

# 软 X 射线多层膜色散元件\*

曹健林 马月英 张俊平 高宏刚 王占山 裴舒 陈星旦

(中国科学院长春光学精密机械研究所, 应用光学国家重点实验室, 长春 130022)

**摘 要** 介绍研制软 X 射线多层膜色散元件的初步结果. 结合  $M_0/S_1$ 、 $W/S_1$  色散元件的研制实例, 讨论了包括设计、性能模拟计算、镀膜工艺、检测等在内的制备过程. 这些元件将在 X 射线光学和 X 射线光谱学的有关研究工作中得到应用.

**关键词** 软 X 射线, 多层膜技术, 色散元件.

## 1 引 言

周期性多层膜系可以看成是一种晶格常数较大, 并且能够任意控制的一维人工类晶体. 随着入射角的变化, 其反射率峰值对应的波长将发生变化, 因而具有选择波长的色散作用.

在软 X 射线波段(波长约为  $1\sim 30$  nm), 如果不利用全反射, 任何材料的反射率都很低( $10^{-6}\sim 10^{-2}$  量级), 使光栅型色散元件的效率急剧下降. 另一方面, 生长晶格常数为波长量级的晶体并将其用作色散元件亦有许多困难, 如晶格常数可选择的余地很小、晶体易潮解、效率低、工作不稳定等. 而多层膜色散元件则能填补光栅和晶体之间的工作波段空隙, 并且具有效率高、性能稳定及使用、保管方便等特点. 因此, 自 80 年代人们提出发展软 X 射线多层膜色散元件的设想以来, 相应的制备和应用研究都有较大进展. 目前美国、日本及欧洲的一些研究机构和公司已能制备多种软 X 射线多层膜色散元件, 在 X 射线光学、X 射线光谱学、X 射线激光等研究领域和地质矿产及材料科学的元素分析中得到了广泛的应用. 本文报道软 X 射线多层膜色散元件研究的一些结果.

## 2 工作原理、设计方法和性能模拟计算

### 2.1 工作原理

软 X 射线多层膜色散元件的工作原理可以用布拉格(Bragg)公式描述. 设一束平行软 X 射线以掠入射角  $\theta$  照射到周期为  $d$  ( $d = d_1 + d_2$ ,  $d_1$ 、 $d_2$  分别为两种镀膜材料的膜厚) 的多层膜表面. 考虑到膜系一个周期的等效复折射率  $N$  和界面位相变化  $\alpha$  (除了在全反射角  $\theta_c$  处  $\alpha$  有一跃变之外,  $\alpha$  是常数) 的布拉格(干涉增强)条件可以写成:

\* 本课题得到国家自然科学基金和中国科学院长春分院青年基金的资助.

收稿日期: 1993 年 10 月 8 日; 收到修改稿日期: 1993 年 12 月 29 日

$$2Nd \cos \Phi = (m + \alpha/2\pi)\lambda, \quad (1)$$

式中  $m$  为衍射级次,  $\lambda$  为软 X 射线波长,  $\Phi$  为进入膜系的折射角, 由 Snell 定律:

$$\cos \theta = N \sin \Phi \quad (2)$$

给出. 从(1)、(2)式可知, 对于某一给定的  $m$  (工作中一般使用  $m = 1$ ), 与一个  $\theta$  对应有一个  $\lambda$  满足 Bragg 条件, 可以通过改变  $\theta$  来选择  $\lambda$ . (1) 式与通常描述晶体 X 射线衍射的公式略有不同. 式中的  $N$  由两种镀膜材料的光学常数  $N_1$ 、 $N_2$  及膜厚比  $\gamma$  决定.

$$\begin{cases} N_1 = n_1 - ik_1, & N_2 = n_2 - ik_2, \\ N = n - ik = [\gamma n_1 + (1 - \gamma)n_2] - i[\gamma k_1 + (1 - \gamma)k_2], \\ \gamma = d_1/d \end{cases} \quad (3)$$

其中  $n_1$ 、 $n_2$ ,  $k_1$ 、 $k_2$  分别为两种镀膜材料的折射率和衰减系数,  $n$ 、 $k$  为一个周期内的等效折射率和等效衰减系数. 在软 X 射线波段, 任何材料都有吸收,  $k_1$ 、 $k_2$  不为零, 因此  $N$  和  $\Phi$  都是复数.

