

Mo/Si 软 X 射线多层膜中厚度均匀性的精细控制

朱亚丹 方明易 葵

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘要 为了获得光学性质均匀的大面积软 X 射线多层膜, 必须控制好周期结构中单层膜的厚度均匀性。为此建立了磁控溅射薄膜沉积技术中单层膜厚度均匀性的分析和控制模型, 解释了基底变速转动法可用来获得膜厚均匀的多层膜, 并根据理论分析获得了基底的变速路径。将其应用于基底公转速度变速法来制备均匀性可控的大面积 Mo/Si 软 X 射线多层膜。小角 X 射线衍射测试结果表明, 采用优化后的变速路径制备的多层膜, 样品不同位置的各级次衍射峰位都能很好吻合, 说明多层膜的周期厚度基本一致。计算表明该方法在直径 200 mm 范围内可将周期结构中 Mo 层的不均匀性从 20.6% 修正到 1.1%, Si 层的不均匀性从 27.0% 修正到 1.6%。

关键词 薄膜; 软 X 射线膜; 厚度均匀性; 变速转动法; 磁控溅射; 光学均匀性

中图分类号 O484 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201131.1131001

Precise Control of Thickness Uniformity in Mo/Si Soft X-Ray Multilayer

Zhu Yadan Fang Ming Yi Kui

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

Abstract To fabricate large area soft X-ray multilayer with uniform optical properties, the thickness uniformity of single layer in a period structure must be well controlled. The method of single layer thickness uniformity analysis and control in magnetron sputtering system is established, and variable speed rotation of sample holder to realize the uniformity of large area soft X-ray multilayer is explained. Variable rotation curve is acquired by theoretical analysis. It is used in the variable speed rotation of sample holder to realize the uniformity of large area soft X-ray multilayer. The low angle X-ray diffraction (LAXRD) results reveal that LAXRD curves at different points of samples prepared by optimized variable speed rotation paths have nearly the same diffraction angles at the same diffraction order. This phenomenon proves that the multilayer thicknesses are nearly the same value. The calculation results indicate that the thickness non-uniformity of Mo layer can be controlled in 1.1% and Si layer can be controlled in 1.6% on an area with 200 mm diameter.

Key words thin films; soft X-ray multilayer; thickness uniformity; variable speed rotation; magnetron sputtering; optical uniformity

OCIS codes 310.1860; 310.6805; 310.6860; 340.7470

1 引言

软 X 射线多层膜在极紫外光刻、天文观测、X 射线显微镜和 X 射线激光等领域有着广泛应用^[1~4]。制备大口径且光学性质均匀的多层膜元件是该领域的研究重点之一。修正挡板、大面积的靶材和基底的自转等方法^[5~17]都是提高膜厚均匀性的方法, 但是每种方法都有其局限性和修正极限, 如大尺寸的靶材受制于镀膜系统的空间, 不能无限大;

而仅靠基底的自转只能在相当于靶材 1/3 尺寸的面积上获得较好的均匀性; 设计修正挡板可以提高多层膜的均匀性, 但要获得足够的精度则需要在大量的实验中进行修正, 并且不同的靶材需要不同的修正挡板。

研究工作中常用上述方法获得较好的周期厚度分布均匀性。但要获得光学性质均匀的多层膜, 需要组成周期结构的高、低折射率材料都具有均匀的

收稿日期: 2011-06-02; **收到修改稿日期**: 2011-06-07

作者简介: 朱亚丹(1985—), 女, 硕士研究生, 主要从事软 X 射线多层膜方面的研究。E-mail: zydhaan@siom.ac.cn

导师简介: 易葵(1970—), 男, 高级工程师, 主要从事光学薄膜的设计与制备等方面的研究。E-mail: ky@siom.ac.cn

厚度分布,而不仅仅是具有相同的周期厚度。单层膜的膜厚均匀性越好,对应的多层膜的膜厚均匀性及光学性质均匀性也会越好。本文解释了基底公转变速法修正膜厚均匀性的原理,并根据单层膜厚度分布曲线设计了变速路径。分别采用基底公转匀速法和优化后的变速路径制备了 Mo/Si 多层膜。小角 X 射线衍射(XRD)测试结果表明,采用优化的变速路径后间隔层与吸收层都有较好的厚度分布。

