

非理想软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率 *

白海力¹⁾ 何忠杰¹⁾ 田仁玉²⁾ 姜恩永¹⁾

1) 天津大学理学院应用物理学系, 天津 300072

2) 华南理工大学应用物理系, 广州 510641

摘要 对实际软 X 射线光学多层膜中普遍存在的主要非理想因素(层厚漂移、界面粗糙度和界面扩散)进行了定量描述. 基于动力学光学理论, 计算了上述非理想因素对软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率的影响. 结果表明: 层厚的随机漂移使反射率、尤其是高级反射率降低; 累积层厚漂移破坏了多层膜的长程有序性, 使反射峰展宽; 界面扩散和界面粗糙度使反射率降低, 对高级反射率的影响更甚, 但二者并不破坏多层膜的长程有序性, 所以反射峰的宽度不变; 界面扩散和界面粗糙度对反射率影响的机制不同; 在界面扩散宽度和界面粗糙度相等的情况下, 界面粗糙度使反射率下降显著. 用模拟退火 Monte-Carlo 方法对 Co/C 软 X 射线光学多层膜进行了结构评价. 该方法能避免复杂的求导运算, 在软 X 射线光学多层膜的结构评价中具有较强的实用性.

关键词 软 X 射线光学多层膜, 层厚漂移, 界面粗糙度, 界面扩散, 掠入射镜向反射率, 模拟退火 Monte-Carlo 方法
中图分类号 O485, TG115.221.5 文献标识码 A 文章编号 0412-1961(2001)02-0121-06

GRAZING SPECULAR REFLECTIVITY OF NON-IDEAL SOFT X-RAY OPTICAL MULTILAYERS

BAI Haili¹⁾, HE Zhongjie¹⁾, TIAN Renyu²⁾, JIANG Enyong¹⁾

1) Department of Applied Physics, Faculty of Science, Tianjin University, Tianjin 300072

2) Department of Applied Physics, Huanan University of Science and Engineering, Guangzhou 510641

Correspondent: BAI Haili, Tel: (022)27406991, Fax: (022)27890681, E-mail: baihaili@public.tpt.tj.cn

Manuscript received 2000-07-25, in revised form 2000-10-31

ABSTRACT Three main factors, layer thickness fluctuation, interfacial roughness and interdiffusion of non-ideal soft X-ray optical multilayers were characterized quantitatively. The influences of the three non-ideal factors on the grazing specular reflectivity of non-ideal soft X-ray optical multilayers were calculated by using dynamic optical theory. The results indicate that the random layer thickness fluctuations cause a remarkable decrease in the reflectivity, especially for the high-order reflections. The cumulative layer thickness fluctuation destroys the long-range order which is conserved in ideal multilayers, and thus increases the peak width. The interdiffusion and interfacial roughness both make the reflectivity decrease, especially the high-order reflectivity. However, they don't destroy the long-range order of the multilayers, and thus keep the peak width unchanged. The mechanisms of the decrease in the reflectivity caused by interdiffusion and interfacial roughness are different. For the same interfacial width and interfacial roughness, the latter causes a much stronger decay in the reflectivity. Monte-Carlo simulating annealing approach, which avoid complicated derivation and can always find global minimum, was used to characterize Co/C soft X-ray optical multilayers. The consistent results indicate that Monte-Carlo simulating annealing approach is quite suitable for the structure characterization of soft X-ray optical multilayers.

KEY WORDS soft X-ray optical multilayers, layer thickness fluctuation, interfacial roughness, interdiffusion, grazing specular reflectivity, Monte-Carlo simulating annealing approach

* 国家自然科学基金 59801006、天津市 21 世纪 - 青年科学基金 983701111 和天津大学理科青年基金联合资助项目

收到初稿日期: 2000-07-25, 收到修改稿日期: 2000-10-31

作者简介: 白海力, 男, 1968 年生, 蒙古族, 教授

软 X 射线光学多层膜反射镜(例如 Mo/Si, W/C 和 Co/C 等)具有极高的空间分辨率, 在宇航、天文、等离子体诊断、显微全息以及同步辐射光学等领域得到了广泛应用^[1-6]. 在软 X 射线波段, 理论计算表明, 理想软 X 射线光学多层膜可以有极高的反射率^[7,8]. 但由于制备的

