

软X射线多层膜反射镜的设计、 制备与检测

曹 健 林*

摘要: 本文提出一种图像直观、结果可靠的软X线多层膜设计方法,讨论了与软X射线多层膜制备有关的基板选择,膜厚控制等工艺问题。

给出Mo/Si软X射线多层膜小角度衍射及171Å、231Å及256Å处软X射线反射率的测试结果,并对软X射线多层膜工作做了展望。

一、引 言

自1972年E·Spiller(IBM公司)首先提出可以在软X射线波段应用多层膜技术大幅度提高反射率以来^[1],多层膜反射镜做为该波段最有希望的光学元件开始逐步受到人们的重视。进入八十年代以后,特别是从八十年代后期,这一工作更是有了突破性进展。非掠入射的多层膜反射镜已经开始在天文观测、高温等离子体诊断、同步辐射、X射线激光等领域中得到应用,并且在生物学、材料科学、光刻技术等许多科技领域中展示了广泛的应用前景。美国、日本、西德、法国、英国、荷兰、苏联等国家都有研究小组,一些大公司已经或正准备推出商品^[2,3]。

目前的软X射线多层膜反射镜在100Å以上波段正入射反射率已能做到40~60%;40~100Å之间可以做到10%以上。

八十年代后期以来,我国软X射线多层膜反射镜的研制工作也开始起步。复旦大学的郑天水等人制备的多层膜反射镜在波长68Å,入射角为60°时的实测反射率达到1.8%^[4];我所李懋廉等人制备的多层膜(基金项目)在波长44.7Å,入射角75°时的实测反射率达到8.3%。这些工作还不够完整,离实际应用和世界先进水平也还有相当距离。为了推动我国短波光学的发展,我们从1989年年底开始了实用软X射线多层膜反射镜的研制工作。本文即是到目前为止的阶段性和成果的总结。

二、软X射线多层膜反射镜的设计

多层高反膜系设计需要解决的中心问题有两个:一是选择镀膜材料;二是在给定材料、给定使用条件(主要是工作波段和入射角)之后,决定膜系所能达到的最大反射率与此对应的各层最佳膜厚值。对软X射线波段,许多文献中提出镀膜应交替使用高 z 和低 z 材料。

* 注:参加此项工作的人员还有,缪同群、朱秀芳、钱龙生、李福田、钱莉民、陈波、裴舒、薛立盛、陈星旦。

显然, 以此来选材标准是太笼统了。另外, 文献中给出的设计方法有一个共同的缺陷, 繁杂的表达式和众多的可变量使人们难以从中抽出清晰的物理图像, 以达到对问题本质的理解和认识。

这里给出为解决上述两个中心问题而发展起的一种计算简便、图像直观、结果可靠的设计方法^[5]。

设复折射率为 $N_j = n_j - ik_j$, 厚为 d_j 的各向同性均匀薄膜从 $j = 1$ 起至 $j = m$ 止, 依次镀在复折射率为 $N_0 = n_0 - ik_0$ 的无限厚平面基板上。波长为 λ 的单位光强平行光从真空中以入射角 ϕ 照射膜系表面。这样整个膜系的振幅反射率可以由 Berning 公式迭代计算^[6]:

$$R_j = \frac{r_j(1 - r_j R_{j-1}) + (R_{j-1} - r_j) \exp(-i\delta_j)}{1 - r_j R_{j-1} + r_j(R_{j-1} - r_j) \exp(-i\delta_j)}, \quad (1)$$

$$j = 1, 2, \dots, m$$

$$\delta_j = (4\pi N_j d_j \cos\phi_j) / \lambda \quad (2)$$

$$\sin\phi_j = \sin\phi / N_j \quad (3)$$

其中 R_j, R_{j-1} 分别为镀完第 j 层和 $j-1$ 层时膜系的振幅反射率, r_j 为第 j 层材料对真空的 Fresnel 反射系数。计算从 $j = 1$ 起 (这时 $R_0 = r_0$, 基板对真空的 Fresnel 反射系数), 到 $j = m$ 止。

由于所有物质在软 X 射线波段非掠入射条件下都有 $|r_j| \ll 1$, 略去两次和两次以上项,

(1) 式可以相当精确地简化成

$$\begin{aligned} R_j &\approx r_j + (R_{j-1} - r_j) \exp(-i\delta_j) \\ &= r_j + D_j (R_{j-1} - r_j) \exp(-i\theta_j) \end{aligned} \quad (4)$$

