

# 软X射线光学技术的某些进展

陈星旦 李福田

**摘要:** 本文主要介绍软X射线等离子体光源、多层膜软X射线反射镜和软X射线显微镜。高强度的实验室用软X射线等离子体光源较之同步辐射具有体积小、造价低、光束大和单位脉冲光通量高等优点。最近发展的多层镀膜用于软X射线正入射光学元件,可以得到比掠入射光学元件好得多的分辨率。软X射线显微镜提供了生物样品分析的一种新工具,它填补了常用的光学显微镜和电子显微镜之间的空隙。

## 一、前 言

软X射线通常指波长1—10nm范围的电磁辐射。就发射的光子能量来说,这个范围相当于1.2keV—120eV,所以也称为亚千电子伏波段。由于技术上的原因,软X射线的开发,比普通X射线(指波长短于1nm的硬X射线)要晚。但近几年来,人们对软X射线波段的兴趣有了明显的增长。这主要是用于这个波段的光源和光学元件的制造技术有所突破,使得软X射线天文学、软X射线显微术、X射线光刻、高温等离子体诊断、同步辐射应用等许多方面取得了迅速的进展。在光源方面,同步辐射装置继续有所发展,国际上投入使用的专用贮存环日益增多,贮存环中采用Wiggler等插入元件,提高了辐射亮度,扩展了波段。此外,为了适应软X射线显微术和光刻的推广应用,出现了可以安装在普通实验室、价格较廉的各类等离子体软X射线光源。在光学元件方面,目前人们已经具备了加工软X射线天文望远镜、单色仪、显微镜用的具有复杂面形和超光滑光学表面的非球面反射镜的能力;已经能涂镀软X射线波段用的多层干涉膜,使反射镜在这个波段的反射率提高几个数量级;已经能制作亚微米级结构的软X射线衍射成像光学元件如波带片等。

软X射线光学技术近几年的发展,表明该波段的光学装置将不断完善,因而可能开拓许多新的应用,它必将会对一些科学技术领域产生影响。本文就软X射线光学技术中几个主要的进展予以介绍。

## 二、软X射线等离子体光源

虽然同步辐射是迄今为止软X射线最强大的光源,它具有许多优异的光学性质,但由于装置的造价高,小型化问题还没有解决,使得它在一般实验室推广应用受到限制。近年来随着软X射线显微术和光刻术的发展,出现了许多新型等离子体光源,如气体射流光源、等离子体焦点光源、细丝向心爆炸光源和激光等离子体光源等。和常用的靠电子轰击固体靶面

产生软X射线辐射的Henke型光源相比,它们具有效率高、稳定性好等特点。Henke源的软X射线转换效率小于 $10^{-3}$ ,产生可用的X射线通量要很大的输入功率。而在应用上,要得到高分辨率,光点尺寸要小,要求靶面单位面积发射的功率高,这就受靶材料加热熔化或靶面损坏的限制。虽然用高压水冷或旋转靶可以提高亮度,但极有限。等离子体光源不受功率的限制,而且和同样功率的Henke源相比,软X射线的输出要大得多,硬X射线输出要小得多,这对光刻和显微术的应用十分可贵,因为这时硬X射线辐射是有害的。发展中的等离子体光源主要有以下几种:

### 1. 气体射流光源

英国伦敦大学帝国理工学院 Blackett 实验室<sup>[1]</sup>研制了一种射流等离子体光源。这一光源由快阀、气体喷嘴、阳极和阴极组成,它们顺序地排列在同一轴线上,处于真空中。当一侧为4个大气压,另一侧为真空的快阀开启后,速度达10个马赫的气流,通过气体喷嘴,在两个电极间形成直径50mm长20mm的空心气流柱。此时连接已充电至35kV的电容器堆,脉冲电流使气体产生电离,并形成强大的感生磁场。由于强磁场的箍缩效应,放电形成的等离子体将收缩到直径100 $\mu$ m左右,产生高强度软X射线辐射。Blackett实验室的这一光源已成功地用于软X射线显微术工作。

