

X 射线波段多层膜光学元件及其应用

曹健林 缪同群 马月英 朱秀芳 陈星旦

(应用光学国家重点实验室)

摘要: 用于X射线、特别是软X射线其波长范围约为(1~30) nm波段的多层膜光学元件近十年来引起了人们的广泛重视,取得了许多重要进展。本文对这种多层膜光学元件的特点、制备和检测方法、应用领域、以及国内有关工作的近况做简要介绍。

一、引言

每层膜厚为nm量级的多层膜制备与应用研究近年来取得了一系列突破性进展。这类多层膜已经在超导、磁性材料、量子阱、中子光学以及X射线光学中得到了广泛的应用。本文只介绍用于X射线光学及其相关领域中的多层膜光学元件。其工作原理可以用两种模型描述:按量子力学观点,每个原子散射或吸收光子,总反射是对所有原子散射的迭加,整个多层膜系满足布拉格条件;按经典光学观点,各界面的反射满足干涉增强条件。

早在本世纪二十年代人们就发现,基于全反射机制的掠入射反射镜是X射线波段能够应用的唯一光学元件。这一限制起源于光子与物质的相互作用。该波段的光学常数可以表示为^[1]:

$$N = 1 - \delta - ik \quad (1)$$

式中 N 为复折射率, k 为消光系数(代表吸收), δ 和 k 是两个很小的量(约为 $10^{-4} \sim 10^{-2}$ 量级)因此,没有适于制造透镜的材料,同时非掠入射反射率也极低($10^{-3} \sim 10^{-4}$ 量级)。

掠入射光学系统集成光本领差,需要大口径光学元件,这给加工带来很大困难,并且像差严重。为了从根本上克服这些障碍,IBM公司的E. Spiller于1972年首先提出^[2],可以在经过超光滑加工的基板材料上用吸收和散射材料(一般是重元素和轻元素)交替镀 $\lambda/4$ 波堆,这种多层膜系有可能大幅度提高反射率,进而作为X射线波段非掠入射反射镜使用。制备样的多层膜光学元件有两个必备的先决条件,一是高质量基板,“超光滑”意味着表面粗糙度的均方根值要小于 $\lambda/10$;二是高膜厚控制精度,膜厚 $\lambda/4$ 时至少要求控制精度优于 $\lambda/40$ 。考虑到原子线度为亚nm量级,显然,制备X射线多层膜元件要求人们的加工、测量、以及膜厚控制精度都要提高到原子尺度。

经过不断努力,八十年代初Spiller以及美国洛仑兹—利弗莫尔实验室(LLNL)的Barbee等人制备的多层膜反射镜10nm以上波段正入射实测反射率已大于10%,初步达到实用要求。到八十年代末,10nm以上波段已有正入射实测反射率达到60%的结果,比不镀

膜高几个数量级。这些多层膜少则几十层，多则几百层，如此数量的多重反射干涉其反射峰半宽度很小，因此多层膜还具有很好的波长选择性。另外，工作在准Brewster角条件下的多层膜元件还可以作为很好的偏振器或检偏器使用。

多层膜元件的高反射率特性、波长选择特性以及偏振特性在 X 射线光学及其相关的许多领域，如同步辐射、高温等离子体诊断、X 射线激光、X 射线光刻、大气层外天文观测、生物学、医学等领域的研究中已经得到应用，或正展现出巨大的应用前景。由于这些领域对科技发展、经济乃至国防建设都有重要意义，X 射线多层膜光学元件的制备与应用已发展成一个相当活跃的新学科，全世界几十个设备先进、资金雄厚的实验室或研究小组都在开展工作，一些公司已经推出商品。

二、制备和检测

1. 设计

由于以麦克斯韦方程组为基础的经典光学理论在 X 射线波段反射率计算中仍可适用，该波段的多层膜光学膜系设计可以借用可见光波段薄膜光学中发展起来的方法。结合该波段光学常数特性，解决挑选镀膜材料、决定最佳膜厚值、膜系性能计算等设计问题。另外，在衍射动力学理论上发展起来的方法也被用来解决设计问题。

