

0.154 nm Cu K α 射线作用下多层膜 矩形光栅组合结构的特性研究

袁利祥 范正修 易 葵 陈国萍 王润文

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘 要 在矩形光栅上镀制软 X 射线多层膜, 得到多层膜光栅组合式结构。报道用 Cu K α 线小角度对多层膜光栅的衍射特性研究结果。用 X 射线运动学理论进行了理论分析, 得到两个衍射条件, 分别对应于决定衍射角的光栅方程和决定多层膜峰值的布拉格定理, 发现光栅级效率受多层膜反射调制。对镜面反射扫描、样品扫描、探测器扫描不同情况下各衍射峰峰位和强度的实验值和理论进行了比较, 两者符合得很好。

关键词 Cu K α 射线, 多层膜光栅, 衍射特性。

1 引 言

衍射光栅突出的优点在于它的高分辨率, 在软 X 射线区域由于材料的折射率都趋于 1 以及对软 X 射线的强吸收导致衍射光栅的绝对衍射效率极低($\ll 1\%$)。提高光栅效率有两个办法, 一是掠入射使用, 但掠入射使用又会带来像差等诸多问题。另一个办法是在光栅上镀制软 X 射线多层反射结构, 多层膜具有高反射率但分辨率较差, 优化组合结构的参数使某光栅级次位于多层膜布拉格角上可得到优化衍射效率, 从而具备软 X 射线区域高反射率与高分辨率两种功能。1981 年由美国 Spiller^[1] 提出这种组合结构设想并进行初步实验以来, 主要发达国家都已投入相当力量对此进行研究^[2~5], 主要包括对组合结构的优化理论设计研究、探究最佳实验途径以及同步辐射或者激光等离子体效率测试。本文作者曾对多层膜矩形位相光栅的理论、实验制备、同步辐射测试等作了一定的研究^[6, 7], 并在国内首次实现了多层膜矩形位相光栅这种组合结构。本文首次采用 Cu K α 射线低角测试研究多层膜矩形光栅的衍射特性。运用 X 射线运动学理论进行了理论研究, 导出两个衍射条件。对采用镜面反射扫描、样品扫描、探测器扫描等不同方法得到的不同信息进行了分析研究, 各衍射峰峰位、强度理论研究结果与实验测量一致。

2 理论模型

2.1 正点阵空间

为得到多层膜光栅在硬 X 射线低角作用下的反射特性, 在通常的正点阵空间中采用标准

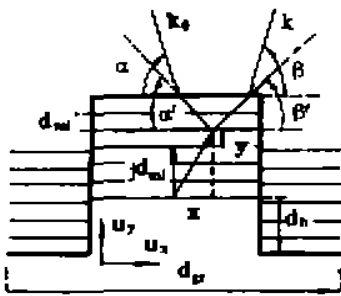


Fig. 1 Schematic drawing of a unit cell of multilayer coated laminar grating

X 射线运动学理论来分析图 1 结构。图 1 是等周期光栅的一部分，上面镀有多层膜。 $|d_g|$ 为光栅周期， $|d_m|$ 为多层膜周期， x 方向平行于多层膜界面， y 方向垂直于多层膜界面， α 、 β 分别为空气中的入射角和衍射角， α' 、 β' 为在多层膜介质内部入射角和衍射角。

首先，考虑任意两个散射点对光波的衍射。设两个散射点相距 r ，入射光和衍射光的波矢分别为 k_0 和 k ，于是两个散射点的衍射光的相对位相差为 $r \cdot (k - k_0)$ 。定义散射波矢为 $S = k - k_0$ 。空气中观察点距坐标原点 R 处 ($R \gg |r|$) 时间 t 时的衍射光振幅 A 可表示为：

$$A = (\Phi/R) \exp(i\omega t + ir \cdot S) \quad (1)$$

其中 Φ 为两散射点在方向 S 上的散射功率。由于多层膜光栅是由许许多多散射点组成，所以需用 (1) 式对所有散射源进行振幅叠加。光栅由 N 个台阶组成，因此可以定义一个结构单元为图 1 中的一个台阶 (上面镀有周期数为 M 的相同材料对组成的多层膜，槽部暂不考虑)。通过计算每个结构单元上多层膜的贡献得到每个单元的衍射振幅，然后将所有单元的衍射振幅进行叠加来求得合振幅为：

$$A_{\text{unit}} = \sum_{n=0}^{N-1} \exp[i(nS \cdot d_g)] \sum_{j=0}^{M-1} \exp[i(jS \cdot d_m)] \times \left\{ \left[\exp(i\omega t)/R \right] \int_0^{|d_m|} \int_{-|d_g|/4}^{|d_g|/4} \Phi_s(x, y) \exp(iS_x x) \exp(iS_y y) dx dy \right\} \quad (2)$$