其中

$$D_j = \exp(-4\pi b_j d_j / \lambda) \quad (5)$$

$$\theta_j = 4\pi a_j d_j / \lambda \quad (6)$$

$$N_j \cos\phi_j = a_j - ib_j \quad (7)$$

图 1 是 (4) 式在复平面上的几何表示。我们可以清楚地看出, 随着膜厚 d_j 的增加 (镀膜过程), 振幅反射率 R_j 在复平面上的轨迹是一条以 r_j 的端点为中心, $D_j(R_{j-1} - r_j)$ 为动径, θ_j 为转角的旋转曲线。如果不做镀膜材料切换, 让 $d_j \rightarrow \infty$, 衰减因子 D_j 将使动径不断减小, 最终曲线陷入 r_j 的端点。

图 1 中 R_j 曲线到原点距离的平方 $|R_j|^2$ 给出膜系的光强反射率。显然, 高反膜系的设计任务就是使 R_j 曲线通过 d_j 的增加和镀膜材料的切换得以逐渐远离原点, 尽量向外扩张。据此, 得出选择镀膜材料的两个原则:

(1) 尽量减少动径的衰减, 对每层膜 (通常是由两种材料交替镀成) 都要求 $D_j \rightarrow 1$ 。从 (6) 式和 (2) 式得知, $D_j \rightarrow 1$ 要求 $k_j \rightarrow 0$, 或 $I_m(r_j) \rightarrow 0$ 。

(2) 为了让镀膜材料的切换能有效地使 R_j 曲线向外扩张, r_j 与 r_{j+1} 端点的距离应尽量大。这一点的证明见参考文献^[5]。

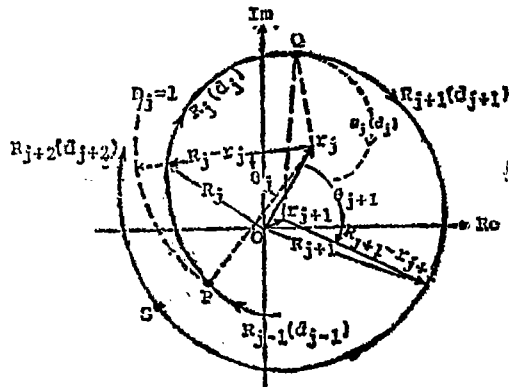


图 1 镀膜过程中 R_j 随膜厚 d_j 的变化在复平面上的表示

为了方便地使用这两个原则,我们将已掌握的软 X 射线光学常数 (n, k) 做成数据库存入计算机中,可以方便地在复平面上按给定波长和入射角图示多种材料的 Fresnel 反射系数。根据这两个原则,所选两种材料的 Fresnel 反射系数在复平面上应尽量靠近实轴,同时其间隔还应尽量大。图 2 给出 $\lambda = 120 \text{ \AA}$, $\phi = 0$ 时的结果(光学常数取自 Henke 等人的结果)。从图中可以看出,最佳镀膜材料是 Rh/Be、或 Ru/Be(这里的讨论以光学常数为基础,暂不涉及材料的安全性、稳定性及相互扩散等工艺问题)。

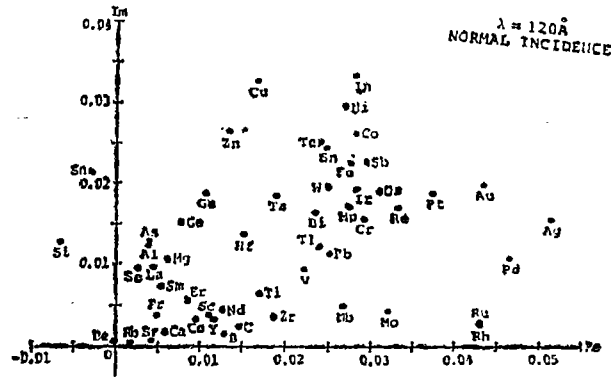


图 2 Fresnel 反射系数在复平面上的表示

在薄膜材料、入射波长和入射角给定之后, R_i 曲线完全由各层的膜厚 d_i 决定。可以证明,对于同一层膜,对应于同一起始点的 R_i 曲线不会相交(除了共同的终点 r_i 外)。根据这个不相交定理,起始点(镀膜材料的切换点)处的 R_i 曲线应能保证与前一段曲线(R_{i-1})沿切线方向光滑连接。只有这样,也只要做到了这样,现实的 R_i 曲线才(就)能总是处在所有可能的 R_i 曲线的最外端。图 1 给出的就是这样一条曲线,点 P、Q、S 为最佳起始(切换)点。

