Математическая модель поглощения рентгеновского излучения в многослойных структурах

А. А. Александрова[1], К. К. Гук[2]
Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет «ЛЭТИ» им. В.И. Ульянова (Ленина)
[1]a.a.aleksandrova@inbox.ru, [2]kzhamova@gmail.com

***Аннотация*. В работе рассмотрены особенности взаимодействия рентгеновского излучения с образцами неоднородного состава, а именно поглощение излучения тонким слоем на границе двух взаимопроникающих веществ. Предложена математическая модель, описывающая поглощение рентгеновского излучения в многослойных структурах**

Ключевые слова: рентгеноспектральный анализ, многослойные структуры, поглощение рентгеновского излучения, массовый коэффициент поглощения, градиент концентрации

I. Введение

Толщина покрытия является важным параметром в технологии нанесения тонких пленок и влияет на свойства материала. Определение толщины покрытий часто выполняется с помощью рентгенофлуоресцентного анализа, широко распространенной неразрушающей техники, применяемой в промышленности для обеспечения контроля качества материалов [1-3]. Для определения толщины покрытия с помощью рентгенофлуоресцентного анализа требуется учитывать такие факторы, как неоднородность толщины и состава пленки, структуру покрытия, различный химический состав составляющих структуру слоев, что создает определенные трудности при разработке стандартных образцов. Применение же рентгенофлуоресцентного анализа при отсутствии градуировочных образцов на данный момент представляется довольно затруднительной задачей. Математическая модель, моделирующая работу спектрометра, рассчитывая спектры исследуемых образцов без использования эталонов, станет эффективным инструментом для измерения и контроля толщины пленок в многослойных покрытиях.

Однако математические методы, используемые в настоящее время, ориентированы либо на модель, в которой присутствующие в образце элементы распределены в его объеме равномерно, либо же на модель, не рассматривающую возникновение между слоями промежуточного тонкого слоя. Естественно, при анализе рентгенофлуоресцентным методом толщины пленок и покрытий подобные подходы не применимы. Следует учитывать, что при использовании различных методов нанесения пленок граница между пленкой и подложкой не является резкой, а представляет собой некий градиент концентраций перехода вещества пленки в вещество подложки. Всё вышеизложенное приводит к необходимости существенно пересмотреть используемые в настоящее время модели рентгенофлуоресцентного анализа.

II. Расчет спектральной интенсивности рентгеновского излучения, прошедшего через многослойный образец

Предположим, что рассматриваемая структура состоит из двух слоев – подложки и нанесенной на него пленки. Очевидно, что между пленкой и подложкой может установиться один из трех основных механизмов взаимодействия:

- адсорбция, обусловленная физическими взаимодействиями (главным образом это Ван-дер-Ваальсовы силы);
- абсорбция, представляющая собой поглощение одного вещества другим (не на поверхности раздела двух фаз, а в объеме т. н. сорбента);
- химическое взаимодействие, сопровождающееся образованием нового вещества [4].

Однако следует учитывать, что независимо от преобладающего механизма взаимодействия подложки и нанесенной на нее пленки, на границе раздела двух веществ с разной степенью активности в зависимости от метода нанесения пленки и внешних условий проведения эксперимента протекают процессы взаимодиффузии, вследствие чего межфазная граница размывается (рис. 1). Таким образом, можно заключить, что для точного расчета спектральной интенсивности I(E) рентгеновского излучения, прошедшего через многослойный образец, последовательного применения закона Бугера-Ламберта-Бера к каждому слою недостаточно: необходимо знать профиль изменения концентрации в промежуточном слое между пленкой и подложкой.

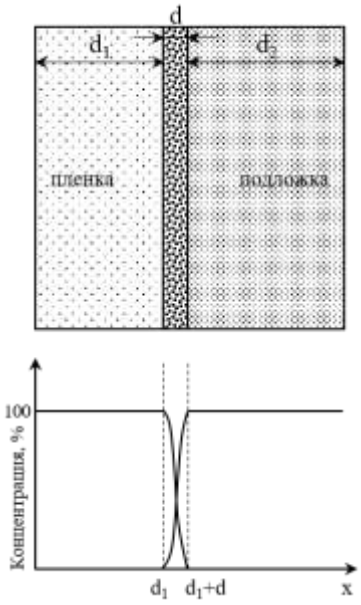

Рис. 1. Архитектура многослойной структуры и концентрационный профиль распределения атомов пленки на подложке

Итак, интенсивность I(E) можно вычислить по формуле:

$$I(E) = I_0(E)\cdot\exp(-\mu_1(E)\rho_1 d_1)\cdot\exp(-\mu_1(E)d\int_{d_1}^{d_1+d}\rho_1(x)dx)\times$$
$$\times\exp(-\mu_2(E)d\int_{d_1}^{d_1+d}\rho_2(x)dx)\cdot\exp(-\mu_2(E)\rho_2 d_2),$$

где $\mu_1(E)$ и $\mu_2(E)$ – массовые коэффициенты поглощения в пленке и в подложке; ρ_1, ρ_2 – плотности веществ пленки и подложки; d_1, d_2 – толщины пленки и подложки соответственно; d – толщина промежуточного слоя; $\rho_1(x)$ и $\rho_2(x)$ – профили концентраций веществ пленки и подложки в промежуточном слое.

III. Результаты и их обсуждение

В данной работе было рассмотрено несколько многослойных структур. Варьировались такие параметры, как химический состав слоев, технологические условия нанесения тонких пленок на подложки, а также толщина слоев. Толщина промежуточного слоя d также варьировалась, ее значение изменялось в пределах от десятков до нескольких сотен нанометров – типичные значения толщин для нерезких межфазных границ [5, 6].