其中 $\Phi_s(x, y)$ 是位置 (x, y) 处在 S 方向上单位面积的散射功率。当多层膜理想平整时， $\Phi_s(x, y)$ 是与 x 无关而只与 y 有关的两个值，分别对应多层膜周期中的两种材料。光强

$$I = |A_{\text{unit}}|^2 = \frac{\sin^2[(N/2)S \cdot d_g]}{\sin^2[(1/2)S \cdot d_g]} \frac{\sin^2[(M/2)S \cdot d_m]}{\sin^2[(1/2)S \cdot d_m]} C_s^2 \quad (3)$$

C_s 是 (2) 式中括号中关于 x, y 的两重积分的值，它的物理意义是厚度为 $|d_m|$ 、长度为 $|d_g|/2$ 的一个多层膜周期结构的衍射强度。

虽然 C_s 与衍射几何结构有关，但它随 S 的变化程度与 (3) 式中其它两项相比要小得多，可忽略 C_s 项的变化。衍射条件由 (3) 式的极值强度决定，由于 $d_g \perp d_m$ ，故当同时满足： $(1/2)S \cdot d_g = h\pi$ 和 $(1/2)S \cdot d_m = k\pi$ 时 (h, k 为整数)，方程 (3) 有极大值。 $(1/2)S \cdot d_g = h\pi$ 和 $(1/2)S \cdot d_m = k\pi$ 分别就是光栅方程和布拉格定理，下面更清晰可见。

因衍射发生在多层膜层内部的界面上，折射也要改变 S 方向和大小，为精确起见在衍射条件中用 S' 来代替 S ，令 S' 为平均折射率为 n' 的介质内部的散射矢量，如图 1 写出： $S' = (2\pi/\lambda')(\cos \beta' - \cos \alpha', \sin \beta' + \sin \alpha')$ ， α' 、 β' 、 λ' 分别为介质内的入射角、衍射角和波长。而衍射条件是否满足又是通过外部角度测量得到的，所以试图将 S' 与外部角度 α, β 联系起来。因为 $n' \cos \alpha' = \cos \alpha$ ， $n' \lambda' = \lambda$ ，注意到 $S'_x = S_x$ ，故 $S' \cdot d_g = S \cdot d_g$ ，两个衍射条件为：

$$h\pi = (\pi/\lambda) |d_g| (\cos \beta - \cos \alpha) \quad (4)$$

$$k\pi = (\pi/\lambda) |d_m| \left[\sin \alpha (1 - 2n/\sin^2 \alpha)^{1/2} + \sin \beta (1 - 2n/\sin^2 \beta)^{1/2} \right] \quad (5)$$

上式中用 $n' = 1 - n - iy$ ， n' 、 n 、 γ 分别是多层膜一个周期中折射率平均值， $n, \gamma \ll 1$ ，(4) 式显然就是光栅方程，(5) 式当 $\alpha = \beta$ 时是布拉格定理。

至此,得到的仍然是光栅中未考虑槽部时的情况。考虑槽部的反射振幅及其槽的原点与台阶原点之间有位置差 $|\mathbf{d}_b| + |\mathbf{d}_g|/2$ 引起的位相差。台阶和槽部的合成振幅为:

$$A_{\text{bars}} + A_{\text{valleys}} = \sum_{n=0}^{N-1} A_{n,n} \exp [i(\mathbf{S} \cdot n\mathbf{d}_g)] \{1 + \exp [i(\mathbf{S} \cdot (\mathbf{d}_g/2 + \mathbf{d}_b))]\} \\ \times (|\mathbf{d}_g|/2 - |\mathbf{d}_b| \text{ctg } \alpha) / (|\mathbf{d}_g|/2)$$

