

一种近似计算金属多层膜界面 过渡层厚度的方法*

冯仕猛 易 葵 邵建达 范正修

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘 要 在用小角射线衍射研究离子束溅射法制备的多层膜基本结构时, 提出了一个可以计算界面过渡层厚度公式。由实验曲线和文中提出公式得到过渡层厚度, 并与用实验曲线和理论曲线进行拟合所得值进行了对比, 结果表明这两种方法得到的过渡层厚度基本一致。

关键词 多层膜, 小角衍射, 过渡层厚度。

1 引 言

在金属多层膜、X 射线光学元件的研究中, 一般采用小角射线衍射实验确定多层膜结构参数。因为过渡层的厚度对小角射线衍射强度、射线光学元件的性能有非常大的影响, 故准确确定过渡层厚度在考察 X 光反射元件性能时就显得非常重要。把过渡层看作是德拜因子, 引入到 X 光衍射理论公式, 将所得模拟曲线与实验曲线进行拟合^[1, 2], 从而可得到过渡层厚度。实际上这种方法得到的是界面粗糙度。严格地讲, 界面粗糙度和过渡层厚度是不同的。通过多层膜的反射强度的绝对值也可以对界面粗糙度进行计算^[3], 但这种方法计算复杂, 且要求精确的反射强度值。我们用一个比较简单公式表现过渡层与反射曲线之间的关系, 即直接通过衍射曲线计算过渡区厚度。这在实验中是非常有意义的。多层膜结构中多种缺陷都会导致实验衍射曲线与理论衍射曲线的偏差, 但可以通过同一样品衍射曲线不同级次强度对比去掉那些与膜系本身固有性质相关的因子, 从而得到过渡层厚度的简单计算。

本文建立一个简单物理模型, 并由此推出一个衍射曲线强度与过渡区厚度定量表达式。将其与其它方法相比较, 证明本文的公式是有价值的。

2 理论分析

在薄膜淀积时, 衬底总会有一定的粗糙度, 一般情况下, 粗糙度的存在会延伸到膜系表面。膜系表面粗糙度、过渡层和界面粗糙度会使衍射强度降低。但本文认为在多层膜中, 对于 X 光衍射, 过渡层和界面粗糙度的影响是主要的。为了计算过渡层和粗糙度对衍射光强度

* 国家科委 863 高科技项目。

收稿日期: 1999-03-18; 收到修改稿日期: 1999-04-27

的影响, 把两者统一为过渡层因子, 可建立一个简化的物理模型, 把吸收层看成是处于晶格格点位置上的原子团, 间隔层为晶格间距, 则过渡层就相当于原子基团在 x 方向振动, 如图 1 所示。



Fig. 1 The simple model of multilayer. The black part represent the absorption, and the white part is the spacing

原子基团组成的散射波振幅由下式给出

$$\left. \begin{aligned} A(s) &= \sum_1^N f_n \exp(-2\pi i s x_n), \\ s &= \frac{2 \sin \theta}{\lambda}, \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

式中 f_n 为原子基团散射因子, 该散射因子是考虑了间隔层原子影响后修正的散射因子, 它不会影响最后的计算结果; s 为波矢, x_n 为该原子基团偏离正常格点的位移。因为振动, 原子团的散射因子将发生变化。在本模型中两种反射原子基团在 x 方向振动的散射因子为

$$F_n = f_n \exp(-2\pi i s x_n), \quad (2)$$

按泰勒级数展开可得它的平均值

$$F_n = f_n [1 - 2\pi i s x - 2\pi^2 (s x)^2], \quad (3)$$

因为 x 很小, 可以不考虑 x 的高次幂, 则得到 F_n 的平均值

$$F_n = f_n [1 - 2\pi^2 (s x)^2] = f_n (1 - \frac{8\pi^2 \sin^2 \theta}{\lambda^2} x^2). \quad (4)$$

