

大尺寸高性能 X 射线双通道多层膜反射镜研制

张云学¹, 黄秋实^{1*}, 朱一帆¹, 张哲¹, 齐润泽¹, 黄瀚丹¹, 王玉柱², 何玉梅², 罗红心², 祝万钱², 张众¹, 王占山^{1**}¹同济大学物理科学与工程学院先进微结构材料教育部重点实验室, 精密光学工程技术研究所, 上海 200092;²中国科学院上海高等研究院, 上海 201204

摘要 为满足同步辐射装置中 X 射线单色器的需求, 在直线式磁控溅射设备上制备了 W/Si 和 Ru/C 双通道多层膜反射镜。制备的 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜的周期厚度均为 3 nm, 平均界面宽度分别为 0.30 nm 和 0.32 nm。在 320 mm 长度范围和 20 mm 宽度范围内, W/Si 多层膜膜厚误差的均方根值分别为 0.30% 和 0.19%, Ru/C 多层膜膜厚误差的均方根值分别为 0.39% 和 0.20%。对制备的样品进行了表面形貌测试和非镜面散射测试, 对比了 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜的表面和界面粗糙度大小。硬 X 射线反射率测试结果表明, W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜在 8.04 keV 能量点处的一级布拉格峰测试反射率分别为 63% 和 62%, 角分辨率均为 2.6%。基于以上研究, 在尺寸为 350 mm × 60 mm 的高精度 Si 平面镜表面镀制了 W/Si 和 Ru/C 双通道多层膜, 并且其被成功应用于上海同步辐射光源线站中。

关键词 X 射线光学; 双通道多层膜; 磁控溅射; 均匀性; 反射率

中图分类号 O434.1

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS221155

1 引言

多层膜反射镜被广泛用作同步辐射装置中的 X 射线单色器。与晶体单色器相比, 多层膜周期厚度可变, 可以用于不同的能量。同时, 多层膜能量带宽比晶体大 1~2 个数量级^[1-2], 能够提供更高的光子通量。因此, 多层膜单色器被广泛应用于 X 射线成像^[3-4]、X 射线小角散射^[5]和蛋白质晶体学^[6]的研究中。由于同步辐射线站中反射原件工作在掠入射条件下, 故为了能够完全接收光斑, 需要大尺寸的反射镜^[7-8]。另外, 为了使线站能够覆盖更宽的能量范围, 会在一块基底上镀制两种不同结构材料对组成的双通道多层膜, 且两种结构工作在不同能段。在双通道多层膜反射镜的制备中, 基底需要高精度的面形, 多层膜的厚度需要非常均匀, 以减小对入射 X 射线波前的影响。同时, 双通道之间不能互相影响。

双通道多层膜反射镜在世界主要光源装置中有着广泛的应用。德国 ANKA 光源 TopoTomo 线站中采用了 W/Si 和 Pd/B₄C 双通道多层膜反射镜^[9-10], 由于 W 在 10.2 keV 能量处存在吸收边, 导致在 10~20 keV 能段中反射率下降, 因此需搭配 Pd/B₄C 多层膜来弥补这一能段的反射率。其他材料如 Ni 和 Ru 两种材料分别在 8.3 keV 和 22.1 keV 能量处存在吸收边, 故也需要搭配其他材料的多层膜。瑞士光源的 TOMCAT 线

站采用了 Ru/C 和 W/Si 双通道多层膜反射镜^[11], 能量范围覆盖 6~45 keV, Ru/C 和 W/Si 多层膜分别工作在 6~22 keV 和 22~45 keV 能段内。英国 Diamond 光源的 B16 线站在升级后采用了 Ni/B₄C 和 Ru/B₄C 双多层膜反射镜^[12], 两种多层膜反射镜的尺寸均为 300 mm × 75 mm, Ni/B₄C 和 Ru/B₄C 多层膜的周期厚度分别为 4.5 nm 和 2.8 nm, 分别工作在 2~8 keV 和 8~20 keV 能段内。随着需求的增加, 一些光源开始使用三通道的多层膜反射镜。欧洲同步辐射光源 (ESRF) 的 ID19 线站中使用了由一条 W/B₄C 和两条 Ru/B₄C 组成的三通道多层膜反射镜^[13], 线站的中心能量范围为 12~60 keV。W/B₄C 多层膜的周期厚度为 2.46 nm, 周期数为 150, 两种 Ru/B₄C 多层膜的周期厚度分别为 5.860 nm 和 3.915 nm, 周期数分别为 40 和 65, 使用两种不同周期的 Ru/B₄C 多层膜可以在不同的掠入射角下获得不同的收集角。

我国对同步辐射光源所需的大尺寸多层膜单色器元件的研究相对较少, 之前主要针对单通道的多层膜单色器开展研究。同济大学精密光学工程技术研究所 X 射线单色器方面有过许多研究, 制备的 W/Si 多层膜反射镜长度可达到 0.5 m^[14], 周期厚度为 3 nm, 平均界面宽度为 0.32 nm, 在 0.5 m 长范围内均匀性可达到 1.0% (峰谷值, PV), 在 8 keV 和 18 keV 能量下的反射率分别为 62.5% 和 62.7%。在 W/Si^[15] 和 Ru/C^[16-17]

收稿日期: 2022-05-18; 修回日期: 2022-07-25; 录用日期: 2022-08-09; 网络首发日期: 2022-08-19

基金项目: 国家自然科学基金 (12075170, 12003016, 11875202)

通信作者: *huangqs@tongji.edu.cn; **wangzs@tongji.edu.cn

超薄多层膜的结构、生长特性和性能等方面同济大学精密光学工程技术研究所也有一些研究,制备的 Ru/C 多层膜的周期为 3 nm, 8.04 keV 能量下的反射率可达到 65%, 能在 500 °C 温度以上保持膜层结构稳定。此外,该机构研究了 Pd/B₄C 多层膜在 Kr 和 Ar 两种溅射气体下的性能,两种气体下制备的 2.5 nm 周期的 Pd/B₄C 多层膜在 10 keV 能量下的反射率分别为 68% 和 71%^[18]。随着同步辐射装置的不断升级和新建,如上海同步辐射光源线站工程和北京高能同步辐射光源,单通道的多层膜反射镜已经不能满足一些线站的要求,而需要双通道多层膜反射镜。因此,在这些需求的推动下,本文开展了大尺寸双通道多层膜反射镜的研究。