强度为:

$$I = |A_{\text{bars}} + A_{\text{valleys}}|^2$$

事实上,在本文的实验条件下,对应明显衍射峰的小掠入射角时槽部基本上被台阶遮挡,因此强度表达式仍可用(3)式。

2.2 倒易空间

为了使衍射条件更加直观,引进倒易空间,在倒易空间中讨论,可得到理论的衍射峰角位置和相对强度大小。

令 $\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y$ 为倒易空间中分别沿 x, y 方向的单位矢量,用 $\mathbf{d}_g = |\mathbf{d}_g| \mathbf{u}_x$, 光栅方程 $(1/2)\mathbf{S}' \cdot \mathbf{d}_g = h\pi$ 变成 $\mathbf{S}' \cdot \mathbf{u}_x = hD_g = S_x$, 这里 $D_g = 2\pi/|\mathbf{d}_g|$, 如图 2 所示,在倒易空间中的图解是一系列平行 y 轴的直线。用 $\mathbf{d}_m = |\mathbf{d}_m| \mathbf{u}_y$, $(1/2)\mathbf{S}' \cdot \mathbf{d}_m = k\pi$ 变成 $\mathbf{S}' \cdot \mathbf{u}_y = kD_m = S_y$, 这里 $D_m = 2\pi/|\mathbf{d}_m|$, 所以满足布拉格定理的多层膜衍射条件在倒易空间中是垂直于 y 轴的直线 $S_y = kD_m$ (k 为整数)。如果散射矢量同时与上述倒易空间中的水平和垂直直线相交,意味着两个衍射条件同时满足,就能看到衍射极大峰值。

2.3 在倒易空间中扫描

扫描可分三种方法,样品与探测器以 $\theta-2\theta$ 关系同时扫描的镜面反射扫描法、探测器固定某一角度的样品扫描法以及样品固定某一角度的探测器扫描法。对于每种扫描法,散射矢量在倒易空间图上都能画出不同的曲线。

镜面反射扫描时,样品与探测器同时以 $\theta-2\theta$ 关系同时转动, $\alpha = \beta$ 。样品方式扫描时, $\alpha = \alpha_0 + \delta, \beta = \alpha_0 - \delta$ 。探测器方式扫描时, $\alpha = \alpha_0, \beta = \alpha_0 + \delta$ 。这里 δ 表示角度的变化量, α_0 的下标表示固定角度。

定义 $F(\alpha) = (1 - 2\pi/\sin^2 \alpha)^{1/2}$, 又因 $S_x = S_z$, 所以散射波矢 $\mathbf{S}' = (2\pi/\lambda)(\cos \beta' - \cos \alpha', \sin \beta' + \sin \alpha')$ 对不同扫描情况下有:

镜面扫描的散射波矢

$$\mathbf{S}' = (2\pi/\lambda)[0, 2 \sin \alpha F(\alpha)], \quad (6)$$

样品扫描的散射波矢

$$\mathbf{S}' = (2\pi/\lambda)[2 \sin \alpha_0 \sin \delta, 2 \sin \alpha_0 \cos \delta F(\alpha_0)], \quad (7)$$

探测器扫描的散射波矢

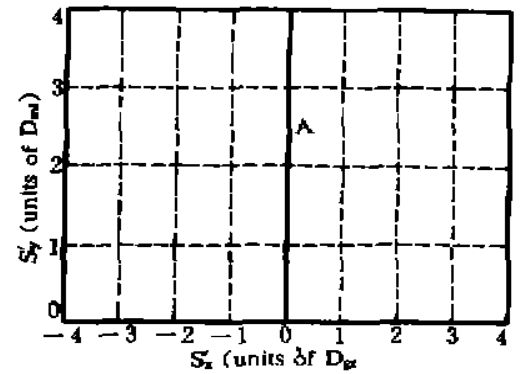


Fig. 2 Plot of the reciprocal scans in which the x and y components have been expressed in units of D_g and D_m respectively. During a specular reflection scan \mathbf{S}' describes curve A normal to S_x axis ($S_x = 0$), a sample scan \mathbf{S}' describe curve normal to S_y axis, detector scan describe curve decline constantly as S_y . When curves pass the point of intersection of the straight lines on figure, the grating diffraction condition and multilayer Bragg law are metted simultaneously

$$S' = (2\pi/\lambda) [\cos \alpha_0 (\cos \delta - 1) - \sin \alpha_0 \sin \delta, \sin \alpha_0 \cos \delta F^{-1}(\alpha_0) + \cos \alpha_0 \sin \delta F^{-1}(\alpha_0) + \sin \alpha_0 F(\alpha_0)]. \quad (8)$$