多层膜的真实结构与理想结构有很大的差别, 实验上得到理想反射率是非常困难的. 实际多层膜中较为重要的缺陷是: 多层膜的界面并不是原子级平整的, 而是呈现原子级的粗糙或扩散^[9]. 此外, 非理想多层膜中还存在层厚漂移. 当入射 X 射线的波长较短时, 上述缺陷将严重影响软 X 射线光学多层膜的光学性质. 利用 X 射线散射方法(镜向反射和漫散射)来表征多层膜的这些界面缺陷是目前广泛使用的主要手段. 在镜向反射方式下, 受散射方式本身的限制, 对界面粗糙度的传统处理方法是技术上不区分界面粗糙度和界面扩散, 认为界面扩散仅是界面粗糙度的另一种描述方式(模型)^[10-12]. 本文分别研究了实际多层膜中的层厚漂移、界面粗糙度和界面扩散等主要非理想因素对 Co/C 软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率的影响, 发现界面粗糙度和界面扩散对掠入射镜向反射率的影响有显著差异.

1 软 X 射线光学多层膜中的非理想因素及其表征

1.1 层厚漂移

多层膜的层厚漂移一般被认为是随机(random)的, 分为非累积漂移(noncumulative fluctuations)和累积漂移(cumulative fluctuations).

若多层膜的层厚随机漂移具有 Gaussian 分布, 则对第 j 层, 随机漂移(ε_j)的几率为

$$P(\varepsilon_j) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{\varepsilon_j^2}{2\sigma^2}\right) \quad (1)$$

其中 σ 为方均根层厚漂移.

对非累积漂移, 多层膜第 j 层的厚度为

$$t_j = t_j^0 + \varepsilon_j \quad (2)$$

对累积漂移, 多层膜第 j 层的厚度为

$$t_j = t_j^0 + \sum_{i=1}^j \varepsilon_i \quad (3)$$

其中 t_j^0 为第 j 层的平均厚度, ε_i 遵循式(1)的 Gaussian 分布.

式(2)和(3)的主要区别是: 在后一种情况下, 某一层的随机漂移会影响另一层的随机漂移, 这将严重破坏多层膜的长程有序性.

1.2 界面粗糙度

在 Born 近似条件下, 理想光滑表面的镜向反射率和粗糙表面的镜向振幅反射率具有简单关系

$$|R_r|^2 = |R_i|^2 \exp(-q_z^2 \sigma_r^2) \quad (4)$$

其中 R_r 和 R_i 分别为粗糙和光滑表面的振幅反射率, q_z 为动量转移矢量, σ_r 为表面粗糙度. 若假设多层膜中每

一个界面的粗糙度相同, 则在界面处存在与式(4)类似的关系

$$r_j = r_{0j} \exp\left(\frac{-\sigma_r^2 q_{zj} q_{zj+1}}{2}\right) \quad (5)$$

其中, r_j, r_{0j} 分别为实际多层膜和理想多层膜的第 j 个界面的 Fresnel 反射系数, $q_{zj} = \frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{n_j^2 - n_1^2 \sin^2 \theta_1}$, λ 为入射 X 射线的波长, θ_1 为入射角, n_j 为第 j 层的折射率.

1.3 界面扩散

假设多层膜由 A 和 B 两种材料构成, 材料 A 和 B 对某一波长的 X 射线的折射率分别为 n_A 和 n_B ; 界面扩散区域(或过渡层)的宽度为 σ_t . 过渡层的折射率可以用不同的函数形式来表示.

(1) 线性函数

$$n(z) = n_A + (n_B - n_A) \frac{z}{\sigma_t} \quad (6)$$

(2) 误差函数

$$n(z) = n_A + (n_B - n_A) \operatorname{erf}(z, \sigma_t) \quad (7)$$

$$\operatorname{erf}(z, \sigma_t) = (\sigma_t \sqrt{2\pi})^{-1} \int_{-\infty}^z \exp\left(-\frac{t^2}{2\sigma_t^2}\right) dt \quad (8)$$

此外, 还有指数函数和正弦函数等.

