

文章编号: 0253-2239(2003)11-1362-4

软 X 射线 Mo/Si 多层膜反射率拟合分析*

王洪昌 王占山 秦树基 李佛生 陈玲燕

(同济大学精密光学工程技术研究所,物理系,上海 200092)

朱 杰 崔明启

(中国科学院高能物理研究所,北京 100039)

摘要: 由于多层膜的表界面粗糙度和材料之间的相互扩散等因素,导致多层膜的实际反射率小于理论计算的反射率,因此,多层膜结构参量的确定对镀膜工艺参量的标定具有重要意义。由于描述单个非理想粗糙界面散射的 Stearns 法适用于软 X 射线短波段区域,采用它的数学模型来描述软 X 射线多层膜的粗糙度,利用最小二乘法曲线拟合法对同步辐射测得的 Mo/Si 多层膜的反射率曲线进行拟合,得到了非常好的拟合结果,从而确定了多层膜结构参量,同时分析了多层膜周期厚度,厚度比率,界面宽度以及仪器光谱分辨率对多层膜反射特性的影响,这些工作都为镀膜工艺改进提供了一定的理论依据。

关键词: 薄膜光学; 软 X 射线; 多层膜; 界面缺陷; 参量估算; 拟合

中图分类号: O484.4 文献标识码: A

1 引 言

随着近年来对软 X 射线多层膜及其光学系统的不断深入研究,软 X 射线多层膜已在投影光刻、显微术、天文学、同步辐射、等离子体诊断、X 射线激光等多个领域获得了广泛的应用^[1]。设计多层膜的一般方法是利用菲涅耳公式,假设多层膜界面为理想界面,即材料纯净、膜层均匀、各向同性,膜层材料与固体靶材的光学常数相同,不同材料间的界面分明、光滑等,利用迭代法或矩阵法^[2]加以计算,得出最佳周期厚度、两种材料最佳厚度配比及最佳周期数。然而,镀膜后的反射率比这种理论计算的反射率有较大的下降。究其原因,第一,由于基底和膜层的粗糙度以及界面材料间的扩散使得界面变为非理想界面,即界面粗糙度导致了非镜向散射的增加;第二,镀膜过程中产生的膜厚误差也会导致反射率的降低^[3];第三,反射率的测量仪器的光源单色性,即仪器光谱分辨率也会影响测量反射率的大小。镀膜工艺参量对多层膜反射率的大小有较大的影响,同时多层膜结构参量的确定对镀膜工艺参量的标定也

有重要实际的意义。因此,对多层膜反射镜结构参量进行研究并估算是非常必要的。

目前对界面粗糙度的估算方法^[4]主要采用德拜-沃勒因子(D-W 因子),这种方法的理论基础是标量散射理论。从标量散射理论的角度来看,其描述粗糙界面的近似条件之一^[5,6]就是入射光的波长要远大于界面的粗糙度;在软 X 射线短波段区域,这个条件已经不能完全成立。Stearns 建立了一种非均匀界面的散射理论来讨论软 X 射线多层膜表面的散射,他引入了弱场近似,这种理论适用于任意入射场和任意界面。本文利用 Stearns 模型,采用最小二乘法曲线拟合,使用 Marquardt 运算^[7,8]对测量的反射率数据进行拟合分析,从而对多层膜结构参量进行估算。

2 拟合过程简介

如图 1 所示,在实验中测出了周期为 15,入射角为 7° 的 Mo/Si 多层膜的反射率相对于入射光波长的曲线。现在我们利用 Stearns 模型,采用最小二乘法曲线拟合来估算 Mo/Si 多层膜的周期厚度 d ,顶层膜的厚度比率 Γ ,界面宽度 δ ,仪器光谱分辨率 $\Delta\lambda$,反射率的误差 ΔR 。在本实验中 Si 为顶层膜,整体膜系结构为 Vacuum/[Si/Mo]_n/Si,这里 n 为周期性多层膜的周期数,介质为真空,基片为 Si,