## 2.2 设计方法和性能模拟计算

根据多层色散元件的工作波段和使用中允许的角度变化范围, 可以利用(1)式估算周期  $d$ . 但是(1)式无法解决膜系设计中两个最重要问题——挑选镀膜材料和决定最佳膜厚值.

在多层膜色散元件的应用中, 色散效率相当于膜系的反射率, 多层膜色散元件的设计与多层高反膜系的设计应有许多共同之处. 因此, 设计中要把色散元件的工作要求(主要是波段和  $\theta$  的变化范围)与高反膜系的要求结合起来. 具体采取的步骤是:

- 1) 按照色散元件的工作要求, 用(1)式粗略地定出  $d$ ;
- 2) 用多层高反膜系的设计方法挑选镀膜材料, 并精确定出  $d$  和  $\gamma$  ( $\lambda$  用工作波段中心附近的某一波长,  $\theta$  亦取允许变化范围中心处的某一角度), 同时还要确定最适膜层数.
- 3) 由于软 X 射线波段光学常数变化比较剧烈, 为了保证使用要求并得到尽量高的效率, 整个工作波段往往要分成几段, 选用不同的镀膜材料、不同的  $d$ , 膜层数也不同.

关于软 X 射线多层高反膜系的设计方法曾有专文讨论<sup>[1,2]</sup>, 这里不再重复.

完成上述设计工作之后, 还必须进行多层膜色散元件的性能模拟计算. 一是在给定波长下反射率随角度的变化 ( $R \sim \theta$  曲线). 二是在给定角度下反射率随波长的变化 ( $R \sim \lambda$  曲线). 对于色散元件, 模拟其工作情况的  $R \sim \lambda$  曲线更为重要. 图 1、图 2 分别为  $M_0/S_i$  和  $W/S_i$  多层膜色散元件的  $R \sim \lambda$  计算结果, 曲线上方标出了入射角. 计算采用基于光学常数和菲涅耳公式的波动光学方法<sup>[1]</sup>.

从图 1、图 2 可以清楚地看出元件的色散效率(反射率)、分辨率、工作波段、以及允许的角度变化范围等. 这类曲线对于元件的应用有重要指导意义. 尽管由于光学常数的差别、膜厚控制误差、和表(界)面粗糙度的扩散等的影响, 这类曲线还不能取代使用中的定标工作.

在计算中还引入了参量的变化并观察其影响. 结合制备过程中的具体情况, 图 1、图 2 的计算中引入了  $-0.05 \text{ nm} \leq \delta \leq 0.05 \text{ nm}$  的膜厚控制随机误差. 大量计算结果表明, 制备这类元件对膜厚控制有极为严格的要求. 例如, 如果图 2 中膜厚控制误差增大一倍, 相应的反射率一般要降低 20%. 进一步, 通过模拟计算和与实测结果比较的方法(曲线拟合), 本组还研究了表(界)面粗糙度和扩散的影响, 有关的结果将另文发表.

以上设计和性能模拟计算需要多种材料、多个波长点处的光学常数数据. 本文所用数据

主要取自 Henke 等人的工作<sup>[3]</sup>和本小组通过国际合作进行的软 X 射线光学常数测定工作<sup>[4~7]</sup>.

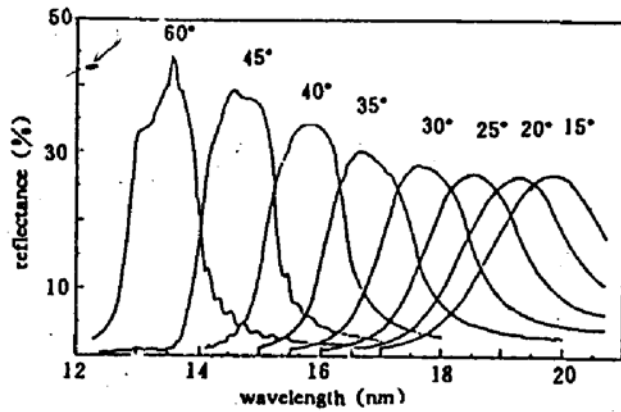


Fig. 1 Calculated reflectance (no-polarized light) vs. wavelength at different incidence angles for a 101 layer (50.5 pairs) Mo (4.84 nm)/Si (6.25 nm) multilayer, with a random thickness control error of  $-0.05 \text{ nm} \leq \delta \leq 0.05 \text{ nm}$

