

# 软 X 光激光用多层膜反射镜的制备与检测\*

曹健林 马月英 张俊平 裴舒 陈星旦

(中国科学院长春光机所应用光学国家重点实验室, 长春 130022)

**提要** 介绍在制备和检测软 X 光激光用多层膜反射镜中所做的研究工作。重点是制备过程, 包括基板、镀膜设备、膜厚控制方法, 以及经大量实验得出的镀膜工艺条件。给出了利用 X 光射线衍射仪所做的周期结构检测结果, 以及利用激光等离子体作光源的精密反射率计所作的反射率测量结果。最后, 对工作进展和存在的问题做了简略评述。

**关键词** 软 X 光激光反射镜, 多层膜技术, 制备与检测

## 1 引言

自 80 年代中期的首批 X 光激光实验以来, 探索 X 光激光的产生方法以及提高 X 光激光的输出功率和相干性, 已经成为世界范围内科学家们着力研究的前沿课题之一<sup>[1]</sup>。

为了提高 X 光激光的亮度和相干性, 加反射镜的所谓双程放大(double passing)是迄今为止的一个有效方法。图 1 给出双程放大的原理。产生于激光等离子体中的 X 光激光辐射被位于增益介质一端的反射镜反射, 返回增益介质并被进一步放大, 得到增强了的 X 光激光输出。由于软 X 光射线波段所有材料的单界面正入射反射率都很低, 人们自然想到用能够有效地增加反射率的软 X 光多层膜来做这种反射镜。从正入射反射率看, Mo/Si 多层膜在 13.0 nm 左右已达到 66%<sup>[2]</sup>。世界上已有许多研究小组进行过使用软 X 光多层膜做反射镜的双程放大实验, 特别是对类氩激光, 并取得了很好的实验结果<sup>[3~6]</sup>。从增益介质中出射的 X 光激光已达到饱和。最近, 有的小组已将激光束的发散角做到不大于 1 mrad。

在软 X 光多层膜技术研究的基础上, 我们从 1990 年开始从事软 X 光激光用多层膜反射镜的研制工作。文献[6]中所使用的反射镜皆由我们提供。本文是对迄今为止我们研制软 X 光多层膜反射镜工作的一个总结。第二部分介绍制备过程, 第三部分给出检测结果, 最后对已取得的研究进展和存在的问题做简要评述。我们所做的软 X 光激光用多层膜反射镜的设计与性能模拟计算见参考文献[7]。

## 2 制备过程

### 2.1 基板

我们制备的所有软 X 光激光用多层膜反射镜基板都用 K9(BK7)玻璃在本所工厂的光学

\* 国家高技术“863-410-3”专题和国家自然科学基金资助项目。

收稿日期: 1994年7月11日; 收到修改稿日期: 1995年1月10日

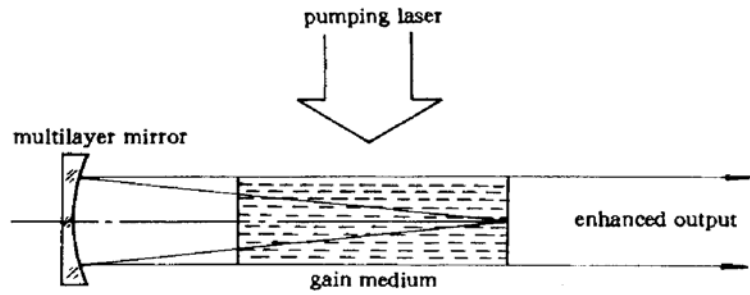


Fig. 1 Working principle of the multilayer mirror in an X-ray laser experiment

车间加工而成。口径在 10~60 mm 之间;面型包括平面、球面和柱面;曲面的曲率半径为 80~2000 mm。经 ZYGO 干涉仪检测,面型精度为  $\lambda/6 \sim \lambda/10$  ( $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ )。

镀多层膜的面都经过超光滑加工,表面粗糙度均方根值  $\sigma < 1 \text{ nm}$ ,用一台触针式表面轮廓仪(Talystep)测量,纵向分辨率约为 0.5 nm。一部分基板曾利用 WYKO 干涉轮廓仪做过检测(定标),结果表明某些平面样品的  $\sigma$  可达 0.5 nm 左右。根据使用者要求,一些基板做了两面抛光,背面镀铝刻线,便于在使用时做光路调整。