美国Maxwell实验室<sup>[2]</sup>也对此类光源进行了深入研究,并实现了商品化,准备用于软X射线显微术和光刻术方面的工作。

### 2. 等离子体焦点光源

在等离子体焦点光源中<sup>[2][3]</sup>有一对共轴的阴极和阳极,工作气压一般在0.1至1Torr左右。阴极和阳极与低电感高电压的电容器组相连。通电后极间区域出现沿面放电,在感生磁场的作用下,放电产生的等离子体沿轴向移动。当等离子体波前到达阳极终端时径向收缩,形成致密的高温等离子体焦点,发射高强度软X射线辐射。脉冲放电形成的等离子体的温度与电极形状、电容器充电电压、工作气体类型和工作气压有关。例如,当工作气体为氖、输入功率为60kW时,这种光源可在1.2—1.4nm间产生能量为50—100J的软X线脉冲辐射,等离子体焦斑直径为2mm,脉冲持续时间为15—20ns,转换效率为1%左右。选择适当的气体和电极材料可以使光谱复盖区域从0.6nm延伸至4.2nm。

### 3. 细丝向心爆炸光源

Maxwell<sup>[3]</sup>实验室研制了细丝列向心爆炸软X射线光源。当持续时间为100ns、强度为1MA的脉冲电流,通过12根细金属丝组成的列阵时,金属丝向轴心爆炸形成高温致密等离子体。这一等离子体发射的软X射线辐射其特性与细丝材料有关。

### 4. 激光等离子体光源

激光等离子体作为高强度紫外—真空紫外辐射光源的研究始于七十年代。爱尔兰都柏林大学学院P. K. Carrall和G. O'Sullivan<sup>[4]</sup>,美国马里兰大学M. L. Ginter<sup>[5]</sup>以及美国国家标准局J. R. Robert和W. R. Ott的工作将这一研究推进到软X线波段。在P. K. Carrall和G. O'Sullivan等人的激光等离子体装置中,用了一台能量为3J脉冲宽度为30ns的调Q红宝石激光器。对一系列稀土元素靶的激光等离子体辐射特性研究测试表明:激光产生等离子体是真空紫外—软X射线波段强度大、稳定性好的光源。例如钪和钆靶激光等离子体100nm—220<sup>nm</sup>间光谱辐射亮度能达到普通真空紫外光源的 $10^5$ — $10^6$ 倍。西德物理技术研究院(PTB)M. Kuhne和B. Wende采用调Q YAG激光振荡器和Nd玻璃放大器构成大功率激光等离子体装置。激光器最大输出功率6J,脉冲半宽度15—20ns。以同步辐射为标准测得钨靶在7nm至

100nm 间光谱辐射特性, 表明激光等离子体光源在软 X 线波段有潜在的应用前景。最近美国光谱工艺公司 A. L. Hoffman<sup>[7]</sup> 的实验装置中采用了一台脉冲重复率为 100Hz, 脉冲宽度为 200ps, 能量为 300mJ 的 Nd/YAG 激光振荡器和一台 Nd/YAG 激光放大器。激光光束质量很好, 在靶面聚焦后光斑直径仅为 30 $\mu$ m, 辐照度达 10<sup>14</sup>W/cm<sup>2</sup>。使用铜靶, 当输入功率 30W 时, 软 X 线波段输出功率可达 3W (2 $\pi$  立体角)。实验表明: 这套实验装置很适于软 X 线光刻术和显微术方面的应用。

