

软 X 光激光用多层膜反射镜的设计 与性能模拟计算

张俊平 曹健林 马月英 高宏刚 陈斌

吕俊霞 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 介绍在研制软 X 光激光用多层膜反射镜中发展起来的一套设计方法。给出了这类反射镜在现阶段所研究的部分 X 光激光波长下的设计结果。利用波动光学迭代方法模拟计算了反射镜的性能, 并讨论了膜厚控制误差、表(界)面粗糙度等对性能的影响。

关键词 软 X 射线多层膜, 激光反射镜, 膜系设计和模拟计算。

1 引 言

做多层膜设计需要掌握多种材料在相应波段和厚度下的光学常数(光学常数是波长的函数, 在膜厚为 nm 量级的情况下, 它们也可能随厚度、成膜条件等变化)。然而, 掌握了光学常数并不等于膜系设计问题就自动得以解决。许多研究小组采用优化方法, 将膜厚 d 作为可变参量, 反射率作为目标函数来做膜系设计。这种方法实际上没有解决挑选镀膜材料的问题。国外许多文献提出软 X 射线波段高反膜应交替使用高 Z 和低 Z 材料, 但高 Z 和低 Z 材料都有很多, 以此作为选择标准是太笼统了。本文简介了作者们在前期工作中发展起来的一种计算简便、图像直观、结果可靠的设计方法^[1-3], 并给出用这种方法对现阶段人们集中研究的部分 X 光激光波长处正入射多层膜的设计结果。还介绍多层膜系的模拟计算, 这类工作及其结果对后续的制备过程和多层膜的应用都有指导意义。

2 软 X 光激光用多层膜反射镜的设计

2.1 软 X 光多层高反膜系的设计

设光学常数(复折射率)为 $N_j = n_j - ik_j$, 厚度为 d_j 的各向同性均匀薄膜从 $j = 1$ 起到 $j = m$ 止, 依次镀在复折射率为 $N_0 = n_0 - ik_0$ 的无限厚平面基板上。这里的 n 、 k 分别称为材料的折射率和消光系数。在软 X 射线波段, 除几种材料的吸收边处之外, 一般地都有 $0 < 1 - n \ll 1$, $k \ll 1$; 并且 $1 - n$ 和 k 都随波长的减小而减小。如果能得到原子散射因子, n 、 k 可以由量子力学的方法计算^[4]; 也可以用其它方法, 如反射率法测定^[1]。在以下的讨论中,

假定 n, k 是已知的。当波长为 λ 的单位光强平行光从真空中以入射角 θ 照射膜系表面时, 整个膜系的复振幅反射率可以由 Berunning 公式^[5]:

$$R_j = \frac{r_j(1 - r_j R_{j-1}) + (R_{j-1} - r_j) \exp(-i\delta_j)}{1 - r_j R_{j-1} + r_j(R_{j-1} - r_j) \exp(-i\delta_j)}, \quad (j = 1, 2, \dots, m) \quad (1)$$

迭代计算, 式中

$$\delta_j = (4\pi N_j d_j \cos \Phi_j) / \lambda, \quad \sin \Phi_j = \sin \theta / N_j \quad (2)$$

式中 R_j, R_{j-1} 分别为镀完第 j 层和 $j-1$ 层时膜系的复振幅反射率, r_j 为第 j 层材料对真空的费涅尔反射系数, 计算从 $j=1$ 起到 $j=m$ 止。由于所有物质在软 X 射线波段非掠入射条件下都有 $|r_j| \ll 1$, 略去两次和两次以上的项, (1) 式可以相当精确地简化成:

$$R_j = r_j + (R_{j-1} - r_j) \exp(-i\delta_j) = r_j + D_j(R_{j-1} - r_j) \exp(-i\beta_j) \quad (3)$$

$$D_j = \exp(-4\pi b_j d_j / \lambda), \quad \beta_j = 4\pi a_j d_j / \lambda, \quad N_j \cos \varphi_j = a_j - ib_j \quad (4)$$