这个光滑连接的原则由日本东北大学科学计测研究所的 Dr 山本正树首先提出,笔者和他一起编制了基于这个原则的设计程序。该程序逐层求出最佳切换点,描出 R_i 曲线。 $|R_i|^2$ 给出可能达到的最大反射率,而与各个最佳切换点对应的 d_i 就是最佳膜厚值。由于物理图像清晰,目标明确,该程序比通常的设计程序简单的多。

这种根据光滑连接原则的逐层设计方法实际上不必做多层膜的迭代计算。求得切换点的 d_i 后,输出 d_i 和切换点的 R_{i-1} ,然后进入下一层搜索。这样,实际计算只需要一个双层膜体系,节省了很多存贮空间,计算速度也大大加快。

从原理上说,图 1 还是对镀膜过程的一个模拟。因此,如果能对镀膜过程的膜厚做准确的实时测量,加上对超薄膜光学常数的精确掌握,那么镀膜时就可以在计算机屏幕上展示图 1。这样,膜厚的实时测量装置亦可做为反射率的实时控制装置。由于(4)式的计算非常简单,加上软 X 射线多层膜的镀膜速率不可能很快,用目前的 16 位微机完成数据采集、计算和显示是不成问题的。

需要指出,由于每层膜的 R_i 曲线动径不同,根据光滑连接原则得出的 d_i 是变化的。即膜系是非周期的。随着层数的增加,两种材料的膜厚逐渐趋于两个稳定值,这就是周期膜系的两个最佳膜厚值。

图 3、图 4 是 $\lambda = 120 \text{ \AA}$, $\phi = 0^\circ$ 时的设计结果。图 3 给出(所能达到的最大)反射率随角度的变化,图 4 是反射率随层数的变化。所有的膜系都是 40 层。两图清楚地显示出了这里给

出的选材原则的有效性。结合图 2 可知,膜系 Ag/Be、Zn/Be、Rh/Si 都符合原则 (2),但不符合原则 (1),而膜系 Mo/Be 符合原则 (1),不符合原则 (2)。这些膜系所能达到的最大反射率都远小于理论最佳膜系—Rh/Be 所能达到的最大反射率。

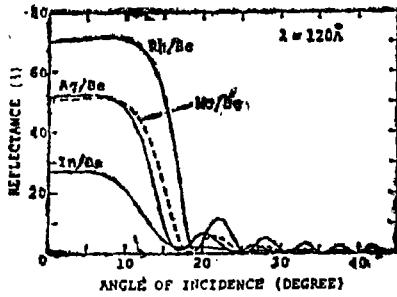


图 3 反射率随入射角的变化 (S偏振)

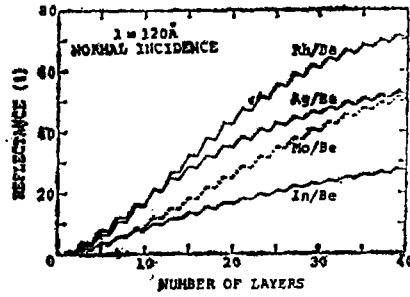


图 4 反射率随膜层数的变化 (S偏振)

这里的全部设计和模拟计算方法都已编制出相应的程序,存入 VAX 机中。利用这些程序,我们已在波长为 105.7 \AA , 171 \AA , 231 \AA , 256 \AA , 303 \AA 处设计了各种入射角下的多层高反射系,并做了大量预期反射率的模拟计算。

三、软 X 射线多层膜反射镜的制备

目前常用于制备软 X 射线多层膜反射镜的方法有电子束蒸发 (EB)、离子束溅射 (IBS)、磁控溅射 (MS) 直流溅射 (DCS)、激光溅射 (LS) 及分子束外延 (MBE) 等。常用的膜厚控制方法有石英晶体振荡器、时间积分控制法、干涉法、镀膜条件控制法、以及椭偏仪方法等。这些镀膜方法和膜厚控制方法各有各的特点,也都有其不足之处。这里主要介绍我们利用现有条件做的制备工作。

1. 基板

制备软 X 射线多层膜反射镜需要具有超光滑表面的基板。只有这样,才能有效地减少由于表面粗糙引起的散射。目前,国际上所有高水平工作中使用的基板其表面粗糙度的均方根值都在 5 \AA 以下,最好的已能达到 1 \AA 左右。使用的材料有光学玻璃 (BK_7 、熔石英)、硅片、SiC 等。