2 非理想软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率的计算方法

计算软 X 射线光学多层膜的掠入射反射率的方法有多种, 如经典光学理论的矩阵法和递推法^[13-15], 以及散射理论的散射因子法^[16]等. 这些计算方法原则上可以分为两类, 运动学(kinematic)方法^[3,17-21]和动力学(dynamical)^[17,22-27]方法. 运动学方法基于一级 Born 近似(Born approximation, BA), 即散射来自于分立的散射体(如电子), 忽略消光和多次散射. 这种方法适用于相关和非相关散射的计算, 并可解释镜向和非镜向反射. 但在掠入射角和散射角接近全反射的临界角 θ_c 时, Born 近似结果发散, 因为它没有考虑 X 射线的折射和全反射等因素. 动力学方法基于畸变波 Born 近似(distorted-wave Born approximation, DWBA), 它考虑了 X 射线的多次散射和全反射, 因而可以很好地解释 BA 所不能解释的 Yoneda 峰^[28,29]. 本文采用动力学光学理论计算反射率.

2.1 理想软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率的计算

根据动力学光学理论, 并考虑 X 射线的吸收(折射率 n 为复数), 界面反射率 $R_{j,j+1}$ 的递推关系可以表示为

$$R_{j,j+1} = a_j^4 \left(\frac{R_{j+1,j+2} + r_{j,j+1}}{R_{j+1,j+2} r_{j,j+1} + 1} \right) \quad (9)$$

其中 $R_{j,j+1}$ 为第 j 和第 $j+1$ 层之间界面的反射率, a_j 为第 j 层厚度一半处的振幅因子, $r_{j,j+1}$ 为 σ 或 π 极化分量的 Fresnel 反射系数.

设基底为介质 n , 计算从基底开始. 将基底看成无限厚, 则 $R_{j,j+1}=0$. 使用式 (9), 递推到表面, $a_1=1$, $r_{12}=\sin \theta_1$, 得到多层膜结构的振幅反射率 R_{12} , 其与反射强度的关系为

$$\frac{I(\theta_1)}{I_0} = |R_{12}|^2 \quad (10)$$

这种计算方法的优点是具有很强的普适性, 用它可以计算多层膜在任意入射角下的反射率.

2.2 具有界面粗糙度的软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率的计算

根据式 (5), 在循环公式 (9) 中, 对每一个界面, 其 Fresnel 反射系数 r_j 都乘以一个因子 $\exp(-\frac{\sigma^2 q_z^2 q_{zj+1}}{2})$, 则在最后的结果中, 便计入了各界面粗糙度对镜向反射率的影响.

2.3 具有界面扩散的软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率的计算

将界面扩散区域分成 M 等份, 每一层的折射率用其中点的折射率代替, 中点的折射率用式 (7) 和 (8) 计算. 这样仍可采用式 (9) 的递推法计算反射率.

2.4 具有随机层厚漂移的软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率的计算

每一层的随机漂移由随机数产生程序确定. 仍采用式 (9) 计算反射率, 最终得到的计算强度取 300 次计算的平均结果.

3 非理想软 X 射线光学多层膜掠入射镜向反射率的计算结果

3.1 理想多层膜

图 1 为理想 Co/C 软 X 射线光学多层膜 (调制周期 $\Lambda=5.0$ nm, Co 层厚度与调制周期的比值 $\Gamma=0.4$, 周期数 $N=20$) 掠入射镜向反射率的计算结果 (以对数坐标表示). 图中除了主峰以外, 在主峰之间还有次峰. 主峰来自于多层膜的周期性成分调制结构, 次峰来自于多层膜样品的有限尺寸 (finite size) 效应, 即整个多层膜的上下表面的干涉效应.

3.2 非理想多层膜 - 层厚的随机漂移

图 2 为只考虑随机层厚漂移的 Co/C 软 X 射线光学多层膜掠入射镜向反射率的计算结果. 计算中随机方均根层厚漂移取为 $\sigma=0.2$ nm. 可以看到, 非累积层厚 (ϵ_{nc}) 和累积层厚 (ϵ_c) 漂移对反射率的影响不同; 非累积层厚漂移的影响类似于热效应中的 Debye-Waller 因子, 它虽对反射峰的宽度的影响不甚明显, 但对镜向反射率产生如下影响: (1) 使峰值反射率降低, 并且对高级峰影响较大; (2) 使峰值反射率间的反射强度相对增大. 在镜向反

射方向, 层厚的累积漂移是位置无序, 因而严重破坏了多层膜的长程有序性, 使反射峰显著展宽. 这就是累积漂移与非累积漂移最大的不同之处.