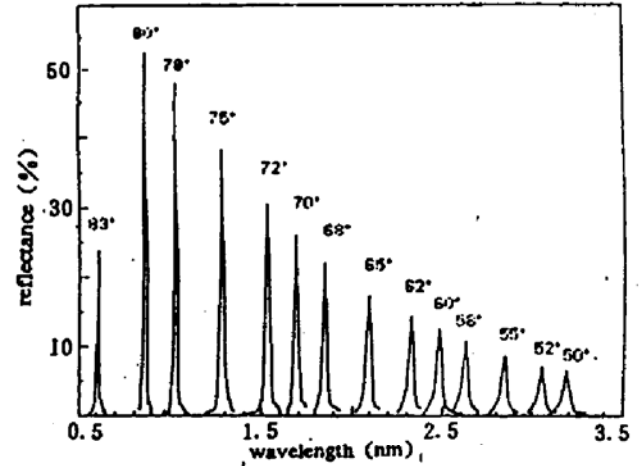


Fig. 2 Calculated reflectance (no-polarized light) vs. wavelength at different incidence angles for a 402 layer (201 pairs) Mo (0.80 nm)/Si (1.70 nm) multilayer, with a random thickness control error of  $-0.05 \text{ nm} \leq \delta \leq 0.05 \text{ nm}$

### 3 制 备

#### 3.1 基片

根据标量散射理论, 由于表面粗糙而引起的散射对反射率的影响可表达成:

$$R = R_0 D = R_0 \exp[-2(2\pi\sigma \sin \theta/\lambda)^2] \quad (4)$$

式中  $R$ 、 $R_0$  分别为实际和理想(粗糙度为零)表面的反射率,  $\sigma$  为该表面的粗糙度均方根值,  $D$  一般被称为 Debye-Waller 因子. 本工作使用的基片为经过超光滑加工的单晶硅片, 其  $\sigma < 0.5 \text{ nm}$ . 从(4)式中可知, 对于  $\lambda > 10 \text{ nm}$  的波段, 这种基片可以使用到  $\theta \sim 90^\circ$  的正入射区域; 而对于  $\lambda \leq 3 \text{ nm}$  的波段,  $\theta$  只能取较小的值, 以避免严重的散射损失. 图 3 给出用 WYKO 表面轮廓仪检测基片的一个典型结果.

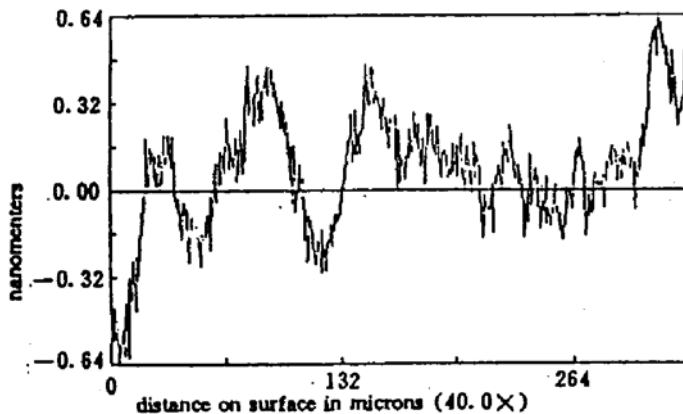


Fig. 3 Surface roughness of crystal silicon wafer, measured by WYKO profilometer

#### 3.2 镀膜设备

在多层膜制备中选择了易于进行膜厚控制、且能长时间稳定工作的离子束溅射方法. 为此, 与中科院沈阳科仪中心、物理所等单位合作研制了一台离子束溅射镀膜机<sup>[8]</sup>. 进入 Kaufman 离子枪的工作气体(Ar)被电离后产生离子流, 离子流经限流板后轰击靶材料, 溅射出的靶材料沉积到镀膜样品上. 安置在样品旁边的石英晶体振荡器探头用于实时监控膜厚的变化, 用触针式轮廓仪标定厚度.