2 实验

本文的多层膜反射镜是针对上海同步辐射光源的膜蛋白线站的需求研制的,线站覆盖的能量范围为 10~25 keV。针对能量要求,多层膜反射镜采用了

W/Si 和 Ru/C 组合, Ru/C 和 W/Si 多层膜分别工作在 10~18 keV 和 18~25 keV 能段中。多层膜是在直线式磁控溅射设备上制备的^[14], 本底真空小于 9.5×10^{-5} Pa, 工作气体采用高纯度 Ar 气(体积分数为 99.999%)。实验可分为两部分。第一部分是在 Si 片上进行的标定实验,目的是标定周期厚度和优化厚度均匀性。多层膜沉积在尺寸为 30 mm×20 mm 的 Si 片上,样品架上半部分等间距贴放了 7 块 Si 片,分别为 S₁~S₇,如图 1 所示。样品架下半部分用挡板遮住,避免 W/Si 多层膜镀制时溅射粒子打到下面的区域,该区域将用于 Ru/C 多层膜的镀制。由于基底沿着长度方向进行线性运动,因此通常只要保证速率的稳定性就能保证均匀性。在靶材前安装月牙形的掩模板能够限制宽度方向各个位置进入溅射区域的大小,从而控制宽度方向的均匀性^[14]。第二部分是基于标定实验的研究。将尺寸为 350 mm×60 mm 的高精度 Si 基底表面分成两块区域以镀制 W/Si 和 Ru/C 双通道多层膜,两条多层膜的有效区域尺寸均为 320 mm×20 mm。

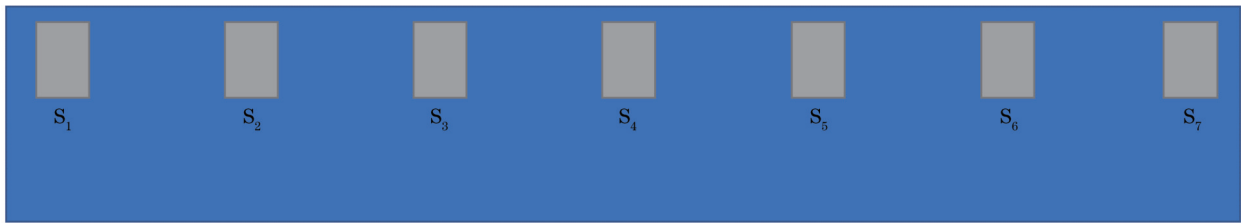


图 1 大尺寸镀膜中标定样品的摆放位置

Fig. 1 Placement of calibration samples in large-size coating

在多层膜制备完成后,采用 BEDE 公司的 D1 型高分辨率 X 射线衍射仪在 8.04 keV 能量下进行掠入射 X 射线反射(GIXR)测试,测试步长为 0.01° ,测试角度为 $0^\circ \sim 10^\circ$ 。利用 IMD 软件^[19]拟合了测试曲线,得到了多层膜的厚度、密度和界面宽度等参数。同时,在衍射仪上进行了 X 射线非镜面散射测试,测试采用摇摆曲线扫描方式,即固定探测器位置不变,通过样品台的转动来获取一级布拉格峰附近的散射信号,测试步长为 0.01° ,测试角度为 $0^\circ \sim 4^\circ$ 。采用 Bruker 公司的 Dimension Icon 原子力显微镜(AFM)进行了表面形貌测试,测试范围为 $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$,像素点为 512×512 ,每个样品取三个位置进行测试。此外,进行了功率谱密度(PSD)计算以表征多层膜的表面起伏在不同空间频率范围内的分布情况。

3 分析与讨论

3.1 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜均匀性

3.1.1 W/Si 多层膜均匀性

在 Si 片上沉积了 70 个周期的 W/Si 多层膜,长度方向和宽度方向各点的 GIXR 测试曲线如图 2(a)、(b)所示,长度方向 7 个测试点为每片样品的中心点,

宽度方向 3 个测试点为 S₄ 样品的中心点和距中心点 8 mm 的上下两点。由于实验室衍射仪光斑在宽度方向上的尺寸为 1~2 mm,故宽度方向三个位置已能覆盖 20 mm 的区域。各点测试曲线峰形结构良好,并且重合性较好,表明各个位置的成膜质量均较好。曲线的拟合采用双层膜系结构,考虑到高级次的峰形存在展宽的情况,故在每层中加入了厚度漂移。厚度漂移的主要来源是镀膜过程中靶材刻蚀环状态发生的变化和镀膜设备的不稳定性所造成的厚度误差,且误差会随着层数的增加而不断积累,最终导致峰形出现展宽^[20]。拟合结果如图 3 所示,拟合曲线与测试曲线重合得较好,表明膜系结构是准确的。拟合出的界面宽度平均值为 0.30 nm,与文献[21]中的结果相似。周期厚度漂移量为 50 pm, W 的拟合密度约为块体密度 (19.25 g/cm^3) 的 88%, Si 的拟合密度接近块体密度 (2.33 g/cm^3)。通过拟合得出了各个位置的厚度和归一化均匀性,测试拟合引起的厚度误差的绝对值均小于 0.1%,在每个值中都添加了一个误差条,图 4(a)、(b)分别为长度方向和宽度方向的结果。320 mm 长度范围内的厚度变化范围为 2.894~2.918 nm,最厚点和最薄点均匀性相差 0.83%(PV), 16 mm 宽度范围

