

文章编号 : 0258-7025(2001)03-0249-04

# 软 X 射线多层膜界面粗糙度的计算

冯仕猛 邵建达 赵 强 汤兆胜 范正修

(中国科学院上海光机所 上海 201800)

**摘要** 提出一个在小角范围内计算多层膜界面粗糙度的理论计算公式,通过不同样品的小角度衍射曲线进行计算,结果表明由该公式根据不同周期、不同级次衍射峰计算的粗糙度相差比较小,而在相同条件下用已报道公式给出结果相差比较大。该理论公式获得的计算结果与实际观测结果比较一致。

**关键词** 多层膜 衍射强度 粗糙度

中图分类号 O 484.5 文献标识码 A

## Calculation of Interfacial Roughness of Multilayers

FENG Shi-meng SHAO Jian-da ZHAO Qiang

TANG Zhao-sheng FAN Zheng-xiu

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

**Abstract** This paper gives a simple formula for calculating the roughness of multilayer by using the small angle X-ray diffraction curves of the samples. The differences of the calculated values of roughness from the formula for the different pairs of peaks of a diffraction curve of the sample or different samples are very little, but these differences from B. Abples' formula are considerably large. The calculated results are also in good conformity with the measured values reported.

**Key words** multilayers, diffraction intensity, roughness

## 1 引 言

在软 X 射线多层膜结构研究中,我们总是希望用简单的实验手段获得多层膜界面的粗糙度。通过测量多层膜特定波长光的实际反射率和理论反射率进行拟合可以获得界面粗糙度。然而,在短波长范围内,这种方法因时间和实验条件的限制很难得到广泛的应用。用高倍原子显微镜可以对多层膜的界面直接进行观察,或者用透射电子显微镜进行分析计算,但要观察到两种膜系界面结构的区别,仅仅从原子显微照片上进行直接观察研究是很困难的。本文认为多层膜界面结构上微小的变化,都能在多层膜的小角 X 衍射曲线上表现出来,因此,用多层膜的小角 X 射线进行界面粗糙度的计算是有一定意义的。B. Abples 等<sup>[1]</sup>根据超晶格晶格缺陷的研究提出了一个利用小角 X 射线计算界面粗糙度的理论公式,本文用该公式进行界面粗糙度的计算时,发现该公式中一些参数稍微波动会使结果产生较大的计算误差,另外在周

期厚度不同时,获得的界面粗糙度相差达 0.2~0.6 nm,并且在同一条小角 X 衍射线上利用不同的衍射峰获得的结果相差也在 0.2~0.5 nm 左右。本文由 X 射线半宽峰的计算公式出发,推导出一个计算界面粗糙度的公式,该公式避免了 B. Abples 理论公式中一些不容易确定的参数。根据我们所推导的公式和同一多层膜但具有不同周期厚度的小角 X 衍射曲线,计算的粗糙度比较相近,由同一衍射线的不同衍射峰获得的结果也相当一致,我们认为这样的计算结果比较有意义。为使计算具有可比性,本文淀积了两组不同材料和不同周期厚度的多层膜,再进行 X 射线小角扫描,然后利用本文和 B. Abples 的计算公式分别计算多层膜的界面粗糙度。因为 Mo/Si 界面结构的研究已经进行得非常完整,大量的文献都报道了该多层膜界面结构参数。我们把 Mo/Si 作为参照系来评估本文计算结果的精确度。结果表明由本文给出的公式计算界面粗糙度与报道的结果比较相似,因此该公式是有一定意义的。

## 2 理论推导

多层膜 X 射线衍射强度不但与其界面粗糙度密切相关,而且与材料性质、多层膜结构及入射线强度等有关。B. Abple 在 J. H. Enderwood 等研究的基础上,利用其理论衍射强度的计算公式推导出在小角范围内理论衍射强度、实际衍射强度与界面粗糙度的关系。然而,该公式中理论衍射强度的计算需要精确的结构参数,而精确的结构参数测定过程比较复杂,因而使该公式应用有一定的困难。

