

文章编号 1004-924X(2011)06-1192-07

14 nm 低原子序数材料多层膜的设计和制备

吴文娟^{1*}, 张众², 朱京涛², 王凤丽², 陈玲燕², 周洪军³, 霍同林³

(1. 上海应用技术学院理学院, 上海 201418; 2. 同济大学精密光学工程技术研究所物理系, 上海 200092;
3. 中国科技大学国家同步辐射实验室, 安徽合肥 230029)

摘要: 为了减小常规多层膜的带宽, 提高其光谱分辨率, 对采用低原子序数材料组成的适用于极紫外和软 X 射线波段的多层膜进行了研究。首先, 在 14 nm 波长处选取 3 种低原子序数材料对 Si/B₄C, Si/C 和 Si/SiC 组成多层膜, 用随机搜索的方法优化设计了这 3 种多层膜以及在此波段常用的 Mo/Si 多层膜。然后, 用直流磁控溅射的方法制备 Si/B₄C, Si/C, Si/SiC 和 Mo/Si 多层膜, 并用 X 射线衍射仪测量拟合多层膜的周期厚度。最后, 用同步辐射测试多层膜的反射率。同步辐射测试结果显示, Mo/Si 多层膜的带宽最大, 为 0.57 nm; Si/SiC 多层膜的带宽最小, 为 0.18 nm, 结果与理论基本一致。实验结果表明, 低原子序数材料多层膜的带宽要比常规 Mo/Si 多层膜窄, 使用低原子序数材料组成多层膜可以提高多层膜的光谱分辨率。

关键词: 极紫外与软 X 射线; 多层膜; 低原子序数材料; 磁控溅射; 光谱分辨率

中图分类号: O484.1; O434 **文献标识码:** A **doi:** 10.3788/OPE.20111906.1192

Design and manufacture on multilayers of low-Z materials at 14 nm

WU Wen-juan^{1*}, ZHANG Zhong², ZHU Jing-tao², WANG Feng-li²,
CHEN Ling-yan², ZHOU Hong-jun³, HUO Tong-lin³

(1. *College of Sciences, Shanghai Institute of Technology, Shanghai 201418, China;*
2. *Institute of Precision Optical Engineering, Department of Physics,*
Tongji University, Shanghai 200092, China; 3. *National Synchrotron Radiation*
Laboratory, University of Science and Technology of China, Hefei 230029, China)

* *Corresponding author, E-mail: wuwjok@163.com*

Abstract: In order to decrease the bandwidth of the normal multilayers and improve the spectral resolution, several kinds of multilayers composed of low-Z materials were investigated in extreme ultraviolet and soft X-ray regions. Firstly, three kinds of multilayers of low-Z materials, Si/B₄C, Si/C and Si/SiC multilayers were chosen at the wavelength of 14 nm and these multilayers and a normal Mo/Si multilayer were designed by using a random search method. Then all these multilayers were fabricated with a DC magnetron sputtering system and the thicknesses were measured by an X-ray diffractometer. Finally, the reflectivities of multilayers were measured by the synchrotron radiation. The synchrotron radiation tests show that the largest bandwidth of these multilayers is from the Mo/Si multi-

收稿日期: 2011-01-20; 修订日期: 2011-02-15.

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10905042); 上海市高校优秀青年教师科研专项基金资助项目(YYY-08019); 上海应用技术学院引进人才基金资助项目(YJ2007-41)

layer in 0.57 nm, and the smallest one is from Si/SiC multilayer in 0.18 nm. The results correspond with the design and demonstrate that the bandwidths of multilayers of low- Z materials are narrower than that of the normal Mo/Si multilayer and the multilayers of low- Z materials can achieve a higher spectral resolution.