* 国家自然科学基金(60178021)、上海市科技攻关项目(022261049)资助课题。

E-mail: wang4833@sohu.com

收稿日期:2002-09-03; 收到修改稿日期:2002-11-22

其中 $\Gamma = d_t / (d_t + d_b)$, (d_t 为顶层膜的厚度, d_b 为底层膜的厚度), 这里界面宽度 $\delta = \sqrt{\delta_r^2 + \delta_a^2}$, δ_r 是指界面的粗糙度, 而 δ_a 是指界面的扩散度。

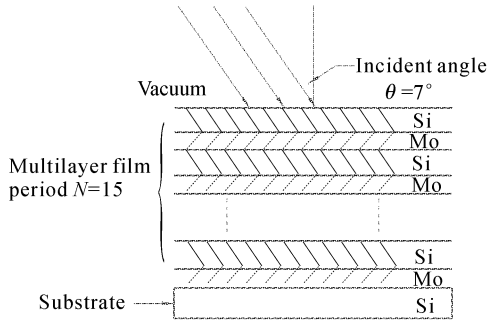


Fig. 1 Geometry of the multilayer film structure

在进行数据拟合前, 我们先把测量数据读入程序中, 接着定义膜层结构, 指定独立变量、非独立变量和拟合变量, 最后进行拟合计算。其中, 要想得到理想的拟合结果, 选定拟合数据的初值非常重要。如果拟合数据的初值和真实值相差太大, 会加长拟合计算的时间, 有时还会造成拟合结果不收敛, 达不到拟合的目的。

3 拟合过程及分析

3.1 周期性多层膜顶层膜厚度比率 Γ 对反射率曲线的影响

如图 2 所示, 当多层膜的周期 $N = 15$, 入射角 $\theta = 7^\circ$, 周期厚度 $d = 7.46 \text{ nm}$, 仪器光谱分辨力 $\Delta\lambda = 0.28 \text{ nm}$, 真空与顶层膜间粗糙度 $\delta_{[\text{Vacuum/Si}]} = 0.9 \text{ nm}$, Mo 层与顶层膜 Si 间粗糙度 $\delta_{[\text{Mo/Si}]} = 2.1 \text{ nm}$, Si 层与 Mo 间粗糙度 $\delta_{[\text{Si/Mo}]} = 1.09 \text{ nm}$, Mo 层与基底 Si 层间粗糙度 $\delta_{[\text{Mo,Si}]} = 2.0 \text{ nm}$, 反射率测量误差 $\Delta R = 0.03$ 等参量不变, 多层膜顶层膜厚度比率 Γ 从 0.4 变到 0.8 时, 反射率峰值先增大后变小, 并且反射峰向右偏。由于在多层膜的制备过程中, 多

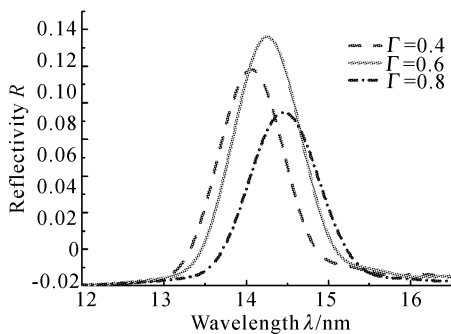


Fig. 2 Reflectivity vs the wavelength at different partition ratio

层膜的厚度不可避免地要产生误差, 因此, Γ 的值也会与理论计算的值有差别, 从而会影响到最终膜系的反射率。同时, 在拟合过程中, 可以适当地改变 Γ 的初值, 使拟合曲线更加接近实验曲线。