镀膜材料选择还必须结合制备工艺、膜系的工作稳定性等进行考虑。以提高反射率为主要目标的 X 射线多层膜光学元件对镀膜材料的要求可归结为：

- (a) 两种材料复折射率的实部之差要尽量大（使每个界面的反射尽量大），同时虚部都要尽量小（减少吸收，提高镀多层膜的有效性）；
- (b) 界面稳定，没有化学反应或严重扩散；
- (c) 在给定厚度内能形成均匀、致密的膜。

综合以上几点考虑，目前常用的材料有 W、Re、Rh、Ru、Mo、Ni、C、Si、BN 等。

2. 制备

(1) 超光滑表面加工和检测

随着超精密加工技术的进步，目前人们已能用光学玻璃、熔石英、单晶硅、碳化硅等材料加工出表面粗糙度均方根值小于 0.5nm 的超光滑表面。小于 0.1nm 的结果也有报导。除了表面超光滑之外，X 射线成像光学元件的曲面基板还对面型精度有严格要求。目前球面板的整体面型精度已能做到 10nm 量级。

在光学表面加工工作中，准确、方便的测量无疑是极为重要的。将干涉测量技术与现代计算机技术结合的一些先进仪器（如 WYKO、ZYGO 等）其纵向分辨率已达 0.1nm，高分辨率的扫描隧道电子显微镜（STM）也常用于表面粗糙度检测中。随着精密测量技术和电子学技术的发展，这方面的工作进展很快。

(2) 镀膜方法

常用于制备 X 射线多层膜光学元件的镀膜方法主要是两大类：电子束蒸镀和离子溅射。电子束蒸镀真空度高（超高真空镀膜机 $p < 10^{-6}$ Pa），特别适于蒸镀易氧化材料，但这类方法产生的蒸镀粒子动能小（0.2~0.4 eV），膜系疏松，实现稳定的镀膜速率控制比较困难。离子溅射方法又分为离子束溅射、射频磁控溅射、直流溅射等几种。溅射粒子的能量较大（6~10 eV），在基板上堆积紧密，膜系密度较大。这类方法的一个显著优点是溅射过程容易控制，

能得到稳定的镀膜速率，对控制膜厚十分有利。其缺点是使用工作气体，镀膜室中真空度低（一般为 10^{-2} Pa量级）。

一些新的薄膜制备方法，如分子束外延（MBE）、原子层外延（ALE）等近年来也被用于制备X射线多层膜。这类外延方法能够以分子（原子）层的方式精确控制膜厚，并且能够得到晶体结构的膜。目前存在的主要问题是生长高熔点材料和制备大面积元件相当困难，设备造价也高。

（3）膜厚控制

不论采用那种方法镀膜，制备X射线多层膜光学元件的关键都在于是否做到了实时地对膜厚做原子尺度的控制。目前的控制方法主要是X射线反射监控法、椭偏仪方法、石英晶体振荡器以及时间控制法等。

X射线反射监控与常见的可见光反射膜厚控制方法类似。光源当然要使用X射线源，另外，镀膜初期元件的反射率很低，要使用比较样品（反射镜）并做定标计算。由于X射线波长短，反射光强对膜厚的变化非常敏感，只要能准确测出反射光强的变化，控制精度可以做到优于0.1nm。

椭偏仪方法原理也很简单。由于椭偏函数（反射光场中P分量与S分量之比）对膜厚的变化极为敏感，用光源（可见光）、蒸镀样品以及起偏器、检偏器、补偿器等组成反射式椭偏仪，测出椭偏函数在镀膜过程中的变化，经数据解析可直接得出膜厚值。这种方法灵敏度可优于0.05nm。