Key words: extreme ultraviolet and soft X-ray; multilayer; low- Z materials; magnetron sputtering; spectral resolution

1 引言

多层膜是极紫外和软 X 射线波段重要的光学元件,在同步辐射、软 X 射线显微镜、软 X 射线激光、X 射线微探针荧光分析和极紫外波段空间探测等领域^[1-4]有着广泛的应用。多层膜通常由两种高、低折射率材料(分别称为散射层和间隔层)交替镀制而成,具有较高的反射率和较好的稳定性。然而,常规多层膜的分辨率较低,并且随着波长的增加,带宽逐渐增大,因而限制了其在高分辨领域的应用。若能提高多层膜的光谱分辨率,可将其用在飞秒激光的高次谐波选频、低原子序数材料的荧光探测和太空天文观测等高分辨率应用领域中。所以,提高多层膜的光谱分辨率,即减小多层膜的带宽具有重要意义。

要想减小多层膜的带宽,必须增加参加多层膜相长干涉的有效周期数 N_{eff} ,而 N_{eff} 主要受 X 射线在多层膜中的吸收和界面反射等因素的制约,实践表明,刻蚀多层膜成光栅状、减少散射层厚度、利用高级次光谱和采用低原子序数材料组成多层膜等方法^[5-8]可以提高多层膜光谱分辨率。

本文采用选择两种低原子序数材料组成多层膜的方法来提高多层膜的光谱分辨率。由于减小界面反射,需要两种材料的折射率相差较小;而在减小多层膜带宽的同时最好能保持多层膜的高反射率,所以选择材料时,既要其吸收小,又要有一定的折射率差,而用低原子序数材料组成多层膜正好可以满足这些要求。根据不同材料在 14 nm 波长时的光学常数图,本文选出可在该波长用的 3 种由低原子序数材料组成的多层膜 Si/B₄C, Si/C 和 Si/SiC。由于 Mo/Si 多层膜是这一波段常规多层膜,为了进行带宽的比较,将这 4 种多层膜

放在一起,采用随机搜索的方法进行优化设计,再由设计结果用直流磁控溅射的方法制备多层膜。制备好的多层膜用 X 射线衍射仪测量掠入射反射曲线,以检测多层膜的结构并拟合多层膜的周期厚度。最后利用同步辐射测试多层膜的反射率,通过对这 4 种多层膜带宽的比较,可以看出用低原子序数材料组成多层膜可以提高常规多层膜的光谱分辨率。

2 多层膜的设计

设计多层膜,首先要进行选材,即选择间隔层和散射层材料^[9-10]。Si 在 12.4 nm 波长处有 L 吸收边,当波长大于 12.4 nm 时, Si 的吸收非常小,是制作多层膜最合适的间隔层材料。图 1 示出了 14 nm 波长处一般所用镀膜材料的光学常数 n 和 k 。由图可以看出,除了 Mo 外, Nb, Zr, B₄C, C, SiC 和 Be 的吸收都比较小。为了便于实验制作,本文选择了 B₄C, C 和 SiC 作为多层膜的散射层材料,这主要由于它们是低原子序数材料,吸收较小,同时与 Si 还有一定的折射率差。

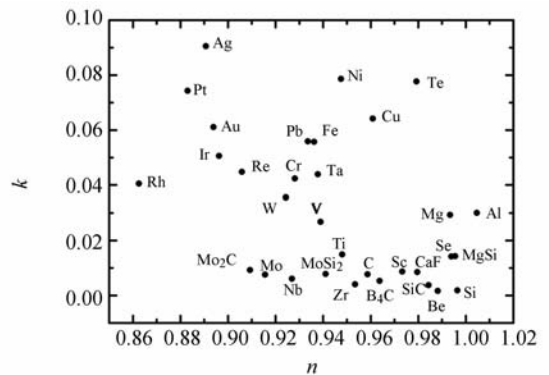


图 1 14 nm 处不同材料的光学常数

Fig. 1 Optical constant of materials at wavelength of 14 nm

依据菲涅耳递推公式,采用随机搜索的优化方法,设计了波长为 14 nm,入射角为 5° 的 $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 、 Si/SiC 和 Mo/Si 周期多层膜。图 2 给出了这些多层膜的反射率随膜对数的变化。由图可知: Mo/Si 多层膜的反射率最高,为 72%,达到饱和的膜对数是 40。 $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 多层膜的反射率次高,达 55%,达到饱和的膜对数是 70。 Si/C 多层膜的反射率达 51%,达到饱和的膜对数也是 70。 Si/SiC 的反射率最低,仅有 31%,在膜对数为 100 时,还没有完全达到饱和。由于上述多层膜达到饱和的膜对数不同,其反射峰的半宽度(即带宽)也不同, Mo/Si 多层膜带宽最大, $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 和 Si/C 多层膜的带宽接近,比 Mo/Si 的小, Si/SiC 多层膜带宽最小。

