

文章编号: 0253-2239(2003)08-980-4

一种软 X 射线多层膜界面粗糙度的计算方法

冯仕猛¹ 赵海鹰¹ 黄梅珍¹ 范正修² 邵建达² 窦晓鸣¹

1 上海交通大学物理系, 上海

2 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800

摘要: 提出一个利用多层膜小角 X 射线衍射谱衍射峰积分强度计算多层膜界面粗糙度的公式。用磁控溅射技术制备 Mo/Si 多层膜, 用波长为 0.154 nm 的硬 X 射线测量样品在小掠入射角区的衍射曲线, 分别用本文公式和反射率曲线拟合方法计算了样品的界面粗糙度。实验结果表明: 由本文公式获得的界面粗糙度近似于拟合方法获得的界面粗糙度, 它们略等于多层膜界面实际粗糙度。

关键词: 薄膜光学; 多层膜; X 射线衍射强度; 粗糙度

中图分类号: O484 文献标识码: A

1 引言

软 X 射线多层膜界面粗糙度的计算是多层膜结构研究的一个重要方面。比较好的计算方法是通过测量多层膜的软 X 射线反射率^[1~4], 然后利用 (1) 式计算多层膜界面粗糙度:

$$R = R_0 \exp[-(4\pi \sin \theta_m \delta / \lambda)^2], \quad (1)$$

式中 R 是实验测得的反射率, R_0 是理论反射率, δ 是多层膜的界面粗糙度, λ 是入射光波长。但软 X 射线反射率的测量需要在同步辐射装置上进行, 一般的实验室很难获得理想单色软 X 射线, 因此这种方法因时间和实验条件的限制往往得不到多层膜真实的软 X 射线反射率, 从而使该方法的应用受到一定的限制。用高倍原子力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估算^[5], 但从照片上估计多层膜的界面粗糙度误差往往很大。多层膜结构研究中, 比较常用的方法是硬 X 射线对样品进行角度扫描, 把实验测量出的反射率曲线拟合到多层膜理论反射谱线中, 就可以获得多层膜界面粗糙度^[6~7]。本文以 X 射线衍射理论为基础, 推导出一个利用多层膜 X 射线绝对衍射峰强度计算界面粗糙度的公式, 利用该公式可以方便地计算多层膜界面粗糙度, 这对于多层膜界面结构的研究是非常有用的。

本文以 Mo/Si 多层膜为研究对象, 用磁控制溅

射技术制备 Mo/Si 多层膜。在 X 射线衍射仪上测量样品的小角衍射曲线, 用拟合方法和本文的公式计算样品的界面粗糙度, 结果表明这两种方法获得的界面粗糙度值比较接近。

2 理论推导

多层膜结构的研究一般是通过样品硬 X 射线小角度衍射实验来分析, 多层膜 X 射线衍射理论可以用材料的散射因子来推导, 对于硬 X 射线, 其吸收相当小, 可以不考虑材料对 X 射线的吸收。

X 射线照到物体上, 受到物体中原子的散射, 如果散射波在特定的方向和位置上的相位相同, 这些波会互相干涉产生衍射极大。如图 1 中的反射线。衍射强度与衍射角、材料的原子结构有关, 对于图 1 中的衍射条件, 其 X 射线的衍射振幅为

$$A(q) = \int_0^{d_1} f_1 \exp(iqx) dx + \int_{d_1}^{d_1+d_2} f_2 \exp(iqx) dx, \quad (2)$$

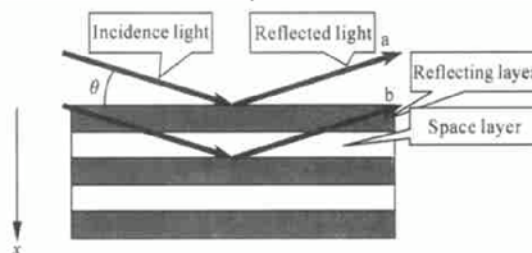


Fig. 1 Reflection of X-ray from synthetic multilayer

E-mail: feng-shimeng@163.net

收稿日期: 2002-05-28; 收到修改稿日期: 2002-09-18

式中 $q = 4\pi\sin\theta/\lambda$, θ 是入射光和表面的夹角, x 是反射点离开表面的距离, f_2 是间隔层原子散射因子, d_2 是间隔层厚度, f_1 是反射层原子散射因子, d_1

