

小周期多层膜的小角 X 射线衍射强度研究

冯仕猛 赵 强 汤兆胜 易 葵 范正修

(中国科学院上海光机所 上海 201800)

提要 水窗波段 X 射线反射元件的特征是周期比较小, 吸收层和间隔层很难形成连续的膜面. 提出了这种膜系内密度变化的简单物理模型, 通过理论衍射强度计算和小角 X 衍射实验证明这种模型是合理的. 同时理论上证明这种模型仍然有较强的小角 X 射线一级反射强度, 其强度相当于结构参数相同的理想尖锐界面多层膜一级反射强度的 70% ~ 80%. 对于小周期的多层膜设计, 具有一定的参考价值.

关键词 X 光衍射, 电子密度, 模型

1 引 言

多层膜结构和反射性能的研究一般依据理想尖锐界面多层膜的光反射理论^[1-3], 把过渡区看成是德拜因子. 但水窗波段 X 射线反射元件的周期比较小, 吸收层和间隔层在制作过程中很难形成连续的膜面, 层与层之间也没有明显的界面, 用上述方法讨论这种膜系就显得很不够了. 通过电子衍射理论计算和小角 X 衍射实验研究小周期多层膜的结构以及这种多层膜的 X 射线衍射强度, 这方面的报道比较少. 把多层膜看成膜内质量密度呈周期性连续变化的单层膜, 吸收层和反射层是膜系内高密度区域和低密度区域. 从本文假定的膜系结构出发, 用 X 光电子衍射理论研究密度连续变化的多层膜对 X 光的反射. 通过理论衍射曲线和实验衍射曲线对比, 我们所提出的模型是合理的. 理论推导和计算还表明, 对于质量密度呈周期性连续变化的多层膜, 理论上仍有较高的小角 X 射线一级反射强度, 本文实验也证明了这一点. 这说明小周期多层膜内密度是呈周期性连续变化的, 同时有较强的一级 X 光反射率. 对于小周期多层膜设计有一定的参考价值.

2 理论分析

2.1 非尖锐界面多层膜的小角 X 射线理论强度

当多层膜周期的单层厚度小于 1.25 nm 时, 薄膜的连续性很差, 加上基片表面粗糙度和两种材料在原子淀积时因互相渗透, 层与层之间很难形成严格的界面, 吸收层和间隔层不是由单一的材料组成, 而是两种材料在这两个位置区内按不同比例混合组成, 材料密度从低到高逐步过渡. 由此模型计算 X 光的衍射强度. 一般情况下, 电子密度与密度成正比, 所以电子密度也按这一规律变化. 本文中的电子密度在 x 方向上按余弦分布, 在 y, z 方向上则视为等同点,

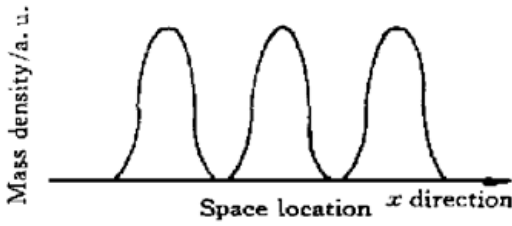


图 1 质量密度的变化模型

Fig. 1 Model of change of mass density

如图 1 所示. 当 X 射线在 x 方向垂直入射时, X 衍射光是垂直于 x 方向在一个周期内由 N 个厚度为 dx 反射面的散射波组成, 它们的位置矢量分别为 $x_1, x_2, x_3, \dots, x_n$, 散射因子为 $f_1, f_2, f_3, \dots, f_n$. 加和的衍射振幅

$$A(q) = \sum_1^N f_n \exp(qix), \quad q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda} \quad (1)$$

$$I_N(q) = \sum_1^N \sum_1^N f_n f_n \exp[+iq(x_n - x_n)] = |A(q)|^2 \quad (2)$$

对于普通情况, 可以用空间电子密度分布 $\rho(x)$ 代替散射因子 f , 不影响计算结果. 通过边界条件, 本文物理模型电子密度分布为

$$\rho = \rho_2 + \frac{1}{2}(\rho_1 - \rho_2)(1 + \cos kx) \quad (3)$$

式中 ρ_1 为吸收层电子密度, ρ_2 为间隔层电子密度. 在 $-d \leq x \leq d$ 范围内为反射层. 满足边界条件: $kx = -2\pi, -\pi, \pi, 2\pi, \dots, n\pi, \rho = \rho_2; kx = (2n \pm \frac{1}{2})\pi, \rho = \frac{1}{2}(\rho_1 + \rho_2); kx = \frac{2n+1}{2}n\pi, \rho = \rho_1$.

