

文章编号: 0253-2239(2007)01-0187-4

4.48 nm 正入射软 X 射线激光用 Cr/C 多层膜 高反射镜的研制*

王 蓓 王占山 徐 垚 张 众 朱京涛 王洪昌 王凤丽 陈玲燕

(同济大学物理系精密光学工程技术研究所, 上海 200092)

摘要: 针对 4.48 nm 类镍钽软 X 射线激光及其应用实验, 设计制备了工作于这一波长的近正入射多层膜高反射镜。选择 Cr/C 为制备 4.48 nm 高反射多层膜的材料对, 通过优化设计, 确定了多层膜的周期、周期数以及两种材料的厚度比。模拟了多层膜非理想界面对高反射多层膜性能的影响。采用直流磁控溅射方法在超光滑硅基片上实现了 200 周期 Cr/C 多层膜高反射镜的制备。利用 X 射线衍射仪测量了多层膜结构, 在德国 Bessy II 同步辐射上测量了在工作波长处多层膜反射率, 测量的峰值反射率达 7.5%。对衍射仪测量的掠入射反射曲线和同步辐射测量的反射率曲线分别进行拟合, 得到的粗糙度和厚度比的结果相近。测试结果表明, 所制备的 Cr/C 多层膜样品结构良好, 在指定工作波长处有较高的反射峰, 达到了设计要求。

关键词: X 射线光学; 软 X 射线; 多层膜; 磁控溅射; 反射率

中图分类号: O434.1 文献标识码: A

Fabrication of Normal Incident Cr/C High-Reflecting Mirror for 4.48 nm Soft X-Ray Laser

Wang Bei Wang Zhanshan Xu Yao Zhang Zhong Zhu Jingtao

Wang Hongchang Wang Fengli Chen Lingyan

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

Abstract: Near normal incident high-reflecting multilayered mirrors at 4.48 nm wavelength are designed and fabricated for Ni-like Ta soft X-ray laser and its applied experiments. Materials Cr and C are chosen to make up the high-reflecting mirror. The periodic thickness, thickness ratio of two materials and periodic number are calculated and optimized. The influence of the imperfect interface on the reflectivity of the multilayer is simulated. The Cr/C multilayer of 200 periods is deposited on the super smooth silicon substrate by the direct current magnetron sputtering technique. The periodic thickness and structure of the multilayer are measured by X-ray diffractometer (XRD). The reflectivity of the multilayer is measured at Bessy II synchrotron radiation (SR), and the peak reflectivity is measured to be 7.5%. The grazing incident reflection index curve measured by XRD and reflection index curve by SR are fitted. The fitted thickness ratio and interface roughness of the two curves are close to each other. The measurements show the Cr/C multilayer has a good structure and a reflective peak on the demanded wavelength, which meet the design requirement.

Key words: X-ray optics; soft X-ray; multilayer; magnetron sputtering; reflectivity

1 引 言

多层膜技术正在向更短波长的方向发展。波长为 4.48 nm 的类镍钽软 X 射线激光位于水窗波段

边缘, 是生物样品全息照相^[1]和生物细胞显微成像^[2], 也是等离子体诊断的理想光源^[3,4]。要实现 4.48 nm 类镍钽软 X 射线激光的应用, 需要开展相

* 国家自然科学基金(60378021, 10435050)、国家 863 计划(2005AA843031)、教育部新世纪优秀人才支持计划(NCET-04-0376)和同济大学理科发展基金资助项目。

作者简介: 王 蓓(1982-), 女, 上海人, 硕士研究生, 主要从事软 X 射线薄膜光学研究。E-mail: Beiwang555@hotmail.com

导师简介: 王占山(1963-), 男, 吉林东辽人, 教授, 博士生导师, 主要从事极紫外与软 X 射线光学及技术研究。

E-mail: Wangzs@mail.tongji.edu.cn

收稿日期: 2006-05-16; 收到修改稿日期: 2006-09-13

应的正入射多层膜高反射镜研制,国内已在 4.48 nm 类镍钽软 X 射线激光研究上取得了一定的进展^[5]。为了进一步研究,这一激光的出光实验和应用实验,需要有 4.48 nm 波长的高反射多层膜。在此背景下,本文研究了入射角 5°、工作波长 4.48 nm 的高反射镜的设计、制作和检测。

