

工作波长短于 10nm 的软 X 射线多层膜

吕俊霞 马月英 张俊平 王占山 曹健林

(中国科学院长春光学精密机械研究所
应用光学国家重点实验室, 长春 130022)

摘要 本文对工作波长短于 10nm 的软 X 射线多层膜正入射反射镜的国内外现状作了简单的介绍和分析, 给出选择多层膜材料的一些原则, 并结合本组情况选择了 Ru/B₂C、Rh/B₂C 和 Mo/B₂C 三种材料组, 在波长 8.0nm 附近设计并计算出多层膜的结构和反射率等性能参数。

关键词: 软 X 射线; 多层膜反射镜; 正入射; 膜系设计和模拟计算

1 引言

1972年, Spiller^[1]提出了可以利用多层膜技术在软 X 射线波段有效地提高反射率的思想, 开创了软 X 射线波段正入射成像研究的新局面。八十年代, 世界上许多国家的实验室和大公司的研究小组相继开展了软 X 射线多层膜技术研究。在众多科学家的努力下, 软 X 射线多层膜技术发展非常迅速。目前, 在所有软 X 射线应用中都出现了多层膜正入射系统。

利用膜系多界面反射干涉的软 X 射线多层膜具有高的反射特性, 波长选择性, 以及偏振特性。近年来, 随着软 X 射线光学技术的发展, 多层膜元件已相当广泛地应用于星载软 X 射线望远镜、软 X 射线显微镜、软 X 射线激光和软 X 射线投影光刻等研究领域^[2~5], 受到科技界、甚至产业界的关注。软 X 射线投影光刻是软 X 射线光学中最引人注目的应用, 是下世纪微电子行业制造千兆位集成电路芯片最有前途的技术。据报道, 美国采用工作波长为 14nm 的球面软 X 射线多层膜系统, 已得到 0.1 μ m 以下线宽和间距的实验结果; 日本电信电话公司 (NTT) 用类似系统, 也得到 0.2 μ m 的实验结果。软 X 射线显微术的应用主要有两个方向, 一是研究生物样品, 特别在水窗波段, 它是一种观察活样品的全新光学成像方法; 二是表面科学研究和微量元素的分析。在软 X 射线望远镜中, 美国 1989 年发射的多层膜正入射望远镜, 在火箭上观测太阳, 获得的照片分辨率达亚弧秒。在这些工作中, 软 X 射线多层膜反射镜都是最重要的光学元件之一。

• 国家自然科学基金资助项目

收稿日期, 1995年8月15日

2 研究现状

软 X 射线多层膜是由高 Z/低 Z 两种材料交替组成的,不同波长处选择的最佳材料对也不同。在 13nm 以上波段,Mo/Si 一直是最受重视的多层膜材料对,计算出来的理论反射率很高($\lambda \sim 13.0\text{nm}$, $R \sim 76\%$);在 $\lambda = 13.0\text{nm}$ 处,Mo/Si 多层膜的正入射反射率最高已做到 65%^[6]。该波段的多层膜达到了实用化水平,前述应用领域中使用的多层膜绝大部分工作在这个波段之内。另外,11.1nm 是 Be 的 K 吸收限,在此以上波长,以 Be 作为低 Z 材料的多层膜理论反射率最高可达到 80%。最近,美国 Lawrence-Livermore 实验室报道了 11.3nm 处 Mo/Be 多层膜正入射反射率已做到 68.7%^[7],这是到目前为止,软 X 射线区获得的最高正入射反射率。但由于 Be 有毒,很少有人把它作为多层膜材料使用。

工作波长短于 10nm 的多层膜元件离实用化水平尚有相当的距离。该波段还没有找到象 Mo/Si 多层膜那样高质量的材料对。例如,在 7~10nm 波长范围内,多层膜的正入射反射率最高只有 20%左右;而在水窗波段,正入射反射率最高只达到 1%~3%。目前,世界上很多国家都在加紧研究工作波长较短的正入射软 X 射线多层膜元件,以配合软 X 射线显微术、软 X 射线激光等研究。