3.2 周期性多层膜周期厚度 d 对反射率曲线的影响

如图 3 所示, 当 $N = 15, \theta = 7^\circ, \Gamma = 0.6, \Delta\lambda = 0.28 \text{ nm}, \delta_{[\text{Vacuum/Si}]} = 0.9 \text{ nm}, \delta_{[\text{Mo/Si}]} = 2.1 \text{ nm}, \delta_{[\text{Si/Mo}]} = 1.09 \text{ nm}, \delta_{[\text{Mo/Si}]} = 2.0 \text{ nm}, \Delta R = 0.03$ 等参量不变, 周期厚度 d 从 7.2 nm 变到 7.6 nm 时, 反射率 R 的峰值变大, 并且峰值向右偏。由于软 X 射线多层膜中每层膜的厚度仅有几个原子层, 这在实际镀膜过程中是很难控制的。即使在很高的膜厚控制精度下, 也不能保证膜系中所有的膜层厚度都与理论值一致, 这些厚度偏差可能使从这些膜层表面反射的光与其它膜层表面的反射光不会产生干涉增强, 也不会对总的反射光强度有贡献; 同时由于软 X 射线波段内所有的材料都有吸收, 在一无穷厚的多层膜系中, 有效的膜层数仅有数百层或数十层。因此在相同的膜厚控制精度条件下, 软 X 射线波长越短, 镀膜过程中产生的膜层厚度的偏差对多层膜的影响越严重。图中实线为实验测得的曲线, 介于周期厚度 $7.2 \sim 7.6 \text{ nm}$ 之间, 我们可以根据该曲线设定周期厚度的初值, 最终拟合结果也是在这个区间范围内。

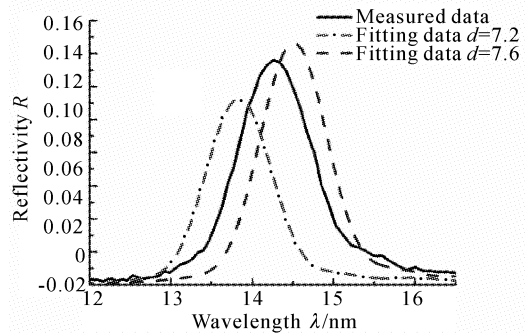


Fig. 3 Reflectivity vs the wavelength at different period thickness d

3.3 膜层的界面宽度 δ 对反射率曲线的影响

这里我们考虑界面宽度 δ 既包含界面粗糙度 δ_r , 又包含界面扩散度 δ_a , 如前所述, 当扩散度为零时, 界面宽度等于界面粗糙度。有的文献在分析界面宽度对膜层特性的影响时, 只考虑粗糙度, 而且假设表面粗糙度相同。下面我们从两方面来考虑界面宽度对膜层反射特性的影响。

1) 在其他参量不变时, 假设膜层 Mo 和 Si 之间的界面宽度 $\delta_{[\text{Mo/Si}]}$ 与 Si 和 Mo 之间的界面宽度

$\delta_{[\text{Si}/\text{Mo}]}$ 相同,且等于 1.3 nm 和 1.7 nm 时,多层膜反射率曲线的变化趋势如图 4 所示。

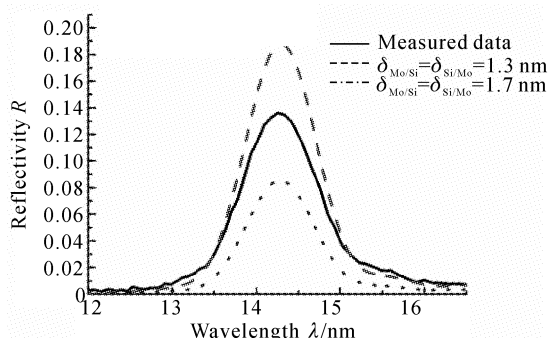


Fig. 4 Reflectivity vs the wavelength at different interface width when the interface width of Si/Mo is equal to the one of Mo/Si

2) 在其他参量不变时,假设膜层 Mo-on-Si 的界面宽度 $\delta_{[\text{Mo}/\text{Si}]}$ 等于 Si-on-Mo 的界面宽度 $\delta_{[\text{Si}/\text{Mo}]}$ 的 2 倍,且在 $\delta_{[\text{Si}/\text{Mo}]}$ 分别等于 0.9 nm 和 1.1 nm 时,多层膜反射率曲线的变化趋势如图 5 所示。

