

文章编号: 0253-2239(2005)11-1581-4

水窗波段反射式偏振光学元件的设计和制作*

马 彬 王占山 王洪昌 王凤丽 吴文娟 张 众 秦树基 陈玲燕

(同济大学精密光学工程技术研究所, 上海 200092)

摘要: 水窗波段是软 X 射线进行生物活细胞显微成像的最佳波段, 因此对于水窗波段偏振光学元件的研究有着非常重要的意义。用菲涅耳公式计算出在水窗波段内不同材料组合对应不同波长的最大反射率, 模拟分析了多层膜周期和表界面粗糙度对多层膜偏振光学元件性能的影响。用超高真空磁控溅射镀膜设备, 制作出 2.40 nm、3.00 nm 和 4.30 nm 波长处 W/B₄C 多层膜偏振元件, 并用 X 射线衍射仪对元件的周期厚度进行了测量, 得到的测量结果与设计值偏差很小, 可以进行实际应用。为水窗波段反射式偏振光学元件的研究提供了理论依据, 同时也为相应偏振光学元件的制备确定了合适的工艺参量。

关键词: 薄膜光学; 水窗波段; 多层膜; 偏振; 磁控溅射

中图分类号: O484.4 文献标识码: A

Design and Fabrication the Polarizing Elements of Reflection Multilayer Film in Water Window Wave Band

Ma Bin Wang Zhanshan Wang Hongchang Wang Fengli Wu Wenjuan
Zhang Zhong Qin Shuji Chen Lingyan

(Institute of Precision Optical Engineering, Tongji University, Shanghai 200092)

Abstract: Water window is a special wave band for microscopy in soft X-ray range, which makes the research in water window polarization great significance. With Fresnel formula, the maximum reflectivity is calculated for different materials at corresponding wavelength in water window, the influence of the multilayers' periods and surface roughness on the element performance is analysed. Three W/B₄C multilayers are produced for polarizing elements in special wavelengths 2.40 nm, 3.00 nm and 4.30 nm based on ultrahigh vacuum magnetron sputtering equipment, the periodic thickness of elements by X-ray diffraction instrument is measured. The results with little windage prove practical. The work is essential in the study of polarizing elements of reflection multilayeres in water window which provides the theory and the suitable parameters for multilayeres fabrication.

Key words: film optics; water window wave band; multilayer film; polarization; magnetron sputtering

1 引 言

在水窗($\lambda=2.3\sim 4.4$ nm)波段,水(其中的氧)基本上是透明的,而碳(生命物质中大部分组成元素)却有很强的吸收。用该波段的软 X 射线作为信息载体,可以在很好对比度条件下观测活体细胞和生物样品^[1]。水窗波段饱和软 X 射线激光是目前唯一可以对生物活细胞进行无损伤三维全息成像和显微成像的光源^[2]。在水窗波段可以用偏振光研究有一定螺旋结构的生物体,通过不同螺旋状态的生物体对于左旋和右旋偏振光偏振特性吸收的差异研究生命状态。在软 X 射线天文学、X 射线激光和同

步辐射应用等领域的研究中偏振光学元件也有特殊作用^[3]。因此,对于水窗波段偏振光学元件的研究有着非常重要的意义。

在水窗波段,任何单层膜的反射率非常低,只能采用多层膜反射元件。在约 45°入射角时,多层膜可以使垂直于入射平面的偏振分量 s 和平行于入射平面的偏振分量 p 的反射率 R_s 和 R_p 相差几个数量级,可制成起偏器和检偏器。多层膜偏振元件设计可以运用遗传算法、针法、模拟退火等全局优化方法。水窗波段多层膜偏振光学元件的研制仍然是一大挑战,因为该波段多层膜周期厚度只有 2 nm 左

* 国家自然科学基金(10435050, 60378021)和上海市科委纳米专项基金(0352nm090)资助课题。

作者简介: 马 彬(1982~),男,同济大学物理系研究生,主要从事光学工程研究。E-mail: skyowner1@163.com

收稿日期: 2005-01-03; 收到修改稿日期: 2005-03-23

右。即使是一个原子尺度的表面粗糙度都会对多层膜偏振元件的性能有显著的影响。因此在工艺制备中对于表面粗糙度和层间扩散有着极其苛刻的要求。目前,美国、欧洲和日本的科学家已在极紫外和软 X 射线波段的起偏器、检偏器和相移片研究上取得了很好的进展,但对于水窗波段偏振光学元件的研究上仍处于探索阶段^[4]。