美国 Lawrence-Livermore 研究小组在八十年代末就开始了波长短于 10nm 的多层膜研究工作,制备出了多种金属/B₁C^[8,9]和金属/C^[10]等多层膜,其中 150 层 Ru/B₁C 多层膜在 7nm 附近正入射反射率达 20%^[9]左右。加拿大的 C. Montcalm 小组和 Arizona 大学的 J. M. Slaughter 小组对金属/Y 和金属/B 以及金属/Be 等多种材料结构进行了研究,其中制备的 500 层的 Mo/Y 多层膜反射镜反射率在 11.5nm 处达到 34%,在 8.1nm 处为 22%^[11]。在水窗波段,美国海军研究所的 J. F. Seely 小组制备出了在 3.4~5.0nm 波段正入射反射率为 2%的 W/B₁C 多层膜^[12];乌克兰的 A. I. Fedorenko 小组制备的 W/Sc 多层膜在 3.1~3.2nm 处反射率已达到 3.3%^[13]。另外,Spiller 研制的多层膜在波长 4.5nm 和 6.3nm 处正入射反射率在 1989 年已分别达到 5%和 14%。

实际上,根据材料的光学常数计算的多层膜反射镜的理论计算值远比实验得到的结果高。比如,Ru/B₁C 多层膜反射镜在 7.19nm 处理论反射率为 42%^[9];Pd/B、Ag/B 等多层膜反射镜在 8nm 处理论反射率达到 51%^[14];Mo/Y 多层膜反射镜的理论反射率在 8nm 处为 40%,在 12nm 处达到 62%^[11];在水窗波段,W/Si、W/B₁C 的理论反射率最高可达到 50%^[13]。

从以上比较来看,理论反射率要比实验得到的结果至少高一倍。这主要是由于该波段波长相对较短,多层膜制备要求极为严格,它不仅需要表面粗糙度在零点几个纳米以下的超光滑基片和极高的膜厚控制精度,还要求多层膜的界面清晰。目前,人们在超光滑表面和高精度膜厚控制上进展较大,基本达到了制备技术的要求,但界面的扩散问题尚未解决。很多研究小组针对界面扩散问题,从材料组匹配到制备技术等多方面进行研究。

我国软 X 射线光学研究已有数十年历史。80 年代中期开始,国内一些单位开始研究软 X 射线多层膜技术,工作波长集中在 13nm 以上。长春光机所研制的 Mo/Si 多层膜在 13nm 附近正入射反射率已达到 50%^[15]左右,在此基础上,逐渐向更短波长(10nm 以下)扩展。

3 多层膜材料的选择

由软 X 射线多层膜理论可知,为了获得高的反射率,多层膜材料选择应该遵循以下原则:

1)第一种材料应选择吸收系数尽可能低的材料,作为间隔层材料,即前面提到的低 Z 材料。间隔层材料的吸收系数决定了多层膜的最大周期数 N_{\max} ,周期数 N 较多可使反射率提高。例如,当吸收系数为零时,对 N_{\max} 则没有限制,此时,多层膜反射率可能随 N 的增加而达到 100%。

2)挑选和第一种材料形成的 Fresnel 反射系数尽可能大的材料作为第二种材料。

3)如果几种材料得到的 Fresnel 反射系数接近,选择吸收系数小的材料。

4)确定在制备过程中形成清晰、光滑的界面,即界面粗糙度 σ 应小于多层膜周期厚度的 1/10。

另外,多层膜反射镜还存在着一系列的老化机制,例如:原子沿界面的扩散,使平面层变成多孔状结块;相邻层的扩散混合,形成液体或固熔体化合物;在多层膜反射镜——衬底系统中的应力释放,使多层膜变形或破裂;等等。我们可以避免,或至少可以通过选择用于多层膜反射镜的材料来减轻这种机制的破坏效应。因此,除以上提到的根据材料的光学常数,在所需要的软 X 射线波长范围内保证高的反射系数外,在材料选择时还要考虑:材料对在它们的界面应处于热动力学平衡状态;它们应具有尽可能高的熔点,且热膨胀系数相等;外界因素的影响不引起相结构的变化或相变等等。显然,同时满足所有这些要求几乎是不可能的,因此,在选择材料时,我们至少可以作到尽量满足那些最重要的条件。