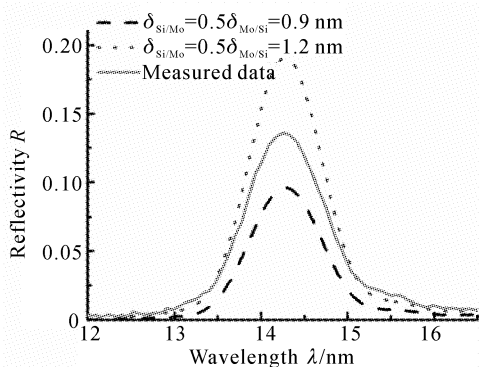


Fig. 5 Reflectivity vs the wavelength at different interface width when the interface width of Si/Mo is different from the one of Mo/Si

由图 4 和图 5 可以看出,当粗糙度变大时,反射率 R 明显变小,同时反射率曲线变得平坦,但峰值的位置没有变化,两图的变化趋势相同,只是由于不同的界面宽度使得曲线变化的大小有一定差别。我们利用标量散射理论对非理想多层膜系的反射特性进行了理论分析,多层膜反射镜的反射率随着 $(\delta/\lambda)^2$ 的增加会呈指数形式下降^[9] (其中 δ 表示膜系中的界面宽度, λ 为光的波长),波长越短,界面宽度的影响越大。在制备多层膜时,基片表面的特征对膜层结构、质量影响也非常大,特别是在单层膜厚为几个纳米甚至一、两个纳米量级的软 X 射线多层膜中,由此看出界面宽度是影响多层膜反射率的主要因素,要想得到较高的反射率,必须提高基片表面光洁度,选择表面粗糙度尽量小的超光滑基底^[10]。

由于 Si 原子的几何尺寸比 Mo 原子大,导致 $\delta_{[\text{Mo}/\text{Si}]} > \delta_{[\text{Si}/\text{Mo}]}$,所以,考虑界面宽度不同时,拟合分析更具有实际意义。

3.4 仪器光谱分辨力 $\Delta\lambda$ 对整个反射曲线的影响

由图 6 可知,在其他参量不变时,当仪器光谱分辨力 $\Delta\lambda$ 从 0.2 nm 变到 0.4 nm 时,反射率峰值变小,反射率曲线变得平坦。仪器光谱分辨力直接反映了光源的单色性好坏,如果能正确的拟合分析出仪器光谱分辨力,对今后的镀膜工艺具有很大的指导意义。

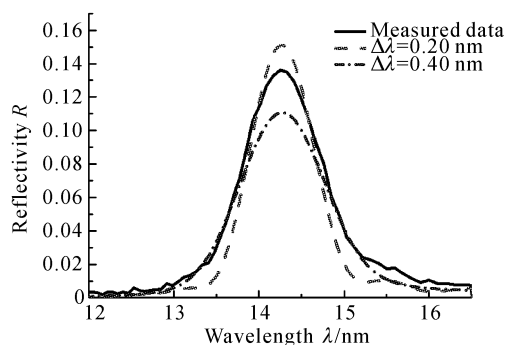


Fig. 6 Reflectivity vs the wavelength at different spectral resolution

4 拟合结果

根据以上分析,当 Si/Mo 多层膜的周期 $N=15$,入射角为 7° 时,反射率相对于波长的实验曲线拟合结果如图 7 所示,其中实线为实验测得的曲线,虚线为拟合曲线。

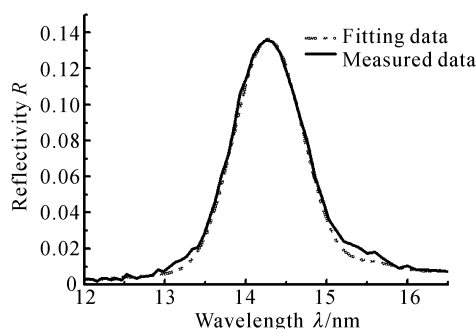


Fig. 7 The measured curve and fitting curve of reflectivity of Mo/Si multilayer vs the wavelength
多层膜结构参量的拟合结果如表 1 所示。

Table 1

$d_{[\text{Si}/\text{Mo}]} / \text{nm}$	7.46	$\delta_{[\text{Si}/\text{Mo}]} / \text{nm}$	1.08
Γ	0.61	$\delta_{[\text{Mo}/\text{Si}]} / \text{nm}$	2.08
$\Delta\lambda / \text{nm}$	0.29	$\delta_{[\text{Mo}/\text{SiS}]} / \text{nm}$	2.26
$\delta_{[\text{Vacuum}/\text{Si}]} / \text{nm}$	1.45	ΔR	0.003