Результаты расчета спектральной интенсивности рентгеновского излучения, прошедшего через сложный образец, для всех рассмотренных вариантов структур оказались практически идентичными (рис. 2).

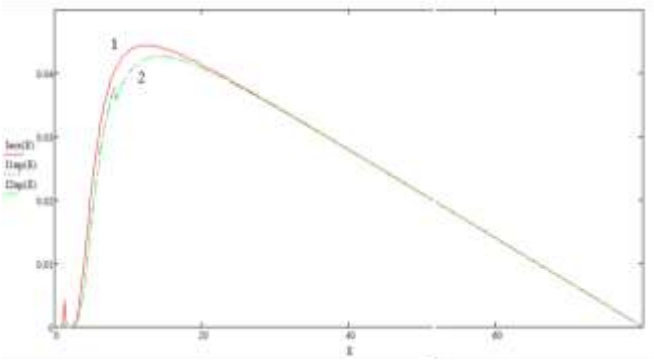

Рис. 2. Спектр падающего на образец излучения (1) и спектр прошедшего через образец излучения (2)

На представленном рисунке Iисх(E) – спектральная интенсивность излучения с учетом поглощения в воздухе между выпускным окном и объектом; I1пр(E) – спектральная интенсивность с учетом поглощения излучения в образце без промежуточного слоя; I2пр(E) – спектральная интенсивность с учетом поглощения излучения в образце с промежуточным слоем.

Как видно из рис. 2, учет тонкого промежуточного слоя, возникающего в результате протекания процессов взаимодиффузии между веществами пленки и подложки, не вносит изменений в спектр излучения, прошедшего через образец. Спектральные интенсивности излучения I1пр(E) и I2пр(E) полностью совпадают.

Следует еще раз отметить, что в данной работе рассматривалось прохождение рентгеновского излучения через многослойный образец. Однако нас интересует преобразование излучения при взаимодействии со структурой и регистрация реального флуоресцентного спектра от образца пленки на подложке (рис. 3).

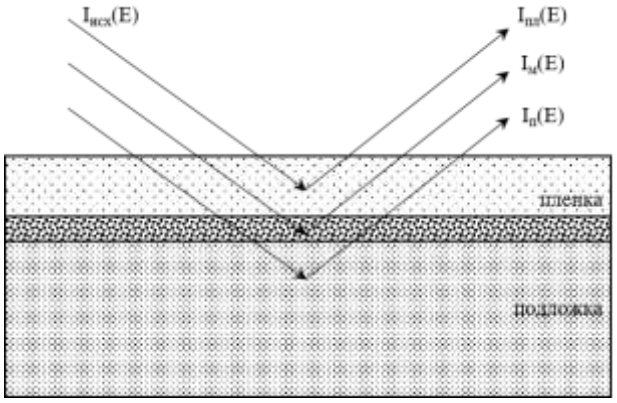

Рис. 3. Преобразование рентгеновского излучения в случае многослойной структуры

Здесь $I_{пл}(E)$, $I_м(E)$ и $I_п(E)$ – спектральные интенсивности регистрируемых детектором сигналов от разных слоев: пленки, промежуточного слоя и подложки соответственно.

IV. Заключение

Представленные выше соображения показывают, что для точного расчета спектральной интенсивности рентгеновского излучения, прошедшего через многослойную структуру, оказывается достаточным последовательное применение к каждому слою закона Бугера-Ламберта-Бера. Независимо от механизма взаимодействия вещества пленки и вещества подложки

тонкий слой, возникающий в результате перехода веществ друг в друга, не влияет на спектр излучения, прошедшего через образец. Безусловно, при толщине промежуточного слоя большей, чем толщина пленки или подложки, вклад межфазной границы в поглощение структурой рентеновского излучения будет более ощутим, однако такая ситуация в реальной жизни не наблюдается.

Следующим этапом работы будет исследование особенностей преобразования излучения при взаимодействии с многослойной структурой и регистрации реального флуоресцентного спектра от образца пленки на подложке (рис. 3).

В дальнейшем планируется проведение серии экспериментов с использованием энергодисперсионных спектрометров для сравнения результатов моделирования с реальными спектрами.

Список литературы

[1] Nygård K., Hämäläinen K., Manninen S., Jalas P., Ruottinen J.P. Quantitative thickness determination using X-ray fluorescence: Application to multiple layers // X-Ray Spectrometry. 2004. Vol. 33. P. 354-359.

[2] Fiorini C., Gianoncelli A., Longoni A., Zaraga F. Determination of the thickness of coatings by means of a new XRF spectrometer // X-Ray Spectrometry. 2002. Vol. 31. P. 92-99.

[3] Sitko R. Quantitative X-ray fluorescence analysis of samples of less than “infinite thickness”: Difficulties and possibilities // Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy. 2009. Vol. 64. P. 1161-1172.

[4] Технология тонких пленок и покрытий: учеб. пособие / Урал. федер. ун-т; [под общ. ред. Л.Н. Маскаевой]. Екатеринбург: Изд-во Урал. ун-та, 2019. 236 с.

[5] Бейсембетов И.К., Бейсенханов Н.Б., Дощанов А.М., Жариков С.К., Кенжалиев Б.К., Нусупов К.Х. Синтез пленок со структурой типа алмаза (C, SiC) на кремнии осаждением либо имплантацией ионов $^{12}C^{+}$ // Вестник Нижегородского университета им. Н.И. Лобачевского. 2011. № 3. С. 50-55.

[6] Бобрович О.Г., Верес О.Г., Ташлыков И.С. Взаимопроникновение компонентов подложки и покрытия при осаждении циркониевых и хромовых пленок на эластомер в условиях ионного ассистирования // Труды БГТУ. 2011. № 6. С. 63-66.