图 1 是 (3) 式在复平面上的几何表示。可以看出, 随着 d_j 的增加, R_j 的轨迹是一条以 r_j 的端点为中心, $D_j(R_{j-1} - r_j)$ 为动径, β_j 为转角的旋转曲线。如果不换材料, 让 $d_j \rightarrow \infty$, 衰减因子 D_j 将使动径不断地减小, 最终曲线陷入 r_j 的端点。

$|R_j|^2$ 给出膜系的光强反射率。高反膜系设计的任务就是设法使 R_j 远离原点, 尽量向外扩张。据此, 很容易得出高反膜系选择镀膜材料的两个原则:

1) 减少动径的衰减, 使 $D_j \rightarrow 1$ 。由 (4) 式可知, $D_j \rightarrow 1$ 要求 $k_j \rightarrow 0$, 于是得出第一条原则: 选择衰减系数小, 或者说吸收小的材料。

2) 让镀膜材料的切换能有效地使 R_j 曲线向外扩张。这要求 r_j 和 r_{j-1} 在复平面上的端点距离尽量远。于是得到第二条原则: 选择费涅尔反射系数之差尽量大的一对材料。

为了使用这两条原则, 可将已掌握的材料的光学常数数据 (n, k) 做成数据库存入计算机中。当给定波长和入射角之后, 在复平面上图示这些材料的费涅尔反射系数端点。这样, 选材的标准就可以清楚地表述成: 1) 端点离实轴的距离尽量小; 2) 两端点之间的距离尽量大。

由图 1 还可以看出, 在 n, k, λ 和 θ 给定之后, R_j 曲线完全由各层的膜厚 d_j 决定。可以证明, 对于同一层膜, 对应于同一起始点的 R_j 曲线不会相交。根据这个不相交定理, 起始点(镀膜材料的切换点)处的 R_j 曲线应能保证与前一段曲线(R_{j-1}) 沿切线方向光滑连接。只有这样, 也只要做到了这样, 现实的 R_j 曲线才能总是处在所有可能的 R_j 曲线的最外端。因此, 决定膜厚 d_j 的问题就化成一个找光滑连接点的问题。至于如何找光滑连接点, 则是一个简单的计算方法问题, 有许多现成的算法和程序。图 1 给出的就是这样一条光滑连接曲线, 点 P、Q、S 分别为各层的最佳起始(切换)点, 与这些点对应的膜厚值就是最佳膜厚值。

这种设计方法的一大优点是实际上模拟了镀膜过程。设计(画出 R_j 曲线)由第一层做起, 找到光滑连接点后输出 d_j , 立刻可进入下一层搜索。这样, 实际上只需要一个双层膜体系, 大大节省贮存空间, 计算速度也大大加快。

最后, 设计中还需要决定多层膜系的膜层数。由于有吸收, 膜系的反射率会饱和到一个小于 1 的稳定值, 不再随层数的增加而增加。饱和的快慢由材料的衰减系数 k 决定, 而 k 又是

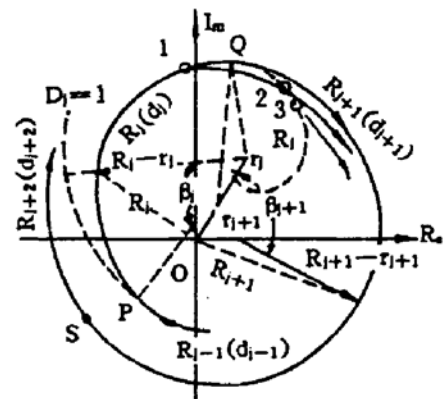


Fig. 1 The amplitude reflectance on a complex plane

波长的函数。对于水窗波段的多层膜,数百层之后反射率还会随层数的增加而增加;而对于 20 nm 以上波段,二十几层就已接近饱和。另外,决定膜层数还必须考虑镀膜设备的能力。