大量的工艺和定标实验中使用的是超光滑单晶硅片,厚 0.3 mm,  $\sigma < 0.5 \text{ nm}$ 。

镀膜前的基板清洗采用光学镀膜中传统的擦片法。

## 2.2 镀膜设备

我们与中国科学院沈阳科仪中心合作,于 1991 年和 1993 年先后研制了一台离子束溅射镀膜设备和一台磁控-离子束复合溅射镀膜设备。两台设备都投入了软 X 光激光用反射镜的研究工作。后者主要使用其磁控溅射功能。

离子束溅射(IBM, ion beam sputtering)镀膜机使用有灯丝的 Kauffman 离子枪,进入离子枪的工作气体(Ar)由质量流量计控制。束流直径为 60 mm,溅射靶尺寸为 110 mm×90 mm,镀膜的沉积均匀区直径约 75 mm。本底真空在使用冷阱(充液氮)的条件下可达  $1.0 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 。工作气压、束流密度、加速电压的变化都可控制在 1% 以内。整个系统的设计连续稳定工作时间为 100 h。

磁控溅射(MS, magnetron sputtering)镀介质材料时用射频(RF)电源,放电由微波(13.56 MHz)送入能量;镀金属材料时则用直流电源。两种靶都是平面 MS 靶,  $\phi 100 \text{ mm}$ ;两类电源的最大功率亦都是 2 kW。镀膜材料的切换由样品托架在不同材料的沉积区之间移动来实现。溅射室配有两路进气通道并各自独立地用质量流量计控制。溅射室和预处理室中都有加热炉。本底真空亦可达  $1.0 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 。

## 2.3 膜厚控制

IBM 镀膜时用自制的石英晶体振荡器做膜厚变化的实时监控。对于每种材料,与一定频率变化对应的膜厚用 Talystep 或 X 射线衍射仪测量(方法见第三部分),得出与该材料对应的定标因子(tooling factor),单位为 nm/Hz。经这样定标后晶振探头频率的变化直接反映出膜厚的变化。由于没有电磁干扰和明显的热辐射,石英晶振工作很稳定,相应的膜厚控制精度可以优于 0.1 nm。

由于 RF 会给溅射室中的电子元件带来严重的电磁干扰,我们在 MS 镀膜中用时间法(timing)控制膜厚,即控制镀膜样品在沉积区中的停留时间。单片机控制的步进电机驱动样品

托架,按设定的程序将样品送入特定的沉积区,并控制样品的停留时间和摆角。定标亦使用 Talystep 和 X 射线衍射仪,测准膜厚之后得到材料在对应工作条件下的沉积速度。目前沉积时间的控制精度约为 1 s,对应的膜厚控制精度在 0.1 nm 左右。

## 2.4 镀膜工艺

经过大量实验,本组在用 IBS 制备软 X 光激光用多层膜反射镜时一般采用如下工艺参数:工作气压(Ar)  $P = 4.0 \times 10^{-2}$  Pa,离子束加速电压  $V_a = 900$  V,离子束流密度  $i \approx 1$  mA/cm<sup>2</sup>。

利用 MS 时工艺条件随镀膜材料不同而有较大变化。Mo/Si 多层膜的工艺参数如下:  $P$  (Ar) = 0.4 Pa; Mo 用 DC 电源,功率 60 W; Si 用 RF 电源,功率 80 W;靶面与待镀表面的距离为 10 cm。在这样的条件下 Mo 的沉积速率为 0.12 nm/s, Si 的沉积速率为 0.07 nm/s。单片机控制下自动镀完一个工作波长为 13.2 nm,膜层数为 121 层的多层膜激光反射镜约用 1 h。

## 3 检测

### 3.1 周期结构测试

我们制备的每一块(批)软 X 光激光用多层膜反射镜都用一台理学公司的 D/Max-3B 型 X 射线衍射仪做周期结构测试。测试时用 CuK  $\alpha$  线,  $\lambda = 0.154$  nm。测得的衍射峰个数多,强度大,说明样品具有严格的周期结构,并且界面清晰。这是优质多层膜反射镜的必要条件。