介绍了水窗波段偏振光学元件性能的要求,提出该波段多层膜偏振光学元件的设计原理和选材原则,计算了水窗波段一些多层膜材料对的偏振特性。利用菲涅耳迭代公式和 Stearn 模型^[5],模拟计算了多层膜表面粗糙度^[6]、膜层周期厚度对多层膜偏振元件性能的影响。采用磁控溅射方法制作了水窗波段内 2.40 nm、3.00 nm 和 4.30 nm 波长处的 W/B₄C 多层膜起偏器,用 X 射线衍射仪对上述多层膜偏振元件的性能进行测试。

2 水窗波段反射式偏振元件的设计

2.1 水窗波段反射式偏振元件设计的思想

在反射式偏振系统中,反射光由垂直于入射平面的 s 分量的偏振光和平行于入射平面的 p 分量的偏振光共同组成。利用 s 分量与 p 分量反射率的比值 R_s/R_p 来直观的比较 R_s 和 R_p 的数值差异。 R_s/R_p 比值越大,表明偏振光学元件的性能越好。在准布儒斯特角处, R_p 的值接近于 0,能获得最大偏振度,即 R_s/R_p 的值最大^[7]。

2.2 水窗波段偏振光学元件的选材原则

在多层膜偏振元件设计中,既要保证 s 偏振的反射率 R_s 尽可能大,又要保证偏振度 R_s/R_p 尽可能高,要求多层膜工作在准布儒斯特角位置。对于水窗波段软 X 射线,准布儒斯特角约为 45°。偏振元件多层膜的选材标准^[8]主要为:1)两种材料的折射率差尽可能大;2)两种材料的吸收尽可能小;3)两种材料可形成稳定光滑的界面;4)两种材料不发生相互反应和扩散;5)价格便宜无毒性。

在吸收限波长附近,材料的光学常数剧烈变化^[9],在略大于该波长的波段,材料吸收最小。V、Ti 和 Sc 的吸收线都在水窗波段,分别为 2.42 nm、2.73 nm 和 3.11 nm。在这些特定波长处,V、Ti 和 Sc 可作为多层膜中比较好的低吸收材料层,获得较高的反射率和 R_s/R_p 比值^[10]。

选择了几种水窗波段材料组合,在 45°入射角下,计算得到的反射率 R_s 和 R_s/R_p (在 150 个周期下,假

定粗糙度为 0(如图 1)。Ni/V、Ni/Ti 和 Cr/Sc 材料组合的 R_s 在各自间隔层吸收限处都获得了非常高的值,而且 R_s/R_p 的比值在相应的位置也比较高,都是比较好的多层膜偏振光学元件的材料组合。

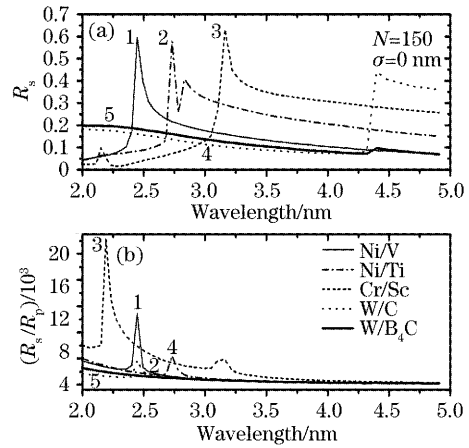


图 1 水窗波段内不同材料组合的 R_s 、 R_s/R_p 曲线
Fig. 1 R_s 、 R_s/R_p curves of different materials in water window

虽然在理论上 V、Ti 和 Sc 能达到非常大的 R_s ,但在实际的制备中,因为周期厚度极小,以及粗糙度、扩散和材料本身性质的限制,大大地降低了元件的偏振性能。W/B₄C 材料组合在水窗波段的反射率介于 10%~20%之间,能够形成比较光滑、稳定的界面,获得比较好的膜层结构^[11]。

2.3 水窗波段反射式偏振元件的设计与分析

图 2 为 4.30 nm 波长处 W/B₄C 多层膜 s 偏振和 p 偏振的最大反射率随入射角的变化。p 偏振光的反射率在 44.6°(准布儒斯特角)时有极小值,其偏振度 R_s/R_p 为 4.48×10^4 。工作在 44.6°时可作为很好的偏振光学元件。2.40 nm 处 p 偏振光准布儒斯特角为 44.8°, R_s/R_p 达到 5.3×10^4 ;3.00 nm