众所周知,多层膜半峰宽也与多层膜的界面粗糙度相关。在多层膜结构参数一定的情况下,粗糙度一般会使得衍射峰变宽和峰高降低。虽然也有多种因素影响半峰宽,但在衍射角度较小的范围内,将不同的衍射峰进行对比,就可以将其一些固定参数去掉,获得粗糙度与衍射峰半宽的简单关系。在 J. H. Enderwood 等获得的多层膜衍射峰半宽与反射强度的理论关系基础上,我们对其半峰宽的计算公式进行进一步研究,考察其界面粗糙度与半峰宽、实际衍射强度的关系,以便得到粗糙度的计算式。当多层膜厚度都比较小时,可以不考虑多层膜中的吸收,小角 X 射线衍射峰的半峰宽可用以下公式进行计算<sup>[2]</sup>

$$\Delta\theta_m^{1/2} = \frac{2.3}{\pi} I_{\text{theory}} \quad (1)$$

$$I_{\text{theory}} = \frac{A_m \tan\theta_m}{mN}$$

$$A_m = 2Nd^2 \left| \psi \sin\left(m\pi \frac{d_{\text{abs.}}}{d}\right) \right| / \pi m^2$$

式中  $\Delta\theta_m$  是实际  $m$  级衍射峰的半峰宽,  $I_{\text{theory}}$  表示没有粗糙度影响时的衍射强度,  $N$  为多层膜的周期数,  $\theta_m$  为衍射峰的角度,  $m$  为衍射峰的级次,  $d_{\text{abs.}}$  为吸收层厚度,  $d$  为膜的周期厚度,  $\psi$  为两种材料电子密度的差值。

我们知道,多层膜界面粗糙度不但影响反射光的衍射强度,而且会使衍射峰变宽和峰顶变小。根据光学理论,界面粗糙度对光反射的影响可通过以下公式引入<sup>[3]</sup>

$$P_m = \exp\left[-\left(\frac{4\pi \sin\theta_m \delta}{\lambda}\right)^2\right] \quad (2)$$

式中  $\delta$  为粗糙度的值。将公式(2)代入公式(1)中(1)式右边的理论衍射强度就变为实际衍射强度

$$\Delta\theta_m^{1/2} \times P_m = \frac{2.3}{\pi} I_{\text{theory}} P_m = \frac{2.3}{\pi} I_{\text{act.}} \quad (3)$$

将左边的影响因子移到右边,使方程(3)变为

$$\Delta\theta_m^{1/2} = \frac{2.3}{\pi} I_{\text{act.}} \exp\left[\left(\frac{4\pi\delta \sin\theta_m}{\lambda}\right)^2\right] \quad (4)$$

从公式(4)可以看出,衍射峰的半峰宽与粗糙度呈指数增加,这与一般定性讨论是相同的。将不同级次衍射峰进行对比,就可以获得粗糙度的值

$$\frac{\Delta\theta_j^{1/2}}{\Delta\theta_i^{1/2}} = \frac{I_{\text{jact.}} \exp\left[\left(\frac{4\pi\delta \sin\theta_j}{\lambda}\right)^2\right]}{I_{\text{iact.}} \exp\left[\left(\frac{4\pi\delta \sin\theta_i}{\lambda}\right)^2\right]} \quad (5)$$

而 B. Abple 给出了计算界面粗糙度的公式

$$\frac{I_i}{I_j} = \frac{I'_i}{I'_j} \quad (6)$$

其中理论衍射强度  $I_m = \sin\theta_m \exp\left[-\left(\frac{4\pi\delta \sin\theta_m}{\lambda}\right)^2\right] \cdot (\tan\theta_m/mN) A_m$ , 此式的  $A_m$  与(1)中的  $A_m$  相同,实际衍射强度  $I'_m$  为曲线衍射峰的积分值。

由于公式(5)的计算所需要的参数全部来源于实验曲线,在粗糙度计算中,半峰宽取实际测量值,实际衍射强度取衍射峰曲线的积分值,所以使粗糙度的计算变得简单。而公式(6)中因为牵涉到  $A_m$  的计算,不但使数学处理复杂,又由于  $A_m$  的计算需要实际测量  $d_{\text{abs.}}/d$  值,使该公式的计算变得非常复杂。本文利用公式(6)计算粗糙度的值时,使用了通过多层膜小角 X 衍射曲线获得的结构参数。