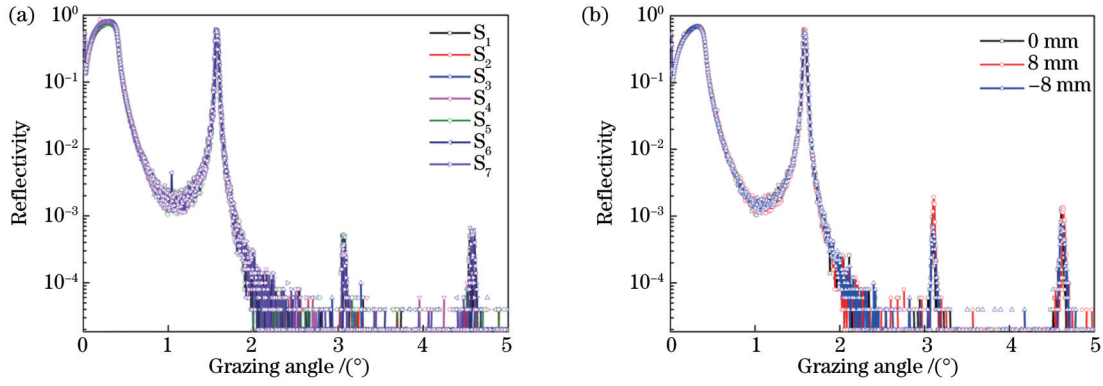


图 2 W/Si 多层膜 GIXR 测试曲线。(a) 长度方向; (b) 宽度方向
Fig. 2 GIXR measured curves of W/Si multilayers. (a) Length direction; (b) width direction

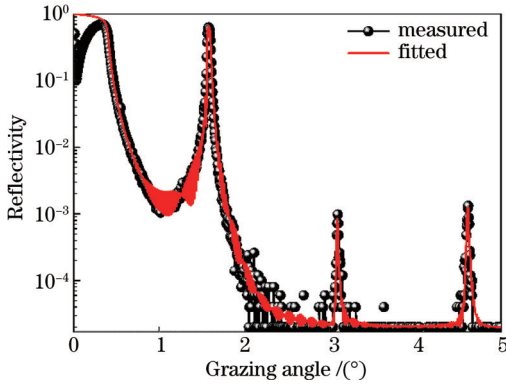


图 3 W/Si 多层膜 GIXR 测试和拟合结果
Fig. 3 GIXR measured and fitted results of W/Si multilayers

内的均匀性为 0.45% (PV)。根据拟合结果计算了膜厚误差均方根 (RMS) 值, 其表达式为

$$\sigma = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^N (d_i - \bar{d})^2}}{\bar{d}}, \quad (1)$$

式中: d_i 为各点厚度; \bar{d} 为平均厚度; N 为测试点数。长度方向和宽度方向膜厚误差的均方根值分别为 0.30% 和 0.19%, 与国际水平相当^[7]。

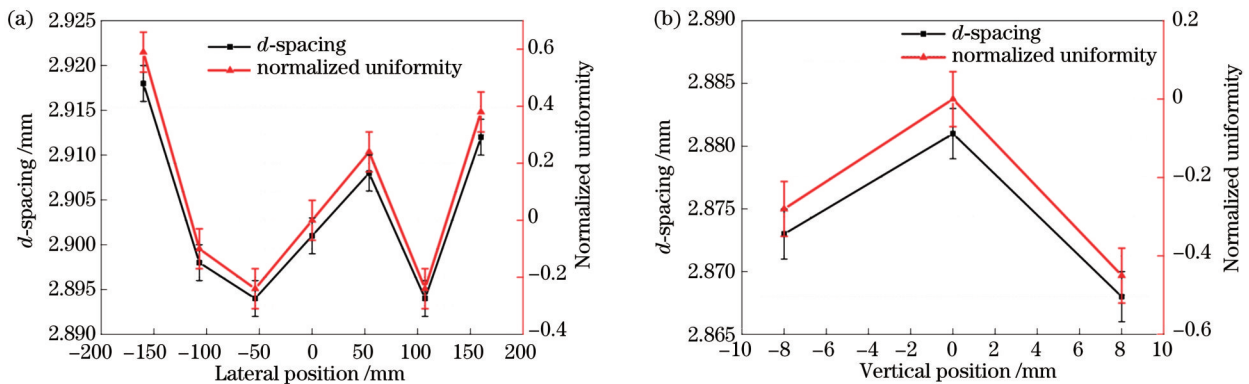


图 4 W/Si 多层膜均匀性。(a) 长度方向; (b) 宽度方向
Fig. 4 Uniformity of W/Si multilayers. (a) Length direction; (b) width direction

3.2 表面形貌测试

W/Si 和 Ru/C 多层膜样品的表面形貌分别如图 8

3.1.2 Ru/C 多层膜均匀性

在 Si 片上沉积了 75 个周期的 Ru/C 多层膜, 长度方向和宽度方向各点的 GIXR 测试曲线如图 5(a)、(b) 所示。可以发现, 各条曲线峰形结构良好, 并且每条曲线重合性较好, 表明各个位置的成膜质量均较好。Ru/C 多层膜的拟合方法与 W/Si 多层膜一样, 如图 6 所示, 拟合曲线与测试曲线重合良好。拟合出的界面宽度平均值为 0.32 nm, 与文献[22]中的结果相似。周期厚度漂移量为 60 pm, Ru 的拟合密度约为其块体密度 (12.3 g/cm³) 的 90%, C 的拟合密度接近其块体密度 (2.2 g/cm³)。拟合出的长度方向和宽度方向各个位置的厚度, 以及归一化均匀性曲线如图 7(a)、(b) 所示。由于不同材料溅射粒子空间分布不同, 基底运动速率也不同, 故在实验中进行不同的修正, 最终会导致 Ru/C 多层膜和 W/Si 多层膜的均匀性存在不同趋势。在 320 mm 长度范围内, 厚度变化范围为 3.060~3.095 nm, 最厚和最薄点均匀性相差 1.15% (PV), 16 mm 宽度范围内的均匀性为 0.50% (PV)。长度方向和宽度方向膜厚误差的均方根值分别为 0.39% 和 0.20%。