需要指出的是,由上述方法得到的各层厚度 d_i 是不同的,即膜系是非周期的。而通常多采用周期膜系,以利于制备时的膜厚控制和检测膜系的质量。由于反射率随膜层数增加具有饱和性,厚度 d_i 也趋向于两个稳定的值(针对两种材料)。一般地取这两个值作为周期膜系中每个周期内两种材料的厚度。

图 2 是一个典型的膜系反射率随膜层数的变化结果。计算中使用的参数为 $\lambda = 15.6 \text{ nm}$, $\theta = 0^\circ$, Mo/Si 多层膜, $d_{\text{Mo}} = 2.92 \text{ nm}$, $d_{\text{Si}} = 5.15 \text{ nm}$ 。根据图 2 决定此膜系制备时采用 51 层。

2.2 软 X 光激光用多层膜反射镜

表 1 给出现阶段所研究的部分 X 光激光波长下正入射多层膜反射镜的设计结果,包括镀膜材料,周期厚度,膜层数和理论所能达到的最大反射率。计算中采用的光学常数取自参考文献[4,6]。其中 13.2 nm 以上的多层膜反射镜已在 X 光激光实验中应用过,得到了良好的实验结果。10.6 nm~4.6 nm 的多层膜反射镜正在研制过程中。表中的膜层数都由反射率随膜层数的变化关系决定(参见图 2)。由于有吸收,当反射率随镀膜层数的增加达到饱和之后,继续镀膜不仅不会增加反射率,而且由于表(界)面粗糙的增加还会使反射率降低。表中给出的理论反射率由材料的光学常数决定,这是在考虑材料的光学特性(光学常数)和制备特性之后,该波长处正入射条件下反射率所能达到的最大值。它们要比对应波长处任何材料单界面的反射率至少大一个数量级。这就是为什么软 X 射线波段正入射光学元件必须镀多层膜的原因。

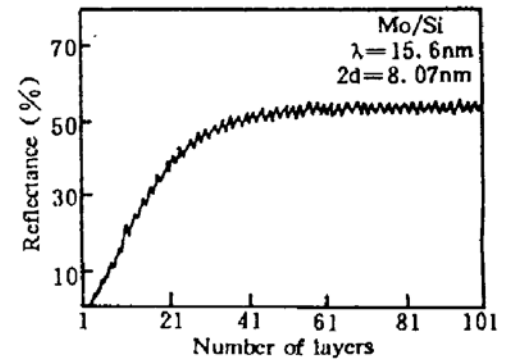


Fig. 2 Calculated reflectance vs. number of layers for a normal incidence Mo/Si multilayer at wavelength of 15.6 nm

Table 1. The design results of multilayered mirror at normal incidence for different soft X-ray laser wavelengths

wavelength λ (nm)	material	number of layers	period thickness (nm)	theoretical reflectance (%)
23.4	Mo/Si	31	12.43	29.9
22.0	Mo/Si	31	11.61	33.4
20.8	Mo/Si	31	10.92	36.3
19.6	Mo/Si	31	10.26	39.3
18.2	Mo/Si	41	9.50	44.4
15.6	Mo/Si	51	8.07	54.0
13.2	Mo/Si	81	6.77	61.0
10.6	Ru/C	99	5.50	51.3
8.1	Ru/C	101	4.12	32.1
5.4	Ni/C	401	2.72	39.5
4.6	Ni/C	401	2.31	46.0

3 软 X 光激光用多层膜反射镜的性能模拟计算

对基于波动光学原理的多层膜计算方法,常用的有两大类:一类是矩阵法,将每层膜的参数归结为一个二阶矩阵^[7];一类是迭代法^[8]。本文的计算中都使用迭代法。

3.1 反射率随入射角的变化

图 3 给出 31 层 Mo(2.98 nm)/Si(9.45 nm)多层膜在工作波长为 23.4 nm 时反射率随入射角的变化,图中的 R_s 、 R_p 和 R 分别代表 s 偏振, p 偏振和非偏振的反射率, $R = (R_s + R_p)/2$ 。镀这种多层膜的平面和球面反射镜曾多次用于类氦锗 X 射线激光实验中。