因为 δ 非常小, 故在(8)式作了两个近似 $\cos \delta' \approx \cos \delta$, $\sin \delta' \approx F^{-1}(\alpha_0) \sin \delta$. 考虑到 $n \approx 10^{-5}$, 所以 $F^{-1}(\alpha_0) \approx 1$, 上三式可进一步简化为:

$$S' = (4\pi/\lambda)(0, \alpha) \quad \text{镜面扫描} \quad (9)$$

$$S' = (4\pi/\lambda) [\delta\alpha_0, \alpha_0(1 - \delta^2/2)] \quad \text{样品扫描} \quad (10)$$

$$S' = (2\pi/\lambda) (-\delta\alpha_0 - \delta^2/2, 2\alpha_0 + \delta) \quad \text{探测器扫描} \quad (11)$$

镜面反射扫描时, S' 仅有 y 分量在变化, 故在倒易空间中是平行于 y 轴的直线, 观察到的是光栅的零级, 反射率由多层膜反射率决定. 样品扫描时 S'_x 几乎不变, S' 描述的是几乎垂直于 y 轴的曲线. 探测器扫描比较复杂, S'_x 、 S'_y 两个分量都在变化. 进一步分析可知 S'_x 、 S'_y 在倒易空间中是单调递减函数, 与直线 $S'_x = kD_m$ 和 $S'_y = hD_g$ 的共同交点可能存在, 也可能不存在.

3 样品制备

在精抛光的 Si(111)基底上用 Ar^+ 激光器 (λ 为 457.9 nm) 曝光制备 d 为 0.88 μm 、线空比为 1:1 的全息光栅掩模, 然后用 Ar^+ 离子刻蚀光栅, 深度为 15.5 nm, 再在刻蚀光栅上制备 Mo/Si 软 X 射线多层膜, 周期厚度为 13.5 nm, 吸收层材料 Mo 与周期厚度之比为 0.25, 共 25 层, 具体的制备方法与精度控制参见参考文献[6].

4 测试结果及讨论

衍射特性的测试是在 Riguka D/max-rB 转靶多晶衍射仪上进行的. 探测器前接收狭缝宽为 0.15 mm, 发散狭缝为 1° , 工作电压为 40 kV, 电流为 100 mA, 接收狭缝后探测器前加石墨单色器, 阻止非样品的衍射线进入探测器, 进一步降低背底.

4.1 镜面反射扫描

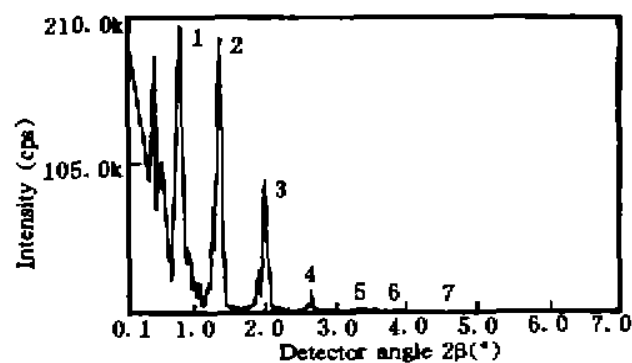


Fig. 3 Diffraction intensity as a function of double angle of diffraction at Cu K_α of the multilayer coated grating when specular reflection scan

用镜面反射扫描法扫描多层膜光栅, 可以得到如图 3 所示的结果. 第一级至第七级多层膜布拉格衍射峰分别如图上所标, 它们都是由多层膜周期厚度满足布拉格定理衍射得到. 由图 3 可以直接精确得到多层膜平均周期厚度, 布拉格衍射级次越高, 入射角和衍射角越大, 平均周期厚度越精确, 虽然实际衍射角大的峰值强而弱, 噪声变大, 由图上可分辨的第 7 号峰仍然可得到精确的厚度. 沉积时已知 Mo 材料厚度占周期厚度的 1/4, 故 Cu K_α 线测量条件下 Mo/Si 平均折射率 n' 中的 n 为 1.32×10^{-5} , 运用方程(5), 由第 7 号峰直接得到平均周期厚度为 13.57 nm, 与预定 13.5 nm 一致.