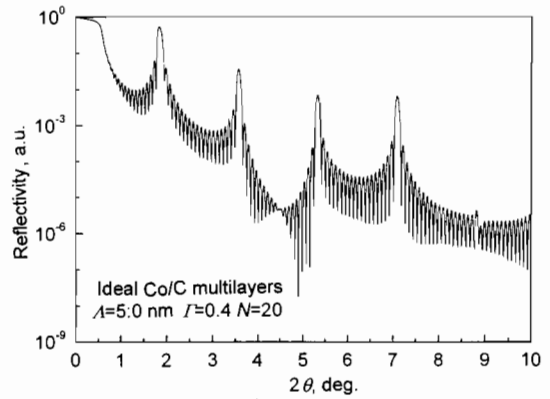


图 1 理想 Co/C 软 X 射线光学多层膜掠入射镜向反射率的计算曲线

Fig.1 Grazing specular reflectivity of ideal Co/C soft X-ray optical multilayers

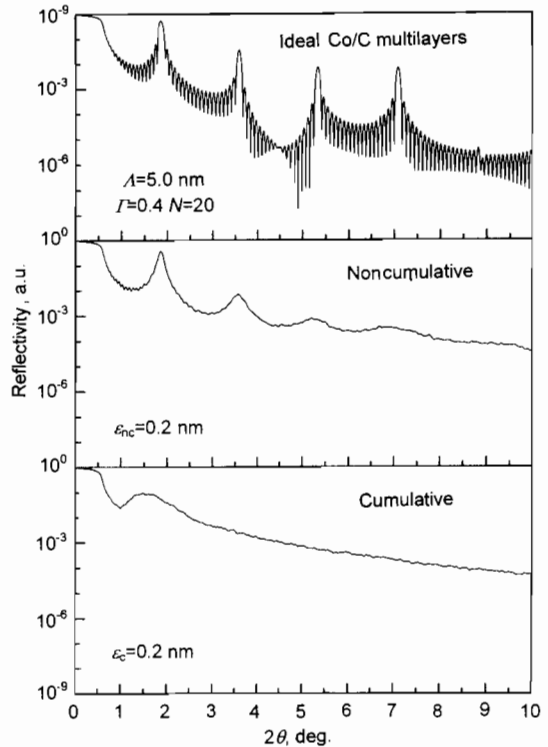


图 2 随机层厚漂移对 Co/C 软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率的影响

Fig.2 Influence of random layer thickness fluctuation on the grazing specular reflectivity of non-ideal Co/C soft X-ray optical multilayers

3.3 非理想多层膜 - 界面粗糙度

图 3 为只考虑界面粗糙度的 Co/C 软 X 射线光学多层膜的计算掠入射镜向反射率, $\sigma_r=0, 0.2, 0.4$ nm. 可

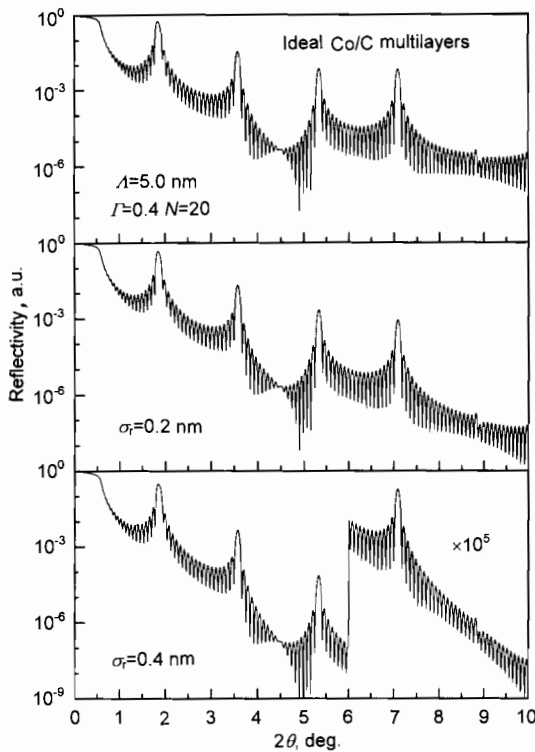


图3 界面粗糙度对 Co/C 软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率的影响

Fig.3 Influence of interfacial roughness on the grazing specular reflectivity of non-ideal Co/C soft X-ray optical multilayers