激光等离子体中电子密度一般为 10<sup>21</sup> 至 10<sup>22</sup>cm<sup>-3</sup>, 比磁箍缩等离子体中的电子密度高约两个数量级。由于电子密度较高, 所以激光等离子体有较高的亮度, 其辐射接近黑体辐射限。激光等离子体光斑尺寸很小, 一般为 30 至 100 $\mu$ m 左右, 而磁箍缩等离子体一般为 1—3mm 左右, 相差约 30 倍。激光等离子体的软 X 线辐射能转换效率很高, 可以达到 10% 左右, 而磁箍缩等离子体光源只有 1% 左右。因此人们普遍认为激光等离子体光源是目前正在开发的众多等离子体光源中很有前途的一种。

### 三、软 X 射线多层膜反射镜

在软 X 射线波段, 所有材料的正入射反射率都很低。 $\lambda = 10$ nm, 反射率在 10<sup>-3</sup> 以下; 而当  $\lambda = 5$ nm 时, 仅能得到 10<sup>-5</sup> 的反射。要得到高反射率, 只能制作多层膜镜子或使用非正入射。掠入射角接近 0° 时, 所有材料的反射率都达到 100%。所以掠入射反射是软 X 射线光学最为成熟的技术。由于掠入射产生严重的像差, 目前典型的软 X 射线掠入射成像系统可得到 0.5° 量级的角分辨率, 而采用正入射光学系统可提高一个数量级。多层软 X 射线干涉膜反射镜的实现, 主要是超光滑衬底制备技术和超薄均匀层真空淀积技术发展的结果。七十年代美国 IBM 公司 Spiller 和斯坦福大学 Barbec 的工作, 奠定了制备出具有较高反射率的软 X 射线膜的基础。八十年代初, 美国 Lawrence Berkeley 实验室、Arizona 大学、海军研究实验室以及 ECD 公司、Acton 公司相继建成先进的软 X 射线多层膜制备设备。法国、英国、苏联、日本、荷兰等国家, 亦在软 X 射线多层膜技术方面取得很大进展。

典型的软 X 射线多层膜由重元素 (如钨和钼) 反射层间以轻元素 (如碳) 反射层组成。每层厚度大约 1~2nm, 总层数 100—200 层, 设计和工艺过程控制较为复杂。这种组合形成的反射镜具有高反射率和相当宽的通带, 波长与带宽之比  $\lambda/\Delta\lambda$  约 10~100。目前普遍采用的蒸发技术有电子束热蒸发、磁控溅射和激光加热蒸发; 膜厚监控技术有软 X 射线反射率实时监控、自动椭圆仪监控和计算机淀积率实时监控。下面介绍具有代表性的三种多层膜制备系统。

美国 Brookhaven 国家实验室 R. P. DiNardo<sup>[8]</sup> 等人建立了一套镀膜装置, 利用溅射法制备软 X 线多层膜。装置的主真空室与一台冷凝泵及一台抽速 1500L/s 的涡轮分子泵相接, 最高真空度可达 1 $\times$ 10<sup>-6</sup>Torr。主真空室内有两个磁控溅射源, 根据需要可溅射两种不同材料。溅射源工作时真空室内氩气的动态压强保持在 2 $\times$ 10<sup>-3</sup>Torr。真空室内的智能式步进电机驱动的移动机构使试样在两个溅射源前往复运动, 完成各个膜层淀积。多层膜制备过程中, 每层的厚度由材料瞬时淀积率和试样移动速度决定。位于溅射源对面的石英晶体传感器用来监测淀积速率的变化。一台 HP—217 型小型电子计算机通过 IEEE—488 接口与石英晶体传感器和磁控溅射源相接, 通过 RS232 接口与推动试样移动的步进电机驱动单元相接。在计算机控制下通过调节溅射源的淀积率、改变试样行走速度, 并有规律地移动试样, 完成软 X