### 3 实验和计算结果

本文所用的金属多层膜是用离子溅射法制备的。基片用抛光的 K9 玻璃,表面粗糙度为 0.8 ~ 1 nm。实验制作时真空度为  $1.6 \times 10^{-3}$  Pa,氩气为  $2 \times 10^{-2}$  Pa,操作工艺参数因材料而定。一般控制范围:屏栅电压 300 ~ 500 V,加速电压 60 V,阳极电压 40 V,灯丝电压 8 V。本文使用日本理学(Rigaku)D/max-III C 全自动射线衍射仪。为了便于分析不同材料的结构,在进行不同样品的 X 射线扫描时,在相同角度范围内保持各种实验参数不变。在小角范围内( $1^\circ \sim 4^\circ$ ),一般电流在 20 mA,电压为 20 kV,使用 Cu 靶的  $K_\alpha$  线( $\lambda = 0.154$  nm),步幅为  $0.01^\circ$ 。各样品的射线衍射图见图 1、2。各样品的结构设计参数和由各衍射曲线分别得到的金属多层膜实际结构参数见表 1。

表 1 不同膜系的结构设计参数和测量结果

Table 1 Designed and measured structure parameters of Mo/Si and Si/Sb multilayers

Samples		Period thickness		Thickness of absorbing		Thickness of spacer	
No.	Name	Designed	Measured	Designed	Measured	Designed	Measured
Ⅰ ( a )	Mo/Si	16.0	16.35	4.5	3.989	11.5	12.362
Ⅰ ( b )	Mo/Si	11.0	10.51	3	2.854	8.0	7.656
Ⅱ ( a )	Si/Sb	11.0	11.035	3	3.38	8	7.656
Ⅱ ( b )	Si/Sb	12.0	11.963	3.4	3.28	8.6	8.7

表 2 用不同公式计算不同膜系的界面粗糙度

Table 2 Different results of calculating roughness by using two formulas

			Peak1/peak2	Peak1/peak3	Peak2/peak3	Error <sub><math>\sigma_1-\sigma_3</math></sub>	
Roughness	Mo/Si	Ⅰ ( a )	Our formula	0.93	1.14	1.19	0.260
			B. Abples	0.89	0.87	0.667	0.223
	Mo/Si	Ⅰ ( b )	Our formula	1.13	1.08	0.95	0.180
			B. Abples	1.134	0.83	0.57	0.564
	Sb/Si	Ⅱ ( a )	Our formula	1.25	1.27	1.29	0.040
			B. Abples	1.147	0.933	0.7743	0.372
	Sb/Si	Ⅱ ( b )	Our formula	1.17	1.19	1.21	0.040
			B. Abples	1.098	0.8993	0.7996	0.298

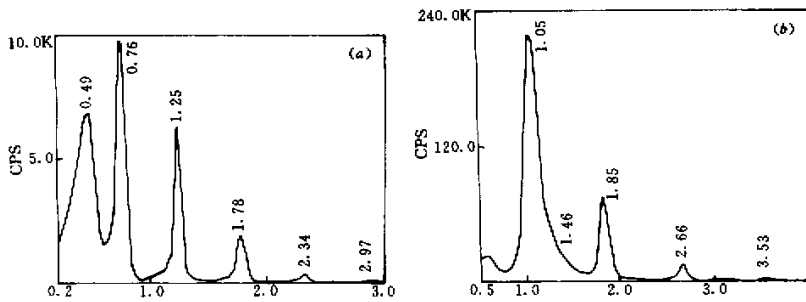


图 1 Mo/Si 多层膜的小角 X 射线衍射图

( a ) 周期数 20.5 , 周期厚度 16.35 nm ; ( b ) 周期数 20.5 , 周期厚度 10.51 nm

Fig. 1 Small angle X-ray diffraction curve of Mo/Si multilayer

( a ) periodic number 20.5 , periodic thickness 16.35 nm ; ( b ) periodic number 20.5 , periodic thickness 10.51 nm

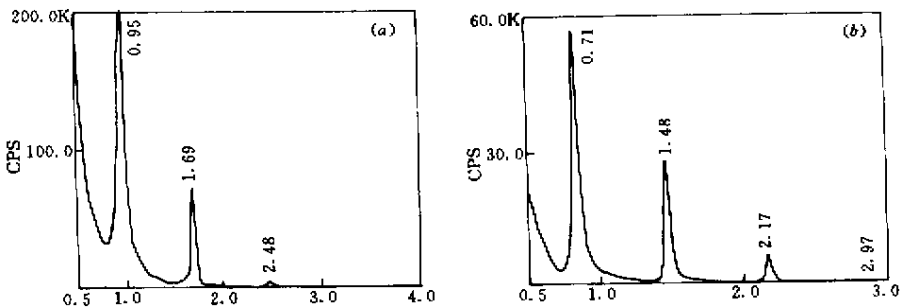


图 2 Si/Sb 多层膜的小角 X 射线衍射图

( a ) 周期数 20.5 , 周期厚度 11.035 nm ; ( b ) 周期数 20.5 , 周期厚度 11.963 nm

Fig. 2 Small angle X-ray diffraction curve of Si/Sb multilayer

( a ) periodic number 20.5 , periodic thickness 11.035 nm ; ( b ) periodic number 20.5 , periodic thickness 11.963 nm