B 和 C 分别在 6.67nm 和 4.4nm 处有一吸收限,在波长短于 10nm 范围内,B 和 C 经常被作为间隔层材料。B_iC 材料由于其光学常数在该波段接近于 B 和 C,且它可以与多种材料形成更稳定光滑的界面层,近来很多研究小组都把它作为低吸收材料来代替 B 和 C 等材料。

4 多层膜性能模拟计算

根据 B. L. Henke 等人^[16]给出的原子散射因子计算出材料的光学常数,选择 B_iC 作为低 Z 材料,金属 Mo、Ru 和 Rh 等材料作为高 Z 材料,其中 B_iC 的密度采用 2.52g/cm³。利用本组以前完成的计算程序^[17]确定出膜厚周期、金属膜层厚度与周期厚度的比值 γ 。表 1 给出了计算结果。

Tab. 1 Parameters of X/B_iC(X=Ru, Rh and Mo) multilayers
for 8nm wavelength at normal incidence

metal materials X	material density (g/cm ³)	period thickness 2d (nm)	$\gamma = d_x/2d$	number of layers N	ideal reflectance R
Ru	12.06	4.10	0.405	150	50%
Rh	12.44	4.09	0.40	200	49%
Mo	10.20	4.08	0.42	200	38%

正如前面所述,由于材料有吸收,随着膜层数的增加,膜系反射率会饱和到一个小于 1 的

稳定值;有时甚至随层数的增加反射率反而减小。图 1 给出 Rh/B₂C 多层膜反射率随层数 N 的变化曲线,由此确定出膜系的膜层数 N (见表 1)。

基于波动光学原理,利用迭代法对多层膜的性能进行模拟计算。

4.1 反射率随入射角度的变化

在实际测量多层膜正入射反射率的实验中,只能测出反射镜在小角度入射时的反射率,因此给出多层膜反射镜反射率 R 随入射角 θ 的变化曲线是很有意义的。图 2 是 Ru/B₂C 的 $R \sim \theta$ 曲线,多层膜参数见表 1。

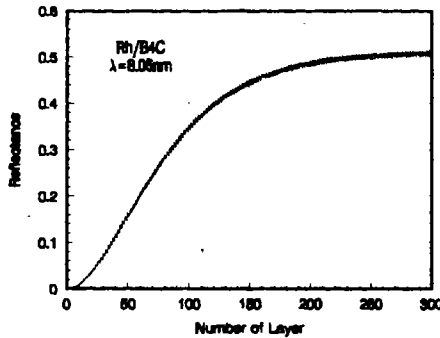


图 1 Rh/B₂C 多层膜反射率随层数 N 变化曲线
Fig. 1 Calculated reflectance of Ru/B₂C multilayer vs. the number of layers N

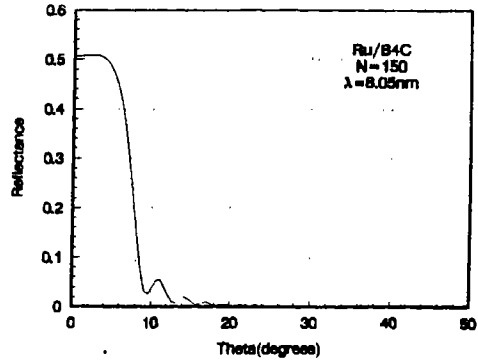


图 2 150 层 Ru/B₂C 多层膜的 $R \sim \theta$ 曲线
Fig. 2 Calculated reflectance vs. θ for 150 layers Ru/B₂C multilayer

