

文章编号: 0258-7025(2001)11-1027-05

制备超薄多层膜的自动转速控厚法

祝国龙 冯仕猛 邵建达 汤兆胜 易 葵 范正修

(中国科学院上海光机所 上海 201800)

摘要 在转速控厚法的基础上,排除了射频溅射的电磁干扰,实现了自动转速控厚法。用这种方法镀制超薄多层膜时,可以实时记录下镀制每层膜的沉积时间、自动切换转速、完成设定周期后自动停止转动。自动转速控厚法与转速控厚法相比,明显降低了多层膜制备的劳动强度,提高了多层膜制备的成品率和监控精度。而且将在镀制复杂膜系多层膜时,具有更加明显的优势。

关键词 超薄多层膜,膜厚精度,小角X射线衍射

中图分类号 O 484.1 **文献标识码** A

Automatically Rotation-speed-controlled Layer Thickness of Ultrathin Multilayer Reflectors

ZHU Guo-long FENG Shi-meng SHAO Jiao-da

TANG Zhao-sheng YI Kui FAN Zhengxiu

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

Abstract After getting rid of the interference of RF, automatically rotation speed-controlled layer thickness is realized, which not only can accurately fabricate ultra-thin multilayers, but also can record the thickness of every layer and automatically change rotation speed and automatically stop rotation after fabrication is over. Compared with the rotation speed-controlled layer thickness monitoring, it's useful to reduce the intensity of labor and improve the rate of finished products. The advantage is especially obvious in fabricating complicated multilayers.

Key words ultra-thin multilayers, the accuracy of thickness, small angle X-ray diffraction

1 引言

超薄多层膜如软X射线多层膜对制备条件尤其是膜厚监控精度的要求十分严格。现有监控方法有很多种,如X光实时监控^[1]、精偏监控^[2]、激光脉冲监控^[3]等。这些方法各有优缺点,并都获得了很好的结果。在溅射时间监控法^[4]的基础上,我们曾提出用转速控厚法^[5]来监控膜厚,并在实际制备各类软X射线多层膜中取得了很好的结果^[6-8]。

但在早期的工作中,镀制非金属膜层时一直存在着射频干扰,致使绝大部分监控设备无法正常工作。这就使得控制转速只能通过手工切换来实现,但是超薄多层膜,如X射线多层膜,一般是由两种以上材料在基底上交替沉积而成,其层数多达几十层甚至上百层,所以镀膜时间也就比较长。在实际

工作中,要求长时间集中注意力,从而导致劳动强度的提高,容易产生疲劳,往往因为切换转速过程中的失误而导致制备工作的失败。基于这个原因,我们一般采用不切换转速的匀速镀膜法。这样,为了得到特定的厚度配比(γ ($\gamma = d_1/p$, d_1 为一个周期中高Z材料的厚度, p 为基本周期厚度),就不得不通过改变溅射功率来实现。这种方法的直接后果是使电源可能经常工作在非最佳状态,这时如果溅射功率过高,则极易造成飞溅而出现粗糙结构;如果功率过小,不一定能具有致密的结构和更接近块状材料的光学特性。所以转速控厚法中提出的很多优点是不能够得到充分体现的。

因此,在转速控厚法的基础上进行一些改进就变得十分必要了。本文报道的是如何排除射频干扰,实现计算机的转速控制。这样,不再通过改变溅射功率,而只须由计算机改变转速就可以得到要

求的厚度配比。用这套新的装置制备了各类软 X 射线多层膜,均取得了成功,作为例子我们给出了 79 个周期的 Mo/Si 多层膜样品的实际制备过程参数、小角 X 射线衍射测试结果、同步辐射反射率测量结果。事实表明用自动转速控厚法镀制超薄多层膜时,可以实时记录下镀制每层膜的沉积时间、自动切换转速、完成设定周期后自动停止转动。自动转速控厚法与转速控厚法相比,明显降低了多层膜制备的劳动强度,提高了多层膜制备的成品率。而且将在镀制复杂膜系多层膜时,具有更加明显的优势。

2 自动转速控厚法的装置和控制过程

图 1 是自动转速控厚法的真空室内装置示意图。外围设备还包括一台射频与直流电源、自动压强控制仪、转速控制电源和一台计算机。图中,两个磁控溅射枪在同一直径上对称放置。基片放在旋转夹具架上,由精密传动装置带动。基片每经过溅射枪上方一次,就能镀上一层对应靶材的薄膜。为了防止材料间的交叉污染,在溅射枪的周围和上方安置了一块特制挡板,只有在小孔的上方,才能镀上膜层。带动夹具架转动的慢速电机性能良好,其控制电流在 $0\sim 100\ \mu\text{A}$, 对应转速在 $0\sim 200\ \text{r/min}$ 间连续可调。