2 基底变速公转法修正膜厚均匀性

由于薄膜的沉积厚度是由沉积速率和沉积时间共同决定的,薄膜上任一位置的厚度可表示为

$$D(r) = \sum d(r) = A \sum V(r)\tau(W, r), \quad (1)$$

式中 r 表示靶材溅射区域上同一平面的一点到该平面区域中心的距离, W 表示样品架的转速, τ 表示基片上某点在空间的停留时间, V 表示靶上方空间中的沉积速率分布,它和靶材的形状及溅射率、粒子在基片表面的凝结系数以及粒子在空间中的运输等有关, A 为常数。当基片旋转到靶材正上方时,由于靶材并非无限大,那么在基片上距基片中心不同距离 r 的沉积速率 $V(r)$ 并不完全一致。当溅射功率和工作气压等工作参数确定后, V 分布在测量误差范围内为定值,不随时间改变。

要保证不同位置的厚度一致,可通过改变样品架的公转速度来改变沉积时间 τ 。当样品架公转速度为 W_1 时,样品上各点的膜厚可表示为

$$D_1(r) = \sum V(r)\tau_1(W, r) = A \sum V(r)/W_1. \quad (2)$$

当公转速度由 W_1 变化为 xW_1 ,则基底在空间的停留时间变化为 τ/x ,相应的膜厚可表示为

$$D_2(r) = \sum V(r)\tau_2(W, r) = \frac{A \sum V(r)}{xW_1} = \frac{1}{x} \sum V(r)\tau_1(W, r) = \frac{D_1(r)}{x}. \quad (3)$$

本文采用基底的变速沉积法来改变基片不同位置的沉积时间,使基片不同位置获得足够的厚度补偿。对于膜厚均匀的大面积薄膜,任一点的厚度都可以表示为 $D(r) = D_0$,归一化处理

$$\frac{D(r)}{D_0} = \frac{\sum V(r)/W}{D_0} = 1. \quad (4)$$

以公转速度 W_1 匀速转动制备的 Si 单层膜,测得的厚度分布归一化后如图 1 所示,呈近余弦分布。可得到 $\sum V(r) = W_1 D(r)$ 的分布与图 1 相似,也呈近

余弦分布。在相同工艺条件下, $\sum V(r)$ 是不变的,采用变速 W_2 转动时要获得厚度均匀的薄膜仍有 $\frac{D(r)}{D_0} = \frac{\sum V(r)/W_2}{D_0} = 1$,因而 W_2 也应呈近余弦分布。据此优化变速曲线,可获得厚度均匀分布的薄膜。

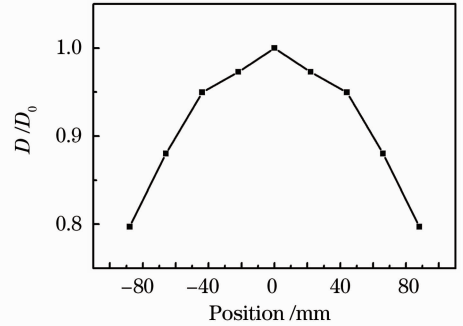


图 1 单层膜膜厚归一化分布

Fig. 1 Normalized thickness distribution of single layer

3 周期多层膜中各组分厚度分布求解

周期膜厚的确定方法采用小角 X 射线衍射法,分析衍射峰位,确定软 X 射线多层膜周期厚度^[18]。根据修正的布拉格公式有

$$\sin^2 \theta = m^2 \left(\frac{\lambda}{2D} \right)^2 + 2\delta, \quad (5)$$

式中 m 是衍射峰的衍射级次, θ 是 m 级次衍射峰对应的衍射角; D 是多层膜的周期厚度; λ 是入射 X 射线波长。采用最小二乘法对 $\sin^2 \theta \sim m^2$ 进行拟合可求出多层膜的周期厚度 D 。

根据第 2 节中的变速公转法修正膜厚均匀性的方法,在相同的工作参数下制备两块多层膜样品, Mo 和 Si 的沉积速率分别为 V_{Mo} 和 V_{Si} , 单位为 $\text{nm} \cdot \text{cycle}/\text{min}$ 。第一块样品上,样品架通过两种靶材的转速分别为 r_{Mo_1} 和 r_{Si_1} , 单位为 r/min 。第二块样品上,样品架通过一种靶材(假定为 Mo)时的转速不变仍为 r_{Mo_1} , 而通过另一种靶材(Si)的转速整体变为 r_{Si_1}/x 。根据(3)式,由于转速变化是整体按照比例变化,基底在任意位置的停留时间变为了原来的 x 倍,因此厚度也就变为原来的 x 倍。利用小角 X 射线衍射法获得两块样品的周期厚度分别为 D_1 和 D_2 , 则有