离子束直径为 60 mm, 束流的不均匀性小于 5%, 真空室内的本底真空度可达  $1 \times$

$10^{-4}$  Pa, 整个系统的设计连续工作时间为 100 hr.

### 3.3 镀膜工艺

经过大量实验, 确定的镀膜工艺条件如下:

工作气压(Ar):  $4 \times 10^{-2}$  Pa; 束流密度: 1.0 mA; 加速电压: 900 V, 工作时气压、离子束流、加速电压的变化控制在 1% 以内.

在上述工艺条件下, 镀膜速率对 C(溅射速率最低的材料)约为 0.1 nm/min; 对 Si(溅射速率较高的材料)约为 0.6 nm/min. 镀膜时的膜厚控制精度可做到优于 0.05 nm.

## 检 测

### 4.1 利用 X 射线衍射仪的检测<sup>[3,8]</sup>

本文制备的每块样品都用一台理学公司的 X 射线衍射仪做检测. X 射线管最大功率 2 kW, 波长为 0.154 nm(Cu K<sub>α</sub> 线). 一般地, 能观察到的衍射峰个数越多, 强度越大, 说明膜

系的周期一致、界面清晰、质量好. 实际能观察到的衍射峰受光源强度、样品的表(界)面粗糙度、周期  $d$ 、膜层数及探测器灵敏度的限制.

利用 X 射线衍射仪可以严格地测量  $d$ . 对于  $\lambda = 0.154$  nm, 有:  $1 \gg (1 - n) \gg k$ ,

$$(1 - n) \gg (1 - n)^2 \quad (5)$$

将(2)、(3)式代入(1)式并利用(5)式可得:  $\sin^2 \theta_m = Am^2 + Bm + C$  (6)

$$A = (\lambda/2d)^2, \quad B = \alpha\lambda^2/2d^2,$$

$$C = (\lambda\alpha/2d)^2 + 2(1 - n) \quad (7)$$

利用衍射仪依次精确地测出与几个  $m$  对应的  $\theta_m$  之后, 对(6)式做曲线拟合可定出  $A$ 、 $B$ 、 $C$ , 再用(7)式即可定出  $d$ (还可定出  $\alpha$  和  $n$ ). 如果用 1、2、3 级衍射峰估算, 还可以简单地得到:

$$d = \lambda[2(\sin^2 \theta_3 + \sin^2 \theta_1 - 2\sin^2 \theta_2)]^{-1/2} \quad (8)$$

表 1 给出一块 W/Si 402 层样品和 Mo/Si 61 层样品的 X 射线衍射仪检测结果. 由上述方法得到  $d$  为表中测量值<sup>[1]</sup>. 作为对比, 还用 Michettee 方法<sup>[9]</sup>进行了计算, 结果

为表中的测量值<sup>[2]</sup>. 测量值和设计值符合得极好. 镀膜均匀性的检测结果表明, 在  $\phi 70$  mm 的范围内、周期(膜厚)的不均匀性小于 5%. 图 4、图 5 给出这两块样品的衍射图. 图中还给出了理论计算曲线以做比较. 计算曲线中引入膜厚控制随机误差  $\delta$

### 4.2 反射率测量

Table 1 Measured diffraction angles and period for multilayers

Mo(4.84nm)/Si(6.25nm) (61 layers)		W(0.80nm)/Si(1.70nm) (402 layers)	
diffraction order	diffraction angle ( $2\theta$ )	diffraction order	diffraction angle ( $2\theta$ )
1	1.016	1	3.550
2	1.774	2	7.144
3	2.556	3	10.726
4	3.350		
5	4.164		
6	4.978		
7	5.786		
8	6.604		
9	7.412		
10	8.244		
11	9.052		
12	9.878		
13	—		
14	11.512		
designed period	measured period	designed period	measured period
11.09 nm	11.07nm <sup>[1]</sup> 10.74nm <sup>[2]</sup>	2.50nm	2.47nm <sup>[1]</sup> 2.47nm <sup>[2]</sup>