设 dx 厚度内所有电子对以射角 θ 入射的 X 射线在 2θ 方向的散射波是同相位的, 其总散射振幅与 dx 内的电子数成正比, 设材料的电子密度为 ρ , 对于比较薄的多层膜, 不考虑 X 射线的吸收数, 则 dx 薄层内单位面积上电子数为 ρdx , 可以得到一个周期内的结构振幅 $A(q)$ 为

$$A(q) = \int_0^d \left[\rho_2 + \frac{1}{2}(\rho_1 - \rho_2)(1 + \cos kx) \right] \exp(iqx) dx + \int_d^{2d} \left[\rho_2 + \frac{1}{2}(\rho_1 - \rho_2)(1 + \cos kx) \right] \exp(iqx) dx \quad (4)$$

通过在一个周期内的积分, 得到一个结构振幅表达式

$$A(q) = \frac{1}{i2q}(\rho_1 + \rho_2)[\exp(idq) - \exp(-idq)] + \frac{\rho_1 - \rho_2}{2(k^2 - q^2)}iq[\exp(iqd) - \exp(-iqd)]$$

对于多层膜, 当周期数为 N 时, 其衍射强度为

$$I = \left[\frac{\sin^2 \frac{N\delta}{2}}{\sin^2 \frac{\delta}{2}} \right] |A(q)|^2 = \frac{\sin^2 \frac{N\delta}{2}}{\sin^2 \frac{\delta}{2}} \left[\frac{(\rho_1 + \rho_2)}{q} + \frac{(\rho_1 - \rho_2)}{(k^2 - q^2)}q \right]^2 \sin^2 qd \quad (5)$$

式中 $\delta = \frac{8d\pi \sin \theta}{\lambda} = 2qd$, θ 为掠入射角. 可以用公式(5)计算本文模型多层膜的 X 射线衍射强度. 在公式(5)中, 当材料的配对确定后, 其理论衍射强度就与掠入射角成为一一对应的函数关系. 可以用公式(5)获得小周期厚度多层膜的小角 X 射线的理论衍射曲线, 由此可以考察本文模型对 X 射线反射能力, 还能通过与实验曲线对比, 就可以获得多层膜结构信息.

2.2 尖锐界面小周期多层膜的 X 射线理论强度

对于理想的多层膜, 两层之间为严格尖锐界面, 如果边界条件满足, 当 $0 \leq x \leq d, \rho = \rho_1; d \leq x \leq 2d, \rho = \rho_2$, 则结构振幅为^[4]

$$A(q) = \frac{\rho_1}{iq}[\exp(iqd) - 1] + \frac{\rho_2}{iq}[\exp(i2qd) - \exp(iqd)]$$

$$|A(q)|^2 = \frac{4}{q^2} \left[\frac{(\rho_1 + \rho_2)^2}{4}(1 - \cos^2 qd) \frac{1}{2} + \left[\frac{\rho_1 - \rho_2}{2} \right]^2 (1 - \cos qd)^2 \right]$$

对于多周期衍射强度公式为

$$I = \left[\frac{\sin^2 \frac{N\delta}{2}}{\sin^2 \frac{\delta}{2}} \right] \left[\frac{(\rho_1 + \rho_2)^2}{q^2} \sin^2 qd + \left[\frac{\rho_1 - \rho_2}{q} \right]^2 (1 - \cos qd)^2 \right] \quad (6)$$

公式(6)表示多层膜在理想尖锐界面情况下的理论衍射强度. 为了考察本文模型对 X 射线的反射性能, 用由公式(5)获得的理论衍射曲线, 对比公式(6)获得小周期多层膜在理想尖锐界面情况下的小角 X 射线理论衍射曲线, 就可以评估本文模型近似 X 射线反射性能.