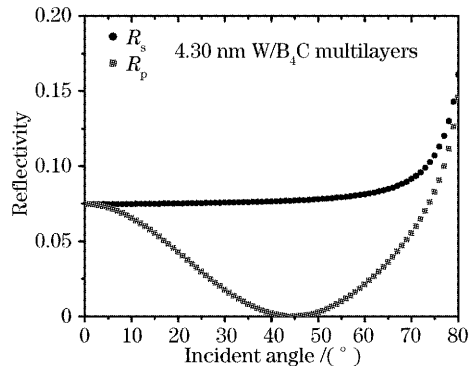


图 2. 4.30 nm 处 W/B₄C 多层膜 R 随入射角的变化曲线
Fig. 2 Reflectivity of W/B₄C multilayer versus with incidence angles at 4.30 nm wavelength

处 p 偏振光准布儒斯特角为 44.7° , R_s/R_p 达到 2.10×10^4 。

多层膜周期的大小,可近似由布拉格公式给出 $2d \sin \theta_m = m\lambda$ 。式中, m 为反射级次, λ 为入射光波长, d 为多层膜的周期厚度, θ_m 为掠入射角。公式没有考虑折射效应和吸收的影响,可作为多层膜设计的初始条件。最佳厚度的确定需要依赖计算机优化设计^[12],优化参量是 $R = (R_s + R_p)/2$, R_s, R_p 会对膜层的厚度有一定的影响。过计算机优化,得出不同波长下多层膜的周期。周期厚度 d 的改变将影响到多层膜 s 偏振和 p 偏振的反射率极值的位置,在准布儒斯特角处产生偏移。粗糙度变化会对理论计算值有一定的影响, R_s, R_p 的峰值明显减小, R_s/R_p 略微变大; R_s 所对应的反射峰半宽度减小; $R_s, R_p, R_s/R_p$ 的峰值位置略有改变。

制备了在波长 2.40 nm、3.00 nm 和 4.30 nm 处的 W/B₄C 多层膜偏振元件。图 3 为不同粗糙度时 W/B₄C 多层膜 R_s 随周期数的变化。在 2.40 nm 波长处,200 个周期时理论反射率 R_s 达到 20.2%,当粗糙度为 0.3 nm 和 0.5 nm 时, R_s 的值分别为 5.76% 和 0.65%; 在 3.00 nm 波长处,200 个周期时理论反射率 R_s 为 13.9%,当粗糙度为 0.3 nm 和 0.5 nm 时, R_s 的值分别为 6.0% 和 1.5%; 在 4.30 nm 波长处,200 个周期时理论反射率 R_s 达到 7.7%,当粗糙度为 0.3 nm 和 0.5 nm 时, R_s 的值分别为 5.2% 和 2.6%。可见表面粗糙度对于多层膜的反射率有很大的影响。在制备过程中需要选择合适的工艺参量,以降低多层膜的粗糙度,提高多层膜偏振光学元件的性能。

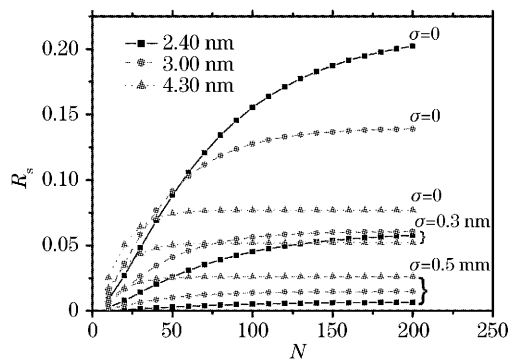


图 3 不同粗糙度时多层膜的反射率 R_s 随周期的变化曲线
Fig. 3 R_s curves of multilayers with different roughness changing with periods

200 个周期或更多的膜系,反射率虽然相对于 150 个周期会有一定的增加,但效果并不是特别显

著,加上实际制备中膜层数越多,要求的工艺水平越高。因此,选取 150 个周期来进行多层膜偏振光学元件的制备,三种波长处的多层膜参量见表 1。

表 1 不同波长处的多层膜设计参量

Table 1 Design parameters of multilayers at different wavelength

Wavelength /nm	Periodic thickness /nm	$\Gamma(dW/d)$
2.40	1.70	0.32
3.00	2.12	0.32
4.30	3.07	0.37