石英晶体振荡器是目前使用最广泛的一种膜厚控制方法。在制备X射线多层膜元件中需要注意的是由于膜很薄，每层膜对应的频率变化一般是几十Hz，因此振荡器本身要有足够的稳定性。另外，对能引起频率变化的干扰因素如热辐射、电磁辐射等必须加以严格的屏蔽和修正。如果做到了这些，这种方法的控制精度也能做到优于0.1nm。

镀膜时间控制法的关键是镀膜设备（工作条件）的稳定性和再现性。由于能影响镀膜速率的因素很多，因此这种方法对设备有严格的要求。

3. 检测

测量样品在工作波长处（或波段内）的反射率是检查X射线多层膜光学元件之质量，综合评价制备工作的最主要方法。

典型的X射线多层膜反射率测量系统由连续X辐射源、单色仪以及反射率计、探测器等组成。反射率计中的样品和探测器至少要做共轴旋转运动，以改变入射角和测量反射率随入射角的变化。需要指出，由于多层膜的反射率随波长和入射角都可能有急剧变化，单色仪要有足够的分辨率，反射率中的角度变化也要有足够的精度（一般要优于1分）；另外，大气对该波段辐射有强烈吸收，全部装置必须在高真空条件下工作。目前比较理想的反射率测量装置都使用同步辐射做光源，安装在同步辐射光束线上。一些设备先进的研究小组还在自己的实验室中建立了用大功率激光打靶产生高温等离子体（Laser-produced plasma）做连续辐射源的反射率测量装置。

除了实测反射率之外，研究、检查多层膜的结构和表面、界面状态，了解这些因素对元件光学性能的影响也是很重要的。例如，用高分辨电子显微镜观察多层膜断层，可直接得到膜厚、膜层结构、界面状态等许多信息；用X射线衍射仪可以检查多层膜的周期结构；用俄歇谱仪可以研究表面、界面的氧化和扩散情况等。

关于X射线多层膜光学元件的设计、制备检测等，有进一步兴趣的读者可查阅专门的论

三、应 用

多层膜光学元件在X射线光学及相关领域中应用很多，发展很快。下面只就几个主要方面简要介绍。

1. 软X射线正入射显微镜

软X射线显微术研究是X射线光学中历史较长的部门。它的一些独特优点一直吸引着人们的注意力。这主要是：(a) 使用波长比可见光短两个量级，进而有可能得到比可见光高两个量级的分辨率；(b) 组成有机物质的元素X射线吸收边主要集中在该波段，提供了高观察对比度，观察生物样品不必像电子显微镜那样对样品做切片、脱水、染色，可以对细胞进行活的实时观察。另外，以研究激光核聚变为代表的高温等离子体诊断技术也对软X射线显微镜提出了迫切要求。而多层膜反射镜则使正入射软X射线显微镜成为可能。

目前几乎所有同步辐射实验室都在进行使用多层膜反射镜的正入射软X射线显微镜（或显微术）研究。利用Laser-produced plasma的一般实验室用软X射线显微镜美、英、法、日、苏等国也都在搞。目前分辨率已优于100nm，估计不久即可达到20~30nm。

2. X射线正入射望远镜

来自宇宙空间的X射线辐射几乎全部被大气层吸收，因此，该波段的观测自然成为大气层外天文观察中最重要、最有意义的组成部分。多层膜的高反射率为制造正入射X射线天文望远镜开辟了道路。同传统的掠入射X射线望远镜相比，正入射可以使用加工精度远高于非球面的球面光学系统，减少像差，并且大大减少光学系统所占的空间。

美国的NASA和LLNL合作研制了使用两块多层膜反射镜的Cassergrain软X射线正入射望远镜，清晰地拍下了17.1nm、17.4nm的日冕照片，分辨率达到1.2弧秒，而望远镜的口径和长度分别只有7.5cm和62cm。由多个这样的望远镜组成的阵列（工作波长为4.4—30.4nm）研制工作估计已经完成。