我们工作中使用的超光滑基板由所工厂光学车间提供,材料为熔石英和 K₉ 玻璃两种。表面粗糙度的检测由一台英国的 Talystep 完成,图 5 是一个典型的检测结果。



图 5 Talystep 测出的表面粗糙度曲线

由于我所的超光滑表面加工能力已经越过了一般 Talystep 的检测灵敏度,为了检查加工能力,我所的超光滑基板曾分别送往美国、日本,用 WYKO 干涉仪做过测量。最好的 rm

值达21Å, 据此, 我们估计工作中使用的基板其表面粗糙度已达到Å量级。

2. 膜厚监控

如何对镀膜过程中的膜厚实行准确的监控, 一直是软X射线多层膜制备过程中的关键。我们使用的方法是用Talystep标定石英晶体振荡器, 然后用石英晶体振荡器对镀膜过程做实时监控。

镀膜过程中的热辐射会严重改变晶体振荡器的振动频率。除了在晶片切型上做认真选择之外, 我们还调整了晶体探头的位置, 以尽量减少热辐射的影响。为了减少Talystep的测量误差, 定标时所镀单层膜的厚度一般在百Å量级。由于晶体振动频率的变化与镀膜材料、探头位置等都有关系, 定标实验做了多次。图6是Si、Mo的一个定标结果。

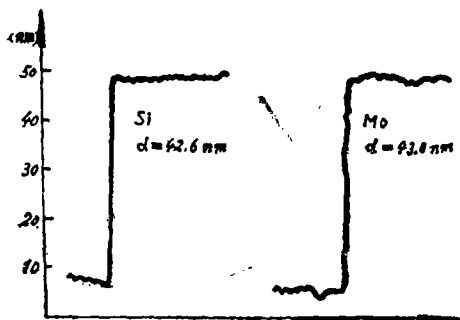


图6 定标测量结果

3. 制备

我们使用的是一台日本进口的(日本真空株式会社)EBV-6DA⁵型电子束蒸发镀膜机。该机电子枪功率为1.2kW配有4个坩埚。真空系统为油扩散泵机组, 本底气压可达 10^{-6} Torr, 工作气压在 $2-3 \times 10^{-6}$ Torr。

石英晶体振荡器的定标结果折合成Å/Hz的形式对每种材料给出。镀膜时将每层膜的设计值换算成频率数, 直接用频率计监控。操作中要注意热辐射的影响, 尽量争取扣除频率的热漂移。目前我们实际镀膜过程中的频率控制精度(与预定值的偏离)已能做到小于3Hz。对于轻元素, 这对应于3Å左右的膜厚控制误差; 对于重元素, 对应的膜厚误差小于1.5Å。

到目前为止, 我们已制备了正入射105.7Å, 45°入射171Å, 231Å, 256Å等4块多层膜反射镜。基板直径φ20mm, 材料都是Mo/Si。其中231Å的反射镜为非周期膜系, 其余都是周期的。限于篇幅, 这些反射镜的膜厚及反射率设计值这里不再给出。

四、软X射线多层膜反射镜的检测

1. X射线小角衍射

我们制备的每一块周期多层膜反射镜都用我所日本进口的Dmax/3B-C X射线衍射仪做了膜系结构检测。使用波长为1.54Å(铜靶)。

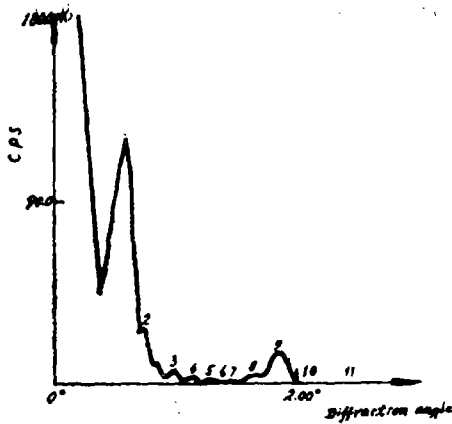
根据布拉格公式,

$$2d_r \sin\theta = m\lambda \quad (8)$$

其中 $d_r = d_1 + d_2$, 为膜系的周期厚度, d_1, d_2 分别为两种材料的膜厚, θ 为衍射角, m 为衍射级次, λ 为使用的X射线波长。图7为一个衍射仪的检测结果。如果能准确的测出两个相邻级次的衍射角, 利用(8)式就可以得出 d_r 。

