1,5 мм). Эталон служил образец №3 с толщиной слоя ZnO  $h_э=1,7$  мкм. Полученные результаты отражены в таблице 3.

Таблица 3

Положение центра пучка относительно края образца, мм	Y — Y <sub>о</sub>	h, мкм	
		рентг.	ОРП
1	0,045	0,070	0,074
3	0,046	0,071	0,089
5	0,059	0,091	0,12
7	0,064	0,093	0,11
9	0,103	0,16	0,20
11	0,111	0,17	0,21

Как следует из приведенных в табл.3 результатов измерений, толщина слоя, полученная рентгеноспектральным методом, имеет систематическое отклонение от результатов, полученных методом РОР, но относительный ход зависимости в том и другом случае одинаков, что и дает нам право сделать вывод об успешном испытании рентгеноспектральной методики для измерения толщины пленок. Причиной же систематического расхождения обсуждаемых зависимостей, по-видимому, является некоторое отклонение действительного значения плотности пленки ZnO от его табличного значения, которое использовалось в расчётах.

В заключение авторы выражают признательность сотрудникам НПО ВНИИФТРИ З.А.Магомедову и А.Д.Шпилькину за изготовление образцов и обсуждение полученных результатов.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Блохин М.А. Методы рентгеноспектральных исследований. - М.: Физматгиз, 1959. - 386с.
2. Черепнин В.Т. Ионный зонд. - Киев: Наукова думка, 1981. - 327с.
3. Гимельфарб Ф.А. Рентгеноспектральный микроанализ слоистых материалов. - М.: Металлургия, 1986. - 152с.
4. Басченко О.А., Нефедов В.И. - Поверхность. Физика, химия, механика. -1987, №7, с.75-85.
5. Блохин С.М., Краснолуцкий В.П. - Аппаратура и методы рентгеновского анализа. - 1981, №25, с.9-16.
6. Бондаренко Г.В., Иванова Л.Б. - Аппаратура и методы рентгеновского анализа, - 1972, №11, с.128-131.
7. Ильхамов Р.А., Махайдик Д. Сообщение ОИЯИ, P10-87-535, Дубна, 1987.

Рукопись поступила в издательский отдел

21 октября 1991 года.