(a)、(b) 的 AFM 图片所示。总体来看, 两幅图表面形貌都比较平滑, 说明表面粗糙度较小。对比来看,

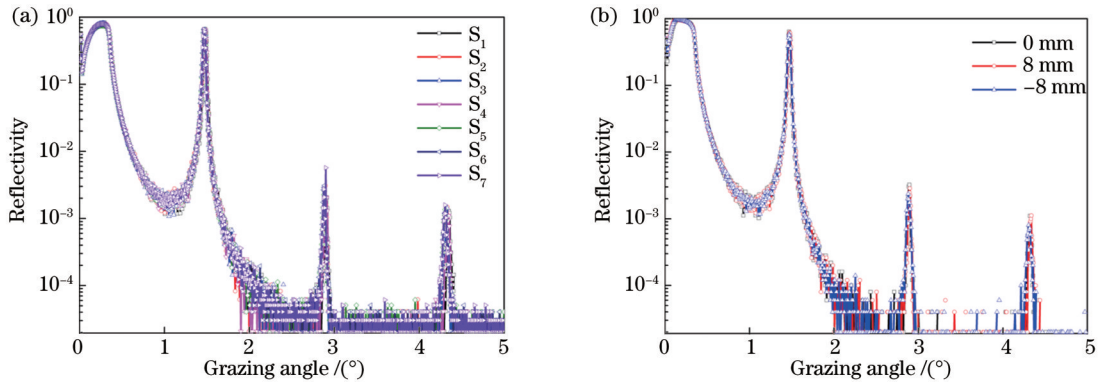


图 5 Ru/C 多层膜 GIXR 测试曲线。(a)长度方向;(b)宽度方向
Fig. 5 GIXR measured curves of Ru/C multilayers. (a) Length direction; (b) width direction

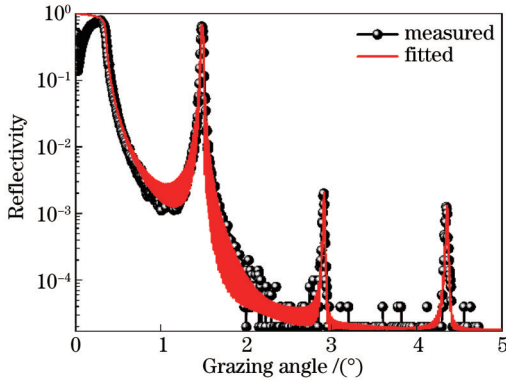


图 6 Ru/C 多层膜 GIXR 测试和拟合结果
Fig. 6 GIXR measured and fitted results of Ru/C multilayers

W/Si 多层膜的表面形貌比 Ru/C 多层膜更加平滑。W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜三个测试位置处的均方根粗糙度平均值分别为 0.098 nm 和 0.139 nm。AFM 图像水平方向的一维 PSD 曲线如图 8(c)所示,在 1~7 μm^{-1} 空间频率范围内, Ru/C 多层膜的 PSD 曲线与 W/Si 多层膜差别较小,而在 7~50 μm^{-1} 空间频率范围内, Ru/C 多层膜的 PSD 曲线明显高于 W/Si 多层膜。结果表明, Ru/C 多层膜的表面粗糙度比 W/Si 多层膜更大,与 GIXR 测试结果一致。其他研究中的 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜的表面粗糙度结果分别为 0.134 nm 和 0.100 nm^[23-24],对比来看,本文制备的多层膜能够达到相似水平。

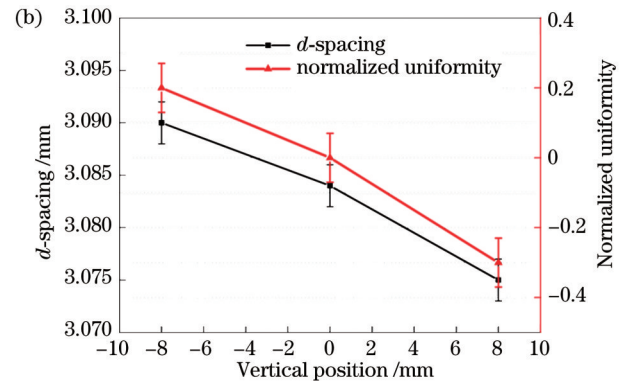
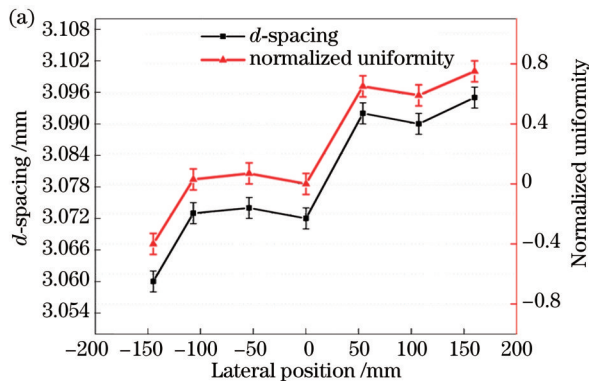


图 7 Ru/C 多层膜均匀性。(a)长度方向;(b)宽度方向
Fig. 7 Uniformity of Ru/C multilayers. (a) Length direction; (b) width direction

3.3 非镜面散射测试

由于 GIXR 测试曲线的拟合只能得到界面宽度,而界面宽度又包含界面粗糙度和界面扩散两部分,故为了进一步研究造成 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜界面宽度差异的来源是界面粗糙度还是界面扩散,对 W/Si 和 Ru/C 多层膜进行了非镜面散射测试。散射信号对界面起伏非常敏感,而对界面扩散不敏感,因此散射结果能够很好地反应界面粗糙度信息。散射测试结果如图 9 所示,其中 ω 是样品台的转动角度,0°为一级峰的角度位置。通过观察散射曲线的起伏就可以对