2. 反射率测量的初步实验

多层膜反射镜检测中最重要的是反射率的实际测量。而软X射线波段反射率的准确测量联系到光源、探测器、单色仪、反射率计等许多问题, 这项工作在我国目前仍是空白。为了抢时间, 我们完成了下述反射率测量的初步实验, 主要目的是观察实验现象。其理由在



设计: $\phi = 0^\circ$ $\lambda = 105.7 \text{ \AA}$ $d_p = d_1 + d_2 = 54.6 \text{ \AA}$ 19层 $R = 10\%$ (41层时 $R = 19\%$)

X射线小角衍射检测结果: $\overline{d_p} = 58.2 \text{ \AA}$

图7 X射线小角衍射检测结果

于, 该波段所有物质的非掠入射反射率都很低, 而我们的光源经单色仪分光后强度不会很强, 如果经反射后仍能扫出信噪比很好的谱线, 说明我们的反射镜已经大幅度地提高了反射率, 并且我们的整个系统(从光源、单色仪到反射镜探测器)可以应用于下一步的该波段成像实验。

初步测量实验的原理见图8



图8

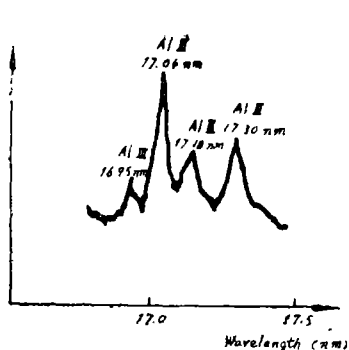
其中光源为自制的 Penning 气体放电光源, 流动气体工作(单配扩散泵排气); 单色仪为 McPherson247 (光栅 $R = 2.2\text{m}$, 600l/mm); 探测器为 CEM (通道电子倍增器)。测量时光源工作气压约为 10^{-3}Torr 量级(泵口处监测, $1 \sim 2 \times 10^{-5}\text{Torr}$); 放电电流 $200 \sim 300\text{mA}$ 电压 $500 \sim 1500\text{V}$; 电极使用了铝合金(LY12)、镁合金, 气体 Ar, He。单色仪缝宽 $S_1 = S_2 = 50\mu\text{m}$, CEM高压 2950V 。

利用这套装置, 我们对 171 \AA 、 231 \AA 及 256 \AA 3块反射镜做了定性的初步反射率测量实验。图9、图10是一部分结果。从这些结果可以看出: 经反射后仍能扫到信噪比很好的谱线(特别是对于 200 \AA 以上波段), 说明我们制备的反射镜其反射率已经达到了一定的水平; 同时也证明了我们可以利用这套系统(主要是光源和单色仪)开展使用多层膜反射镜的软X射线正入射显微成像、望远成像的研究。

由于本实验的反射装置过于简单。这里没有给出由反射光强度(相对)和入射光强度(相对)之比得到的实测反射率。我们认为, 这套装置还不能用于定量测反射率, 其原因为:

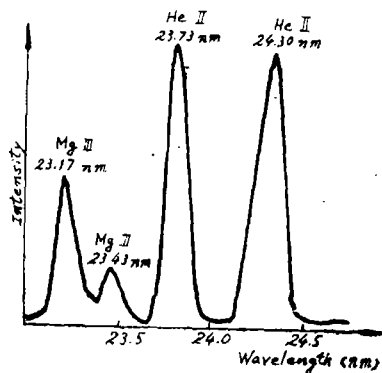
(a) 入射角不能调整, 仅靠螺栓的机械定位把反射镜放入光路, 这对于测量有多重反射干涉的多层膜反射镜反射峰是远远不够的。

(b) 由于入射角不能变化, 不能保证测全量和测反射量时光线都照射探测器的同一部



Mirror: 171 Å, 45°, 41 layers, periodic

图9 经反射后扫出的Al谱线



Mirror: 231.7 Å, 45°, 13 layers, aperiodic.