3. 多层膜色散元件

按固体物理学观点，多层膜结构是一种晶格常数可以控制的一维人造晶体。随着入射角的变化，它可以在一定范围内变化反射峰的波长做波长选择。由于多层膜结构的反射率高，这类色散元件特别适用于那些对辐射通量要求高，单色性要求不太严格的场合，如光刻、光化学实验等。

西德BESSY的科学家们用400层W/Si多层膜做色散元件，用在同步辐射光束线200-1600eV波段单色仪中，其输出通量比传统器件高得多。日本东北大学科学计测研究所和国立高能物理研究所光子工厂的科学家们用多层膜反射镜做反射式滤光片进行SiH₄气体的光化学沉积(PCVD)实验，经过26小时强照射（反射光强约为10¹⁴~10¹⁵光子/秒），工作波段（60~110）eV的反射率仍有初期值的70%。LLNL的Barbee等人还试制了镀多层膜的X射线光栅，显著改善了其性能。这类使用多层膜色散元件的工作几乎所有同步辐射实验室都在搞，飞利浦公司、理学公司还推出了使用这类元件的X射线光谱仪。

4. X射线激光研究

多层膜的高反射率特性和波长选择性引起了从事X射线激光研究的科学家们极大的兴趣。如何利用这两个特性已成为开发X射线激光谐振腔的关键之一。目前已得到利用的多层

膜元件有平面反射镜、聚焦反射镜、分束器、高色散反射镜等。另外，利用多层膜元件的诊断仪器和技术也会加深人们对 X 射线激光过程的认识，在研究中发挥重要作用。

四、国内的研究工作

我国的 X 射线多层膜光学元件制备研究起步于八十年代中期。复旦大学曾制备过 Ni/C 膜系，入射角为 60° 时实测反射率为 1.8% (波长 6.1nm)^[4]；中科院长春光机所完成了软 X 射线多层膜反射镜初步研究的国家自然科学基金项目，试制的 4.47nm W/C 膜系入射角为 70° 时实测反射率达 8% 左右。中国科技大学在结构分析和膜系设计等方面也开展了一些工作。

中科院长春光机所在长期光学加工、检测和光学薄膜、短波光学等研究工作基础上，从八十年代末起，开始了比较系统的 X 射线多层膜光学元件制备研究。图 1 给出用 WYKO 表面轮廓仪对该所加工的 K_α 玻璃超光滑基板进行表面粗糙度检测的结果。图 2 和图 3 分别