3.2 反射率随波长的变化

图 4 是一个 51 层 Mo(2.92 nm)/Si(5.15 nm)多层膜正入射时反射率随波长的变化。由图 4 可以看出膜系的峰值半宽。这对于元件的应用有一定的指导意义。完成这类反射率随波长的变化计算需要相应波段内镀膜材料多点的光学常数。为此对文献[4,6]中的光学常数均做了对数插值。

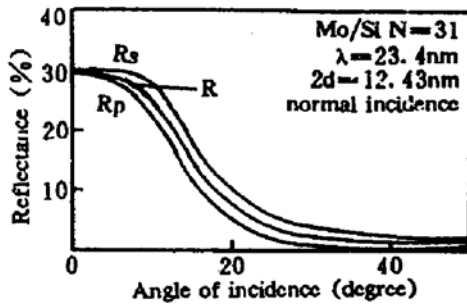


Fig. 3 Calculated reflectance vs. angle of incidence for a normal incidence Mo/Si multilayer at wavelength of 23.4 nm

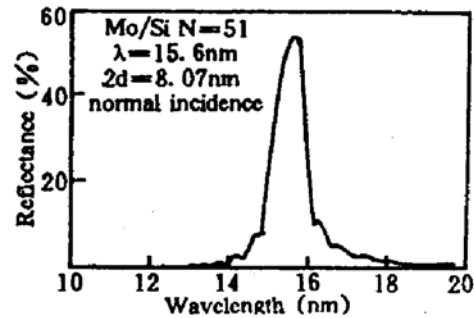


Fig. 4 Calculated reflectance vs. wavelength for a Mo/Si multilayer with $\sigma = 0$ and $\Delta d = 0$, designed at wavelength of 15.6 nm and normal incidence

3.3 膜厚控制误差的影响

以上模拟计算中都是针对理想情况,即膜厚控制误差 $\Delta d = 0$,界面不扩散,且镀膜表(界)面的粗糙度 $\sigma = 0$ 。实际制备的多层膜与理想情况当然有差别,而影响多层膜性能的诸因素中,最重要的是膜厚控制误差。

图 5、图 6 给出不同的膜厚控制随机误差对两个正入射软 X 射线激光多层膜反射镜反射率的影响。图 5 的设计为 Ru/C 多层膜,工作波长为 10.57 nm(类锂铝的 $5f - 3d$ 跃迁);图 6 的设计为 Ru/C 多层膜,工作波长为 8.1 nm(类氢氟的 $3d - 2p$ 跃迁)。图中标出了膜厚控制随机误差 Δd 的最大值。

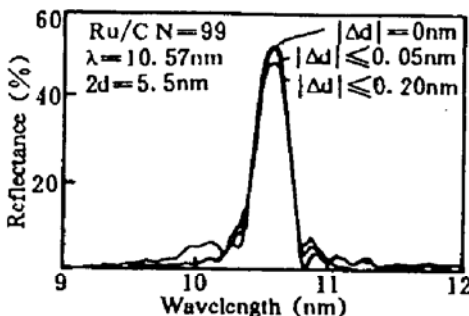


Fig. 5 Calculated reflectance vs. wavelength for a Ru/C multilayer with $\sigma = 0$ and different Δd , designed at wavelength of 10.57 nm and normal incidence