线多层膜制备。

日本东北大学T. Namioka和M. Yamamoto<sup>[9]</sup>用Elionix公司生产的EIS—150A型微波激励离子束装置产生直径100mm的离子束，当加速电压为1000V时离子流密度可达0.8 A/cm<sup>2</sup>，均匀性可达±5%。典型工作条件下溅射室内氩气压为 $5 \times 10^{-2}$  Pa。离子束轰击靶面产生溅射，在样品上淀积成均匀薄膜。水冷的靶架呈三稜镜形，上面安装三种不同材料的靶，可在溅射室外切换。使用一台计算机控制的椭偏仪进行膜厚实时监控，监控精度可达0.1nm左右。Namioka用这套系统制备的钨—碳、铍—碳多层膜在软X线波段的反射率目前可达14%左右。

荷兰原子与分子物理研究所M. P. Bruijn<sup>[10]</sup>的软X线多层膜装置采用超高真空系统，真空度达 $10^{-1}$ 至 $10^{-9}$  Torr。真空室中有两个7kW的E型电子束蒸发源。一台石英晶体监视器用来粗略指示薄膜淀积厚度。一台四极质谱仪用来监控电子束源的蒸发率。样品位于蒸发源上方70cm处，和样品相距10cm处放置一块参考样品。一套由光源和探测器组成的软X线反射率测试系统用来给出多层膜淀积中参考样品的实时反射率值。LSI—11小型电子计算机通过CAMAC标准接口分别与上述石英晶体振荡器、四极质谱仪及软X线反射率计相连。在计算机控制下根据实时反射率的变化通过调节蒸发速率、改变蒸发材料制备出高精度软X线多层膜。

#### 四、软X射线显微术

近年来，软X射线的应用已推广到许多科学技术领域，其中最引人注目的要算软X射线显微术。四、五十年代，人们就开始注意发展X射线显微术，有不少论文和专著发表。但由于当时存在的许多技术难关没有解决，加之后来电子显微镜的应用取得很快进展，大家对发展软X射线显微术的热情渐渐消失了。但它的一些独特优点，一直吸引着人们的注意力。简要说来，主要是下列三方面：

(1) 软X射线波长比可见光短得多，可以希望得到比光学显微镜高得多的分辨率。

(2) 吸收边的存在，提供了软X射线显微术提高观察对比度的机制，这点特别对生物样品有意义。此外，不同元素的吸收边，可用于元素分析。

(3) 与电子显微术相比，软X射线在物质内的衰减长度为 $\mu\text{m}$ 量级，比电子束的衰减长度小一个数量级；软X射线在物质中的散射可以忽略；空气对软X射线的吸收系数在 $\text{mm}^{-1}$ 量级。这样，软X射线显微术对样品不要求像电子显微术那样要切片、脱水、染色和置于真空中。软X射线显微术适于研究完整的细胞和细胞器。

总之，软X射线显微术在分辨率上处于光学显微术和电子显微术之间，而在性能上弥补了两者的不足。关于软X射线显微术的文献见Kirz和Rarback的综述<sup>[11]</sup>和1981年在Brookhaven<sup>[12]</sup>、1983年在Göttingen<sup>[13]</sup>召开的会议所发表的文集。

下面介绍几种典型的软X射线显微术。

##### 1. 接触显微术

由于过去没有适当的高分辨率X射线成像元件，因而引出许多不要成像元件的显微技术，如接触显微X射线照相、点投影显微术。最初的接触X射线显微照相是用X射线将物体像成在与之靠近的照相底片上，然后用光学显微镜放大所得的像。很明显，这种技术受照相底片的分辨率和光学显微镜的限制。点投影显微术是用一个“点”X射线源，把一个放在光

源附近的样品投影在远距离的照相底片上而产生放大的 $X$ 射线影像。用这个方法可得到 $0.1\ \mu\text{m}$ 分辨率。后来采用 $X$ 射线抗蚀剂作为记录介质,较之照相底片有高得多的分辨率,可用电子显微镜放大观察。使用最通用的抗蚀剂PMMA,可得到衍射限分辨率 $30\ \text{nm}$ 。采用光电探测器的软 $X$ 射线显微术,处于发展之中。光阴极的灵敏度较抗蚀剂高,光电探测能定量和实时成像输出。目前发展的几类显微术中,接触显微术具有较高分辨率。