是多层膜中反射层膜的厚度. 将上面的方程进行积分后得到光子的衍射强度为

$$I = |A(q)|^2 = (2/q^2)[f_1^2(1 - \cos qd_1) + f_2^2(1 - \cos qd_2) + f_1 f_2(\cos qd_2 + \cos qd_1 - \cos qd - 1)], \quad (3)$$

对于有 N 个周期的多层膜, 应该乘上相干函数 $\sin^2(N\xi/2)/\sin^2(\xi/2)$ ^[8]

$$I = \frac{\sin^2(N\xi/2)}{\sin^2(\xi/2)} \frac{2}{q^2}[f_1^2(1 - \cos qd_1) + f_2^2(1 - \cos qd_2) + f_1 f_2(\cos qd_2 + \cos qd_1 - \cos qd - 1)], \quad (4)$$

式中 $\xi = 4\pi d\sin\theta/\lambda$, d 是周期厚度. 当在多层膜中满足布拉格公式: $2d\sin\theta = m\lambda$ 时 (m 是衍射峰级次), $q = 2\pi m/d$; 把 $\xi = 4\pi d\sin\theta/\lambda$ 和 $2d\sin\theta = m\lambda$ 代入 $\sin^2(N\xi/2)/\sin^2(\xi/2)$, 相干函数进行数学处理并取极限值就等于 N^2 , 所以(4) 可以简化为

$$I = \frac{N^2 d^2}{\pi^2 m} \left| \sin\left[\frac{m\pi d}{d}\right] \right|^2 (f_1 - f_2)^2, \quad (5)$$

对于硬 X 射线, 材料原子散射因子与光的掠入射角度有关. 本文参照相关资料^[9], 在小角区域内, 将这一关系简化为:

$$f_0 \approx f \exp\left[-\frac{k\sin\theta}{\lambda}\right],$$

式中 f 为与入射光方向相同的原子散射因子, k 是一个带因子的常量. (5) 式应该为

$$I \approx \frac{N^2 d^2}{\pi^2 m} \left| \sin\left[\frac{m\pi d_1}{d}\right] \right|^2 (f_1 - f_2)^2 \times \exp\left[-2\left|\frac{k\sin\theta}{\lambda}\right|\right]. \quad (6)$$

如果多层膜中有缺陷, 这些缺陷可以通过下列公式影响多层膜中的反射率^[10]:

$$P_m = \exp\left[-\left|\frac{4\pi\sin\theta_m\delta}{\lambda}\right|^2\right], \quad (7)$$

上式中 δ 为多层膜界面粗糙度的值. 将(7) 式代入(6) 式中, (6) 式右边的理论衍射强度就变为实际衍射强度.

$$I'_m \approx P_m I_m, \quad (8)$$

式中 I'_m 是多层膜实际衍射强度, 理论上等于衍射谱中的测量值. 但在测量 I'_m 的过程中, X 射线绝对衍射强度与入射光的强度有关, 所以(8) 式要乘上一个与入射光强度有关的常量 G , 才能等于 X 射线衍射强度的测量值:

$$I'_m \approx G \frac{N^2 d^2}{\pi^2 m} \left| \sin\left[\frac{m\pi d_1}{d}\right] \right|^2 (f_1 - f_2)^2 \times \exp\left[-2\left|\frac{k\sin\theta_m}{\lambda}\right|\right] \times \exp\left[-\left|\frac{4\pi\sin\theta_m\delta}{\lambda}\right|^2\right], \quad (9)$$

理论上讲, 只要知道了多层膜的结构参量, 材料的原子散射因子以及峰的衍射强度, 通过(9) 式可以计算多层膜的界面粗糙度. 但在实际测量中, 与入射 X 射线强度有关的常量 G 是不容易确定的, 因此不能通过一个衍射峰计算界面粗糙度. 但在同一次扫描过程中, 入射 X 射线强度是一定的, G 是不变量, 从(9) 式可以看出, 通过不同级次衍射峰强度的对比, 就可以不考虑 G 的影响, 能够精确计算多层膜的界面粗糙度.

$$I'_m/I'_n = (I_m/I_n)_{\text{measure}} \quad (10)$$

上式中 $(I_m/I_n)_{\text{measure}}$ 是指多层膜小角 X 射线衍射测量谱中两个不同级次的衍射峰衍射强度的数值比. 通过代入衍射峰级次、峰角度、反射层厚度/周期厚度比值以及衍射峰强度的测量值就可以计算多层膜的界面粗糙度.