见多层膜的反射率随界面粗糙度的增大而降低, 在高级峰上反映尤为明显, 但峰的宽度并不改变. 这是因为界面粗糙度并不改变多层膜的长程有序性.

3.4 非理想多层膜 - 界面扩散

图 4 为只考虑界面扩散的 Co/C 软 X 射线光学多层膜的计算掠入射镜向反射率, $\sigma_i=0, 0.2, 0.4$ nm. 在计算过程中假设界面扩散遵循误差函数形式, 即式 (7) 和 (8). 可见多层膜的反射率随界面扩散宽度的增大而降低, 高级反射率的降低更为明显. 界面扩散也不改变多层膜的长程有序, 所以峰的宽度并不改变.

3.5 界面粗糙度和界面扩散对反射率影响的比较

比较图 3 和 4, 可以看到, 界面粗糙度对高级反射率的影响较大. 过渡层虽然降低了界面反射率, 但相应增加了界面透射率, 使 X 射线入射深度增加, 参与反射的多层膜界面数要大于界面粗糙度的情况, 部分补偿了界面反射率的损失, 使反射率的降低相对减小.

4 实际软 X 射线光学多层膜微结构的 Monte-Carlo 模拟

4.1 拟合方法

X 射线衍射仪所记录的仅是入射 X 射线的反射 (散射) 强度, 而丢失了反射 (散射) 波的相位信息. 因此, 由

掠入射 X 射线衍射谱得到薄膜样品的微结构参数是十分复杂的多参数拟合问题. 在第 2 节的基础上, 采用模拟退火 Monte-Carlo 方法^[30]拟合 Co/C 软 X 射线光学多层膜的掠入射 X 射线衍射谱, 避免了目标函数的复杂求导运算过程, 得到了较为理想的结果.

4.2 结构模型

在实际多层膜的界面处存在界面扩散和粗糙度. 虽然 X 射线衍射是非破坏性的获取薄膜微结构参数的有效方法, 但是由于在与物质的相互作用过程中, X 射线仅对电子密度的变化十分敏感, 使用 X 射线镜向反射分析技术不能在实验上区分界面扩散和界面粗糙度. 另外, 通过严格控制制备条件, 累积层厚漂移 (一般由仪器本身的系统误差造成) 可以控制在相当小的范围内. 因此, 本文基于以下两个结构模型, 通过模拟退火 Monte-Carlo 方法得到 Co/C 软 X 射线光学多层膜的结构参数.

模型 1: 多层膜中的非理想因素为非累积层厚漂移和界面粗糙度;

模型 2: 多层膜中的非理想因素为非累积层厚漂移和界面扩散.

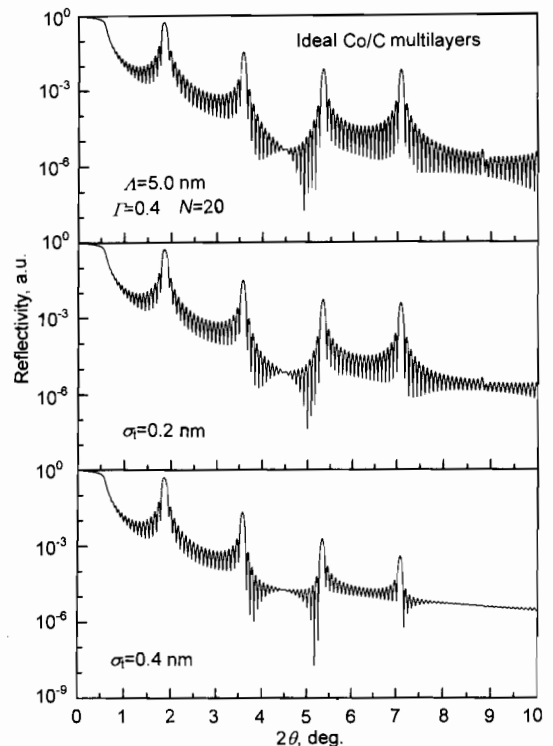


图4 界面扩散对 Co/C 软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率的影响

Fig.4 Influence of interdiffusion on the grazing specular reflectivity of non-ideal Co/C soft X-ray optical multilayers