## 2. 波带片成像

在软 $X$ 射线波段,所有材料的折射率 $n$ 的实部仅仅比1小一非常小的量 $\delta$ ,以致折射现象可以忽略不计,软 $X$ 射线的聚焦或成像只能利用反射或衍射。菲涅耳波带片是目前软 $X$ 射线显微镜中普遍采用的成像元件。波带片是由一圈圈对辐射透明和不透明的同心环带组成,所有带必须具有相同的面积,所以带的边界半径 $r_n = \sqrt{nr_1}$ 。当圈数 $n \geq 100$ ,用波带片成像近似于薄透镜成像,其焦距 $f = r_1^2/\lambda$ 。最外层带,也就是最细带的宽度 $\Delta r_n \sim r_n/2n$ 。波带片的分辨率最终由衍射极限决定(约 $1.22\Delta r_n$ ),即分辨率与可能加工的最窄带的宽度相当。要达到亚微米级的像分解率,线宽本身必须是亚微米级,而带的半径和同心度必须校正到所需分辨率的几分之一。高分辨率微细加工技术的发展,使得有可能考虑波带片应用于软 $X$ 射线显微术。虽然早在五十年代,就有人提出波带片应该可以用于 $1\ \text{nm}$ 范围的软 $X$ 射线成像,六十年代设计了这种波带片,但直到七十年代才做出实用的软 $X$ 射线成像波带片。开始,研制波带片是针对 $X$ 射线天文学,后来,人们的兴趣转向了波带片用于同步辐射软 $X$ 射线显微装置。最早是1976年在汉堡DESY加速器上使用波带片显微镜,在 $\lambda = 4.6\ \text{nm}$ ,曝光数分钟得到了分辨率达 $0.2\ \mu\text{m}$ 的细胞纤维和其他生物物质的显微图。后来加以改进,1983年安装在柏林BESSY贮存环,在 $\lambda = 4.5\ \text{nm}$ ,曝光时间 $10\ \text{s}$ ,分辨率达到 $50\ \text{nm}$ 。Göttingen大学用全息方法制造的波带片, $r_1 = 1.76\ \mu\text{m}$ , $n = 251$ , $r_n = 27.8\ \mu\text{m}$ , $\Delta r_n = 58\ \text{nm}$ 。用电子束微细加工方法制造波带片,最初由IBM发展起来,后来许多实验室用电子束加工方法制造的波带片较之用全息方法得到了更高的分辨率。

## 3. 扫描显微镜

在成像式软 $X$ 射线显微术中, $X$ 射线首先经过试样,然后用波带片成像记录在照相底片或抗蚀剂上。波带片的效率一般为 $3\sim 5\%$ ,底片的探测量子效率为 $5\sim 20\%$ 。因此,照射到试样的辐射只有 $1\%$ 用于成像。扫描显微术则是先将 $X$ 射线聚焦成小光点,然后扫描试样,或试样扫描光点,通过试样的辐射用 $X$ 射线探测器例如气体正比计数器聚集,计数器的量子效率可达 $70\%$ 。这样,试样承受的辐射低,只有成像显微术的 $1/50$ 。这是扫描显微术的主要优点。另外,信号用光电探测器接收,可以实时处理和分析试样的显微图像。扫描显微术的分辨率由扫描样品的光点尺寸决定。