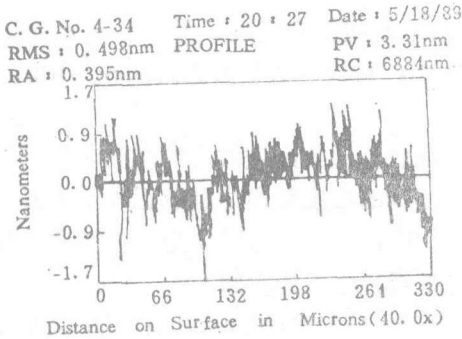


图 1

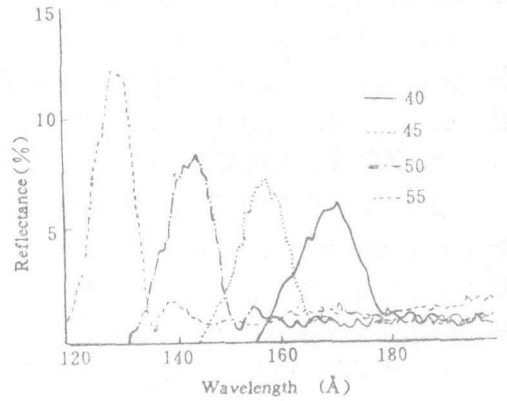


图 2

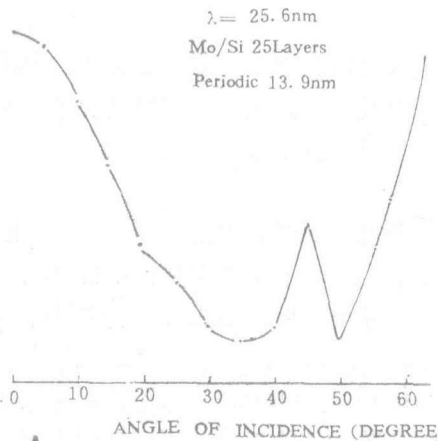


图 3

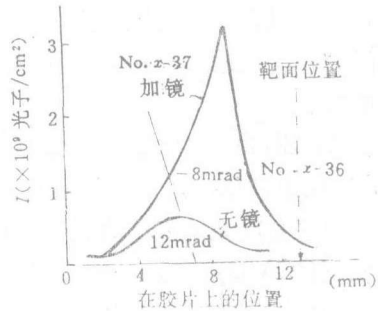


图 4 时间积分测量结果。No. X-36 (无镜) 和 No. X-37 (有镜) 两发打靶获得的线强度明显不同。横坐标为胶片上非色散方向的位置。

为日本进口高真空电子束镀膜机和自己设计的离子束溅射镀膜机制备的Mo/Si多层膜反射镜反射率实测结果。自行研制的软X射线波段辐射计量系统已能对16nm以上波段的某些波长处(线谱)做精确的反射率测量,能在10nm左右波段做任意波长处反射率测量的Laser-produced plasma系统之加工装调正在进行。这些工作的详细报告见参考文献^[5~8]。

在应用方面,我们制备的一批Mo/Si31层正入射平面反射镜(工作波长23.2nm)已用于中国工程物理研究院西南核物理与化学研究所1991年年初的X射线激光打靶实验中,成功地实现了23.2nm、23.6nm类氦锗3S—3P X射线激光的双程放大,时间积分测量结果表明,双程放大为单程放大信号的5倍多;时间分辨测量结果表明,对反射镜的作用时间做修正后,双程放大为单程放大的10倍左右。图4给出时间积分测量结果。

五、结 语

从总体上说,X射线多层膜光学元件的研制与应用还是一门年轻学科,急待解决的问题还有很多。该波段材料的光学性质、特别是超薄膜状态下的光学性质还研究得很少,光学常数等基本数据还相当缺乏。超光滑表面的加工精度和成像元件的整体面型精度还有待于进一步提高。从表面粗糙度和面型精度与波长的比值看,目前X射线光学元件的最高水平还没有达到可见光波段一般光学元件的水平,致使有关仪器的分辨率离衍射极限还差得很远。镀膜的膜厚控制、成膜机理、薄膜结构、表(界)面状态等一系列影响反射率增加的因素中还有许多问题没搞清楚。从应用方面看,目前大部分工作仍集中在一些大实验室(如同步辐射)和中心,真正推广还必须做很多工作。

参 考 文 献

- [1] B. L. Henke et. al; Data Nucl. Data Table, 1982, 27
- [2] E. Spiller; Appl Phys. Lett., 1972, 20, 365
- [3] See, for example; Proc. SPIE, 1988, 984; 1989, 1140; 1989, 1159; 1989, 1160
- [4] 郑天水、沈元华; 光学学报, 1988, 8-6, 572
- [5] 曹健林等; 光学学报, 1990, 10-8, 706
- [6] J. Cao et al.; Proc. SPIE, 1990, 1345, 78
- [7] 曹健林等; 光学机械, 1990, 5, 33

Multilayer Elements of Soft X-ray

Cao Jianlin, Miao Tongqun and Ma Yueying

Abstract

The optical multilayer elements, applied in X-ray technique, especially soft X-ray, ((1—30)nm) which have been collected massive interesting, have got many important developments in recent decade.

In this paper, some things about X-ray multilayer elements, such as the characteristics, manufacturing and measuring methods, their applied field and the investigation status of domestic progress, are given briefly, based on the author's experience.