事实上, 多层膜过渡区吸收层原子在 x 方向上按一定规律分布。本文假定吸收层原子浓度按 $p = \cos kx$ 变化, 式中 k 为常数, 浓度变化范围为 $0 \sim 1$, 即相当于格点上原子基团在过渡区出现的几率变化。这个原子基团的结构因子应为

$$F_n = \int_0^{\Delta x} (\cos kx) (1 - mx^2) dx = f_n [1 - m(\frac{\Delta x^2}{k} - \frac{2}{k^3})], \quad (5)$$

式中 $m = \frac{8\pi^2 \sin^2 \theta}{\lambda^2}$, Δx 为原子集团偏离正常位置的范围。根据边界条件, 当

$$x = 0, \quad \cos kx = 1; \quad x = \Delta x, \quad \cos kx = 0.$$

可以得到 $k = \pi/2\Delta x$, 代入(5)式中得格点上原子基团散射因子为

$$F_n = f_n (1 - 0.12\Delta x^3) \approx f_n \exp(-0.12m \Delta x^3). \quad (6)$$

理想晶格衍射光强度是处于格点上所有原子基团散射波的总和, 所以

$$I_1 = A^2(s) = \sum_{n=1}^N F_n^2 \exp(-2\pi i s x_n), \quad (7)$$

式中 N 为格点数, 格点间距离为 x_n 。因为格点振动, 将振动格点散射因子 F 代入(7)式, 得到多层膜衍射光实际散射强度 I_r 为

$$\begin{aligned} I_r &= \sum_{n=1}^N f_n^2 \exp(-2 \times 0.12m \Delta x^3) \exp(-2\pi i s x_n) = \\ &\exp(-2 \times 0.12m \Delta x^3) \sum_1^n f_n^2 \exp(-2\pi i s x_n) = \\ &\exp(-2 \times 0.12m \Delta x^3) I_1, \end{aligned} \quad (8)$$

上述过渡层结构因子相当于一个德拜因子, 它能使光正常衍射强度降低, 即

$$D = \exp(-2M), \quad M = -0.12 \frac{8\pi^2 \sin^2 \theta}{\lambda^2} \Delta x^3.$$

对于理想的多层膜, 其理论结构因子^[4]

$$|F(\theta)|^2 = (2/q^2) [p_1^2(1 - \cos qd_1) + p_2^2(1 - \cos qd_2) + p_1 p_2 (\cos qd_1 + \cos qd_2 - \cos qd - 1)], \quad (9)$$

式中 $q = (4\pi/\lambda) \sin \theta$, 周期 $d = d_1 + d_2$, p 为材料的电子密度。在满足 $2d \sin \theta = k\lambda$ 情况下, 衍射光强最大。对于给定的膜系, d 和 p 为确定值, 由(9)式可得

$$|F(\theta)|^2 \propto \frac{1}{k^2}, \quad (10)$$

将 $2d \sin \theta = k\lambda$ 和(10)式代入下式

$$I(\theta) = I_0 |F(\theta)|^2 \frac{\sin^2(N\delta/2)}{\sin^2(\delta/2)}, \quad \delta = \frac{4\pi}{\lambda} d \sin \theta, \quad (11)$$

得各极衍射光强度对比为

$$I_1(\theta) \cdot I_2(\theta) \cdot I_3(\theta) \cdot I_4(\theta) \cdots I_k(\theta) \cdots = 1 \cdot \frac{1}{4} \cdot \frac{1}{9} \cdot \frac{1}{16} \cdots \frac{1}{k^2} \cdots \quad (12)$$

因为过渡层的存在, 将会使衍射光降低。本文将过渡层因子作为一个修正因子引入到理论衍射光强度的计算公式中, 并代入各级衍射强度相对比例系数, 得实际衍射光强度

$$I'(\theta) = I(\theta) \exp(-2M) \propto I_0 [\exp(-2M)] \frac{1}{k^2}, \quad M = -0.12 \frac{8\pi^2 \sin^2 \theta}{\lambda^2} \Delta x^3. \quad (13)$$