由于所有单层膜材料在 4.48 nm 波长处的正入射反射率都很低,在 1×10^{-4} 量级,要得到有效的反射,只能采用多层膜。在 4.48 nm 波长处,有许多膜对材料,如 Fe/C、Co/C、Ni/C 等,可以实现高反射。由于该波长处高反射多层膜中每层膜的厚度只略大于 1 nm,即使很小的表(界)面粗糙度都会严重影响高反射多层膜的反射性能,所以在确定膜对材料时需要充分考虑这一因素。根据文献资料和经验,决定首先采用 Cr/C 作为制备 4.48 nm 波长高反射多层膜的材料对。由于 4.48 nm 多层膜周期小,入射软 X 射线穿透深度大,达到反射率饱和的多层膜周期数多,因此,要求在制备多层膜过程中膜厚的控制精度高。

国际上只有美国、日本、德国、俄罗斯等国的科学家较为成功地制备了 4.48 nm 波长附近的 Cr/C 多层膜高反射镜。1992 年 Niibe 等人制备了周期 2.5 nm、周期数 $N=110$ 、入射角 12°、工作波长 4.93 nm 的 Cr/C 多层膜,其反射率为 7.3%^[6]。1994 年 Platonov 等^[7]制备了周期 2.26 nm、工作波长 4.52 nm 的 Cr/C 多层膜,其反射率为 6%。2000 年 Andreev 等^[8]研制了周期 2.25 nm、入射角 5°、工作波长 4.47 nm 的 Cr/C 多层膜,其反射率为 12.2%。2002 年,Platonov 等^[9]研制了周期 2.38 nm、入射角 21.3°、工作波长 4.47 nm 的 Cr/C 多层膜,其反射率为 14.2%。可见,随着工艺条件的优化,研制 Cr/C 多层膜反射率在不断提高。但是,如何在把多层膜周期做小的同时,保证多层膜有较高的反射率仍是困扰各国研究机构的一个难题。目前,国内很少研究机构发表 4.48 nm 近正入射 Cr/C 高反射镜的研究成果。

本文首先对 Cr/C 高反射多层膜进行了结构优化设计,模拟分析了非理想界面对多层膜反射率的影响。采用直流磁控溅射法制备了工作波长 4.48 nm 近正入射 Cr/C 多层膜高反射镜。通过 X 射线掠入射衍射测试分析了样品的膜层结构及厚度,并在德国 Bessy II 同步辐射装置上测量了样品反射率,对测试结果进行了拟合比较。

2 4.48 nm 高反射多层膜结构设计与性能分析

2.1 多层膜材料对的选择

周期多层膜是在超光滑基片上周期性交替镀制两种不同材料的薄膜作为散射层与间隔层,利用入射软 X 射线在膜层内各个界面的相干反射迭加,实现对入射软 X 射线的高反射。设计多层膜时,首先是选择组成多层膜的两种材料,材料的光学常数 \tilde{n} ($\tilde{n}=1-\delta-i\beta$, δ 是材料的折射率小量, β 是材料的消光系数)来源于美国伯克利国家实验室 X 射线光学中心网站^[10]。高反射多层膜选材标准为^[11]:1)组成多层膜两种材料的菲涅耳反射系数有尽可能小的虚部以保证材料吸收小;2)两种材料的菲涅耳反射系数在复平面内的间距尽可能大以保证两种材料的折射率差尽可能大;同时,也要保证所选材料无毒性、化学性质稳定、能够形成光滑的界面。由材料的光学常数,可以计算出相应的反射系数,再将这些系数表示在复平面内。根据以上选材原则,可选择材料 C 作为间隔层材料,材料 Ni、Cr、Co、Fe 作为散射层材料。根据以往制备小周期多层膜的经验,以 Ni、Co、Fe 等材料作为散射层的多层膜膜层界面粗糙度难以控制,所以最终选择 Cr 作为散射层材料, C 作为间隔层材料制备工作波长 4.48 nm 近正入射周期多层膜高反射镜。

2.2 多层膜结构优化设计与非理想界面模拟分析

为了便于反射率测量,选定入射角为 5°、工作波长 4.48 nm。通过优化设计^[12],得到 Cr/C 多层膜的周期为 2.26 nm。考虑优化结果及制备超薄膜工艺条件的限制,确定 Cr 在周期中所占厚度比例为 0.48,多层膜周期数为 200。