$$\begin{cases} D_{Mo_2} = D_{Mo_1}, & D_{Si_2} = xD_{Si_1}, \\ D_1 = D_{Mo} + D_{Si_1} = A(V_{Mo}/r_{Mo_1} + V_{Si}/r_{Si_1}), & (6) \\ D_2 = D_{Mo_2} + D_{Si_2} = D_{Mo_1} + xD_{Si_1} = \\ & A(V_{Mo}/r_{Mo_1} + xV_{Si}/r_{Si_1}), \end{cases}$$

式中 D_{Mo_1}, D_{Si_1} 和 D_{Mo_2}, D_{Si_2} 分别表示改为 x 倍转速前后的 Mo 层和 Si 层膜的厚度。可得

$$D_{Si_1} = (D_2 - D_1)/(x - 1), \quad (7)$$

如在大面积多层膜上取 i 个不同的点 ($i > 1$), 则 Si 单层膜的厚度不均匀性为

$$N_{Si} = \left(\frac{D_{Si_{1-i}}}{D_{Si_{1-0}}} - 1 \right) \times 100\% = \left[\frac{(D_{2-i} - D_{1-i})/(x - 1)}{(D_{2-0} - D_{1-0})/(x - 1)} - 1 \right] \times 100\% = \left(\frac{D_{2-i} - D_{1-i}}{D_{2-0} - D_{1-0}} - 1 \right) \times 100\%, \quad (8)$$

式中 $D_{Si_{1-0}}$ 表示第一块样品上 Si 膜层在几何中心位置的厚度, $D_{Si_{1-i}}$ 表示第一块样品上 Si 膜层在不同点 i 的厚度, D_{1-0} 和 D_{2-0} 分别表示第一块和第二块样品多层膜几何中心位置的周期厚度, D_{1-i} 和 D_{2-i} 分别表示第一块和第二块样品在不同点 i 的周期厚度。Mo 单层膜的厚度不均匀性可用相同的方法分析。可以通过 3 个不同周期厚度的 Mo/Si 多层膜求解各个材料的厚度分布。

4 样品制备

实验采用的磁控溅射镀膜机靶位布置如图 2 所示。4 个磁控溅射靶分布在镀膜室底部, 靶材尺寸 $203.2 \text{ mm} \times 88.9 \text{ mm}$ 。为了防止交叉污染, 相邻靶材之间用挡板隔开。靶材和基底之间的距离为 60 mm 。样品盘的中心到真空室中心轴的垂直距离与靶材的中心到真空室中心轴的垂直距离相等。多层膜厚度控制采用自动转速控厚法^[19], 在沉积过程中样品架沿顺时针方向公转, 同时样品盘以 200 r/min 的转速做高速自转, 远远大于样品盘公转的速率, 因此基片

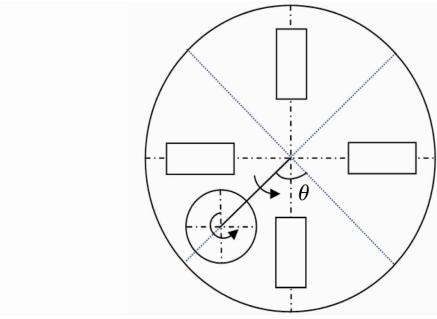
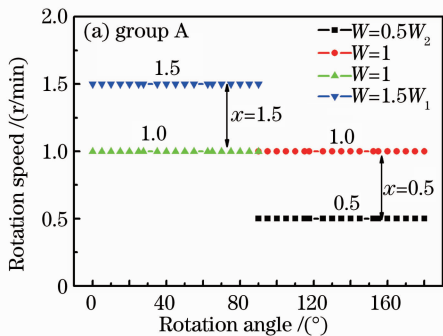


图 2 磁控溅射镀膜机靶位布置示意图

Fig. 2 Configuration of targets in magnetron sputtering system

角向厚度差异可忽略。

采用样品架匀速转动方法制备了三组不同周期厚度的 Mo/Si 多层膜(样品组 A, 直径 200 mm), 采用优化后的变速路径也沉积了相对应的三组不同周期厚度的 Mo/Si 多层膜(样品组 B, 直径 200 mm)。为了获得较大的倍数系数, x 通常采用 1.5 和 0.5 , 样品组 A 和 B 采用的转速分布如表 1 和图 3 所示, 其中 W_1 和 W_2 是优化后 Mo 靶和 Si 靶上方的转速。实验参数如下: 溅射功率 Mo 为 260 W , Si 为 400 W , 本底真空为 $1.6 \times 10^{-4} \text{ Pa}$, 工作气体为高纯 Ar 气, 工作气压 0.25 Pa 。