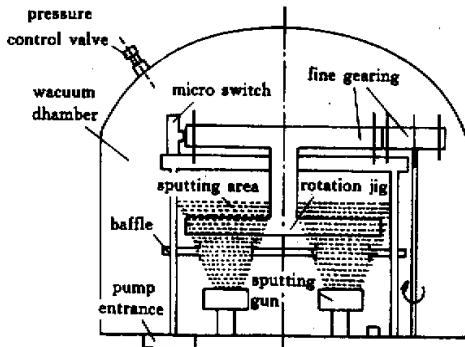


图 1 自动转速控厚法真空室内装置示意图

Fig. 1 Sketch map of vacuum chamber of automatically rotation speed-controlled layer thickness monitoring

计算机通过控制一个转速控制电源,来达到控制转速的目的。首先,如图 1 所示,我们在放有基板的转盘边放置一个微动开关 K 。当基板进入某一溅射区的瞬间,转盘上的凸台使微动开关闭合。与此同时,计算机获得微动开关闭合的信号,并马上控制电机的控制电源改变转速。相同地,当基板进入

另一溅射区的瞬间,计算机又把转速改为另一要求值,并记录下这一段相隔时间 T 。重复上述过程,直到镀完指定周期的时候,由计算机自动关闭挡板,停止镀膜。

可是由于磁控溅射会产生很强的射频干扰信号,所以计算机无法直接获取微动开关的实时状态,也就无法完成上面所述控制过程。现在,我们采用继电器与微动开关级联的方法巧妙地排除了射频干扰信号,从而实现了多层膜制备的自动控制。

3 Mo/Si 多层膜的制备与测试

3.1 Mo/Si 多层膜的制备

为了对自动转速控厚法和转速控厚法作一比较,采用自动转速控厚法镀制了 Mo/Si 样品 A, 而用转速控厚法制备了 Mo/Si 样品 B。使用的制备条件相同,Mo 靶用直流电源溅射,电流为 $0.2\ \text{A}$; Si 靶用射频电源驱动,使用的功率为 $400\ \text{W}$ 。溅射前的本底真空为 $160 \times 10^{-5}\ \text{Pa}$, 溅射时气压为 $665 \times 10^{-4}\ \text{Pa}$ 。溅射气体是高纯 Ar 气,标定纯度为 99.999%。多层膜的周期数为 79,设计周期为 $6.825\ \text{nm}$, Mo 层厚度为 $2.525\ \text{nm}$, Si 层厚度为 $4.300\ \text{nm}$ 。

根据溅射功率与溅射速率的对应关系,经过仔细定标,可以从 Mo 和 Si 的设计厚度得出对应的镀膜时间分别是 39.1 和 $60.3\ \text{s}$ 。使用自动转速控厚法制备样品时,可以方便地利用计算机实现每一层薄膜沉积时间的自动记录。对所记录的数据经过处理,得到如表 1 的分析结果。表中定义了一个名义沉积速率;即设计膜厚除以镀膜时间。之所以称其为名义沉积速率,原因在于实际沉积过程中由于特制挡板的原因只在上述镀膜时间很小部分时间里,基板是直接暴露在沉积气氛中的。

3.2 小角 X 射线测试结果

利用小角 X 射线衍射谱(SAXD),可以分析多层膜的周期结构及膜层的缺陷等。Mo/Si 多层膜的结构性能测试是用一台由计算机控制的日本理学 D/max-3C 全自动 X 射线衍射仪完成,其扫描步长为 0.01° ,扫描速度为 $2^\circ/\text{min}$,测试中根据不同的掠入射角度而改变加速电压和束流,分 $0.5^\circ\sim 2^\circ$, $2^\circ\sim 5^\circ$, $5^\circ\sim 8^\circ$ 三个角度区域扫描。

实测的样品 A 的小角 X 射线衍射曲线如图 2 中曲线 A 所示,样品 B 的小角 X 射线衍射曲线如图 2 中 B 所示。值得注意的是图中的 A, B 曲线是分三

表 1 沉积 79 个周期 Mo/Si 多层膜后, 对计算机记录的每层膜的沉积时间的统计分析结果, 沉积速率是指名义沉积速率即由设计的膜厚除以沉积时间得到, 单位为 nm/s