比界面粗糙度的大小。可以看出, Ru/C 多层膜在大角度处的散射信号要强于 W/Si 多层膜,也就表明 Ru/C 多层膜的高频粗糙度大于 W/Si 多层膜,与 PSD 曲线的结果一致。

3.4 硬 X 射线反射率测试

W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜在 8.04 keV 能点处的一级峰反射率测试和拟合曲线分别如图 10(a)、(b)所示。在 8.04 keV 能点处, W/Si 多层膜的峰值反射率为 63%,与其他研究中的 W/Si 多层膜能达到同等水平^[14]。Ru/C 多层膜在 8.04 keV 能点处的峰值反射

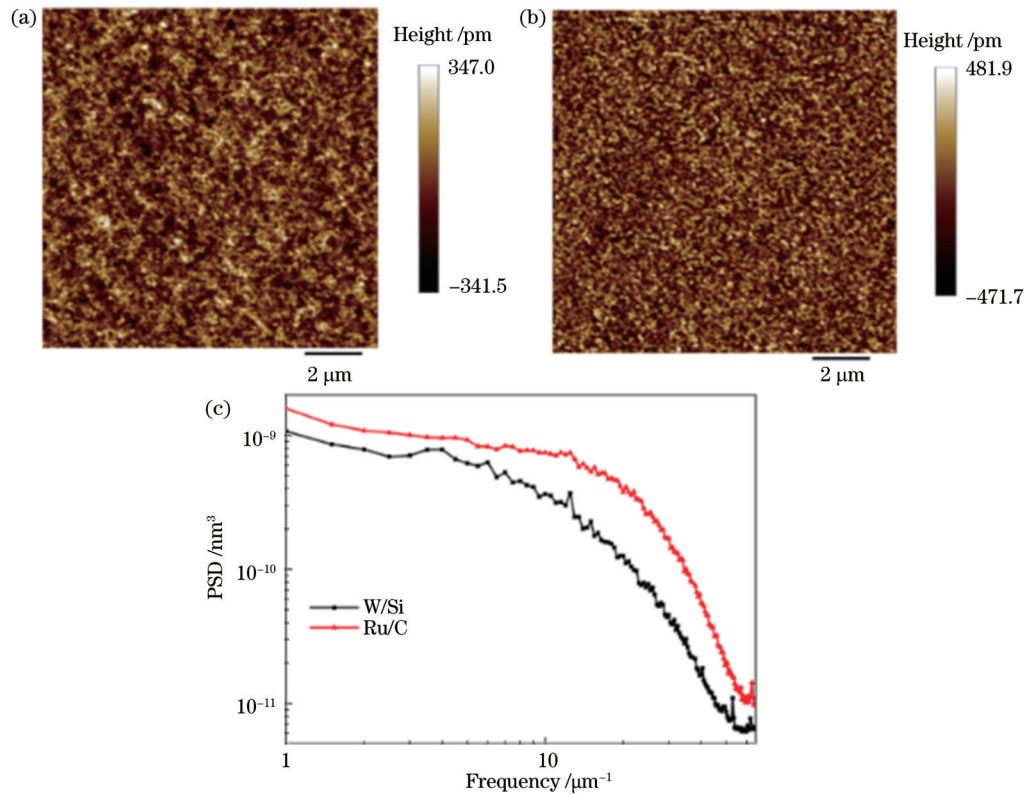


图 8 表面形貌测试结果。(a) W/Si 多层膜；(b) Ru/C 多层膜；(c) PSD 曲线

Fig. 8 Measured results of surface morphologies. (a) W/Si multilayers; (b) Ru/C multilayers; (c) PSD curves

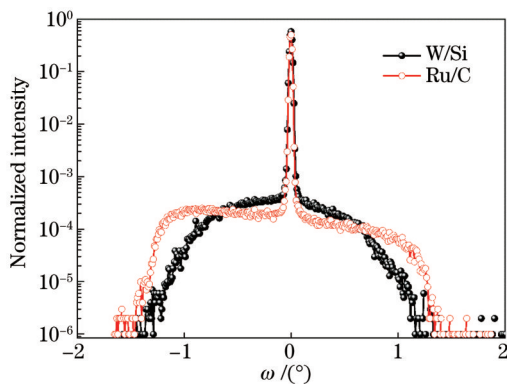


图 9 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜 X 射线散射测试结果

Fig. 9 X-ray scattering measurement results of W/Si multilayers and Ru/C multilayers

率为 62%，与其他研究中的 Ru/C 多层膜能达到同等水平^[24]。根据测试曲线计算出 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜的一级峰角度分辨率为 $\Delta\theta/\theta=2.6\%$ 。

3.5 大尺寸多层膜反射镜

基于上述在 Si 片上的标定实验结果和工艺，在尺寸为 $350\text{ mm}\times 60\text{ mm}\times 50\text{ mm}$ 的 Si 平面镜表面镀制了 W/Si 和 Ru/C 双通道多层膜。高精度 Si 平面镜经超光滑抛光和离子束加工修正后，二维面形误差达到 2.3 nm (RMS)，高频粗糙度为 $0.12\sim 0.14\text{ nm}$ (RMS)，与标定所用超光滑硅片粗糙度相当，如图 11 所示。经上海光源纳米光学测量仪 (NOM) 测试，中心

线长度方向的斜率误差为 $0.21\sim 0.16\text{ }\mu\text{rad}$ (RMS)。镀制的两种多层膜的有效区域均为 $320\text{ mm}\times 20\text{ mm}$ ，两个区域间隔小于 3 mm ，如图 12 所示。其中，W/Si 多层膜的周期数为 70，Ru/C 多层膜的周期数为 100。根据上述在 Si 片上的实验结果和拟合结果，计算得到 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜的平均周期厚度均为 3.06 nm 。图 13(a)、(b) 分别为 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜的计算反射率。可以发现：W/Si 多层膜在 8.04 keV 能量点处的反射率为 68%，在 18.00 keV 、 21.50 keV 和 25.00 keV 能量点处的反射率分别为 70%、76% 和 81%；Ru/C 多层膜在 8.04 keV 能量点处的反射率为 65%，在 10.00 keV 、 14.00 keV 和 18.00 keV 能量点处的反射率分别为 72%、79% 和 82%。目前这两块反射镜已被成功应用在上海光源膜蛋白线站单色器中。