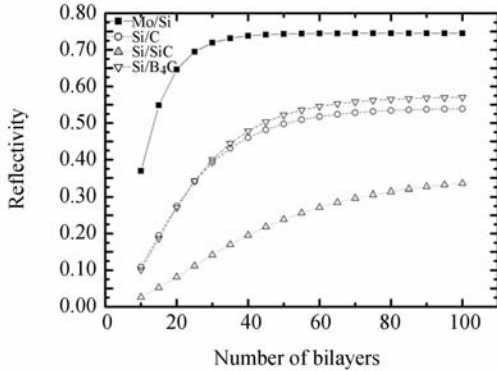


图 2 $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 、 Si/SiC 和 Mo/Si 多层膜反射率随膜对数的变化

Fig. 2 Reflectivity of $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 、 Si/SiC and Mo/Si multilayers versus number of bilayers

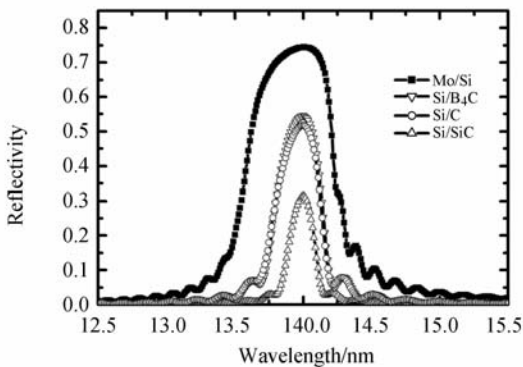


图 3 $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 、 Si/SiC 和 Mo/Si 多层膜反射率随波长的变化

Fig. 3 Reflectivity of $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 、 Si/SiC and Mo/Si multilayers versus wavelengths

根据上面设计的结果,采用菲涅耳递推公式计算了这些多层膜反射率随波长的变化关系,图 3 示出了计算结果。由图可知: Mo/Si 多层膜的反射率最高,带宽最大,其余几种材料对的反射率都比它低,带宽都要小,其中 Si/SiC 多层膜的反射率最低,带宽也最小。表 1 给出了这几种多层膜具体的设计结果。由表中数据可知, Mo/Si 多层膜的带宽是 0.65 nm, $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 和 Si/C 多层膜的带宽是 0.36 nm, Si/SiC 多层膜的带宽是 0.12 nm。从上面的设计与计算结果,可知低原子序数材料多层膜的带宽要比常规的 Mo/Si 多层膜小。

表 1 $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 、 Si/SiC 和 Mo/Si 多层膜优化和计算的参数

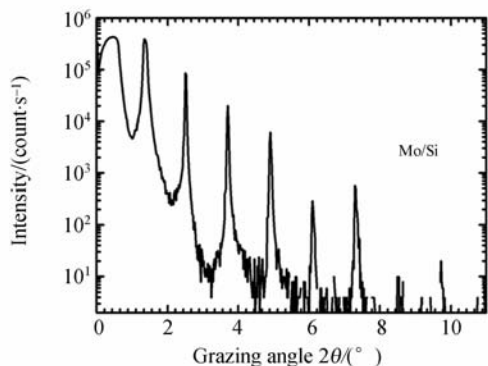
Tab. 1 Optimized parameters and calculated results of $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 、 Si/SiC and Mo/Si multilayers

| 材料对 | N | R_{peak} | $\Delta\lambda$ | $\lambda/\Delta\lambda$ |
|--------------------------------|-----|-------------------|-----------------|-------------------------|
| $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ | 80 | 0.55 | 0.36 | 38.46 |
| Si/C | 65 | 0.51 | 0.36 | 38.46 |
| Si/SiC | 80 | 0.31 | 0.12 | 116.28 |
| Mo/Si | 40 | 0.72 | 0.65 | 21.74 |