3 偏振元件的制备及检测

3.1 W 和 B₄C 镀膜中速率的标定

利用多层膜的 X 射线掠入射衍射测试曲线和折射修正的布拉格公式^[13,14]:

$$\sin^2 \theta_m = (\lambda/2D)^2 m^2 + 2\delta,$$

进行 $\sin^2 \theta_m$ 和 m^2 直线的最小二乘法拟合,得到

$$Y = A + BX, D = \lambda/(2 \times \sqrt{B}), \delta = A/2,$$

多层膜样品经 X 衍射仪测出掠入射 X 射线衍射曲线,得到各级衍射峰值的位置(θ_m),经过计算可做出 $\sin^2 \theta_m$ 和 m^2 的点图。由直线最小二乘法拟合,得到直线的斜率 B ,由此计算出多层膜的周期(D)。

要制备所需周期的多层膜,需先对 W 和 B₄C 的溅射速率进行标定。假设所有的工艺条件稳定, W 和 B₄C 的沉积速率分别为 V_w, V_{B_4C} 。改变 W 和 B₄C 材料的镀膜时间,制备出两块不同周期的多层膜样品。第一块多层膜中两种材料的镀膜时间分别为 t_1, t'_1 ; 第二块多层膜中两种材料的镀膜时间分别为 t_2, t'_2 。经 X 射线衍射测试和最小二乘法拟合得到这两块多层膜的周期分别为 D_1, D_2 , 根据 W 和 B₄C 的镀膜速率,列出关于镀膜时间和镀膜速率的一个二元一次方程组,即可计算出材料的沉积速度。实验中标定的镀膜速率为

$$v_w = 0.045 \text{ nm/s}, \quad v_{B_4C} = 0.028 \text{ nm/s}.$$

3.2 W/B₄C 多层膜的检测

使用 X 射线衍射仪检测多层膜周期与设计值的偏差,以及多层膜的结构规整性。使用的 X 射线衍射仪是英国 BEDE 公司生产的 D1 型高分辨率 X 射线衍射仪,光源为 Cu 的 $K\alpha$ 线($\lambda=0.154 \text{ nm}$)。

以工作波长为 4.30 nm 的 W/B₄C 多层膜样品的检测为例。经过 X 射线衍射仪检测后,测得的掠入射衍射曲线如图 4(a) 所示。其中 CPS 表示每秒探测器计数率, θ 为掠入射角,测量时采用 $\theta-2\theta$ 联动方式。在得到各个峰值位置后,进行相应的计算

和最小二乘法拟合,可以算出实际制作的多层膜的周期 D 。与设计值 d 相比较,可以检验制备的工艺水准。实际测量的周期 $D=3.08$ nm,与设计值 $d=3.07$ nm相比较是十分接近的。用同样的方法可测出其他波长多层膜样品衍射曲线如图 4(b)和图 4(c)所示。将测得的周期 D 与设计值 d 进行比较,可知实际制作值与设计值的差距。所得数据见表 2,表中制备工艺比较合理,周期值与设计值的误

差很小,达到了实际使用的要求。

表 2 三种 W/B₄C 多层膜周期与设计值比较

Table 2 Comparison of W/B₄C multiplayer periodic thickness between design and fabrication

Wavelength /nm	Periodic thickness /nm	Measured D
2.40	1.70	1.69
3.00	2.12	2.13
4.30	3.07	3.08

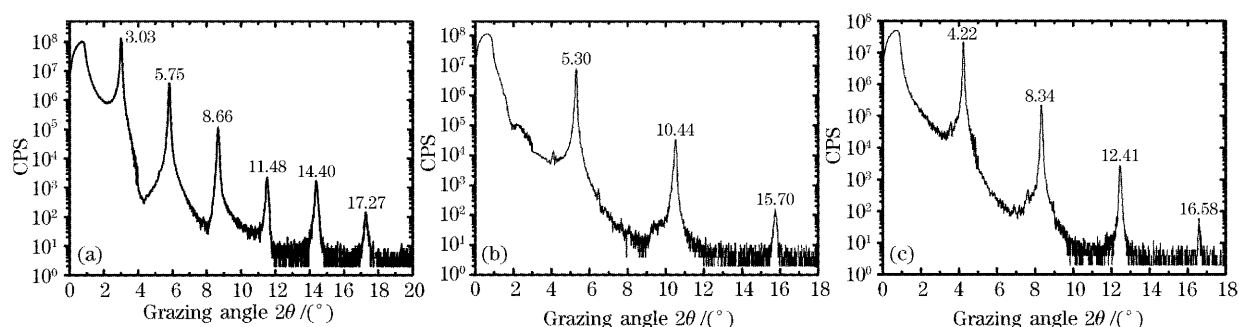


图 4 4.30 nm (a), 2.40 nm (b), 3.00 nm (c) W/B₄C 多层膜掠入射 X 射线衍射曲线

Fig. 44 X-ray diffracted curve of W/B₄C multilayers measured in grazing incident angle at 4.30 nm (a), 2.40 nm (b), (c) 3.00 nm wavelength