### (1) Göttingen波带片扫描显微镜

在柏林BESSY贮存环安装了一台扫描显微镜,同步辐射先经波带片成像到针孔光栏上,再经第二块波带片聚焦。前一波带片和针孔光栏(孔径 $d = 5\ \mu\text{m}$ )组成单色仪,后一波带片聚焦后的扫描光点尺寸 $50\ \text{nm}$ 。单色仪在 $4.5\ \text{nm}$ 的分辨率 $\lambda/\Delta\lambda = D/2d \approx 250$ 。扫描系统完成两个独立的互相垂直的机械运动(波带片和试样),每个运动的最大幅度约 $10\ \mu\text{m}$ ,相当于扫描光点的角位移为数弧秒。对 $200 \times 200$ 像元的最小扫描时间为 $40\ \text{s}$ ,相当于一个像元 $1\ \text{ms}$ 。扫描均由计算机控制。计划进一步提高同步辐射通量,减少波带片最外层的宽度,使扫描显微镜能在较高分辨率(约 $10\ \text{nm}$ )和较短波长( $2.36\ \text{nm}$ )下运转。

### (2) IBM 正入射扫描显微镜

用正入射光学系统成像较之波带片成像可以得到更细的光点。第一台使用多层膜镜子的扫描显微镜建在汉堡DESY，用两个反射面物镜成像。后来在Brookhaven的NSLS同步辐射装置上安装了一台和DESY相似的但分辨率较高的扫描显微镜。同步辐射先经过掠入射椭圆镜（掠入射角 $\theta = 3^\circ$ ，焦长 $f_1 = 5.7\text{m}$ ， $f_2 = 0.7\text{m}$ ）成像在可调针孔（孔直径 $2\text{--}20\mu\text{m}$ ）上，再用两块正入射镜子组成的物镜将光束聚焦，试样机械扫描。镜子镀ReW—C多层膜，在 $\lambda = 4.5\text{--}10\text{nm}$ ，反射率 $10\%\text{--}25\%$ 。

总之，软X射线显微术近几年发展很快，是高分辨率观察生物试样的重要方法，许多同步辐射实验室都安装了各种型式软X射线显微镜，研究工作继续向提高分辨率、增大光子通量和改善适用性等方面努力。估计采用常规的成像技术，分辨率不久可以达到 $20\text{--}30\text{nm}$ 。经过特殊图像处理，可以得到更高的分辨率。使用近年来发展的等离子体软X射线光源，预计软X射线显微术不久将进入普通实验室。

参 考 文 献

- [ 1 ] R. J. Rosser; X-Ray Microscopy, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1984, 242
- [ 2 ] G. Herziger; X-Ray Microscopy, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1984, 19
- [ 3 ] R. A. Gutcheck; Proceedings of SPIE, 1981, 316, 196
- [ 4 ] J. S. Pearlman; Proceedings of SPIE, 1985, 537, 102
- [ 5 ] P. K. Carroll; Contemp, phys., 1981, 22, 61—96
- [ 6 ] M. L. Ginter; Optics letters, 1982, 7, 31
- [ 7 ] A. L. Hoffman; Proceedings of SPIE, 1985, 537, 198
- [ 8 ] R. P. DiNardo; Proceedings of SPIE, 1985, 563, 30
- [ 9 ] T. Namioka; ICO—13 Conference Digest, 1985, 636
- [10] M. P. Bruijn; Proceedings of SPIE, 1985, 563, 182
- [11] J. Kirg, H. Rarback; Rev. Sci. Instrum., 1985, 56(1), 1~13
- [12] Proceedings of SPIE, 1981, 316
- [13] G. Schmahl D. Rndolph; X-Ray Microscopy, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1984.

## Some Developments in Soft X-ray Techniques

Chen Xingdan    Li Futian

### Abstract

The main topics discussed in this paper are soft X-ray plasma sources, multilayer soft X-ray mirrors and soft X-ray microscopes.

The powerful, laboratory soft X-ray plasma sources offer some advantages over synchrotron radiation in terms of smaller physical size, lower cost, large beam size and higher flux per pulse.

Recently developed multilayer coatings permit use of normal incidence optics for soft X-ray promising a resolution that should be substantially better than that obtained with grazing incidence optics.

Soft X-ray microscope has provided a new tool for analyzing biological specimens and filled the gap existing between two well developed instruments, the optical and the electron microscopes.