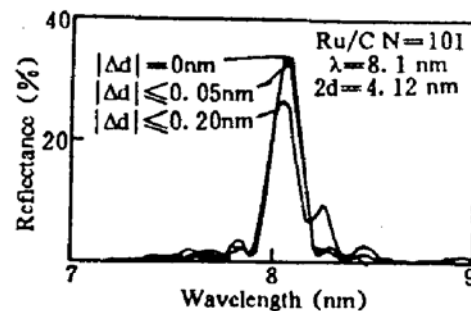


Fig. 6 Calculated reflectance vs. wavelength for a Ru/C multilayer with $\sigma = 0$ and different Δd , designed at wavelength of 8.1 nm and normal incidence

从图 5, 图 6 可以看出, 膜厚控制误差的增大将严重降低膜系的反射率, 波长越短, 降低越严重。因此, 研制 X 光激光用多层膜反射镜必须解决膜系制备中的膜厚控制问题。作者在制备过程中膜厚控制随机误差大约能做到 0.05 nm 以内。

3.4 表(界)面粗糙度和界面扩散的影响

对于 X 射线多层膜, 由于工作波长短, 表面粗糙引起的散射有可能十分严重; 另一方面, 由于每层膜都很薄, 扩散造成的界面处光学常数渐变也会大大降低该界面的反射率。

表面粗糙和界面扩散的影响都可以用表(界)面散射理论描述, 但对于有多个非理想界面的软 X 射线多层膜系, 这类描述和讨论往往是十分复杂的。从模型的简洁、有效和参量的可测性出发, 本文选用 Stearns 的方法^[9]。该方法的核心之处在于:

1) 散射场的讨论中引入弱场(Born)近似, 即散射场是比较弱的。由于软 X 射线波段任何材料的介电常数都很接近于 1, 允许做弱场近似的条件总可以得到满足(入射角大于全反射临界角的情况除外)。

2) 在弱场条件下, 用散射观点处理界面反射和透射问题时, 可将反射和透射分成两大类: 一类是满足 Snell 定律的镜面反射、透射; 另一类是非镜面反射、透射。前者是相干的, 用动力学方法处理; 后者是非相干的, 用运动学方法处理。

3) 在 Born 近似下, 多层膜中任意界面的镜面反射、透射可做如下数值计算:

$$r_{ij} = r_{ij}^{\circ} W, \quad t_{ij} = t_{ij}^{\circ} \quad (5)$$

式中 r_{ij} 、 t_{ij} 分别为非理想界面的振幅反射率和透过率, r_{ij}° 、 t_{ij}° 为对应的理想界面振幅反射率和透过率(用费涅尔公式计算), W 为该非理想界面的微分轮廓函数的傅里叶变换。这个微分轮廓函数可以描述纯粹的界面几何粗糙度, 也可以描述纯粹的界面扩散, 更普遍形式是二者都有。至于究竟哪种因素对造成散射起主要作用, 还要根据具体情况做专门的分析和研究。

根据以上三点的数值计算结果表明, 轮廓函数取什么形式(如常见的误差函数、指数函数、余弦函数、线性函数)对结果影响不大; 但轮廓函数的特征参量 σ 对结果影响很大。据此, 一般地可以将轮廓函数取成误差函数。这时(5)式中的 W 就是常用的 Debye-Waller 因子, σ 的物理意义为表(界)面等效粗糙度的均方根值。

图 7、图 8 给出两个 Ru/C 多层膜在不同 σ 下的计算结果。图中可以清楚地看出 σ 的影响。与图 5、图 6 比较还可看出, 表面粗糙度对反射率的影响在任何入射角处都是单调下降的。而厚度控制随机误差则可能造成峰值位置的迁移。

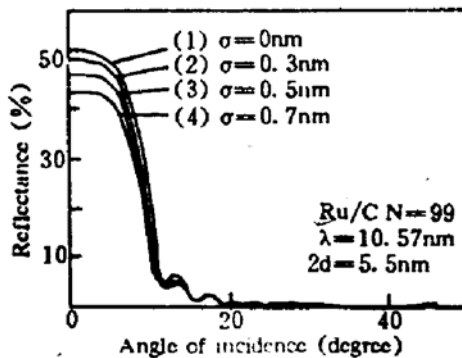


Fig. 7 Calculated reflectance vs. angle of incidence for a Ru/C multilayer with $\Delta d = 0$ and different σ , designed at wavelength of 10.57 nm and normal incidence