4 结 论

制作了界面粗糙度小、相互扩散小的 W/B₄C 多层膜。X 射线掠入射衍射测量确定了其周期,与设计值有很小的偏差。

在水窗波段反射式偏振光学元件的设计过程中,了解到 Ni/V、Ni/Ti 和 Cr/Sc 材料组合比 W 和 B₄C 材料组合有更好的偏振性能。为了进一步提高水窗波段偏振光学元件的性能,需要开展如何制作高性能 Ni/V、Ni/Ti 和 Cr/Sc 多层膜的研究。

参 考 文 献

- Muamer Zukic, Jongmin Kim, Michele Wilson *et al.*. Non-grazing high reflective narrowband multilayer X-ray coatings[C]. *Proc SPIE*, 1993, **2011**: 322~333
- Tadayuki Ohchi, Toshiyuki Fujimoto, Isao Kojima. Cr/Sc multilayer mirror for soft X-ray[J]. *Analytical Sciences*, 2001, **17**(Suppl.): 159~162
- E. Spiller. *Soft X-Ray Optics* [M]. Bellingham: SPIE Optical Engineering Press, 1994
- J. B. Kortright, M. Rice, S. K. Kim *et al.*. Optics for element resolved soft X-ray magneto-optical studies[J]. *J Magnetism and Magnetic Materials*, 1999, **191**: 78~89
- D. G. Stearns. The scattering of X-rays from nonideal multilayer structures[J]. *J. Appl. Phys.*, 1989, **65**(12): 491~506
- Feng Shimeng, Zhao Haiying, Huang Meizhen *et al.*. A method of calculating interfacial roughness of multilayers for soft X-ray[J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(8): 980~982 (in Chinese)
- 冯仕猛,赵海鹰,黄梅珍等.一种软 X 射线多层膜界面粗糙度的计算方法[J]. *光学学报*, 2003, **25**(8): 980~982
- Wang Hongchang, Wang Zhanshan, Li Fusheng *et al.*. Design of reflection multilayered polarizers and analyzers in the soft X-ray range[J]. *Optical Technique*, 2003, **29**(3): 277~280 (in Chinese)
- 王洪昌,王占山,李佛生等.软 X 射线多层膜反射式偏振光学元件设计[J]. *光学技术*, 2003, **29**(3): 277~280
- Wang Hongchang, Wang Zhanshan, Wu Wenjuan *et al.*. Design and fabrication of polarizing optical element in the soft X-ray range[J]. *Optical Instruments*, 2004, **26**(2): 143~146 (in Chinese)
- 王洪昌,王占山,吴文娟等.软 X 射线偏振光学元件的设计与制备[J]. *光学仪器*, 2004, **26**(2): 143~146
- H. Grimmer, P. Boni, U. Breitmeier. X-ray reflectivity of multilayer mirrors for the water window[J]. *Thin Solid Films*, 1998, **319**: 73~77
- David L. Windt, Eaic M. Gullikson, Christopher C. Walton. Normal-incidence reflectance of optimized W/B₄C X-ray multilayers in the range 1.4 nm < λ < 2.4 nm[J]. *Opt. Lett.*, 2002, **27**(24): 2212~2214
- Wang Hongchang, Wang Zhanshan, Qin Shuji *et al.*. Analysis of the reflectivity of Mo/Si multilayer film for soft X-ray[J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(11): 1362~1365 (in Chinese)
- 王洪昌,王占山,秦树基等.软 X 射线 Mo/Si 多层膜反射率拟合分析[J]. *光学学报*, 2003, **23**(11): 1362~1365
- H. J. Voorma, E. Louis, N. B. Koster *et al.*. Characterization of multilayers by Fourier analysis of X-ray reflectivity[J]. *J. Appl. Phys.*, 1997, **81**(9): 6112~6119
- Feng Shimeng, Zhao Haiying, Dou Xiaoming *et al.*. Precise calculation of the periodic-thickness for multiplayer[J]. *Chin J. Lasers*, 2002, **A29**(11): 1027~1030 (in Chinese)
- 冯仕猛,赵海鹰,窦晓鸣等.多层膜周期厚度的精确计算[J]. *中国激光*, 2002, **A29**(11): 1027~1030