4.2 样品扫描

探测器定位于 $2\alpha_0 = 2.02^\circ$ 的 3 号多层膜布拉格峰位不动, 多层膜光栅样品单独在 $\alpha_0 = 1^\circ$

左右精细扫描(0.002°/step), 此时 $S_r = 3D_m$, $\alpha = \alpha_0 + \delta$, $\beta = \alpha_0 - \delta$ 。当 $\delta = 0$ 时入射角与衍射角相等, 测到的是光栅的零级峰, 也是多层膜的第三级布拉格主极大峰。样品转动时 $\delta \neq 0$, 光栅衍射的高级次峰就出现了。图 4 中可清晰见到 ± 1 、 ± 2 、 ± 3 级光栅衍射峰。图 4 中还可发现在样品扫描过程中, 样品的反射率随着 δ 变化仍基本上不变。这是因为: 由于 δ 较小, (10) 式中 S_r 变化很小, $S_r \approx hD_m$, 决定反射率的多层膜布拉格条件在样品扫描过程中仍基本得到满足, 因此图 4 中的各衍射峰强度都较高, S_r 对 δ 的变化却很敏感, 左右对称的衍射峰是 S_r 在随 δ 的变化过程中满足光栅方程所引起的。

衍射峰角分离由 $S_r = D_g (h = 1)$ 可求出。 $\delta_0 = \lambda / (2|d_g| \alpha_0)$, 由此式求出 $\alpha_0 = 1^\circ$ 时, $\delta_0 = 0.26^\circ$, 与实验值一致。各级衍射峰与零级峰之间的角距离可由 $S_r = hD_g$, $S_r = kD_m$ 联合求得: $\delta = F(\alpha_0) |d_m| h / |d_g| k$, $F(\alpha_0)$ 只与复折射率 n' 的实部有关, 因此原则上可由峰位之间的分离来决定折射率实部。

4.3 探测器扫描

将样品定位于多层膜第三级布拉格峰位处, 探测器单独精细扫描(0.002°/step), 此时 $\alpha = \alpha_0$, $\beta = \alpha_0 + \delta$ 。由(11)式可发现在探测器扫描过程中, 随着 δ 的变化, 不仅 S_r 在变化, S_z 也在跟着变, 故 $S_r = kD_m$ 只会在某些特定角度才能得到满足, 也就是说随着探测器的扫描, 多层膜反射率不再是常数, 所以图 5 中不再出现左右对称的光栅衍射峰。图 5 中 $2\beta_0 = 2.056^\circ$, $2\beta_{-1} = 1.408^\circ$, $2\beta_{+1} = 2.586^\circ$ 分别对应于光栅的 0、-1、+1 级峰。衍射峰与零级峰之间的角距离 δ_0 可由(11)中的 S_z 、 S_r 代入 $S_r = D_m$, $S_z = hD_g$ 求得。利用 δ , $\alpha_0 \ll 1$ 导致的近似式 $F(\alpha) = F(\delta) \approx 1$, 得到 $\delta_0 = -2|d_m| h / |d_g|$ 。

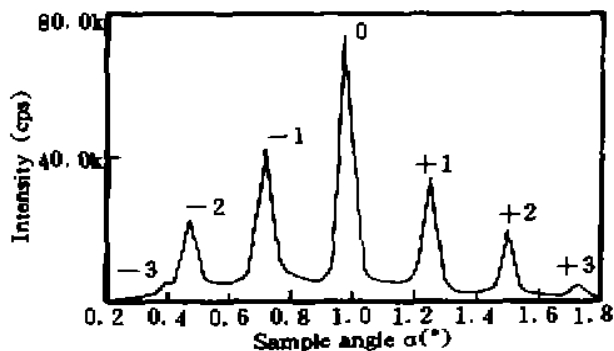


Fig. 4 Diffraction intensity as a function of sample angle of incidence at Cu K α when sample scan