Table 1 Results given by analyzing the sputtering time recorded by computer during fabricating a 79-period Mo/Si multilayers (The deposit rate is a nominal deposition rate, which is gained by designed thickness divided by deposit time. The unit of deposit rate is nm/s)

Material	Layers	Deposit rate /nm·s ⁻¹	Designed time/s	Average time/s	Sytem deviation/s	Standard deviation
Mo	80	0.06458	39.1	38.729	-0.3704	0.46737
Si	79	0.07131	60.3	60.177	-0.1229	0.19108

表 2 实测小角 X 射线衍射曲线和模拟的反射率曲线的峰值位置 2θ (单位为度)

Table 2 Angles of peaks of both SAXD and theoretic curve (the unit is degree)

	1 st peak	2 nd peak	3 rd peak	4 th peak	5 th peak
Sample A -SAXD	1.43	2.66	3.94	5.19	6.51
Sample B -SAXD	1.38	2.61	3.86	5.20	6.40
Theoretic curve	1.42	2.68	3.96	5.26	6.56

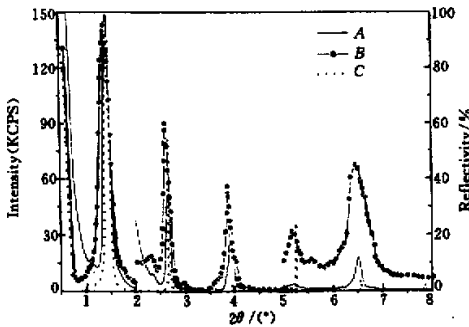


图 2 Mo/Si 多层膜的小角 X 射线衍射曲线和反射率曲线对比图

曲线 A 是样品 A 的实测小角 X 射线衍射谱; 曲线 B 是样品 B 的实测 SAXD; 点线 C 是根据实验数据模拟得到的反射率曲线

Fig. 2 Collation map of SAXD and theoretic reflectivity of Mo/Si multilayer

A: SAXD of sample A; B: SAXD of sample B;

C: theoretic curve drawn according to the results of experiment

段测得的, 后面两段均是放大以后的结果, 而且因为加速电压和电流不同, 所以放大倍数是不同的。

图中还给出了理论拟合曲线。这是根据上述给出的多层膜结构中膜厚监控的系统误差和随机误差结果, 将这两个参数代入小角衍射谱的理论计算程序中, 模拟得出的该多层膜在波长 0.154 nm (CuK_α 射线) 的反射率曲线, 如图 2 中的点线 C 所示。各曲线的峰值位置列于表 2。利用表中数据可以求得样

品 A 的周期厚度为 6.809 nm, 样品 B 的周期厚度为 6.975 nm。可以看出样品 A 的周期厚度与设计厚度 6.825 nm 更加吻合, 因此, 自动转速控厚法与转速控厚法相比, 监控精度提高了。

3.3 反射率测量结果

多层膜的最主要特性是光学特性, 用反射率计在设计波长对 X 射线多层膜进行直接的反射率测量是评价多层膜光学特性的最主要也是最权威的手段。

利用北京同步辐射实验室的同步辐射反射率计测量样品 A 的反射率, 结果如图 3 中曲线 B 所示。在光子能量 95 eV (即 13.1 nm 波长) 处, 反射率达到峰值 30%。样品 B 的反射率曲线如图 3 中的曲线 A 所示, 其反射率只有 24%。这主要是因为采用自动转速控厚法制备 X 射线多层膜时, 监控精度提高了。

4 讨论

4.1 膜厚精度对反射性能的影响

膜厚精度对软 X 射线多层膜的反射性能有很大的影响。下面以单层膜为例进行讨论。为了便于分析, 作以下假设: 1) 膜层没有吸收; 2) 只考虑入射波在每个界面的单次反射; 3) 只考虑正入射的情况; 4) 上下两界面的菲涅耳系数 r_1 和 r_2 相等。则

$$r^2 = r_1^2 + r_2^2 - 2r_1r_2\cos\theta \quad (1)$$

式中 θ 为 r_1 与 r_2 的位相差, 由 (1) 式可得

$$I = I_1 + I_2 - 2\sqrt{I_1I_2}\cos\left(\frac{4\pi}{\lambda}n\Delta d\right) \quad (2)$$