利用不同级次衍射强度实验曲线对比可以获得

$$\frac{I'_i(\theta)}{I'_j(\theta)} = \frac{k_j^2}{k_i^2} \exp[0.12 \frac{16\pi^2}{\lambda^2} (\sin^2 \theta_j - \sin^2 \theta_i) \Delta x^3], \quad (14)$$

上式两边取对数便可得到过渡层厚度 Δx 的表达式

$$\Delta x = \{[\ln I'_i(\theta) - \ln I'_j(\theta)] - 2(\ln k_j - \ln k_i)\}^{1/3} [0.12 \frac{16\pi^2}{\lambda^2} (\sin^2 \theta_j - \sin^2 \theta_i)]^{-1/3}. \quad (15)$$

3 实验及计算结果

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 1.6×10^{-3} Pa, 氩气为 2×10^{-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。各样品的情况列于表 1 中。本文使用日本理学(Rigaku) D/max-IIIc 全自动射线衍射仪。实验在小角区进行。使用 Cu 靶的 K α 线 ($\lambda = 0.154$ nm)。各样品的射线衍射图见图 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列于表 1。

Table 1. The structural parameters of samples

No	name	period of multilayers/nm		periodic number/nm
		designed	measurement	
1	Co/Ti	6.00	6.24	30.5
2	Co/Ti	5.00	5.10	30.5
3	Ta/Sb	5.00	4.89	30.5
4	Ta/Sb	7.00	7.16	30.5
5	Ta/Sb	8.00	8.10	30.5