图10 经反射后扫出的Mg, He谱线

分, 探测器接收表面的响应不均匀影响极大。

(c) 测全量和测反射之间的转换要拆卸探测器, 造成整个系统真空状态的变化。由于气体放电光源的光强强烈依赖于工作气压, 真空状态的变化使光源不能稳定工作。

五、总结与展望

1. 对前段工作的总结与评价

综合以上工作可以得出如下结论: 我们已基本掌握了软 X 射线波段多层膜反射镜的设计、制备、检测等一系列工作的原理和方法, 具备了开展软 X 射线多层膜光学元件研制工作的基本条件, 对于 100 Å 以上波段, 已可以制备实用的软 X 射线多层膜反射镜。

这些工作在国内居领先地位。从国际上看, 由于软 X 射线光学是一门新兴学科, 我们与国际先进水平相差并不远 (而且这种差别主要在于我们缺乏一些昂贵的关键性测试设备)。从已发表的文献上看, 我们落后于美国、日本、西德, 可能与英、法差不多。

2. 存在的主要问题

(1) 缺乏关键性测试手段和设备。具体说来,

(a) 缺乏分辨率达到 Å 级的非接触式表面粗糙度检测装置, 使我们对所用超光滑表面的粗糙度值只能估计;

(b) 反射率测量装置还不完善。按目前的发展水平, 一个能准确测量软 X 射线波段多层膜元件反射率的装置至少应包括三部分: 一个能给出该波段强连续谱的光源; 一个便于与光源及反射率计连接的定偏向单色仪; 以及一个精度优于 0.1° 的精密反射率计。这三者到目前为止都是空白。

(2) 制备手段单一。国际上常用的离子束溅射、磁控溅射等制备方法还没有很好地搞起来。

(3) 膜系结构研究做得不够。目前利用的还只是 X 射线小角衍射。同掠入射时像差大一样, 小角衍射的测量误差较大。带到沈阳去做的一次电子显微镜断层测试 (这是结构研究中最直观的方法) 失败 (测试单位没有掌握相应的减薄技术)。

3. 预期和展望

为了解决上述问题, 我们已做了大量工作, 其中的一些可以在今、明两年内得到解决或

部分解决。

(1) 在应光室领导的大力支持下,我们与沈阳科仪厂和北京物理所一起研制了一台离子束溅射镀膜机。我方负责提供资金并提出物理设想、设计出整体和主要部件的原理性装配图,给出关键尺寸;北京物理所负责离子枪设计,沈阳科仪厂负责加工制造。这台设备不仅填补了国内空白,其主要设计指标达到国际八十年代产品水平。4月中旬已完成审图,预计10月份完成加工,经2—3个月的调试(去厂家)后,明年年初交我们使用。如果能按计划完成,从明年起我们的软X射线多层膜制备水平将有相当大的提高。

(2) 结合863课题的需要,一台由微机控制的VUV、软X射线反射率计从本月起开始安装调试,与McPherson 247联接。一个脉冲放电的BRV软X射线连续谱光源由一名研究生负责制做,目前正在加工中。软X射线定偏向单色仪的研制工作也正在考虑。在这些装置能够连起来正常工作之后,我们的测量工作就能向前迈一大步。

(3) 为了使我们的工作能够深入做下去,并得到尽可能多的资助,我们申请了国家自然科学基金(包括重点项目、一般面上项目和青年科学基金项目)、省科委青年基金、以及所长青年基金。研究内容包括软X射线光学的许多方面,如成像元件、色散元件、偏振元件、宽带反射镜、正入射显微镜、正入射望远镜、以及定偏向单色仪、薄膜截止滤光片等。如果这些项目能够得到批准,将会使我们能够充分发挥我所的特点和优势,在国内站稳脚跟,为下一步全面赶超世界先进水平打好基础。

(4) 我们已开始与国内从事与X射线光学有关工作的单位建立联系,有些已开始合作。如果首轮合作成功,不仅能扩大影响,争得用户,我们还能从这些合作中提高自己,为促进我国短波光学的全面发展尽我们的义务。

参 考 文 献

- [1] E. Spiller, Appl. Phys. Lett., 20, 365, (1972)
- [2] Proc. SPIE, 984, (1988)
- [3] Proc. SPIE, 1160, (1989)
- [4] 郑天水等; 光学学报, 8卷, 6期, (1988)
- [5] 山本正树, 曹健林, 波罔武; Proc. SPIE, 1140, p448, (1989)
- [6] P.H. Berning; "Physics of Thin Films", 1, p 69—121, Academic Press, New York. (1963)

Design Fabrication and Test for Soft X-ray Multilayered Mirrors

Cao Jianlin

Abstract

This paper presents a simple and efficient method for the design of soft X-ray multilayered coating and discusses the relevant techniques such as substrate preparation and film thickness control etc. X-ray small angle diffraction measurement results and soft X-ray reflectance measurement results at 171\AA , 231\AA and 256\AA were given in detail. Finally the future development for soft X-ray multilayered coatings was commented.