根据 Mo/Si 样品的小角 X 射线和用本文所提供的公式和 B. Abples 等给出的公式计算的粗糙度见表 2。

表 2 中由本文公式给出 Mo/Si 多层膜的粗糙度与 Petford-Long 用高分辨率原子显微镜获得的粗糙度(1.0~1.4 nm)相当,说明本文的计算公式是可行的。为了进行比较,样品在周期厚度相接近的情况下进行粗糙度的计算,结果表明 Si/Sb 多层膜粗糙度比 Mo/Si 的界面粗糙度稍高一些,这种多层膜可以用于较长波长的软 X 射线反射。

根据表 2 计算结果,由本文给出的公式,利用不同衍射峰计算的粗糙度最大值差为 0.26 nm,最小值差为 0.04 nm,而相同条件下由 B. Abples 等的公式给出粗糙度最大值差为 0.564 nm,最小值差是 0.223 nm;不难看出,本文的公式计算精度要高得多。另外在不同的周期厚度下,表中给出样品 1(a)和样品 1(b)粗糙度平均值:本文公式计算值分别是 1.087 nm,1.085 nm;B. Abples 公式给出的分别是 0.84 nm,0.809 nm,不难看出,公式(5)计算的结果更符合实际粗糙度的值,所以本文给出粗糙度的计算公式是比较合理的。

利用不同的衍射峰进行多层膜粗糙度计算时,公式(6)会有较大误差,我们认为其原因可能有:一是多层膜理论衍射强度的影响因子较多,B. Abples 公式理论衍射强度的计算就显得相对简单,因而使公式(6)中的理论衍射强度与实验值相差较大;二是在该公式中  $\sin(\pi \tau d_{\text{abs.}}/d)$  对  $d_{\text{abs.}}/d$  有较强的依赖关系,从  $A_m$  理论式中不难发现, $d_{\text{abs.}}/d$  稍稍一点波动就会使最后的结果产生较大计算误差。因为实际测量的  $d_{\text{abs.}}/d$  值可能存在一定的误差,这样就会使 B. Abples 公式给出的界面粗糙度波动较大。

公式(5)推导中已经将理论衍射强度转化为实

际衍射强度,使粗糙度的计算仅仅和衍射曲线衍射峰的积分值有关。因为不牵涉到多层膜的实际结构参数,所以本文公式不会因为结构参数的误差而使最后的结果产生较大的变化,这可能就是本文公式计算精度较高的原因。

## 4 结 论

1) 本文所给出的公式可以方便地利用小角 X 射线衍射峰进行界面粗糙度的计算,从计算结果来看,精度要比 B. Abples 公式高一些。

2) 本文的公式在  $1^\circ \sim 4^\circ$  范围内计算的结果比较符合多层膜的实际情况。因此在进行结构参数的计算时,周期厚度的设计尽量使多层膜的衍射峰在  $1^\circ \sim 4^\circ$  范围内,这样会使计算误差比较小。在周期厚度变化不大的情况下,本文公式给出结果变动较小,而 B. Abples 公式得到的结果误差较大。

3) 必须指出的是,同一样品在实验参数不同的情况下,小角度衍射曲线不一定相同,所获得的计算结果可能不一样。所以,在研究不同样品的界面结构时,尽可能使结构设计参数相等,和实验参数相同,这样所获得的结果就比较有意义了。

## 参 考 文 献

- 1 B. Abples, T. Tiedje, K. S. Liang *et al.*. Growth and structure of layered amorphous semiconductors. *J. Non-Crystalline Solids*, 1984, **66**(1-2) 351~356
- 2 J. H. Enderwood, T. W. Barbe. in low energy X-ray Diagnostics-1981, edited by D. T. Atwood, B. L. Henke. AIP Conference proceedings No. 75 (America Institute of Physics, New York, 1981) p. 170
- 3 A. K. Petford. Long, M. B. Sterns, C. H. Chang *et al.*. High-resolution electron microscopy study of x-ray multilayer structures. *J. Appl. Phys.*, 1987, **61**(4):14221428