从测到的衍射峰位置还可以用修正的 Bragg 公式计算得出多层膜的周期厚度<sup>[8]</sup>

$$m\lambda = 2d[\sin\theta - (1 - n)/\sin\theta] \quad (1)$$

式中  $m$  为衍射级次,  $\lambda$  为波长,  $d$  为周期厚度,  $\theta$  为相应的衍射角,  $n$  为一个周期内折射率的平均值。测出与一个个  $m$  对应的  $\theta$  后,对(1)式做曲线拟合即可相当精确地定出  $d$ 。

图 2 给出一个典型的多层膜 X 射线衍射仪测量结果。表 1 列出几个多层膜反射镜样品的衍射峰位置和用(1)式计算得出的周期  $d$ 。为了便于比较和检查膜厚控制精度,表中还附上了这些多层膜样品的设计周期值。需要指出,用于做 X 射线衍射检测的样品粘贴于均匀镀膜区的外边缘,因此这些样品的周期要略小于实际反射镜的周期,差值在 0.3 nm 左右。

Table 1 Diffraction peaks associated angles and periods calculated after formula (1) for multilayers

Diffraction order ( $m$ )	Diffraction angle $2\theta(^{\circ})$	Diffraction angle $2\theta(^{\circ})$	Diffraction angle $2\theta(^{\circ})$	Diffraction angle $2\theta(^{\circ})$
1	0.866	0.954	1.154	1.598
2	1.484	1.586	1.954	2.866
3	2.122	2.256	2.798	4.144
4	2.770	2.970	3.644	5.472
5	3.432	3.682	4.498	6.820
6	4.086	4.446	5.396	8.164
7	4.762	5.186	6.264	
8	5.454	5.836		
9	6.122	6.580	8.012	
10		7.256		
Designed periods $d$	13.34 nm	12.43 nm	10.26 nm	6.80 nm
Measured periods $d$	13.08 nm	12.20 nm	9.96 nm	6.51 nm

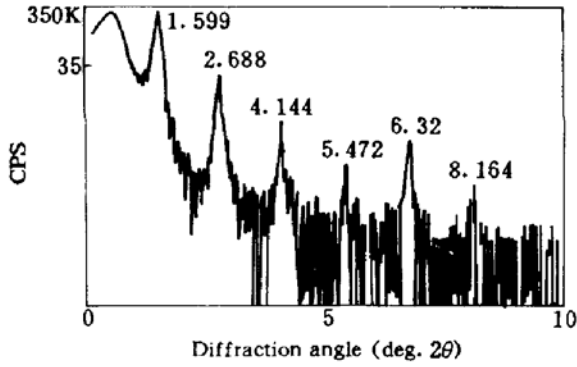


Fig. 2 X-ray diffraction measurement of a 121-layer Mo (2.8 nm)/Si(4.0 nm) multilayer, deposited by IBS

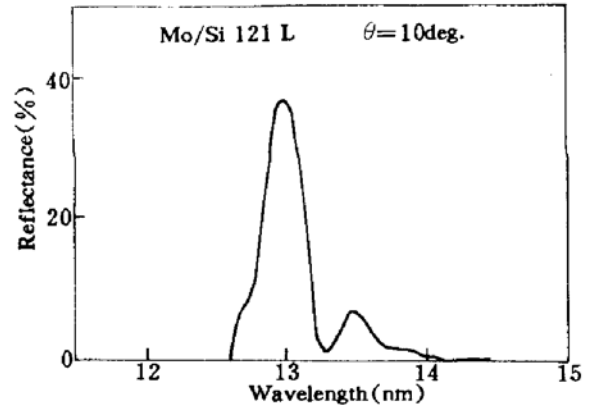


Fig. 3 Reflectance measurement of a 121-layer Mo (2.8 nm)/Si(4.0 nm) multilayer, deposited by IBS

### 3.2 反射率测量结果

最能反映多层膜反射镜制备水平的检测方法是工作波长下的反射率测量。我们正在研制一台能够方便准确地测量软 X 光多层膜反射率的测量装置。现阶段还是依靠国际合作,日本东北大学科学计测研究所帮助完成反射率测量。