最能反映制备和设计工作水平的是实际测量样品的反射率. 通过国际合作, 将部分样品送往国外做了  $R \sim \lambda$  测量. 测量用配有激光等离子

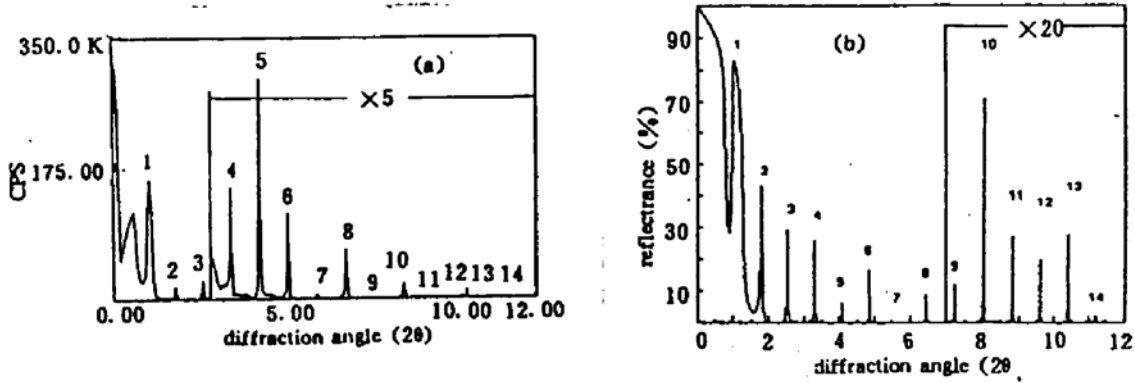


Fig. 4 X-Ray ( $\lambda=0.154$  nm) diffraction of a 61 layer (30.5 pairs) Mo (4.84 nm)/Si (6.25 nm) multilayer. (a) measured results; (b) calculated results with the same random layer thickness control error  $\delta$  as Fig. 1

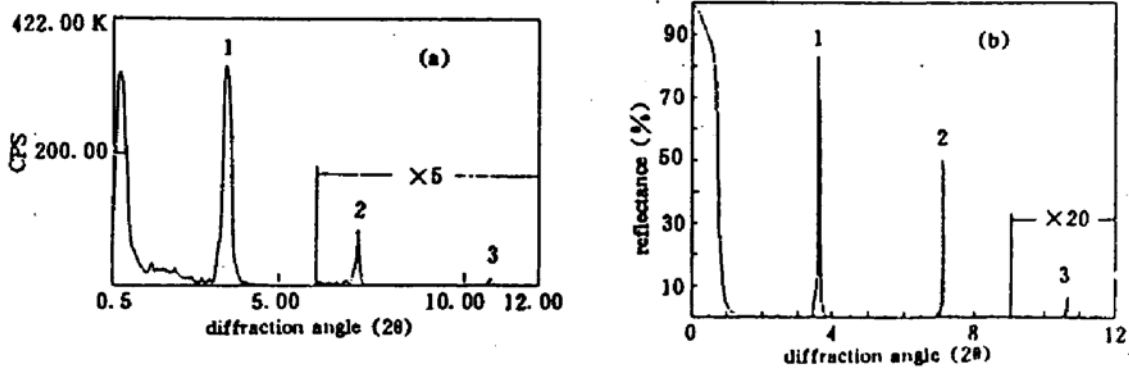


Fig. 5 X-ray ( $\lambda=0.154$  nm) diffraction of a 402 layer (201 pairs) W (0.80 nm)/Si (1.70 nm) multilayer. (a) measured results; (b) calculated results with the same random layer thickness control error  $\delta$  as Fig. 2

子体光源和定偏向单色仪的精密反射率计完成<sup>[11]</sup>. 图 6 是与图 5 对应的同一块 61 层 Mo/Si 样品的实测  $R \sim \lambda$  曲线. 应该指出, 激光等离子体光源给出的辐射基本上是圆偏振的. 由于软 X 射线波段所有材料的折射率都相当接近于 1, 衰减系数  $k$  也很小, 多层膜系的准布儒斯特角都在  $45^\circ$  左右. 这时的 p 偏振反射率很小, 用圆偏振光测得的反射率只是略大于用 S 偏振测量的一半. 因此, 如果用 s 偏振光工作(例如同步辐射),  $45^\circ$  左右入射的反射率将达到 30% 以上.