4 结 论

利用直线式磁控溅射镀膜设备制备了由 W/Si 和 Ru/C 组成的双通道多层膜反射镜。在 320 mm 长度和 20 mm 宽度范围内，W/Si 多层膜膜厚误差的均方根值分别为 0.30% 和 0.19%，Ru/C 多层膜膜厚误差的均方根值分别为 0.39% 和 0.20%。GIXR 曲线的拟合结果表明，W/Si 多层膜各点的平均界面宽度略小于 Ru/C 多层膜。表面形貌测试和非镜面散射测试结果表明，W/Si 多层膜表面粗糙度和界面粗糙度都小于

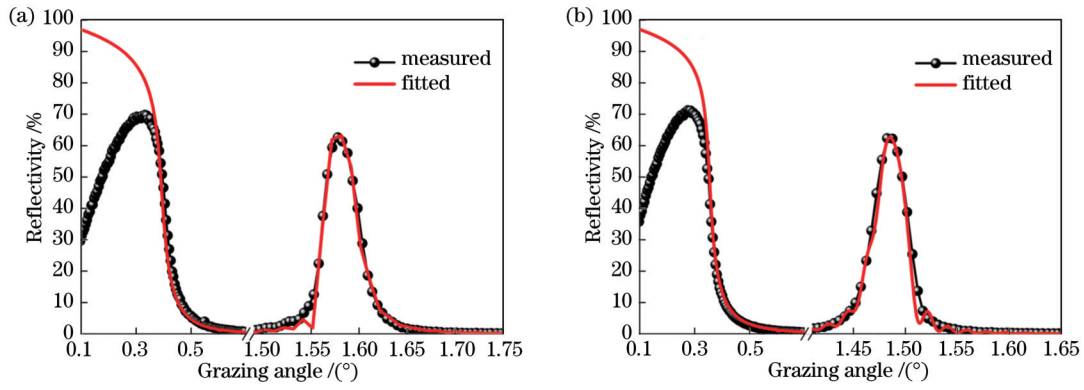


图 10 8.04 keV 能点处的反射率曲线与拟合结果。(a) W/Si 多层膜; (b) Ru/C 多层膜

Fig. 10 Reflectivity curve and fitted result at 8.04 keV energy point. (a) W/Si multilayers; (b) Ru/C multilayers

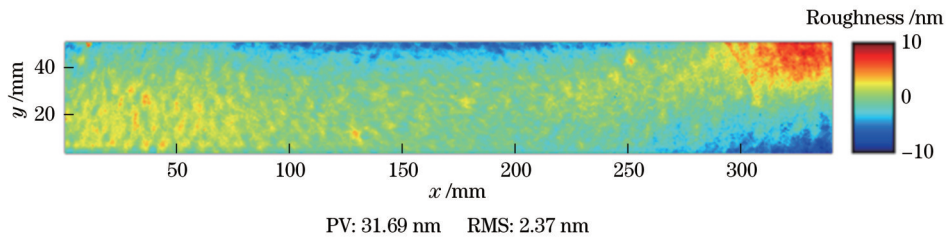


图 11 平面镜表面面形图像

Fig. 11 Surface morphology image of mirror

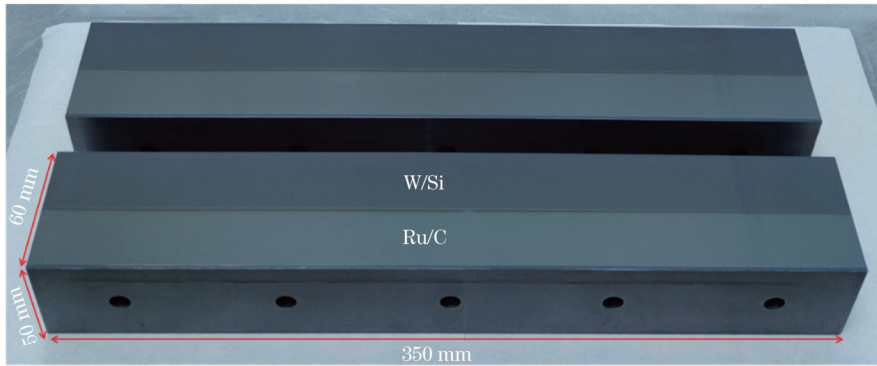


图 12 350 mm 长双通道多层膜反射镜

Fig. 12 Double-channel multilayer mirror with length of 350 mm

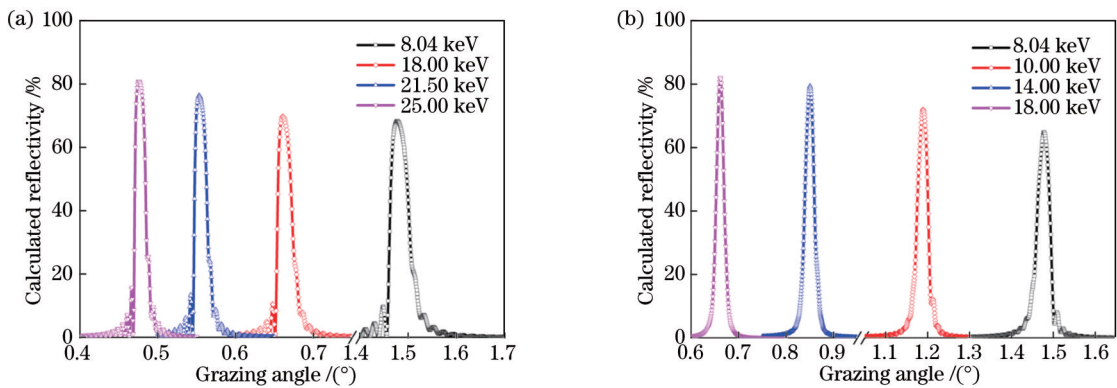


图 13 反射镜中 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜的计算反射率。(a) W/Si 多层膜; (b) Ru/C 多层膜