结论 在拟合过程中发现在设定拟合变量初值时, 当增大 $\delta_{[\text{Mo/Si}]}$ 的同时减小 $\delta_{[\text{Si/Mo}]}$, 或者同时改变 d 和 Γ , 有时也可能得到“理想”的拟合曲线。这一点也正说明了选择初值的重要性, 我们在拟合参量之前一定要对所拟合参量的数值有一个大概的估计。正因为如此, 在拟合之前, 需要用 X 射线掠入射衍射方法测量出多层膜的周期 d 值, 以便减少拟合参量。也可以说, 在测试过程中, 各种方法是相互验证的, 任何一种方法只能给出多层膜结构一部分参量, 而不是全部。

为使拟合结果较好, 除了选择一个比较“合理”的初值, 尽可能减少拟合变量的数目之外, 还要减小拟合数据的步长, 以增加拟合数据点; 最后还要把拟合变量限制在一个合理的范围, 这样既可以缩短拟合时间又可以使拟合结果更加接近真值。

参 考 文 献

1 Back C A, Kauffman R L, Bell P M *et al.*. Characterization of Nova plasmas using an X-ray spectrometer with temporal and spatial resolution. *Rev. Scientif. Instrum.*, 1995, **66**(1):764~766

- 2 Born M, Wolf E. *Principles of Optics*. New York: Pergamon, 3rd ed., 1965
- 3 Song L M, Hu J S. Method of evaluating the roughness of Co/C multilayer film. *Chin. J. Lasers* (中国激光), 2002, **A29**(3):236~238 (in Chinese)
- 4 Vidal B, Vincent P. Metallic multilayers for X-ray using classical thin-film theory. *Appl. Opt.*, 1984, **23**(11):1794~1801
- 5 Eastman J M. Advances in research and development. In: *Physics of Thin Films*, ed. Hass G, Francombe M H., New York: Academic Press, 1978, **10**:167~172
- 6 Marquardt D W. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *J. Soc. Ind. Appl. Math.*, 1963, **11**:431~441
- 7 Bevington P R. *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences*. New York: McGraw-Hill, 1969. 58~64
- 8 Lü Junxia. *Study on Short-Wavelength Soft X-Ray Multilayer Film* (短波长软 X 射线多层膜研究) [Dr Dissertation]. Changchun: Changchun Institute of Optics and Fine Mechanics, 1999. 800~804 (in Chinese)
- 9 Yi Kui, Shao J D, Fang Z X. Effects of roughness on characterization of soft X-ray multilayer coating. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 1999, **19**(6):800~804 (in Chinese)

Analysis of the Reflectivity of Mo/Si Multilayer Film for Soft X-Ray

Wang Hongchang Wang Zhanshan Qin Shuji Li Fosheng Chen Lingyan

(Institute of Precision Optical Engineering, Department of Physics,
Tongji University, Shanghai 200092)

Zhu Jie Cui Mingqi

(Institute of High Energy Physics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039)

(Received 3 September 2002; revised 22 November 2002)

Abstract: Because of interface imperfections such as interfacial roughness and diffuseness, the practical reflectivity of soft X-ray multilayer film is lower than the calculated one. Stearn scattering method describes the scattering of single non-ideal interface and is applicable for soft X-ray short wavelength region. Its mathematical model is used to describe the multilayer interface roughness, and the least square curve fitting, which is based on the test of fit, is used to fit the experimental reflectivity of Mo/Si multilayer film by using synchrotron radiation, and good fitting results are obtained. Meanwhile the multilayer period thickness, the ratio of thickness, the interface width and the instrumental spectral resolution are analyzed. The parameters of multilayer such as roughness, diffuseness, period thickness and so on, impact of instrument's spectral resolution on the reflectivity of multilayer were determined, and at the same time the fitting for the analysis of the structural parameters of multilayers is essential in the future fabrication of multilayers.

Key words: film optics; soft X-ray; multilayer film; interface imperfection; parameter estimation; fitting