3 实验和讨论

用离子束溅射方法制备了周期数为 30 层、周期厚度分别为 2.4 nm 和 3 nm 的 Ta/Ti 多层膜. 其中基片为 K9 玻璃, 表面粗糙度为 0.9 nm. 实验制备真空度为 2×10^{-3} Pa, 氩气为 2×10^{-2} Pa. 本文使用日本理学 D/max-3C X 射线衍射仪, 实验在小角区进行, 2θ 从 0.2° 开始, 到 15° 为止, 测量步长为 0.01° . 使用铜靶的 K_α 线 ($\lambda = 0.154$ nm). 图 4 是周期厚度为 2.4 nm (单层厚度为 1.2 nm) 的 Ta/Ti 多层膜的小角 X 衍射实验曲线; 图 5 是周期厚度为 3 nm (单层厚度为 1.5 nm) Ta/Ti 多层膜小角度衍射曲线.

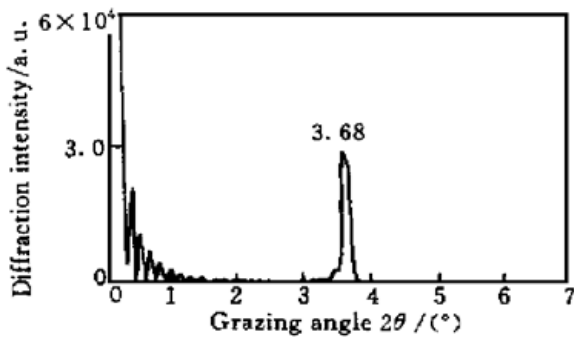


图 2 本文模型的 Ta/Ti 多层膜的小角 X 射线理论衍射曲线, 周期厚度为 2.4 nm, 周期为 30 层

Fig. 2 Small angle X-ray theoretical diffraction curve of Ta/Ti multilayer with no sharp interface, periodic thickness 2.4 nm, periodic number 30

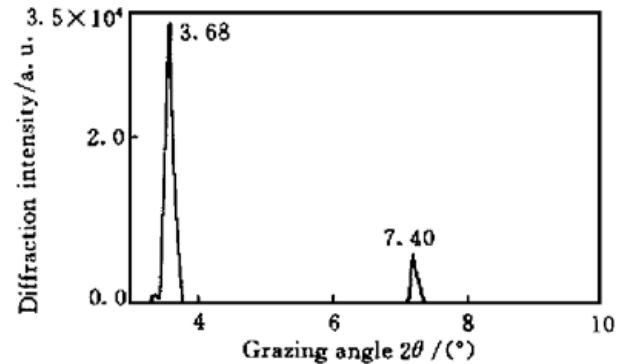


图 3 尖锐界面的 Ta/Ti 多层膜的小角 X 射线理论衍射曲线, 周期厚度为 2.4 nm, 周期为 30 层

Fig. 3 Small angle X-ray theoretical diffraction curve of Ta/Ti multilayer with sharp interface, periodic thickness 2.4 nm, periodic number 30

1) 本文实验衍射图 4 只有一级衍射峰, 没有次级峰, 这与将 Ta/Ti 的相关参数代入(5)式得到理论衍射曲线图 2 非常吻合. 如果周期厚度为 2.4 nm, 将不同的配对材料代入理论公式(5)获得的理论衍射图都和相应的实验曲线非常相似, 说明周期厚度在 2.4 nm 以下多层膜的实际结构与本文的模型较接近, 也就是说, 当评估水窗波段处多层膜的 X 射线理论反射率时, 可以用本文模型进行分析.