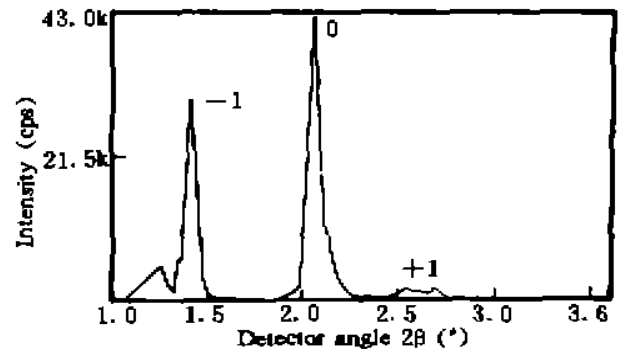


Fig. 5 Diffraction intensity as a function of double angle of diffraction of the multilayer coated grating when detector scan

结 论 在倒易空间中考虑散射矢量 S' , 可以决定低角情况下有多少光栅级次在无多层膜造成大的能量降低条件下得到衍射, 决定各扫描方式下的衍射峰角分离和衍射峰相对强弱。

正如 X 射线运动学理论所预测的那样, 在光栅方程和多层膜布拉格衍射定理两个条件都满足时, 观察到衍射极大峰。进一步研究发现, 每种扫描的光栅级效率都直接受多层膜反射率所调制。在样品扫描情况下, 所有光栅级上的效率都得到多层膜反射增强, 而在探测器扫描时, 则可能有的级次得到多层膜反射增强, 有的级次则被抑制, 并不显示出光栅衍射峰对称的情况。

感谢复旦大学沈孝良副教授在低角 X 射线衍射测试分析中给予的帮助。

参 考 文 献

- [1] E. Spiller, Evaporated multilayer dispersivion elements for soft x-rays. *Amer. Institute of Physics Conf. Proc.*, 1981, 75 : 124
- [2] M. Neviere, Multilayer coated grating for X-ray diffraction; differential theory. *J. Opt. Soc. Am. (A)*, 1991, 8 (9) : 1468~1473
- [3] Troy W. Barbee, Jr., Combined microstructure X-ray optics. *Rev. Scient. Instrum.*, 1989, 60 : 1588~1595
- [4] M. Krumrey, M. Kuhne, P. Muller *et al.*, Precision soft X-ray reflectometry of curved multilayer optics. *Proc. SPIE*, 1991, 1547 : 136~143
- [5] T. Sean Ross, Raymond T. Perkinsand, Larry V. Knight, A liftoff process for multilayer phase gratings. *Proc. SPIE*, 1989, 1160 : 655~663
- [6] Yuan Lixiang, Fan Zhengxiu, Cui Mingqi *et al.*, Soft X-ray phase modulation multilayer dispersive element. *Opt. Engng.*, 1995, 34(5) : 1508~1511
- [7] Yuan Lixinag, Fan Zhengxiu, Fu Shaojun *et al.*, Fabrication and performace of multilayer coated laminar phase grating in the soft X-ray region. *Phys. Scripta.*, 1995, 51 : 680~682

Performace of Multilayer Laminar Grating under the Irradiation of 0.154 nm Wavelength Light

Yuan Lixiang Fan Zhengxiu Yi Kui Cheng Guoping Wang Runwen

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

(Received 12 January 1995; revised 21 March 1995)

Abstract The multilayer grating combined structure can be obtained by depositing the soft X-ray multilayer on the laminar grating. In this paper, we report the diffraction performance of the multilayer grating under the irradiation of Cu K_{α} X-ray at low angle. Analysing with X-ray kinematics theory we obtained two diffraction conditions, corresponding to the grating equation and Bragg law respectively. The efficiencies of grating were found to be modulated by the multilayer reflection. The values both of experiment and theory of diffraction peak positions and intensities are compared and analyzed under three different scan methods such as specular reflection scan, sample scan and detector scan. The results show that they are coincided well.

Key words Cu K_{α} ray, multilayer laminar grating, diffraction property.