3 多层膜的制备及测试

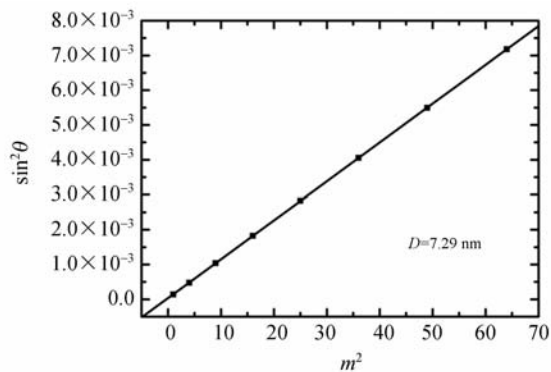
$\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 、 Si/SiC 和 Mo/Si 多层膜是用高真空磁控溅射镀膜设备^[11]镀制的。制作正式样品前,需要制作大量的多层膜样品,保证对膜层厚度的定标。在镀制多层膜时,溅射靶都是采用直流恒功率模式供电工作,样品架一直处于自转状态,以保证膜层的均匀。将实验样品的基板放入镀膜设备,按照定标的工作参数完成了各种多层膜的镀制,得到了所需的 $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 、 Si/SiC 和 Mo/Si 多层膜样品,实际制备的周期数分别是 80、65、120 和 20 对。图 4、图 5、图 6 和图 7 分别是用 X 射线掠入射反射方法测量得到的 Mo/Si 、 $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 和 Si/SiC 多层膜样品的掠入射反射曲线和相应的周期拟合曲线,其中 m^2 表示反射级次的平方。由这些曲线可以看出, Mo/Si 、 $\text{Si}/\text{B}_4\text{C}$ 、 Si/C 和 Si/SiC 多层膜样品的衍射峰个数多,表明其周期结构完整,界面比较清晰。从曲线图中还可以发现不同材料组合的膜层结构还是有

一定差别,其中 Mo/Si 多层膜的衍射峰值个数最多,结构最好。表 2 给出了实际制作的周期与设计值及其差别,数据显示实际制作的多层膜周期与设计值有一点差别,但很小,表明采用的制作工艺稳定。



(a) 掠入射反射曲线

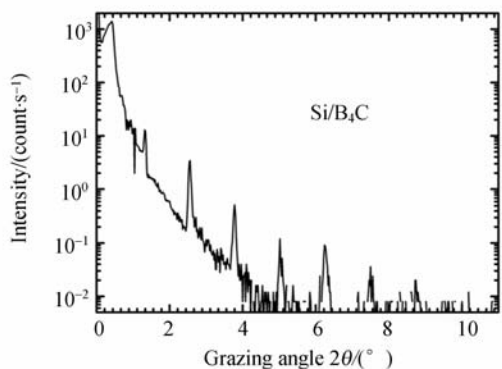
(a) Grazing incidence curve



(b) 周期拟合结果

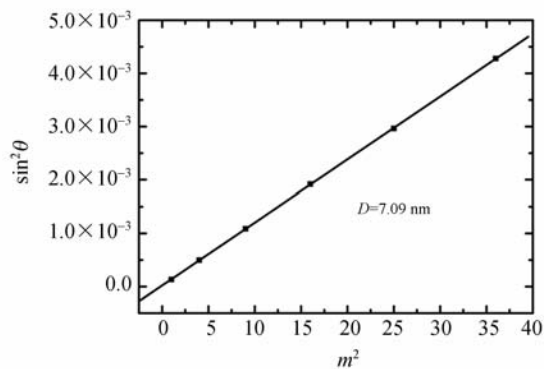
(b) Period fitting result

图 4 Mo/Si 多层膜的掠入射反射曲线和其周期拟合曲线
Fig. 4 Measurement results of XRD and fitting results of Mo/Si multilayer