为了模拟膜层界面和上表面粗糙度对多层膜性能的影响,采用了 Stearn 模型^[13]。图 1 表示出了 Cr/C 周期多层膜 ($N=200$, $d_c=1.18$ nm, $d_{cr}=1.08$ nm) 的膜层界面和上表面粗糙度均方根值分别为 0、0.2 nm、0.4 nm、0.6 nm 的模拟计算反射率曲线。由图 1 所示,多层膜膜层间界面粗糙度的增加会引起多层膜反射峰位置偏移、反射率的急剧下降。所以在制备 4.48 nm Cr/C 高反射多层膜过程中需要解决的主要问题是优化工艺条件,减少多层膜的岛状生长和膜层间界面粗糙度,使多层膜界面平滑。还有就是由于膜层数多,需要提高膜层厚度的控制精度,保证在镀制几百层膜过程中镀膜速率不发生变化。

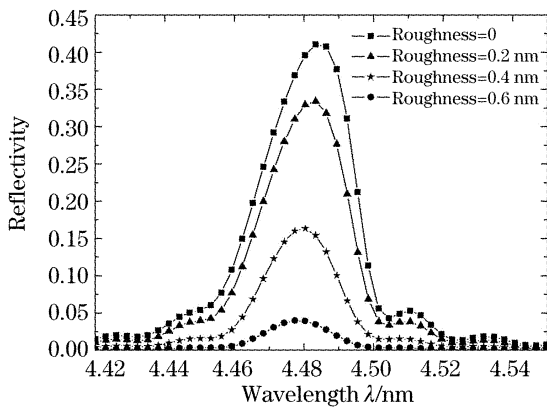


图 1 不同粗糙度下 Cr/C 多层膜计算反射率曲线

Fig. 1 Calculated reflectivity curves of Cr/C multilayers with different interface roughness

3 样品制备

使用 JGP-560 超高真空磁控溅射镀膜机, 采用同轴圆柱型、直流磁控溅射法制备 4.48 nm 软 X 射线 Cr/C 高反射多层膜。磁控溅射法有易于控制、成膜致密、膜层杂质含量少等优点, 适合制作软 X 射线多层膜^[14]。根据预先的速率标定实验确定 Cr 和 C 镀膜速率是 0.12 nm/s 和 0.08 nm/s, 通过计算机控制样品在不同靶位上的停留时间完成多层膜镀制。镀膜过程中, Cr 靶的溅射功率是 25 W, C 靶的溅射功率是 150 W, 靶面和样品间距离分别是 8 cm 和 6 cm。样品采用面积 20 mm × 30 mm 经超光滑表面加工的硅基片, 基片切割方向是硅的 110 晶面方向。真空室本底真空度高于 1.0×10^{-4} Pa, 工作气体是纯度高于 99.99% Ar 气, 工作气压为 0.1 Pa。镀膜前, 需进行 20 min 左右的预溅射, 以去除靶表面的污染物, 同时使系统达到热平衡。

4 多层膜样品测试与分析

4.1 X 射线掠入射反射测试与分析

使用英国 Bede 公司生产的 D1 型 X 射线衍射仪(XRD), 确定实验制备出多层膜样品的结构, 其光源为 Cu 的 $K\alpha$ 谱线($\lambda = 0.154$ nm), 对制备的 Cr/C 多层膜样品进行了 X 射线掠入射反射测量。对测试结果进行了拟合分析, 得到了多层膜的周期和相应结构参量。图 2 是多层膜样品的掠入射反射测试曲线, 图中实线是多层膜样品的测试曲线, 点线是拟合曲线。由测试曲线中反射峰的位置, 根据折射修正的布拉格公式^[15] 计算得出多层膜的周期 $D = 2.26$ nm, 与设计值 2.26 nm 符合的很好。由曲线的整体拟合得到 C 层的厚度是 1.12 nm, Cr 层的

厚度是 1.14 nm, Cr 在周期中所占厚度比例为 0.50, 与设计值 0.48 基本符合。拟合得到多层膜内 C 上镀 Cr 的界面粗糙度是 0.44 nm, Cr 上镀 C 的界面粗糙度是 0.22 nm。衍射测试曲线的反射峰形尖锐清晰, 说明多层膜膜层质量好, 周期结构清晰, Cr、C 层都是非晶态生长, 制备工艺稳定且溅射设备在多周期长时间的制备过程中保持了良好的工作状态。