Fig. 13 Calculated reflectivity of W/Si multilayers and Ru/C multilayers in mirror. (a) W/Si multilayers; (b) Ru/C multilayers

Ru/C 多层膜。综合来看, W/Si 多层膜成膜质量要比 Ru/C 多层膜更好。基于以上研究, 在尺寸为 $350\text{ mm} \times 60\text{ mm}$ 的高精度 Si 平面镜上分两块区域镀制了 W/Si 多层膜和 Ru/C 多层膜, 周期厚度均约为 3.06 nm , 在 8.04 keV 能量点处的计算反射率分别为 68% 和 65% , 均能满足线站要求。同时, 所制备的多层膜在大尺寸范围内的均匀性能够达到国际先进水平。在之后的研究中若要改进均匀性, 则可以从提高掩模的制作和安装精度, 以及基底的运动速率稳定性着手。本工作为后续研制更多通道的大尺寸 X 射线多层膜反射镜提供了参考。

参 考 文 献

- [1] Morawe C. Graded multilayers for synchrotron optics[C]. AIP Conference Proceedings, 2007, 879(1): 764-769.
- [2] Rack A, Weitkamp T, Riotte M, et al. Micro-imaging performance of multilayers used as monochromators for coherent hard X-ray synchrotron radiation[J]. Proceedings of SPIE, 2010, 7802: 78020M.
- [3] Rack A, Zabler S, Müller B R, et al. High resolution synchrotron-based radiography and tomography using hard X-rays at the BAMline (BESSY II)[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2008, 586(2): 327-344.
- [4] Morawe C, Carau D, Peffen J C. Double multilayer monochromators for upgraded ESRF beamlines[J]. Proceedings of SPIE, 2017, 10386: 1038603.
- [5] Liu D G, Chang C H, Liu C Y, et al. A dedicated small-angle X-ray scattering beamline with a superconducting wiggler source at the NSRRC[J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2009, 16(1): 97-104.
- [6] Zwart P, Taylor J, Morton S, et al. The Berkeley center for structural biology at the advanced light source[J]. Synchrotron Radiation News, 2015, 28(2): 22-27.
- [7] Morawe C, Peffen J C. Thickness control of large area X-ray multilayers[J]. Proceedings of SPIE, 2009, 7448: 74480H.
- [8] Morawe C, Borel C, Peffen J C. The new ESRF multilayer deposition facility[J]. Proceedings of SPIE, 2007, 6705: 670504.
- [9] Rack A, Riesemeier H, Vagović P, et al. Fully automated, fixed exit, in vacuum double-multilayer monochromator for synchrotron-based hard X-ray micro-imaging applications[C]. AIP Conference Proceedings, 2010, 1234(1): 740-743.
- [10] Rack A, Weitkamp T, Trabelsi S B, et al. The micro-imaging station of the TopoTomo beamline at the ANKA synchrotron light source[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2009, 267(11): 1978-1988.
- [11] Stampanoni M, Groso A, Isenegger A, et al. TOMCAT: a beamline for TOMographic Microscopy and Coherent rAdiology experimenTs[C]. AIP Conference Proceedings, 2007, 879(1): 848-851.
- [12] Sawhney K J S, Dolbnya I P, Scott S M, et al. A double multilayer monochromator for the B16 test beamline at the diamond light source[J]. Proceedings of SPIE, 2011, 8139: 813908.
- [13] Weitkamp T, Tafforeau P, Boller E, et al. Status and evolution of the ESRF beamline ID19[C]. AIP Conference Proceedings, 2010, 1221(1): 33-38.
- [14] Ni H J, Huang Q S, Shi Y N, et al. Development of large-size multilayer mirrors with a linear deposition facility for X-ray applications[J]. Optical Engineering, 2019, 58(10): 104105.
- [15] Qi R Z, Huang Q S, Yang Y, et al. Effects of sputtering parameters and separator plates on the structure and stress of W/Si multilayers in X-ray telescope applications[J]. Optical Engineering, 2017, 56(3): 035103.
- [16] Liu Y, Huang Q S, Qi R Z, et al. Microstructure evolution and hard X-ray reflectance of ultrathin Ru/C multilayer mirrors with different layer thicknesses[J]. Materials Research Express, 2021, 8(2): 026401.
- [17] Liu Y, Huang Q S, Qi R Z, et al. Improvement of the microstructure and X-ray performance of ultrathin Ru/C multilayer mirror after high temperature treatment[J]. Coatings, 2021, 11(1): 45.
- [18] Ni H J, Huang Q S, Liu G C, et al. Comparative study of Pd/B₄C X-ray multilayer mirrors fabricated by magnetron sputtering with Kr and Ar gas[J]. Materials, 2020, 13(20): 4504.
- [19] Windt D L. IMD: software for modeling the optical properties of multilayer films[J]. Computers in Physics, 1998, 12(4): 360-370.
- [20] 白海力, 何忠杰, 田仁玉, 等. 非理想软 X 射线光学多层膜的掠入射镜向反射率[J]. 金属学报, 2001, 37(2): 121-126.
Bai H L, He Z J, Tian R Y, et al. Grazing specular reflectivity of non-ideal soft X-ray optical multilayers[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2001, 37(2): 121-126.
- [21] Rack A, Weitkamp T, Riotte M, et al. Comparative study of multilayers used in monochromators for synchrotron-based coherent hard X-ray imaging[J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2010, 17(4): 496-510.
- [22] Jiang H, He Y, He Y M, et al. Structural characterization and low-temperature properties of Ru/C multilayer monochromators with different periodic thicknesses[J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2015, 22(6): 1379-1385.
- [23] Medvedev R V, Nikolaev K V, Zameshin A A, et al. Low-energy ion polishing of Si in W/Si soft X-ray multilayer structures[J]. Journal of Applied Physics, 2019, 126(4): 045302.
- [24] Störmer M, Gabrisch H, Horstmann C, et al. Ultra-precision fabrication of 500 mm long and laterally graded Ru/C multilayer mirrors for X-ray light sources[J]. Review of Scientific Instruments, 2016, 87(5): 051804.