表 1 不同组样品的转动速度

Table 1 Rotation speeds of different samples

Sample number	Mo / (r/min)	Si / (r/min)	Rotation speed
A1	1	1	Uniform
A2	1.5	1	Uniform
A3	1	0.5	Uniform
B1	W_1	W_2	Variable
B2	$1.5 W_1$	W_2	Variable
B3	W_1	$0.5 W_2$	Variable

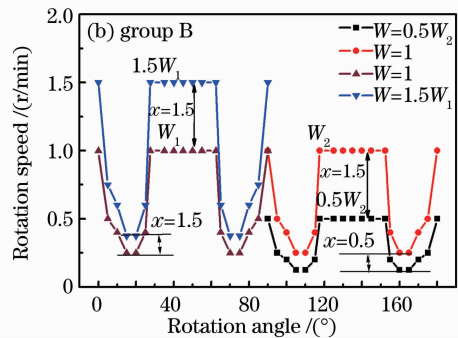


图 3 样品组 A 和 B 的速率分布

Fig. 3 Velocity distributions of sample groups A and B

5 分析与讨论

软 X 射线多层膜的小角 X 射线衍射测试在日

本理学公司生产的 X 射线衍射仪上进行。采用 $\theta/2\theta$ 的连续扫描方式, 扫描步长 0.01° 。对制备的直径

为 $\Phi 200$ mm 的样品,沿样品的半径方向每隔 22 mm 测量一个点,共测量了 5 个点($i=0,1,2,3,4$),其中 $i=0$ 表示样品的中心点。基底匀速转动制备的样品组 A 的小角测试曲线如图 4 所示,不同级次衍射峰峰位依次向右偏离中心位样品的级次衍射峰位。根据修正的布拉格公式,其他条件不变时,衍射角 θ 增大,则周期厚度必减小,这说明薄膜厚度是按照从中心到边缘的顺序依次降低的。采用变速路径制备的样品组 B,小角 X 射线衍射测试曲线如图 5 所示,不同位置样品的各级衍射峰位很好地吻合,说明多

层膜的周期膜厚基本一致。

根据小角 XRD 曲线获得的衍射峰位,由于部分多层膜样品只测到一个峰位,采用了布拉格公式计算不同位置样品上多层膜的周期厚度,所带来的误差在利用(8)式计算周期结构中单层膜的厚度均匀性时,可大部分抵消。如图 6 所示,周期结构中 Mo 层和 Si 层均匀性得到了很好的修正。在直径 200 mm 范围内采用变速法可将 Mo 层的不均匀性从 20.6% 修正到 1.1%,将 Si 层的不均匀性从 27.0% 修正到 1.6%。