他们的反射率测量系统由激光等离子体光源、掠入射聚光镜、定偏向单色仪以及精密反射率计等几部分组成。光源激光器为 Nd:YAG,工作参数为 800 ml/pulse, 12 ns FWHM;靶材为 Sm。单色仪的偏角为  $166^\circ$ ,光栅半径为 3 m, 600 1/mm,工作波长 0~30 nm。步进电机驱动光栅旋转时的分辨率(理论)为 0.015 nm/pulse,精密反射率计中步进电机驱动测角仪的分辨率为  $0.005^\circ/\text{pulse}$ 。

图 3 是用 IBS 制备的一块 Mo/Si 多层膜 13 nm 正入射反射镜样品的反射率实测结果,测量时的入射角为  $10^\circ$ (受反射率计中探测器支架臂长的限制,最小入射角可测到  $7^\circ$ )。这块反射镜的设计工作波长为 13.0 nm,正入射,膜厚  $d_{\text{Mo}} = 2.8 \text{ nm}$ ,  $d_{\text{Si}} = 4.0 \text{ nm}$ 。根据模拟计算结果<sup>[7]</sup>,正入射  $\theta = 0^\circ$  时的反射率略高于  $\theta = 10^\circ$  时的反射率,同时峰值位置向长波方向略有偏移。因此我们估计,这块反射镜正入射时的反射率在 40% 左右。

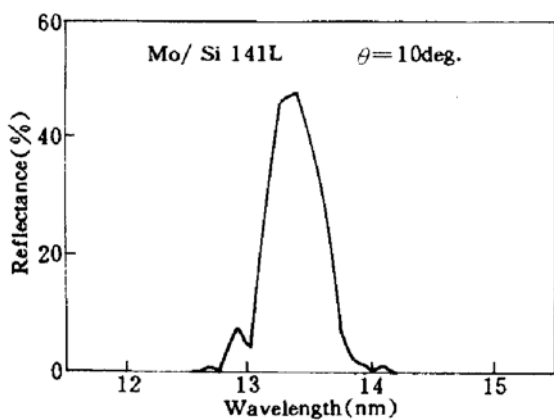


Fig. 4 Reflectance measurement of a 141-layer Mo (2.8 nm)/Si(4.0 nm) multilayer, deposited by MS

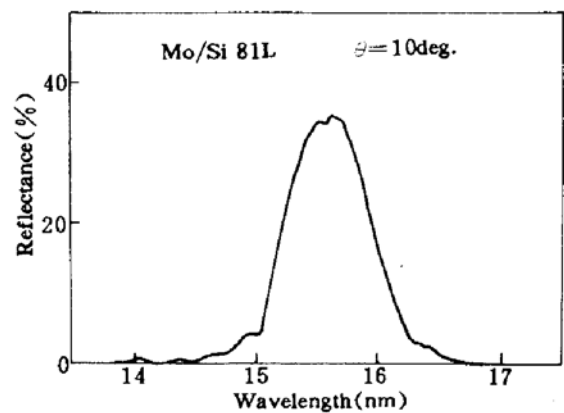


Fig. 5 Reflectance measurement of an 81-layer Mo (2.92 nm)/Si(5.15 nm) multilayer, deposited by MS

图 4 是用 MS 制备的 Mo/Si 反射镜实测结果,此样品的设计参数同前块是一样的。估计正入射的反射率超过 50%。图 5 是另一块用 MS 制备的 Mo/Si 多层膜反射镜,设计工作波长

15.6 nm, 正入射, 膜厚  $d_{\text{Mo}} = 2.92 \text{ nm}$ ,  $d_{\text{Si}} = 5.15 \text{ nm}$ 。正入射的实测反射率也达 35%。

## 4 讨 论

从以上结果可以看出, 我们在基板制备、镀膜设备、膜厚控制、镀膜工艺以及多层膜检测等几个关键技术已达到了制备工作波长 10 nm 以上波段软 X 光激光反射镜的基本要求。

我们认为, 尽管多层膜反射镜已成功地在软 X 光激光实验中得到应用, 但这种应用目前仍处在起步阶段。根据工作体会并从 X 光激光研究的需要出发, 我们认为多层膜反射镜还要重点解决以下三个问题:

1) 如何提高反射镜的抗损伤能力。软 X 光波段所有材料都有吸收, 在高功率软 X 光激光辐射下, 成膜材料吸收造成的损伤很难避免。膜层越薄, 对损伤越敏感; 另外, 现阶段 X 光激光增益介质的寿命太短(典型值为数百个 ps), 对应的光子渡越距离只有 cm 量级, 致使反射镜必须很接近增益介质。这也大大增加了多层膜表面受溅射和其他波段(特别是红外)辐射损伤的可能性。

2) 如何进一步提高膜厚控制精度。特别是对于工作波长更短的多层膜, 多界面的反射光形成的干涉峰非常窄,  $\Delta\lambda/\lambda$  要小于 1%。要使多层膜的干涉反射峰与 X 光激光波长严格匹配, 在相应的定标测量和膜厚控制上有许多工作要做。

3) 如何进一步提高基板质量。如果用简单的标量散射理论来描述表(界)面散射造成的反射率降低, 在激光反射镜常用的正入射条件下将 Bragg 公式代入 Debye-Waller 因子, 并忽略折射率的影响可得

$$R = R_0 \exp[-(2\pi\sigma/d)^2] \quad (2)$$

式中  $R$  是实际表面的振幅反射率,  $R_0$  是理想表面的振幅反射率,  $\sigma$  是表面粗糙度均方根值,  $d$  是多层膜周期, 如果  $d = 2.3 \text{ nm}$ ,  $\lambda$  只要有 0.3 nm,  $R$  就会降到  $R_0$  的一半。因此, 迫切需要  $\sigma$  小于 0.1 nm 的超光滑基板<sup>[7]</sup>。

解决上述问题, 特别是后两个问题的努力, 将是我们近期内围绕软 X 光激光反射镜开展研究工作的中心内容。

**致谢** 衷心感谢日本东北大学科学计测研究所的柳原美广副教授和山本正树副教授对我们工作的大力支持和帮助。衷心感谢中国工程物理研究院的王世绩教授, 顾援教授, 张国平教授, 淳于书泰教授以及在英国罗瑟福实验室工作的中国青年学者张杰教授对本组工作进行的热情指导和帮助。参加本工作的还有高宏刚、陈斌、吕俊霞。

## 参 考 文 献

- 1 R. C. Elton. X-ray lasers. Academic, New York, 1990
- 2 D. G. Stearns, R. S. Rosen, S. P. Vernom. Multilayer mirror technology for soft X-ray projection lighogrgphy. *Appl. Opt.*, 1993, **32**(34): 6952~6960
- 3 A. Carrillon, H. Z. Chen, P. Dhez *et al.*. Saturated and near diffraction limited operation of an XUV laser at 23.6 nm. *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **68**: 2917~2920
- 4 S. Wang. Experimental research on saturated gain for soft X-ray laser form neon-like germanium plasma. *Chinese Phys. Lett.*, 1991, **8**: 618~620
- 5 淳于书泰, 何绍堂, 张启仁等. 类氩锗 X 光激光双程放大实验研究. *中国科学*, 1992, **A**(8): 875~879

- 6 王世绩, 顾 援, 周关林 等. 反射镜多靶串接增益饱和软 X 光激光实验. *强激光与粒子束*, 1993, 5(4): 557~563
- 7 张俊平, 曹健林, 马月英 等. 软 X 光激光用多层膜反射镜的设计与性能模拟计算. *光学学报*, 待发表
- 8 T. W. Barbee, Jr.. Multilayers for X-ray optics. *SPIE*, 1985, 563: 2~28

## The Fabrication and Test of Multilayer Mirrors for Soft X-ray Lasers

Cao Jianlin Ma Yueying Zhang Junping Pei Shu Chen Xingdan

(*The State Key Laboratory of Applied Optics, Changchun Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Changchun 130022*)

**Abstract** The fabrication and test of multilayer mirrors for soft X-ray lasers are reported. The substrates, coating machine, film thickness controlling methods, and conditions in deposition process are described. The periodic structure of the multilayers is evaluated by X-ray diffraction, and using a reflectometer with a laser produced plasma source the reflectance of the multilayers is tested. These multilayer mirrors have been employed in double passing experiments of soft X-ray lasers.

**Key words** soft X-ray lasers, multilayer technique, fabrication and test