Development of Large-Size High Performance X-Ray Double-Channel Multilayer Mirrors

Zhang Yunxue¹, Huang Qiushi^{1*}, Zhu Yifan¹, Zhang Zhe¹, Qi Runze¹, Huang Handan¹, Wang Yuzhu², He Yumei², Luo Hongxin², Zhu Wanqian², Zhang Zhong¹, Wang Zhanshan^{1**}

¹Key Laboratory of Advanced Micro-Structured Materials, Ministry of Education, Institute of Precision Optical Engineering, School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China;

²Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China

Abstract

Objective Multilayer mirrors are widely used as X-ray monochromators in synchrotron radiation facilities. Compared with crystal monochromators, multilayers have variable period thicknesses and can be applied at different energies. At the same time, the energy bandwidth of the multilayers is 1-2 orders of magnitude larger than that of the crystals, which can provide higher photon flux. As mirrors in synchrotron radiation beamlines operate under grazing incidence conditions, larger mirrors are usually required to fully receive the beam. In addition, a double-channel multilayer composed of two different structural material pairs is usually deposited on the surface of the mirror to make the beamline cover a wider energy range. In recent years, China's synchrotron radiation facilities have been continuously upgraded and built, including the Shanghai Synchrotron Radiation Facility (SSRF) and Beijing High Energy Photon Source (HEPS). In some beamlines, single-channel multilayer mirrors are no longer sufficient, and double-channel multilayer mirrors are required. Driven by these applications, a large-size double-channel multilayer mirror is developed in this paper.

Methods The double-channel multilayers used a combination of W/Si and Ru/C multilayers, and Ru/C multilayers and W/Si multilayers work in the energy range of 10–18 keV and 18–25 keV, respectively. The W/Si and Ru/C multilayer samples are fabricated in a linear magnetron sputtering system. The base pressure before the deposition is 9.5×10^{-5} Pa and the working gas uses high-purity argon (volume fraction of 99.999%). A series of experiments are first carried out on Si wafers mainly to optimize the quality and thickness uniformity of the multilayers. The uniformity in the length direction can be ensured as long as the stability of the motion rate is guaranteed, and the uniformity in the width direction can be controlled by installing a crescent-shaped mask in front of the target. Then, W/Si and Ru/C double-channel multilayers are deposited on the surface of a high-precision Si plane mirror based on the optimized results. The areas of the two multilayer stripes are both 320 mm × 20 mm, and the interval is less than 3 nm. After deposition, the multilayer samples are characterized by grazing incidence X-ray reflectometry (GIXR) at 8.04 keV using an X-ray diffractometer. The GIXR curve is fitted by IMD software to obtain thickness, density, and interface width. The non-specular scattering tests of the multilayers are also conducted on an X-ray diffractometer. The surface morphologies of the multilayers are measured by atomic force microscopy (AFM) and then one-dimensional power spectrum density (PSD) functions are calculated.

Results and Discussions The average interface width of the deposited W/Si multilayers is 0.30 nm, and the thickness varies from 2.894 nm to 2.918 nm over the 320 mm length (Fig. 4). In the range of 320 mm length and 20 mm width, the root mean square (RMS) error of the thickness is 0.30% and 0.19%, respectively. The average interface width of the Ru/C multilayers is 0.32 nm, and the thickness varies from 3.060 nm to 3.095 nm over the 320 mm length (Fig. 7). In the range of 320 mm length and 20 mm width, the RMS error of the thickness is 0.39% and 0.20%, respectively. The surface roughness of the W/Si multilayers and the Ru/C multilayers is 0.098 nm and 0.139 nm, respectively (Fig. 8). In the spatial frequency range of $1-7 \mu\text{m}^{-1}$, the PSD of the Ru/C multilayers is less different from that of the W/Si multilayers, while in the spatial frequency range of $7-50 \mu\text{m}^{-1}$, the PSD of the Ru/C multilayers is significantly higher than that of the W/Si multilayers. The surface roughness of the Ru/C multilayers is larger than that of the W/Si multilayers, which is consistent with the GIXR test results. The non-specular scattering results indicate that the interface roughness of the W/Si multilayers is smaller than that of the Ru/C multilayers (Fig. 9). Based on the above researches, W/Si and Ru/C double-channel multilayers are deposited on the surface of a Si plane mirror with a size of 350 mm × 60 mm × 50 mm. The measured thicknesses of both multilayer stripes are around 3.06 nm. The estimated reflectivity of the W/Si multilayers at 8.04 keV is 68%, and the reflectivity at 18.00 keV, 21.50 keV, and 25.00 keV is 70%, 76%, and 81%, respectively. The reflectivity of the Ru/C multilayers at 8.04 keV is 65%, and the reflectivity at 10.00 keV, 14.00 keV, and 18.00 keV is 72%, 79%, and 82%, respectively.

Conclusions A W/Si and Ru/C double-channel multilayer mirror is fabricated in this paper. After process optimization,

within the range of 320 mm length and 20 mm width, the RMS error of the thickness of the W/Si multilayer is 0.30% and 0.19%, and that of the Ru/C multilayers is 0.39% and 0.20%, which has almost reached the world-class level. Finally, on the basis of the optimized experimental results, W/Si and Ru/C multilayers are deposited on a high-precision Si plane mirror with a size of 350 mm×60 mm in two stripes, and the estimated reflectivity (8.04 keV) is 68% and 65%, respectively. The multilayer mirrors can meet the requirements of the beamline and are successfully applied in the membrane protein beamline of SSRF. In future research, uniformity can be improved by increasing mask fabrication, mounting accuracy, and substrate movement rate stability.

Key words X-ray optics; double-channel multilayers; magnetron sputtering; uniformity; reflectivity