

短波长软 X 射线多层膜高级次峰设计与制备

邵建达 易 葵 范正修 王润文

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

崔明启

(中国科学院高能物理研究所, 北京 100039)

(1997 年 1 月 20 日收到)

考虑了短波长软 X 射线多层膜的设计问题, 比较了一、二、三级布喇格衍射峰设计的反射率结果, 分析了反射率与周期厚度及金属层在周期中的比率的关系. 本文认为, 在存在不连续金属膜层的情况下, 用布喇格衍射峰的二级次设计, 有助于获得实测的反射率. 给出了利用磁控溅射方法沉积的 Mo/Si 多层膜在 4.47 nm 处同步辐射测量, 在 60° 入射角下获得 8.5% 实测反射率的结果.

PACC: 7865; 4278H; 6855

1 引 言

软 X 射线多层膜一般是指波长在 30 与 1 nm 之间波段设计的多层膜光学元件. 人们可以利用它来实现软 X 射线的反射、分光、色散, 以实现软 X 射线光学系统中控制光线走向的需要. 而在这些软 X 射线光学元件中, 软 X 射线多层反射薄膜是实现这些功能的主要基础. 经过最近二十几年的努力, 在较长的软 X 射线波段, 达到了较高的研究和应用水平. 最有代表性的是 13 nm 左右的高性能的软 X 射线正入射反射镜的获得. 在这个波长范围, 反射率基本上接近了理论反射率^[1,2]. 不过在最具吸引力的水窗波段(波长在 4 nm 左右)的软 X 射线多层膜反射镜的研制, 还停留在比较低的水平上. 虽然有报道这方面的结果^[3-5], 但是由于随软 X 射线波长的缩短, 随之而来的是对基底表面抛光质量、薄膜厚度监控精度等的更高要求, 获得的结果与理论值相比, 往往水平很低, 而且其结果相当不稳定.

我们的早期工作讨论了设计软 X 射线多层膜的一般思想^[6], 也报道了 W/C, Mo/Si 多层膜的设计与反射率测量结果^[7,8], 提出了一些具体的设计与制备思路. 本文将针对有代表性的 4.4765 nm 波长, 试图系统地论述短波段的软 X 射线多层膜反射镜设计中的主要问题, 提出了布喇格高级次峰设计思想. 作为实际的应用, 本文报道 Mo/Si 多层膜在 4.47 nm 处同步辐射测量获得明显反射率的结果.

2 4.4765 nm 软 X 射线多层膜一级与高级次设计的理论结果

在短波段, 一般的结论已经给出了可以选择的间隔层为 C 与 B 两种材料^[9], B 在较

短波长比 C 有更好的光学特性.而在 4.4765 nm 波长处,C 的光学特性是其他材料不能比拟的,所以本文选择 **Me/C**(**Me** 表示金属材料)多层膜为讨论对象.

在现有的各种材料已报道的光学常数范围内,利用薄膜光学的各种计算多层膜光学特性的方法,建立高反多层膜的设计程序比较方便.设计中所有膜系的膜层数为 201 层,100.5 个周期.所谓的一级与高级布喇格衍射峰设计是指利用布喇格衍射带折射率修正公式 $2P\sin\theta_m(1-\bar{\delta}/\sin^2\theta_m)=m\lambda$ 中给出的针对不同 m 级次峰设计多层膜的周期厚度 P ,而使多层膜在设计入射角下,出现最大反射率的方法.公式中 $\bar{\delta}$ 为两种材料的平均折射率修正因子, P 为周期厚度, θ_m 为掠入射角度, λ 为入射波长.

2.1 一级布喇格衍射峰反射率的设计结果

表 1 列出与 C 配对后能获得 20% 左右及以上反射率的一级设计膜系结果.设计针对 4.4765 nm 波长,正入射, γ 为金属层厚度与周期厚度的比率.

表 1 应用一级设计思想给出的各种材料与 C 组合后获得的理论设计结果

材料	γ	d_{Me}/nm	d_C/nm	R/%
Co	0.36	0.81	1.43	36.67
Ni	0.33	0.74	1.50	34.05
Cu	0.33	0.75	1.50	32.54
Fe	0.37	0.84	1.40	32.15
Mn	0.40	0.91	1.34	28.97
Cr	0.41	0.93	1.32	28.93
Os	0.27	0.61	1.63	26.99
Re	0.28	0.62	1.62	26.28
W	0.28	0.63	1.61	25.74
Zn	0.35	0.78	1.50	25.74
Ir	0.27	0.61	1.63	25.21
Be	0.42	0.95	1.30	24.85
Ta	0.30	0.67	1.57	23.99
Pt	0.29	0.65	1.59	22.99
V	0.44	0.99	1.26	21.33
Hf	0.33	0.73	1.51	19.97

2.2 高级次布喇格衍射峰反射率的设计结果

利用高级次布喇格衍射峰设计的多层膜的周期厚度一般是一级峰设计下的周期厚度的倍数,尤其在二级情况下.当然这样的设计同时是以牺牲部分反射率为代价,这是因为大的周期厚度增加了软 X 射线在膜层中的被吸收机会,从而减少了靠近基底膜层发挥反射作用的机会.表 2 列出二、三级布喇格衍射峰设计结果.设计针对 4.4765 nm 波长,正入射.在更高级次的设计中反射率急剧下降,如在四级布喇格衍射峰设计情况下,Co/C 膜系给出的反射率仅为 1.73%.