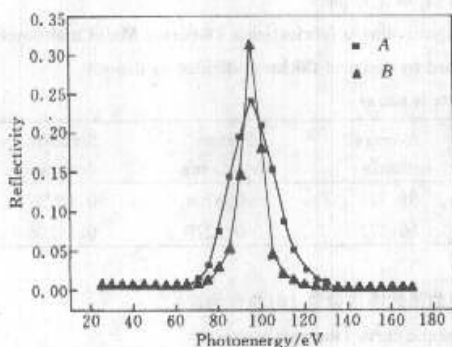


图3 在北京同步辐射实验室测得的 Mo/Si 多层膜反射曲线

A 曲线是用转速控厚法制备的样品, B 曲线是用自动转速控厚法制备的样品。入射角为 5° 。基底表面粗糙度为 1 nm 左右

Fig.3 Soft X-ray reflectivity of Mo/Si multilayers measured at the synchrotron source in Beijing Synchrotron Lab. Sample A is fabricated manually, and sample B is fabricated automatically. The incidence angle is 5° , and the surface roughness of substrate is 1 nm

对于 X 射线多层膜, 其总厚度是非常小的。为了讨论方便, 可以不考虑薄膜 X 光的吸收。因为理想情况下, $I_0 = 4I_1 = 4I_2; n \approx 1$ (适用于 X 波段);

所以由(2)式可得

$$\frac{1}{I_0} = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \cos\left(4\pi \frac{\Delta d}{\lambda}\right) \quad (3)$$

取 $\Delta d \in (0, 1)\text{ nm}$, $\lambda \in (0.1, 10)\text{ nm}$, 则根据(3)式可画出其三维图形(见图4)。从图中可以看出, 由于膜层厚度的误差, 会导致反射率下降(即 $I/I_0 < 1$), 在水窗波段尤其明显, 甚至出现了低谷(当 4π

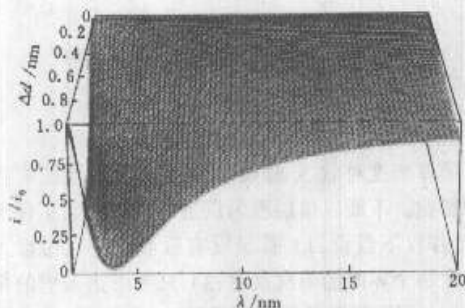


图4 膜厚误差 Δd 对不同波长的 X 射线多层膜反射率的影响

Fig.4 Layer errors affect the reflectivity of X-ray multilayers at different wavelengths

$$\frac{\Delta d}{\lambda} = k\pi, k = 1, 3, 5, \dots \text{时}。$$

从以上分析可知, 在制备 X 射线多层膜时, 膜厚监控精度是直接关系到多层膜反射性能的重要因素。由于自动转速控厚法的监控精度比转速控厚法要高, 因此采用自动转速控厚法与转速控厚法相比, 在同样条件下制备的多层膜的膜厚误差较小, 从而具有更好的反射率, 这与反射率测量结果(见图3)相吻合。

4.2 实验结果误差分析

从误差分析理论中可知系统误差是一个经过校正和处理可以消除的误差, 但是需要更加精密的定标工作。而标准误差则代表了本控制方法精确程度, 一般地在讨论膜层厚度监控精度时, 总是采用标准误差来衡量。用自动转速控厚法制备样品 A 时, 计算机记录了制备时间 T , 这些数据可用来进行误差分析。

根据仔细定标后, Mo 的沉积速率为 0.06458 nm/s ; Si 的沉积速率为 0.07131 nm/s 。对应于标准偏差的 Mo, Si 的膜厚标准偏差是 0.03018 nm 和 0.01363 nm 。如果按照最大的误差来看, 其整个周期的误差为简单的相加即 0.04381 nm , 或者说其每个周期的膜厚的随机误差小于 0.1 nm 。

根据小角 X 射线衍射曲线的峰值位置可以推算出多层膜的周期厚度, 从而也可以得出膜厚误差。样品 A 和样品 B 的周期厚度分别为 6.809 nm 和 6.975 nm , 而设计周期厚度为 6.825 nm , 所以样品 A 和 B 的膜厚误差分别为 0.016 nm 和 0.15 nm 。利用 SAXD 得到的样品 A 的膜厚误差与前面利用记录下来的制备时间 T 得到的结果很接近。

在实际反射率的测量中, 样品 A 的反射率为 30% , 而样品 B 的反射率只有 24% 。产生反射率差异的原因主要在于不同的膜厚精度, 由于样品 B 的膜厚误差比样品 A 要大约 0.1 nm , 导致样品 B 的反射率只有样品 A 的 80% 左右。理论上反射率可以达到 65% , 但实际反射率与理论值相比, 仍然有比较大的差距。考虑到测量装置的分辨率比较低, 所以得到的测量结果肯定低于多层膜的实际反射能力。就多层膜本身而言, 存在着膜厚随机误差, 它是导致多层膜实际反射率下降的主要原因之一; 而且样品基底的粗糙度值为 1 nm 左右, 利用德拜因子来估计粗糙度对反射率的影响, 那么在该粗糙度值下, 反射率最高也只能是理论反射率的 75% 。