(a) 掠入射反射曲线

(a) Grazing incidence curve

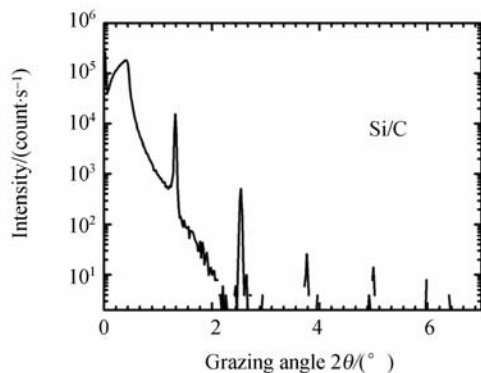


(b) 周期拟合结果

(b) Period fitting result

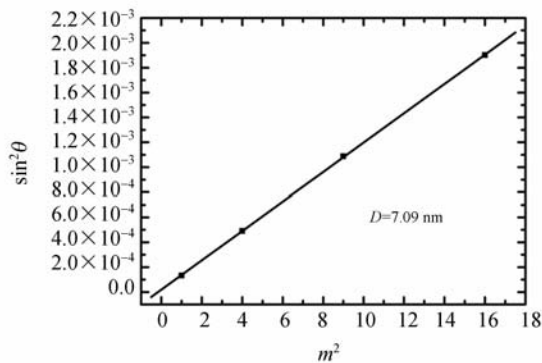
图 5 Si/B₄C 多层膜的掠入射反射曲线和其周期拟合曲线

Fig. 5 Measurement results of XRD and fitting results of Si/B₄C multilayer



(a) 掠入射反射曲线

(a) Grazing incidence curve

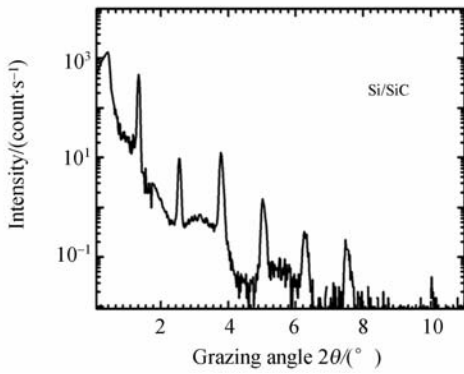


(b) 周期拟合结果

(b) Period fitting result

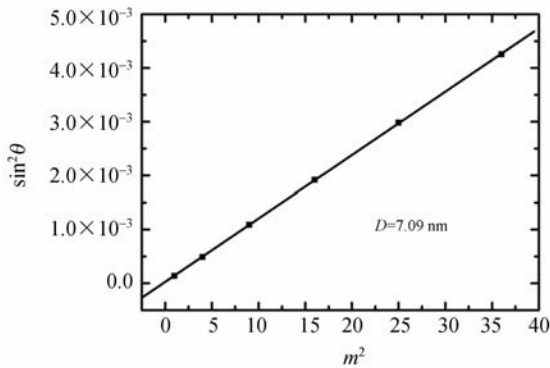
图 6 Si/C 多层膜的掠入射反射曲线和其周期拟合曲线

Fig. 6 Measurement results of XRD the fitting results of Si/C multilayer



(a) 掠入射反射曲线

(a) Grazing incidence curve



(b) 周期拟合结果

(b) Period fitting result

图 7 Si/SiC 多层膜的掠入射反射曲线和其周期拟合曲线

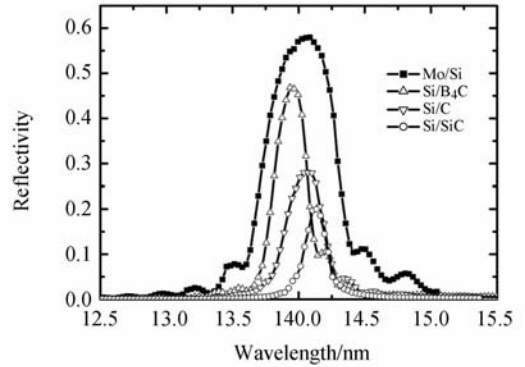
Fig. 7 Measurement results of XRD and fitting results of Si/SiC multilayer

表 2 Si/B₄C, Si/C, Si/SiC 和 Mo/Si 多层膜周期设计值与测量值Tab. 2 Period optimized and measured values of Si/B₄C, Si/C, Si/SiC and Mo/Si multilayers

| 材料对 | 设计值/nm | 实验值/nm | 周期差/nm |
|---------------------|--------|--------|--------|
| Si/B ₄ C | 7.15 | 7.09 | 0.06 |
| Si/C | 7.12 | 7.09 | 0.03 |
| Si/SiC | 7.08 | 7.09 | -0.01 |
| Mo/Si | 7.21 | 7.29 | -0.08 |