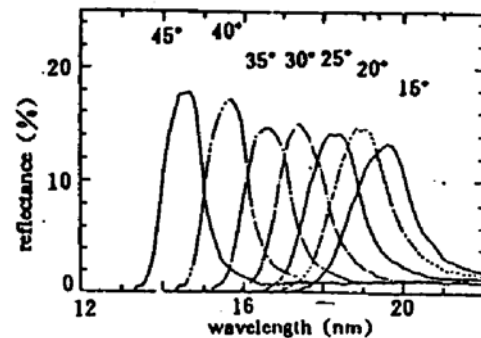


Fig. 6 Reflectance (no-polarized light) vs. wavelength at different incidence angles for a 61 layer (30.5 pairs) Mo (4.84 nm)/ Si (6.25 nm) multilayer, measured by a high precision reflectometer with a laser-produced-plasma (LPP) source

应用 图 1、图 4 对应 W/Si 402 层多层膜作为色散元件配置在为中国工程物理研究院西南核物理与化学研究所研制的小型软 X 射

线多层膜单色器上(尺寸为 50 mm×14 mm, 同时配装两块), 这台仪器将在该所的高温等离子体诊断工作中使用。

图 2、图 5 和图 6 对应的 Mo/Si 101 层和 61 层多层膜则配置在为中科院北京同步辐射实验室研制的多层膜单色仪上, 尺寸为  $\phi$  50 mm. 这台单色仪已在同步辐射光束线上做了初步实验。

### 参 考 文 献

- [1] 曹健林, 陈星旦, 软 X 射线多层膜技术. 庆祝王大珩教授从事科研活动五十五周年学术论文集, 长春, 吉林科学技术出版社, 1992: 289~299
- [2] 曹健林, 软 X 射线多膜反射镜的设计、制备与检测. 光学机械, 1990, 161: 33~40
- [3] B. L. Henke, P. Lee, T. J. Tanaka *et al.*, Low-energy X-ray interaction coefficient, photoabsorption, scattering, and reflection  $E=100-2000$  eV  $Z=1-94$ . *At. Data. Nucl.: Data Tables* 27, 1982: 1~144
- [4] 曹健林, 陈星旦, 柳原美广等, 软 X 射线(60~900 eV)超薄膜光学常数. 光学学报, 1990, 10(8): 706~713
- [5] M. Yanagihara, J. Cao, M. Yamamoto *et al.*, Optical constants of very thin gold films in the soft X-ray region. *Appl. Opt.*, 1991, 30(19): 2807~2814
- [6] J. Cao, M. Yanagihara, M. Yamamoto *et al.*, Simultaneous determination of the optical constants and the thickness for very thin film materials from soft X-ray reflectance measurements. *submitted to Appl. Opt*
- [7] 柳原美广, 曹健林, 山本正树等, 超薄膜的软 X 射线光学定数. (日)东北大学科学计测研究所报告, 1992, 4(1): 1~26
- [8] 马月英, 用离子束溅射法制备 X 射线多层膜的实验和工艺. 光学机械, 1991, 123: 85~90
- [9] A. G. Michette, *Optical system for soft X-rays*. Plenum Press, 1986, 100~101
- [10] 陈波, 李福田, 马玲, 软 X 射线-真空紫外反射率计. 光学机械, 1991, 123: 21~25
- [11] S. Nakayama, M. Yanagihara, M. Yamamoto *et al.*, Soft X-ray reflectometer with a laser-produced plasma source. *Physica Scripta*, 1990, 41: 754~757

## Soft-X-Ray multilayered Dispersive Elements

Cao Jianlin    Ma Yueying    Zhang Junping    Gao Honggang  
Wang Zhanshan    Pei Shu    Chen Xingdan

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

(Received 8 October 1993; revised 29 December 1993)

**Abstract** The preliminary results of making soft X-ray multilayered dispersive elements are presented. Based on the soft X-ray multilayered dispersive elements are of this group the fabrication procedure including the design, performance simulation, coating technique, and testing method is discussed through the preparation of Mo/Si and W/Si multilayer samples. These elements will be used in the researches of X-ray optics and X-ray spectroscopy.

**Key words** soft-ray, multilayer technique, dispersive element.