4.2 反射率随波长的变化

从多层膜正入射时反射率 R 随波长 λ 的变化曲线不但可以看出多层膜的峰值反射率,还可看出峰值半宽,这对元件的应用有一定的指导意义。从图 3 中 Mo/B₂C, Rh/B₂C 多层膜的 $R \sim \lambda$ 曲线中可以看出 200 层 Mo/B₂C 多层膜在 8.05nm 处理想峰值反射率达到 36%,而相同层数 Rh/B₂C 的 R 可达到 49%。

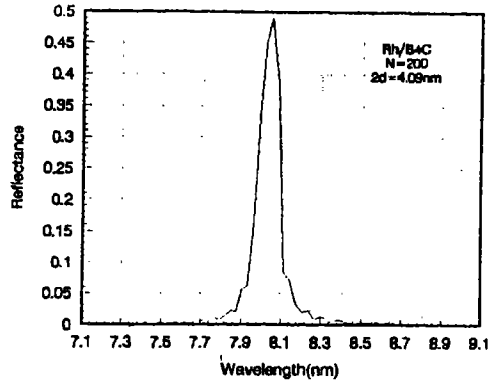
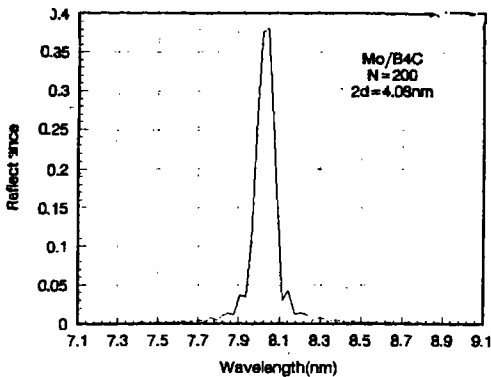


图 3 200 层 Mo/B₂C, Rh/B₂C 多层膜的 $R \sim \lambda$ 曲线

Fig. 3 Calculated reflectance vs. wavelength λ for 200 layers Mo/B₂C and Rh/B₂C multilayer at normal incidence

4.3 膜厚控制误差的影响

以上模拟计算均是对理想情况进行的,即表(界)面粗糙度 $\sigma=0$,膜厚控制误差 $\Delta d=0$ 。而实际制备过程中,两者偏离理想情况都是不可避免的。控制误差 Δd 越大,则周期厚度 $2d$ 变化越大,由此引起峰值波长位置的偏移越严重,对于 10nm 以下波段的多层膜来说,由于峰值半宽非常窄,设计波长处的反射率随 Δd 增加下降极快。因此,解决膜厚控制误差在多层膜制备中是最关键的问题。

4.4 表(界)面粗糙度的影响

软 X 射线工作波长短,表(界)面粗糙度引起的散射使反射率下降很快。若用简单的标量散射理论来描述,正入射时,将 Debye-Waller 因子 $D = \exp[-(2\pi\sigma/\lambda)^2]$ 代入 Fresnel 公式,反射率 R 为:

$$R = R_0 \exp[-2(2\pi\sigma/\lambda)^2]$$

其中 R_0 为理想表面反射率, σ 为表(界)面粗糙度。图 4 中 Ru/B₄C 多层膜粗糙度分别为 0, 0.2nm, 0.4nm, 0.6nm。从图中可以看出,当 $\sigma=0.6$ nm 时,反射率 R 下降了近 10%。这也是我们选择界面粗糙度小的材料组的主要原因。