要评价上述几种多层膜性能好坏,需要对这些多层膜的反射率进行测量。图 8 是用合肥国家同步辐射实验室计量光束线测量这些多层膜得到的实验结果,测试结果如表 3 所示。上述结果表明:实验得到的结果和设计值基本一致,即采用低原子序数对材料组成多层膜,可以减小多层膜带

宽,但也同时减小反射率。其中 Mo/Si 的反射率最高,为 57.9%, Si/SiC 反射率最低,为 19.96%; Mo/Si 的带宽最大,为 0.57 nm, Si/SiC 带宽最小,为 0.18 nm。

图 8 Si/B₄C, Si/C, Si/SiC 和 Mo/Si 多层膜实测反射率随波长的变化Fig. 8 Measured reflectivity of Si/B₄C, Si/C, Si/SiC and Mo/Si multilayers versus wavelengths表 3 Si/B₄C, Si/C, Si/SiC 和 Mo/Si 多层膜实测参数Tab. 3 Measured parameters of Si/B₄C, Si/C, Si/SiC and Mo/Si multilayers

| 材料对 | λ_{peak} | $R_{\text{peak}} / (\%)$ | $\Delta\lambda / \text{nm}$ | $\lambda / \Delta\lambda$ |
|---------------------|-------------------------|--------------------------|-----------------------------|---------------------------|
| Si/B ₄ C | 13.94 | 46.8 | 0.27 | 51.55 |
| Si/C | 14.07 | 27.99 | 0.33 | 42.55 |
| Si/SiC | 14.14 | 19.96 | 0.18 | 78.74 |
| Mo/Si | 14.09 | 57.9 | 0.57 | 24.69 |

4 结 论

本文提出采用低原子序数材料组成多层膜来提高常规多层膜的光谱分辨率。在入射波长为 14 nm, 入射角为 5° 的情况下, 采用随机搜索的优化方法设计了 Si/B₄C, Si/C, Si/SiC 和 Mo/Si 多层膜, 并用直流磁控溅射方法进行了多层膜的制备, 用 X 射线衍射仪的掠入射测试曲线拟合得到了多层膜的周期厚度。同步辐射测试结果显示 3 种由低原子序数材料组成的多层膜带宽都比常规 Mo/Si 多层膜小, 其中 Si/SiC 多层膜的带宽最小, 为 0.18 nm, 而 Mo/Si 多层膜带宽为 0.57 nm, 实验结果表明这是一种行之有效的办法, 可以根据光谱分辨率和反射率的需要选择合适的低原子序数材料来制备多层膜, 该方法在其它波段也适用。

参考文献:

- [1] ANDREEV S S, MERTINS H C, PLATONOV Y Y, *et al.*. Multilayer dispersion optics for X-ray radiation[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 2000, 448(1):133-141.
- [2] 崔明启, 席识博, 孙立娟, 等. 北京同步辐射软 X 射线偏振测量装置及其应用[J]. *核技术*, 2009, 32(10):721-724.
- CUI M Q, XI SH B, SUN L J, *et al.*. The soft X-ray polarimeter and applications at BSRF [J]. *Nuclear Techniques*, 2009, 32(10):721-724. (in Chinese)
- [3] 伊圣振, 穆宝忠, 王新, 等. 周期多层膜 Kirkpatrick-Baez 显微镜成像性质分析[J]. *强激光与粒子束*, 2009, 21(11):1681-1685.
- YI SH ZH, MU B ZH, WANG X, *et al.*. Imaging characteristic analysis of Kirkpatrick-Baez microscope with periodic multilayer[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2009, 21(11):1681-1685. (in Chinese)
- [4] 尼启良, 刘世界, 陈波. 小型高精度软 X 射线-极紫外反射率计[J]. *光学精密工程*, 2008, 16(10):1886-1890.
- NI Q L, LIU SH J, CHEN B, *et al.*. Compact high-precision soft X-ray and extreme ultraviolet reflectometer[J]. *Opt. Precision Eng.*, 2008, 16(10):1886-1890. (in Chinese)
- [5] BENBALAGH R, ANDRÉ J-M, BARCHEWITZ R, *et al.*. Lamellar multilayer amplitude grating as soft X-ray Bragg monochromator [J]. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 2005, 541:590-597.
- [6] 吴文娟, 王占山, 秦树基, 等. 窄光谱带宽 X 射线刻蚀多层膜光栅[J]. *光学精密工程*, 2004, 12(2):226-230.
- WU W J, WANG ZH SH, QIN SH J, *et al.*. Etching of multilayer grating using a narrow spectral band X-ray [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2004, 12(2):226-230. (in Chinese)
- [7] YULIN S, FEIGL T, BENOIT N, *et al.*. EUV/soft x-ray multilayer optics[J]. *SPIE*, 2005, 5645:289-298.
- [8] WU W J, ZHU J T, WANG ZH SH, *et al.*. High spectral resolution Mo/Si multilayers working at high order reflection[J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2006, 23(9):2534-2537.
- [9] SPILLER E. *Soft X-ray Optics* [M]. Washington: SPIE-The International Society for Optical Engineering, 1994.
- [10] YAMAMOTO M, NAMIOKA T. Layer-by layer design method for soft X-ray multilayers[J]. *Appl. Opt.*, 1992, 31(10):1622-1630.
- [11] 朱京涛, 黄秋实, 白亮, 等. 不同本底真空度下 SiC/Mg 极紫外多层膜的制备和测试[J]. *光学精密工程*, 2009, 17(12):2946-2951.
- ZHU J T, HUANG Q SH, BAI L, *et al.*. Manufacture and measurement of SiC/Mg EUV multilayer mirrors in different base pressures [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2009, 17(12):2946-2951. (in Chinese)

作者简介:



吴文娟(1980—),女,安徽东至人,博士,讲师,主要从事极紫外与 X 射线光学薄膜的研究。E-mail: wuwjok@163.com



朱京涛(1978—),男,河南民权人,博士,副教授,硕士生导师,主要从事极紫外与 X 射线光学薄膜的研究。E-mail: jtzhu@tongji.edu.cn



张众(1977—),男,辽宁朝阳人,博士,副教授,硕士生导师,主要从事极紫外软 X 射线和 X 射线光学及中子光学的研究。E-mail: zhangzhongcc@tongji.edu.cn



王凤丽(1976—),女,山东东阿人,博士,副教授,硕士生导师,主要从事极紫外软 X 射线和 X 射线薄膜光学的研究。E-mail: wangfengli@tongji.edu.cn



陈玲燕(1935—),女,上海人,博士,教授,博士生导师,主要从事核物理的研究。E-mail: lychen@tongji.edu.cn



霍同林(1970—),男,安徽肥西人,硕士,助理研究员,主要从事真空紫外及软 X 射线波段光谱辐射计量的研究。E-mail: huotl@ustc.edu.cn



周洪军(1963—),女,辽宁黑山人,博士,高级工程师,主要从事同步辐射光谱计量、微细加工、超高真空技术的研究。E-mail: hjzhou@ustc.edu.cn

● 下期预告

三线阵测绘相机光学系统的设计与公差分析

王 红,田铁印

(中国科学院 长春光学精密机械与物理研究所)

中国科学院光学系统先进制造技术重点实验室,吉林 长春 130033)

针对光学系统设计的指标要求,综合考虑空间环境适应性和结构布局等因素,采用像方远心光路,设计了一种兼具匹兹瓦型与对称型优点的新型光学系统结构。系统在 Nyquist 频率 77 lp/mm 时,正视相机全视场的平均传递函数为 0.613;前、后视相机全视场的平均传递函数为 0.578。正视相机畸变为 2×10^{-5} ;前、后视相机畸变为 2.4×10^{-5} 。运用公差的灵敏度分析和反转灵敏度分析,计算系统内各公差参数对光学系统成像质量的影响,给出了合理的公差要求及合适的补偿调整参数。按给定的公差要求,加工、装调了具有较高成像质量的光学系统。实验检测结果表明,各相机光学系统传递函数的测试值均在 0.451 以上,完全满足实验室静态传递函数 > 0.2 ,相对畸变 $< 3 \times 10^{-4}$ 的指标要求,显示制定的公差合理、可行,验证了公差分析与研究方法的正确性。