5 结 论

本文报道了在排除射频干扰后,实现了自动转速控厚法。与转速控厚法相比,自动转速控厚法具有以下几个特点:1)可以实时记录镀膜每层膜的沉积时间,实验数据可以用于反射率的理论计算和膜厚误差的分析;2)可以通过计算机自动切换转速、完成设定周期后自动停止转动,从而大大降低了镀膜的劳动强度,提高了多层膜制备的成品率和膜厚监控精度;3)制备复杂膜系多层膜时,如三种材料多层膜,因为自动转速控厚法可以自动切换速率,从而其优势更加明显。

为了避免射频干扰,装置中使用了凸台触发微动开关,这是一个机械冲击过程,必定会给膜厚记录带来误差,为了更加精确地记录实际的转速控厚法的膜厚,必须消除这方面的影响。

参 考 文 献

- 1 E. Spiller. Evaporated multilayer dispersion elements for soft X-rays. *AIP Conf. Proc.*, 1981, 75:124~130
- 2 Ph. Hondy, V. Bodart, C. Hily *et al.*. Performances of C-W multilayers as soft X-ray optics: high reflectivity in the range $2d = 60$ to 100. *SPIE*, 1986, 733:389~397
- 3 S. V. Goponov, S. A. Gusev, B. M. Luskin *et al.*. Long-wave X-ray radiation mirrors. *Opt. Comm.*, 1981, 38(1):7~9
- 4 T. W. Barbee, Jr.. Sputtered layered synthetic microstructure (LSM) dispersion elements. *AIP Conf. Proc.*, 1981, 75:131~145
- 5 Shao Jianda, Fan Zhengxiu, Jin Lei *et al.*. Rotation-speed-controlled layer thickness of soft X-ray multilayer reflectors. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 1991, 18(3):171~175 (in Chinese)
- 6 Shao Jianda, Fan Zhengxiu, Yin Gongjie *et al.*. Fabrication and Characterization of sputtered W/C multilayer mirror for soft X-ray. *Acta Physica Sinica* (物理学报), 1994, 43(12):2016~2022 (in Chinese)
- 7 Shao Jianda, Yi Kui, Fan Zhengxiu *et al.*. Design of soft X-ray multilayers for shorter wavelengths. *Acta Physica Sinica* (物理学报), 1997, 46(11):2258~2266 (in Chinese)
- 8 Shao Jianda, Yi Kui, Fan Zhengxiu *et al.*. Deposition and absolute reflectivity measurements of a Mo/Si multilayer for 13.1 nm soft X-ray at 45° incidence angle. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 1998, 25(6):565~569 (in Chinese)

第十五届全国激光学术会议在武汉召开

第十五届全国激光学术会议于2001年9月20~24日在武汉市举行,与会代表290多人,大会报告和张贴报告总量达270余篇,这次会议的出席人数和论文报告均超过以往任何一届的规模。

大会名誉主席、两院资深院士王大珩先生在开幕式上的致辞中,热情洋溢地表达了他对我国激光事业、对本次会议的良好祝愿。在随后的大会报告中,于福熹等十三位院士和专家对激光技术的诸多领域作了专题特邀报告,这些领域包括:超高密度光存储用于数码电视、电影、相机;光纤通信技术和市场的近况;全固态激光器和非线性光学频率变换技术;自适应光学技术及其应用;“武汉·中国光谷”的建设背景、指导思想、工作进展、总体规划及下一步的发展设想;二元光电器件及其应用;国外高能激光技术应用进展;军用激光技术和光电子技术的进展;

新型非线性晶体;量子信息技术;多波长可调谐激光器;超高功率激光器及其应用;惯性约束聚变研究进展及展望等,这些报告受到了与会代表的热烈欢迎。

22~23日,大会分四个会场对激光物理,超短脉冲激光与非线性光学,全固态激光器及各类新型激光器,光通信有源及无源器件,工业激光及其应用,医用激光及激光与生物组织相互作用,光束传输、控制及光束质量,激光光学材料、薄膜及元器件等8个研究领域进行了交流。会议期间,与会代表还阅读了大量张贴报告,并与作者进行了广泛热烈的讨论。

会议期间交流和张贴的报告将由本刊编辑出版增刊,预计在2002年上半年出版。

吉 未