4.3 拟合结果分析

图 5 为采用不同的结构模型对实际 Co/C 软 X 射线

光学多层膜的掠入射镜向反射率的 Monte-Carlo 模拟结果. 表 1 中给出了具体的拟合结构参数. 值得注意的是, 虽然从图中可以看到拟合结果均比较理想, 但得到的界面结构的参数却不十分一致, 界面粗糙度的数值比界面扩散

宽度要小一些. 注意到上节的结果, 对相等的界面粗糙度和界面扩散宽度, 界面粗糙度对反射曲线的影响较大, 这一点不难理解. 因此, 仅引入界面粗糙度得到的拟合值应为“最小界面粗糙度”, 而仅引入界面扩散得到的拟合值应为“最大界面扩散宽度”. 同时引入界面粗糙度和界面扩散来评价多层膜的界面结构状态须采用更为复杂的 X 射线漫散射扫描技术 [31,32].

5 结论

(1) 层厚的随机漂移使反射率, 尤其是高级反射率降低. 由于累积层厚漂移破坏了多层膜的长程有序性, 使反射峰展宽.

(2) 界面扩散和界面粗糙度使反射率降低, 对高级反射率的影响更甚. 但二者并不破坏多层膜的长程有序, 所以反射峰的宽度不变.

(3) 界面扩散和界面粗糙度对反射率影响的机制不同. 在界面扩散宽度和界面粗糙度相等的情况下, 界面粗糙度使反射率的下降较大.

(4) 采用模拟退火 Monte-Carlo 方法对 Co/C 软 X 射线光学多层膜进行了结构表征与评价. 模拟退火 Monte-Carlo 方法能避免复杂的求导运算, 在软 X 射线光学多层膜的结构评价中具有较强的实用性.

参考文献

- [1] Spiller E, Wilczynski J, Stearns D, Golub L, Nystrom G. *Appl Phys Lett*, 1989; 61: 1481
- [2] Golub L, Herant M, Kalata K, Lovas I, Nystrom G, Spiller E, Wilczynski J. *Nature*, 1990; 344: 842
- [3] Spiller E, Stearns D, Krumrey M. *J Appl Phys*, 1993; 74: 107
- [4] McClain B R, Lee D D, Carvalho B L, Mochrie S G J, Chen S H, Litster J D. *Phys Rev Lett*, 1994; 72: 246
- [5] Stearns D G. *J Appl Phys*, 1989; 65: 491
- [6] Barbee T W, Jr. *Jr Opt Eng*, 1990; 29: 711
- [7] Barbee T W, Mrowka S, Hertrick M C. *Appl Opt*, 1985; 24: 883
- [8] Stearns D G, Rosen R S, Vernon S P. *J Vac Technol*, 1991; A9: 2662
- [9] Fullerton E E, Pearson J, Sowers C H, Bader S D, Wu X Z, Sinha S K. *Phys Rev*, 1993; B48: 17432
- [10] Zymierka D, Auletner J. *Cryst Res Tech*, 1997; 32: 135
- [11] Kim D E, Lee S M, Jeon I J. *J Vac Sci Technol*, 1999; A17: 398
- [12] Wang F P, Wang P X, Lu K Q, Fang Z Z, Gao M, Duan X F, Cui M Q, Ma H J, Jiang X M. *J Appl Phys*, 1999; 85: 3175
- [13] Krol A, Sher C, Kao Y H. *Phys Rev*, 1988; B38: 8579
- [14] Chen H, Heald S M. *J Appl Phys*, 1989; 66: 1793
- [15] Parrat L G. *Phys Rev*, 1954; 35: 359
- [16] Fullerton E E, Schuller I K, Vanderstraeton H, Bruynseraede Y. *Phys Rev*, 1992; B45: 929
- [17] Sinha S K, Sirota E B, Garoff S, Stanley H B. *Phys Rev*,