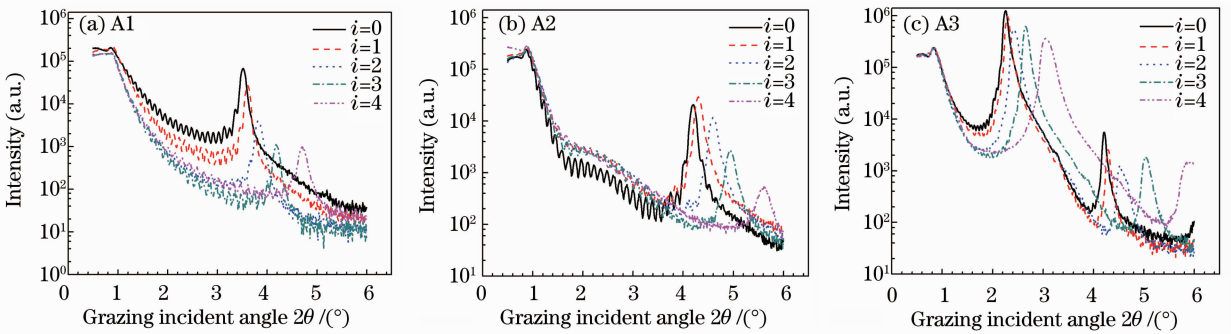


图 4 样品组 A 的小角 X 射线衍射测试曲线

Fig. 4 Low-angle XRD spectra of sample group A

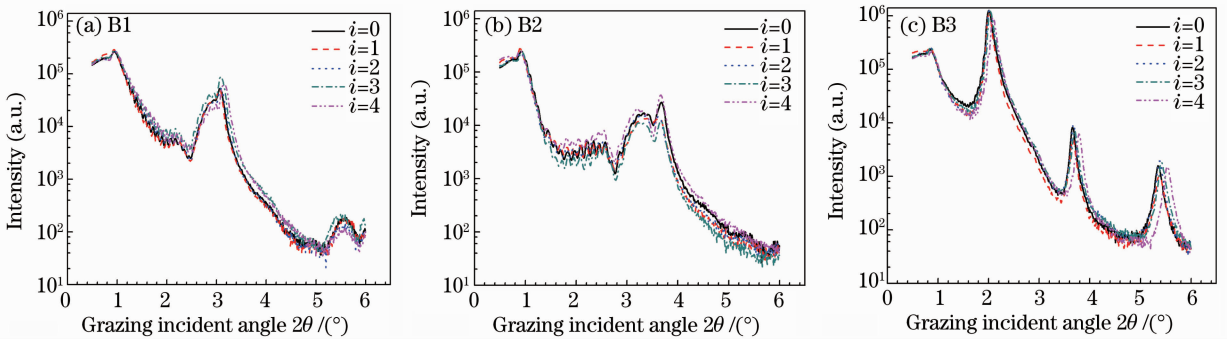


图 5 样品组 B 的小角 X 射线衍射测试曲线

Fig. 5 Low-angle XRD spectra of sample group B

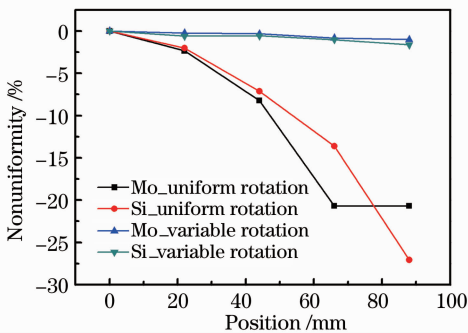


图 6 匀速法和变速法分别获得的单层膜厚度不均匀性分布

Fig. 6 Distribution of single layer thickness nonuniformity under variable rotation and uniform rotation respectively

6 结 论

根据现有的磁控溅射设备情况,从周期结构中单层膜的厚度分布角度分析了膜厚均匀性,并采用基底变速法修正软 X 射线膜的厚度均匀性。采用磁控溅射工艺,分别用基底匀速转动和基底变速转动两种方法制备了 Mo/Si 软 X 射线膜。小角 X 射线衍射测试曲线证明了采用基底变速法后薄膜的周期厚度趋向一致,均匀性得到很大提高。从实验上证明了在直径 200 mm 范围内采用变速法可将周期结构中 Mo 层的不均匀性从 20.6% 修正到 1.1%, Si 层的不均匀性从 27.0% 修正到 1.6%。