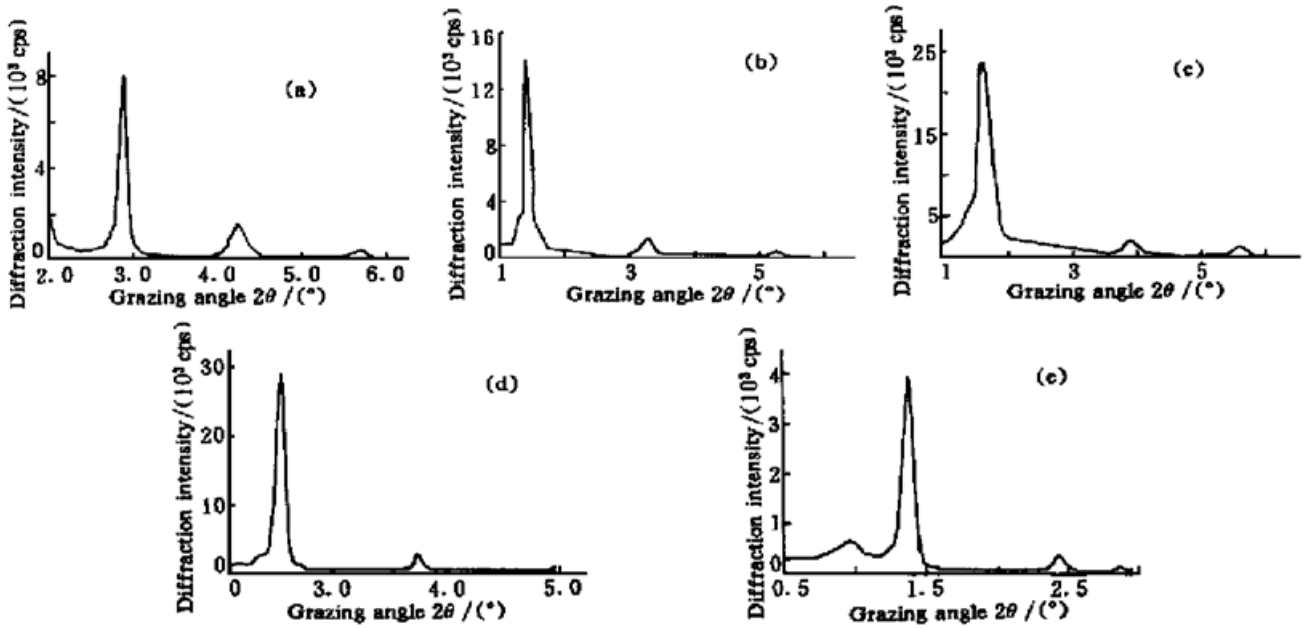


Fig. 2 The small angle X-ray diffraction spectrum of Co/Ti, Ta/Sb multilayers. (a) Measured from Co/C multilayer with the periodic thickness 6.24 nm, (b) Measured from Co/C multilayer with the periodic thickness 5.10 nm, (c) From Ta/Sb multilayer with the periodic thickness 4.89 nm, (d) From Ta/Sb multilayer with the periodic thickness 7.16 nm, (e) From Ta/Sb multilayer with the periodic thickness 8.10 nm

通过对衍射峰曲线的曲面积分得到衍射强度,然后将得到的衍射强度代入 Δx 的表达式中,得到各个样品的过渡层厚度(见表2)。表2中的拟合值为将实验所得实际衍射曲线输入计算机和理论衍射曲线进行比较,然后在理论衍射曲线中引入不同的 Δx ,使之与实验曲线相符,这样拟合后可得过渡层厚度的数值。

Table 2. The thickness of the metal multilayer interface of samples

No	1	2	3	4	5
fitted	1.05	1.10	1.20	1.15	1.00
calculated	1.11	1.07	1.41	1.10	1.23

4 讨 论

1) 在衍射峰处, $2d \sin \theta = k\lambda$, 由(13) 式中的因子 $M = -0.12 \frac{8\pi^2 \sin^2 \theta}{\lambda^2} \Delta x^3$, 经过变换得

$$M = 0.12 \frac{2\pi^2 k^2}{\delta^2} \Delta x^3 = 0.12 \times 2\pi^2 k^2 \left(\frac{\Delta x}{d}\right)^2 \Delta x, \quad (16)$$

Δx 为过渡层的绝对厚度, d 为多层膜的周期。从(13) 式和(16) 式中不难看出, 对相同粗糙度, 周期大的衍射光受过渡层影响较小; 周期小的受过渡层影响相对较大。因此, 要获得理想的反射率, 一方面要提高表面光洁度, 降低过渡层厚度, 同时可以采用高次衍射峰以提高周期厚度, 从而降低过渡层对衍射强度的影响。

2) 在进行过渡层厚度的计算中, 不同作者会得到不同衍射强度积分值, 因此会使计算结果稍有差别; 与拟合方法获得数据相比可能有时候不一样。这是由于本文建立物理模型比较

简单所造成的,但是作为一种简单近似计算方法仍然有较大参考价值。

参 考 文 献

- [1] Underwood J H, Barbee T W. Layered synthetic microstructure as Bragg diffractors for X-ray and extreme ultraviolet: Theory and predicted performance. *Appl. Opt.*, 1981, **20**(17) : 3027~ 3034
- [2] Heald S M, Chen H, Tranguada J M. Glancing-angle-extended X-ray-absorption fine structure and reflectivity studies of interfacial regions. *Phys. Rev. (B)*, 1988, **38**(2) : 1016~ 1025
- [3] Voorma H J, Louis E, Koster N B *et al.*. Characterization of multilayers by Fourier analysis of X-ray reflectivity. *J. Appl. Phys.*, 1997, **81**(9) : 6112~ 6119
- [4] 吴志强, 吕向东, 黄文勇等. 非晶态多层膜和单层膜的低角 X 射线研究. *物理学报*, 1987, **36**(5) : 591 ~ 598

An Approximate Method for Calculating Thickness of Metal Multilayer Interface

Feng Shimeng Yi Kui Shao Jianda Fan Zhenxiou

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

(Received 18 March 1999; revised 27 April 1999)

Abstract The metal multilayers were sputtering deposited on K₉ glass, and their simple structural parameters were obtained by the small angle X-ray diffraction. A formula for calculating the thickness of transfer layers is proposed, and the calculated results of samples is presented. Compared to the results obtained from the fitting method, these results are similar.

Key words multilayer, small angle X-ray diffraction, thickness of interface.