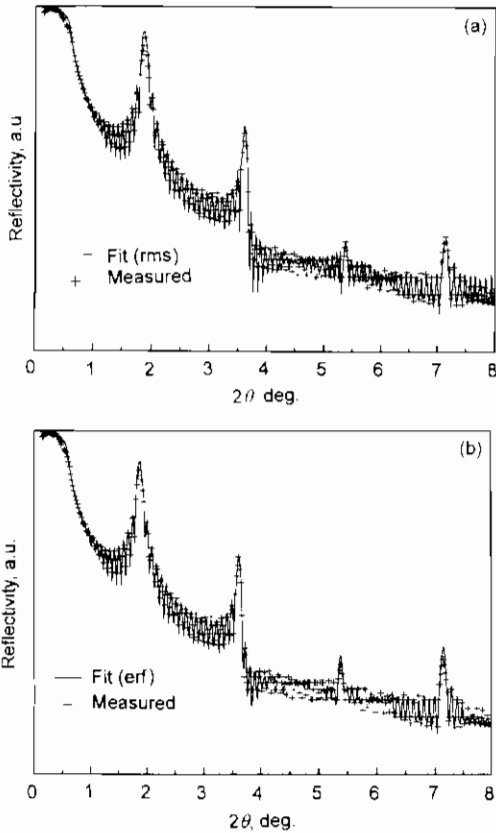


图 5 Co/C 软 X 射线光学多层膜的测量和计算 X 射线掠入射镜向反射率

Fig.5 Experimental and simulated grazing specular reflectivity of Co/C soft X-ray optical multilayers

- (a) simulating model 1: the imperfections are the noncumulative layer thickness fluctuation and interfacial root-mean-square (rms) roughness
- (b) simulating model 2: the imperfections are the noncumulative layer thickness fluctuation and interfacial diffusion described by an error function (erf)

表 1 Co/C 软 X 射线光学多层膜的拟合结构参数

Table 1 Fitting parameters of Co/C soft X-ray optical multilayers

Structure Parameter	(nm)	
	Model 1	Model 2
Thickness of Co layer	1.92	1.94
Thickness of C layer	2.93	2.95
Layer thickness fluctuation	0.03	0.02
Interfacial roughness	0.26	.
Thickness of transition layer	-	0.31

- 1988; B38: 2297
- [18] Savage D E, Kleiner J, Schimke N, Phang Y H, Jankowski T, Jacobs J, Lagally M G. *J Appl Phys*, 1991; 69: 1411
- [19] Stearns D G. *J Appl Phys*, 1992; 71: 4286
- [20] Kimball J C, Bittel D. *J Appl Phys*, 1993; 74: 877
- [21] Gladyszewski G, Bruynseraede Y. *Thin Solid Films*, 1996; 275: 184
- [22] Kopecky M. *J Appl Phys*, 1995; 77: 2380
- [23] Holý V, Kubena J, Ohlidal I, Lischka K, Plotz W. *Phys Rev*, 1993; B47: 15896
- [24] Holý V. *Appl Phys*, 1994; A58: 173
- [25] Holý V, Baumbach T. *Phys Rev*, 1994; B49: 10668
- [26] Holý V, Baumbach T, Bessiere M. *J Phys D: Appl Phys*, 1995; 28(4A): A220
- [27] de Bohr D K G, Leenaers A J G. *Physica*, 1996; B221(1-4): 18
- [28] Yoneda Y. *Phys Rev*, 1963; 131: 2010
- [29] Bruson A, Dufour C, George B, Vergnant M, Marchal G, Mangin PH. *Solid State Commun*, 1989; 71: 1045
- [30] Kirkpatrick S, Gelatt C D, Vecchi M P. *Science*, 1983; 220: 671
- [31] de Bohr D E G, Leenaers A J G, van den Hoogenhof W. *Appl Phys*, 1994; A58: 169
- [32] Dietrich S, Haase A. *Phys Rep*, 1995; 260: 1