2) 周期厚度为 3 nm 的实验衍射图 5 与图 2 相比, 曲线形状明显不同, 并且前者有较强的二级峰, 说明当周期厚度大于 3 nm 时, 膜系内单层能形成单一连续的膜面, 不能用本模型进行讨论, 必须采用分段积分计算 X 射线衍射强度, 在此不作讨论.

3) 为了考察本文模型对 X 射线的反射能力, 将图 2 与图 3 (将 Ta/Ti 的各项参数代入(6)

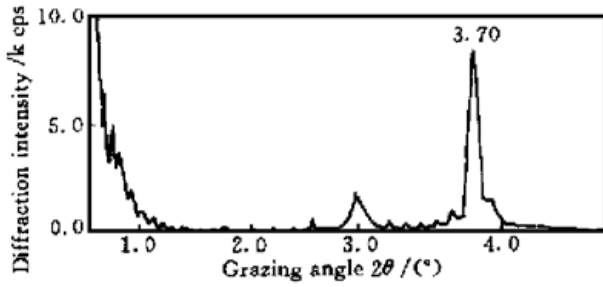


图4 Ta/Ti多层膜的小角X射线理论衍射曲线,
周期厚度为2.4 nm,周期为30层

Fig. 4 Small angle X-ray theoretical diffraction curve of
Ta/Ti multilayer, periodic thickness 2.4 nm,
periodic number 30

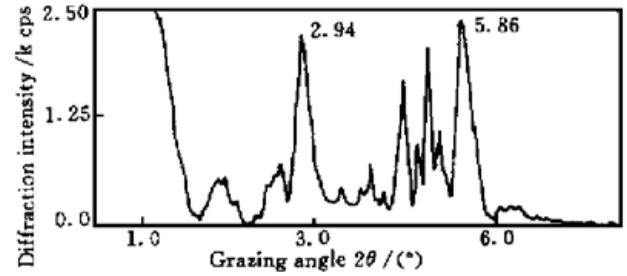


图5 Ta/Ti多层膜的小角X射线理论衍射曲线,
周期厚度为3 nm,周期为30层

Fig. 5 Small angle X-ray theoretical diffraction curve of
Ta/Ti multilayer, periodic thickness 3 nm,
periodic number 30

式得尖锐界面多层膜的理论衍射曲线) 进行比较, 不难看出, 图2中只有一级反射峰, 其强度为图3一级峰的70%~80%, 表明膜系内质量密度呈非线性变化时仍有较高的X射线反射率, 这对于水窗波段多层膜的制备是有意义的。

参 考 文 献

- 1 J. H. Underwood, T. W. Barbee, Jr. . Layered synthetic microstructures as Bragg diffractors for X-rays and extreme ultraviolet: theory and predicted performance. *Appl. Opt.*, 1981, **20**(17): 3027~ 3034
- 2 S. M. Heald, H. Chen, J. M. Tranquada. Glancing-angle-extended X-ray-absorption fine structure and reflectivity studies of interfacial regions. *Phys. Rev. B*, 1988, **38**(2): 1016~ 1026
- 3 H. J. Voorma, E. Louis, N. B. Koster *et al.* . Characterization of multilayers by Fourier analysis of X-ray reflectivity. *J. Appl. Phys.*, 1997, **81**(9): 6112~ 6119
- 4 Wu Ziqiang *et al.* . Study of the small angle X-ray diffraction of no-crystal multilayer and the single layer. *J. Physics in Chinese* (物理学报), 1987, **36**(5): ~ (in Chinese)

Study of Small Angle X-ray-diffraction Theory of Multilayer for Water Window Reign X-ray

Feng Shimeng Zhao Qiang Tang Zaoshen Yi Kui Fan Zhenxiu

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

Abstract Because the period of reflector for water window X-ray reign is very small, it is difficult to get a continue surfaces of the absorption and spacing layers. This paper presents a simple physical model of change of mass density for calculating the diffraction intensity of multilayer, which is proved by the experiments of the small angle X-ray diffraction. The theoretical analysis and experimental results show that the density distribution multilayer can produce a first strong diffraction intensity which is about 70%~80% diffraction intensity of that with sharp interface.

Key words X-ray diffraction, electronic density, model