3 实验和计算结果

实验思路是: 用磁控溅射系统制备多层膜, 在 X 衍射仪上测出样品小角度 X 射线衍射谱, 用(9) 式和(10) 式计算多层膜粗糙度; 然后测量多层膜的 X 射线反射率, 再利用德拜因子的反射率公式计算多层膜粗糙度, 最后对比计算结果.

本文用磁控溅射技术制备 Mo/Si 多层膜样品, 实验时真空室气压为 0.9×10^{-2} Pa, 溅射气压 4 Pa. 基片是 K9 玻璃, 粗糙度为 0.82 nm. 多层膜设计周期厚度为 7.20 nm, 周期数为 50. 样品的小角度 X 射线衍射实验是在一台日本理学 D/max-3C 全自动 X 射线衍射仪上完成的, 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区域而调整加速电压和束流, 一般情况下, 可分三个区域: $0.5^\circ \sim 3^\circ$ 、 $2^\circ \sim 5^\circ$ 、 $4^\circ \sim 10^\circ$, 其对应的加速电压分别是 20 kV、30 kV、40 kV, 束流分别是 5 mA、20 mA 和 40 mA. 实验步长是 0.01° , 获得的小角 X 衍射谱如图 2. 为了得到多层膜厚度比的精确值, 在相同工艺条件下制备另外一个结构参量不同的样品. 通过

两个样品的实际周期厚度和实验控制条件对比,可以获得样品精确的厚度比。根据图 2 获得的周期厚度为 7.15 nm,反射层厚度/周期厚度的比为 0.456。

利用公式(9)和(10)计算多层膜界面粗糙度时,进行对比的两个衍射峰必须是同一次扫描中出现的,所以只有用图 2 的二、三级峰才能计算界面粗糙度。本文按上面方法获得的多层膜界面粗糙度值为 0.59 nm。

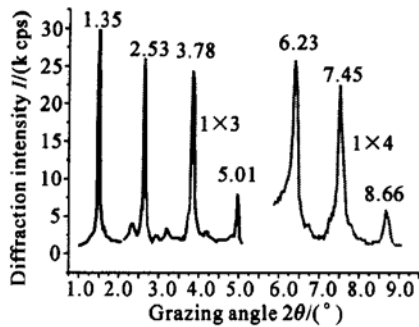


Fig. 2 The measured small angle X-ray diffraction spectrum for Mo/Si multilayer. X-ray wavelength $\lambda = 0.154$ nm

用小角 X 射线衍射实验研究多层膜的结构参量,通常都用拟合方法。本文测量了多层膜在波长为 0.154 nm 的反射率曲线,将理论反射率曲线拟合到测量曲线中(见图 3),获得的界面粗糙度为 0.62 nm。

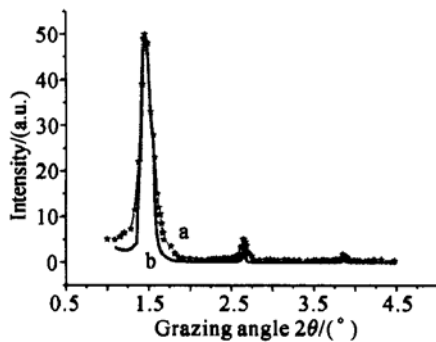


Fig. 3 The measured small angle X-ray reflected spectrum for Mo/Si multilayer, $\lambda = 0.154$ nm. The curve a is the measured reflectance spectrum, and the curve b is the fitting curve of reflectance spectrum corresponding to 0.62 nm of interfacial roughness

本文计算的界面粗糙度值 0.59 nm 与拟合方法获得的粗糙度 0.62 nm 相差 0.03 nm。本文的其它样

品实验也证明:用本文(9)式和(10)式计算的多层膜界面粗糙度近似等于用拟合小角 X 射线衍射曲线获得的多层膜界面粗糙度。就是说,用本文方法也可以大略估计软 X 射线多层膜的界面粗糙度。