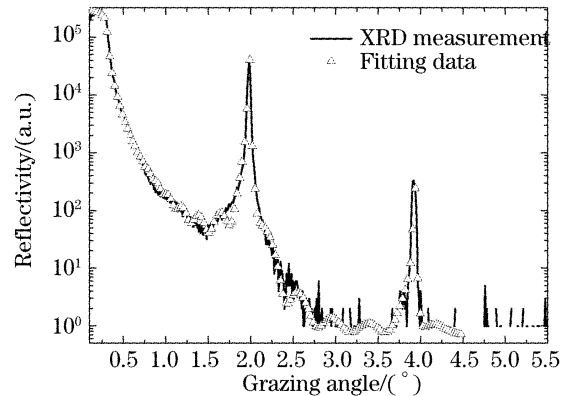


图 2 Cr/C 样品小角衍射曲线

Fig. 2 Small-angle diffraction curve for Cr/C sample

4.2 多层膜工作波长近正入射反射率测试与分析

在德国 BessyII 同步辐射装置上, 完成了 Cr/C 多层膜样品反射率测量, 测量结果如图 3 所示。由图可知, 多层膜样品在波长 4.49 nm 处的测量峰值反射率为 7.5%。用 IMD 软件^[16] 对上述测试曲线进行了拟合。得到的 C 层、Cr 层厚度分别是 1.06 nm、1.21 nm, Cr 在周期中所占厚度比例为 0.53, 与设计值 0.48 基本符合。多层膜内 C 上镀 Cr 与 Cr 上镀 C 界面粗糙度的拟合值分别是 0.54 nm 和 0.46 nm。

表 1 列出了对 Cr/C 多层膜样品掠入射反射测

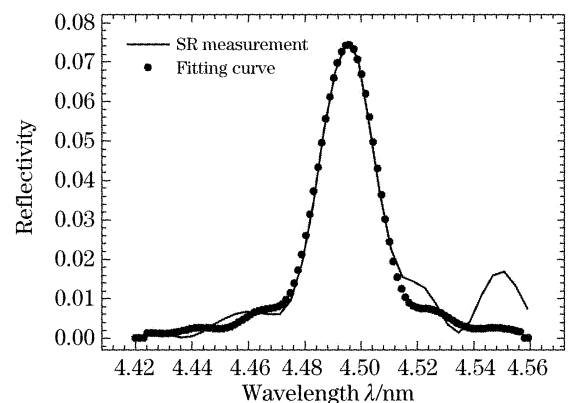


图 3 同步辐射光源测量 Cr/C 样品反射率随入射光波长变化曲线。入射角为 5°

Fig. 3 Soft X-ray reflectivity versus incident light wavelength for a Cr/C sample measured by synchrotron radiation at 5° incident angle

试曲线和同步辐射工作波长处反射率测试曲线的拟合结果。其中, D_{ML} 表示多层膜周期, d_C 多层膜 C 层厚度, d_{Cr} 多层膜 Cr 层厚度, $\sigma_{C-on-Cr}$ 表示 Cr 层上镀 C 的粗糙度, $\sigma_{Cr-on-C}$ 表示 C 层上镀 Cr 的粗糙度。两种拟合的多层膜周期与设计值基本一致, 粗糙度变化趋势基本相同, Cr 上镀 C 拟合界面粗糙度小于

C 上镀 Cr 拟合界面粗糙度。制备的 Cr/C 样品周期与设计值基本一致, 两种拟合的 Cr 在周期中所占厚度比也基本一致。在上述拟合中, 粗糙度均方根值的差别较大, 这主要是由于 X 射线掠入射反射测量与工作波长近正入射反射测量拟合粗糙度的空间频率范围不同造成的。

表 1 多层膜样品掠入射反射测试曲线与近正入射反射率测量曲线的拟合结果

Table 1 Fitting results of Cr/C sample small-angle diffraction index curve and near normal incident reflectivity curve

	D_{ML}/nm	d_C/nm	d_{Cr}/nm	d_{Cr}/D_{ML}	$\sigma_{C-on-Cr}/nm$	$\sigma_{Cr-on-C}/nm$
XRD fitting data	2.26	1.12	1.14	0.50	0.22	0.44
SR fitting data	2.27	1.06	1.21	0.53	0.46	0.54