5 结 论

本文通过对波长短于 10nm 的软 X 射线正入射多层膜的研究现状分析,选择了 Ru/B₄C、Rh/B₄C 和 Mo/B₄C 三种材料组,在工作波长 8.0nm 处,设计并计算了多层膜的结构和反射率。150 层 Ru/B₄C 在该波长处理论反射率达到 50%,而 200 层 Rh/B₄C 和 Mo/B₄C 多层膜理论反射率分别为 49% 和 38%。另外还对制备中的关键参数,如膜厚控制误差和表面粗糙度做了简单计算和讨论,这对下一步实际制备过程有一定的指导意义。

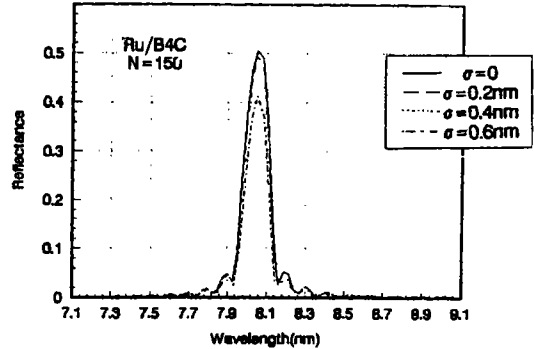


图 4 粗糙度分别为 0, 0.2nm, 0.4nm, 0.6nm 的 Ru/B₄C 多层膜反射率曲线图

Fig. 4 The reflectance of Ru/B₄C multilayer vs. wavelength with the surface (interface) roughness of 0, 0.2nm, 0.4nm and 0.6nm, respectively

参 考 文 献

- [1] E. Spiller, Appl. Phys. Lett., 1972, **20**, 365
- [2] A. B. C. Walker et al., Science, 1988, **241**, 1781
- [3] D. L. Shealy et al., SPIE, 1989, **1160**, 109
- [4] N. M. Ceglio et al., Appl. Opt., 1988, **27**, 5022
- [5] H. Kinoshito et al., J. Vac. Sci. Tech., 1989, **B7**(6), 1648
- [6] D. G. Stearns et al., Appl. Opt., 1993, **32**, 6952
- [7] K. M. Skulina et al., Appl. Opt., 1995, **34**(19), 3727
- [8] A. F. Jankowski et al., Thin Solid Films, 1991, **206**, 365
- [9] D. G. Stearns et al., Opt. Lett., 1991, **16**(16), 1283
- [10] A. F. Jankowski et al., Opt. Eng., 1990, **29**(8), 969

- [11] C. Montcalm et al. , *Opt. Lett.* , 1994, **19**(15), 1173
[12] J. F. Seely et al. , *Appl. Opt.* , 1993, **32**(19), 3541
[13] A. I. Fedorenko et al. ; *SPIE*, 1993, **2012**, 198
[14] Patrick A. Kearney et al. , *SPIE*, 1991, **1547**, 63
[15] 曹健林等, *中国激光*, 1995, **3**, 465
[16] B. L. Henke et al. , *At. Data Nucl. Data Tables*, 1982, 1
[17] 张俊平等, *光学学报*, 1995, **8**, 1088

Soft X-Ray Multilayers at Wavelengths below 10nm

Lu Junxia, Ma Yueying, Zhang Junping,

Wang Zhanshan, Cao Jianlin

*(The State Key Laboratory of Applied Optics,
Changchun Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Changchun 130022)*

Abstract

This paper introduces the soft X-ray multilayers at wavelengths below 10nm and summaries some rules of selecting the multilayer materials. We design the Ru/B₁C, Rh/B₁C and Mo/B₁C multilayers for 8nm wavelength at normal incidence. and give the ideal reflectivities of 38%~50%. The effect of thickness control error as well surface-interface roughness is also discussed. These will be useful in next research of fabrication procedure.

Key words: Soft X-ray, Multilayer mirrors, Normal incidence, Multilayer design and simulation

吕俊霞 女. 1971年3月出生, 1993年毕业于南开大学物理系光学专业. 现为长春光机所光学专业硕士研究生, 从事软 X 射线多层膜技术研究工作。