参 考 文 献

- 1 Chen Dingyang, Xu Zeping, Qin Yi *et al.*. Obtaining high-power-density soft X-ray source by using lens[J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(9): 2640~2644
陈定阳, 许泽平, 秦 义 等. 利用聚束透镜获得高功率密度软 X 射线源[J]. *光学学报*, 2009, **29**(9): 2640~2644
- 2 Zhao Lingling, Sun Delin. Design of 2-mm-field grazing incident KBA X-ray microscope[J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(s2): 242~247
赵玲玲, 孙德林. 2 mm 视场的掠入射 KBA X 射线显微镜设计[J]. *光学学报*, 2009, **29**(s2): 242~247
- 3 Cui Mingqi, Zhao Yidong, Zheng Lei *et al.*. Construction and applications of soft X-ray experimental platform on synchrotron radiation[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(9): 2271~2277
崔明启, 赵屹东, 郑 雷 等. 同步辐射软 X 射线光学实验平台的建立及其应用[J]. *中国激光*, 2010, **37**(9): 2271~2277
- 4 Zhao Yongpeng, Liu Tao, Xie Yao *et al.*. Lasing characteristic of soft X-ray spike pumped by capillary discharge at fast Z-pinch[J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(2): 347~350
赵永蓬, 刘 涛, 谢 耀 等. 快速 Z 箍缩时毛细管放电软 X 射线尖峰的激光特性[J]. *中国激光*, 2009, **36**(2): 347~350
- 5 Peter Gawlitza, Stefan Braun, Sebastian Lipfert *et al.*. Ion beam sputter deposition of X-ray multilayer optics on large areas[C]. *SPIE*, 2006, **6317**: 63170G
- 6 Ch. Morawe, J.-Ch. Peffen. Thickness control of large area X-ray multilayers[C]. *SPIE*, 2009, **7448**: 74480H
- 7 David M. Broadway, Yuri Ya. Platonov, Luis A. Gomez. Achieving desired thickness gradients on flat and curved substrates [C]. *SPIE*, 1999, **3766**: 262~274
- 8 David M. Broadway, Michael D. Kriese, Yuri Ya. Platonov. Controlling thin film thickness distributions in two dimensions [C]. *SPIE*, 2001, **4145**: 80~87
- 9 G. Gutman, J. Keem, K. Parker *et al.*. A new method for achieving accurate thickness control for uniform and graded multilayer coatings on large flat substrates[C]. *SPIE*, 1992, **1742**: 373~381
- 10 Lin Bing, Jin Chunshui, Ma Yueying *et al.*. Uniformity control research of soft X-ray laser multilayers[J]. *Optical Instruments*, 2001, **23**(5): 154~160
林 炳, 金春水, 马月英 等. 软 X 射线激光多层膜均匀性控制技术[J]. *光学仪器*, 2001, **23**(5): 154~160
- 11 Michael Störmer, Dietrich Häußler, Wolfgang Jäger *et al.*. Large X-ray optics: fabrication and characterization of single and multilayer mirrors [J]. *Opt. & Precision Engng.*, 2007, **15**(12): 1869~1877
- 12 D. L. Windt, W. K. Waskiewicz. Multilayer facilities required for extreme-ultraviolet lithography[J]. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 1994, **12**(6): 3826~3832
- 13 J. B. Kortright, E. M. Gullikson, P. E. Denham. Masked deposition techniques for achieving multilayer period variations required for short-wavelength (68Å) soft-X-ray imaging optics [J]. *Appl. Opt.*, 1993, **32**(34): 6961~6968
- 14 A. F. Jankowski, D. M. Makowiecki, M. A. McKernan *et al.*. Deposition controlled uniformity of multilayer mirrors [C]. *SPIE*, 1990, **1342**: 32~38
- 15 Fang Ming, Zheng Weijun, Wu Ming *et al.*. Improved design of uniformity mask for flat planetary fixture[J]. *J. Vacuum Science and Technology*, 2006, **26**(4): 286~289
方 明, 郑伟军, 吴 明 等. 平面行星夹具均匀性修正挡板设计方法研究[J]. *真空科学与技术学报*, 2006, **26**(4): 286~289
- 16 Pan Lei, Wang Xiaoqiang, Zhang Zhong *et al.*. Fabrication of high uniformity Mo/Si multilayer with 120 mm diameter using magnetron sputtering [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2010, **22**(7): 1535~1538
潘 磊, 王晓强, 张 众 等. 磁控溅射方法制备直径 120 mm 高均匀性 Mo/Si 多层膜[J]. *强激光与粒子束*, 2010, **22**(7): 1535~1538
- 17 Norbert Kaiser, Torsten Feigl, Olaf Stenzel *et al.*. Optical coatings: trends and challenges[J]. *Opt. & Precision Engng.*, 2005, **13**(4): 389~386
- 18 Yin Gongjie, Fan Zhengxiu, Shao Jianda. Exact structure determination of Mo/Si soft X-ray multilayer by small angle diffraction[J]. *Chinese J. Lasers*, 1993, **A20**(12): 900~905
殷功杰, 范正修, 邵建达. 小角衍射法精确测定 Mo/Si 软 X 射线多层膜结构 [J]. *中国激光*, 1993, **A20**(12): 900~905
- 19 Zhu Guolong, Feng Shimeng, Shao Jianda *et al.*. Automatically rotation-speed-controlled layer thickness of ultrathin multilayer reflectors[J]. *Chinese J. Lasers*, 2001, **A28**(11): 1027~1031
祝国龙, 冯仕猛, 邵建达 等. 制备超薄多层膜的自动转速控厚法 [J]. *中国激光*, 2001, **A28**(11): 1027~1031

栏目编辑: 韩 峰