5 结 论

在 4.48 nm 软 X 射线多层膜高反射镜研制过程中, 优化设计了多层膜, 分析了非理想界面对多层膜性能影响。经过多次工艺试验, 确定了合适的工艺参量, 制备了周期准确、膜层质量好的 Cr/C 周期多层膜, 在德国 Bessy II 同步辐射装置上测量多层膜样品在工作波长处近正入射时的反射率达 7.5%。

虽然上述条件制备的工作波长 4.48 nm 多层膜高反射镜有一定的反射率, 但与国际最好水平还有一定差距。主要原因是制备的多层膜膜层很薄, 多层膜性能受镀膜过程中产生的界面粗糙度影响很大造成的。需要进一步优化工艺参量、减小界面粗糙、提高膜层质量, 从而进一步提高 4.48 nm 多层膜的反射率。

参 考 文 献

- Igor A. Artyukov, Yegor Bugayev, Oleksandr Yu *et al.*. Carbon window soft X-ray imaging using multilayer optics[J]. *Proc. SPIE*, 2005, **5919**: 5919E-1~10
- B. J. MacGowan, S. Maxon, L. B. Da Silva *et al.*. Demonstration of X-ray amplifiers near the carbon K edge[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1990, **65**(4): 420~423
- J. Y. Zhong, C. Wang, J. Zhang *et al.*. Driver-pulse configuration of the nickel-like Ta X-ray laser at 4.48 nm[J]. *Phys. Rev. A*, 2004, **70**: 053803:1~6
- S. Maxon, K. G. Estabrook, M. K. Prasad *et al.*. High gain X-ray lasers at the water window[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**(15): 2285~2288
- Wang Chen, Wang Wei, Wu Jiang *et al.*. Experiment studies of Ni-like Ta X-ray laser[J]. *Acta Physica Sinica*, 2004, **53**(11): 3752~3755 (in Chinese)

- 王 琛, 王 伟, 吴 江 等. 类镍钽 x 射线激光实验研究[J]. *物理学报*, 2004, **53**(11): 3752~3755
- Masahito Niibe, Masami Tsukamoto, Takashi Iizuka *et al.*. Fabrication and evaluation of Cr/C multilayer mirrors for soft X-rays[J]. *Proc. SPIE*, 1992, **1720**: 208~210
- Yu Ya Platonov, S. V. Bobashev, N. N. Salashchenko *et al.*. Multilayer mirrors and filters for soft X-ray spectroscopy of a high-temperature plasma[C]. *Proc. SPIE*, 1994, **2011**: 476~485
- S. S. Andreev, H.-Ch. Mertins, Yu Ya Platonov *et al.*. Multilayer dispersion optics for X-ray radiation[J]. *Nucl. Instru. and Methods in Physics Research A*, 2000, **448**: 133~141
- Yurig Y. Platonov, Luis Gomez, David Droadwuy, Status of small d -spacing X-ray multilayer development at Osmic[C]. *Proc. SPIE*, 2002, **4782**: 152~159
- Henke B L, Gullikson E M, Davis J C. X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $E=50\sim 30000$ eV, $Z=1\sim 92$ [J]. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 1993, **54**: 181~342. <http://www.cxro.lbl.gov>
- Masaki Yamamoto, Takeshi Namioka. Layer-by-layer design method for soft-X-ray multilayers [J]. *Appl. Opt.*, 1992, **31**(10): 1622~1627
- 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
- D. G. Stearns. The scattering of X-rays from nonideal multiplayer structures[J]. *J. Appl. Phys.*, 1989, **65**(12): 491~506
- Wang Fengli, Wang Zhanshan, Zhang Zhong *et al.*. W/B4C, W/C, W/Si multilayers [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2005, **13**(1): 28~33 (in Chinese)
- 王凤丽, 王占山, 张 众 等. W/B4C, W/C, W/Si 多层膜的研究[J]. *光学精密工程*, 2005, **13**(1): 28~33
- Barbee T. W.. Multilayers for X-ray optics[J]. *Proc. SPIE*, 1985, **563**: 2~28
- Windt D L. IMD: Software for modeling the optical properties of multilayer films[J]. *Comput. Phys.*, 1998, **12**: 360~370