结论

1) 本文给出了一个利用小角 X 射线衍射谱计算多层膜界面粗糙度的公式,用该公式和衍射峰的积分强度就可以直接计算多层膜界面粗糙度。

2) 用本文方法获得的界面粗糙度与用反射曲线的拟合方法获得的界面粗糙度近似相等,但与拟合方法比较起来,本文方法比较简单,实验上容易操作。

参 考 文 献

- 1 Akhsakhalyan A D, Fraerman A A, Polushkin N L *et al.*. Determination of layered synthetic microstructure parameters. *Thin Solid Films*, 1991, **203**(2): 317~ 327
- 2 Abples B, Tiedje T, Liang K S *et al.*. Growth and structure of layered amorphous semiconductors. *J. Non-Crystalline Solids*, 1984, **66**(1~ 2): 351~ 356
- 3 Spiller E, Alan E R. Determination of thickness errors and boundary roughness from the measured performance of a multilayer coating. *Opt. Engng.*, 1986, **25**(8): 954~ 963
- 4 Duparre A, Kassam S. Determination of thin film roughness and volume structure parameters from light scattering investigation. *Proc. SPIE*, 1991, **1530**: 283~ 286
- 5 Long P, Sterns A K. High resolution electron microscopy study of X-ray multilayer structure. *J. Appl. Phys.*, 1987, **61**(4): 1422
- 6 Slaughter J M, Schulze D W, Hills C R *et al.*. Structure and performance of Mo/Si multilayer mirrors for the extreme ultraviolet. *J. Appl. Phys.*, 1994, **76**(4): 2144~ 2154
- 7 Vernon S P, Stearns D G, Rosen R S. Ion-assisted sputter deposition of molybdenum-silicon multilayers. *Appl. Opt.*, 1993, **32**(34): 6969~ 6974
- 8 Mu Guoguang, Zhan Yuanlin. *Optics (光学)*. Beijing: High Education Press, 1978. 332~ 335 (in Chinese)
- 9 Qian Yitai. *Crystal Chemistry (结晶化学)*. Hefei: Press of University of Science and Technology of China, 1988. 95~ 97 (in Chinese)
- 10 Enderwood J H, Barbe T W. In low energy X-ray Diagnostics 1981, ed. Atwood D T, Henke B L. AIP Conf. Proc. No. 75 (America Institute of Physics, New York, 1981). 170

A Method of Calculating Interfacial Roughness of Multilayers for Soft X-Ray

Feng Shimeng¹ Zhao Haiying¹ Huang Meizhen¹ Fan Zhengxiu²
Shao Jianda² Dou Xiaoming¹

1 Physics Department, Shanghai Jiaotong University, Shanghai
2 Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800

(Received 28 May 2002; revised 18 September 2002)

Abstract: A simple formula for calculating the interfacial roughness of multilayer by using the small angle X-ray diffraction curves of the samples is given. The Mo/Si multilayer is prepared by using the magnetron sputtering, and the small X-ray diffraction spectrum for the multilayer is measured by using X-ray with the wavelength of 0.154 nm. The interfacial roughness are given by the combination of the formula with the small angle X-ray diffraction spectrum, and fitting the measured spectrum to the theoretical diffraction spectrum respectively. The results show that the calculated data of the interfacial roughness from the formula is closer to that given by fitting curve, which equals the real roughness of Mo/Si multilayer.

Key words: thin film optics; multilayer; X-ray diffraction intensity; roughness



ILOPE 2004

第 9 届中国国际激光及光电子产品展览会

展会地点: 中国国际展览中心·北京

展会时间: 2004 年 4 月 27 日 30 日

展品大类:

- 1 激光器与激光应用
- 2 光电材料和元件
- 3 显示技术及设备
- 4 生产、制造设备

- 5 光通信产业
- 6 光学仪器
- 7 红外、传感技术等相关应用

联系方式:

中展集团北京华港展览有限公司

方 芳 刘宝存 梁 晨

电 话: 010-84600344 84600339 84600335

传 真: 010-84600325 84600346

电子邮件: fang@ciec-exhibition.com lc@ciec-exhibition.com

中国光学光电子行业协会

所洪涛

电 话: 010-64362211-490

传 真: 010-64347322

展会网址: www.ilope-expo.com