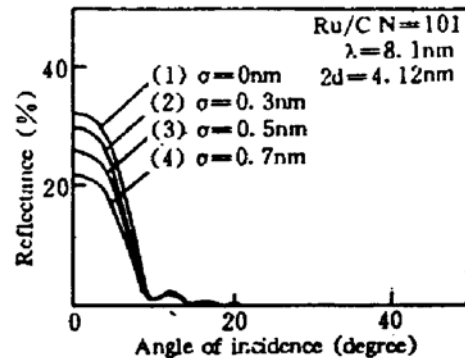


Fig. 8 Calculated reflectance vs. angle of incidence for a Ru/C multilayer with $\Delta d = 0$ and different σ , designed at wavelength of 8.1 nm and normal incidence

结 论 作者们在研究中发展了一套软 X 光激光用多层膜反射镜的设计方法和性能模拟计算方法。可以根据材料的光学特性挑选镀膜材料, 决定膜系所能达到的最大反射率和与此对应的最佳膜层厚度, 并确定膜层数。还可以模拟多层膜的工作情况, 了解制备过程中的一些关键技术参数, 如膜厚控制误差, 表(界)面粗糙度等对多层膜性能的影响。

本项目得到国家科委 863 高科技项目和国家自然科学基金的支持。

参 考 文 献

- [1] 曹健林, 软 X 射线波段(60~900 eV)光学常数测定及多层膜反射镜的设计、制备. 博士学位论文, 中国科学院长春光机所, 1989
- [2] 曹健林, 软 X 射线多层膜反射镜的设计、制备与检测. 光学机械, 1990, 161: 33~40
- [3] 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
- [4] B. L. Henke, P. Lee, T. J. Tanaka *et al.*, Low-energy x-ray interaction coefficients, photoabsorption, scattering, and reflection $E=100\sim 2000$ eV, $Z=1-94$, *At. Data Nucl. Data Tables* 27, 1982: 1~144
- [5] Berning, Theory and calculations of optical thin films, in *Physics of thin films*, G. Hass ed., Vol. 1, New York, Academic Press, 1963: 69~121
- [6] D. L. Windt, XUV optical constants of single-crystal GaAs and sputtered C, Si, Cr_3C_2 , Mo, and W., *Appl. Opt.*, 1991, 30(1): 15
- [7] M. Born, E. Wolf, *Principles of Optics*. New York, Pergamon, 1965: 51
- [8] J. H. Underwood, T. W. Barbee, Layered synthetic microstructures as bragg diffractors for X-rays and extreme ultraviolet; theory and predicted performance. *Appl. Opt.*, 1981, 20(17): 3027
- [9] D. G. Stearns, The scattering of X-rays from nonideal multilayer structures. *J. Appl. Phys.*, 1989, 65(2): 491

The Design and Performance Simulation of Multilayered Mirrors for Soft X-Ray Lasers

Zhang Junping Cao Jianlin Ma Yueying Gao Honggang
Chen Bin Lu Junxia Pei Shu Chen Xingdan

(The State Key Laboratory of Applied Optics, Changchun Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Changchun 130022)

(Received 11 March 1994; revised 27 June 1994)

Abstract In the domain of soft x-rays the design method of multilayered mirrors for lasers is described, with the results of normal incidence for some X-ray laser wavelengths which are studied at present. The performance simulation is also discussed, including the $R\sim\theta$ and $R\sim\lambda$ calculation, as well the effects of thickness control error and surface-interface roughness.

Key words soft x-ray multilayer, laser mirrors, multilayer design and simulation