表 2 应用高级次布喇格衍射峰设计思想给出的各种材料与 C 组合后获得的理论设计结果

材料	级次	γ	d_{Me}/nm	d_C/nm	$R/\%$
Co	2	0.18	0.82	3.66	34.29
	3	0.12	1.11	7.86	27.38
Ni	2	0.17	0.75	3.73	31.86
	3	0.11	1.02	7.95	25.82
Cu	2	0.17	0.76	3.72	30.43
	3	0.11	1.02	7.95	24.54
Fe	2	0.19	0.85	3.63	29.98
	3	0.13	1.14	7.83	23.34
Mn	2	0.20	0.91	3.57	26.92
	3	0.14	1.23	7.75	20.34
Cr	2	0.21	0.93	3.55	26.87
	3	0.14	0.94	5.79	24.98
Os	2	0.14	0.62	3.86	25.24
	3	0.09	0.85	8.11	20.73
Re	2	0.14	0.62	3.86	25.24
	3	0.10	0.85	8.11	20.05
W	2	0.14	0.64	3.84	24.04
	3	0.10	0.87	8.10	19.55
Zn	2	0.18	0.79	3.69	23.98
	3	0.12	1.07	7.90	18.74
Ir	2	0.14	0.64	3.84	24.04
	3	0.09	0.85	8.12	19.12
Ta	2	0.15	0.68	3.80	22.38
	3	0.14	0.92	8.05	17.92
Pt	2	0.15	0.66	3.82	21.44
	3	0.10	0.89	8.08	17.13
V	2	0.22	0.99	3.49	19.96
	3	0.11	0.10	7.97	14.44

2.3 设计结果分析

表 1 和表 2 列出具有 20% 左右及以上理论反射率的材料组合的一、二、三级布喇格衍射峰设计结果. 要使实际镀制的多层膜的反射率获得尽量接近理论设计的反射率, 有必要从其膜系结构的各项参数入手, 进行详细的分析.

1) 反射率与金属层厚度在周期中的比率的关系

表 1 和表 2 列出的三个级次反射率设计结果表明, 对任何金属元素与非晶 C 的配对

给出的周期厚度在一、二、三级设计下分别为 2.25, 4.49 和 9.0 nm 左右. 一、二级设计的反射率差距并不大, 一般二级较之一级下降率在 (6—7)% 之间, 而三级较之一级下降率为 25% 左右. 在这个波长上, 所有设计中金属膜层的厚度最大的仅为 1 nm 左右, 实验数据可以证明在这样的厚度下, 薄膜呈现不连续的特性^[10], 将导致光学特性大大退化^[11].

本文旨在试图寻找保证具有连续的金属膜层的设计方法. 一般地, 考虑到 C 膜具有较小的最小连续膜厚, 故总是尽可能地放大金属膜层在周期中的比率. 但从设计结果来看, 虽然二、三级设计给出了较大的周期厚度, 但在二级设计的情况下, 金属层的膜厚与一级设计基本一致. 比较而言, 三级峰设计给出了略大的金属层膜厚. 这说明吸收层的厚度有一个最佳的调制厚度. 图 1—图 3 分别给出其中设计反射率最高的 5 个膜系的一、二、

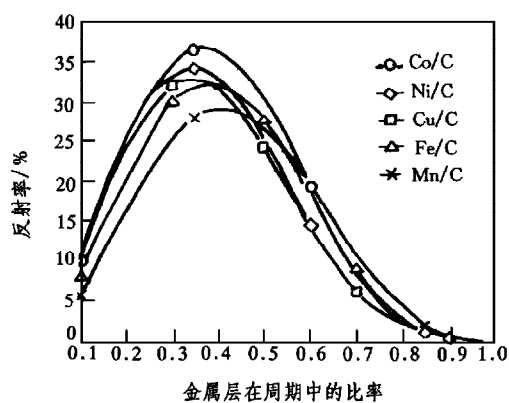


图 1 在一级反射峰设计时, 反射率随金属层厚度在周期中的比率的变化情况

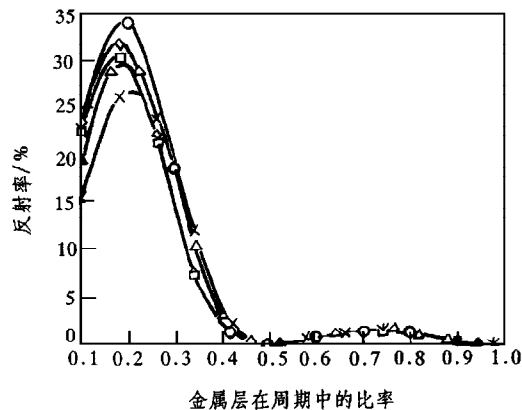


图 2 在二级反射峰设计时, 反射率随金属层厚度在周期中的比率的变化情况 图注同图 1

三级设计反射率随 γ 变化的曲线. 从中可以看到, 在短波长下, 无论是哪一级设计对 γ 值的要求同样十分严格. 但是仔细地考察 γ 变化的影响, 如以设计反射率最高的 Co/C 膜系而言, 在选取 γ 为 0.5 (即 Co 层的厚度为 1.12 nm 左右) 的情况下, 反射率为 30% 左右; 而当金属层与这个厚度相当时, 在二级设计的情况下, 反射率为 29%; 在三级设计下则为 27.1%. 从这一个结果来看, 不难得出高级设计情况下, 在同样的金属层膜厚给出的反射率与上面已给出的峰值反射率相比, 相互之间差别并不大. 那么本文认为, 在这样的情况下, 应当选用高级

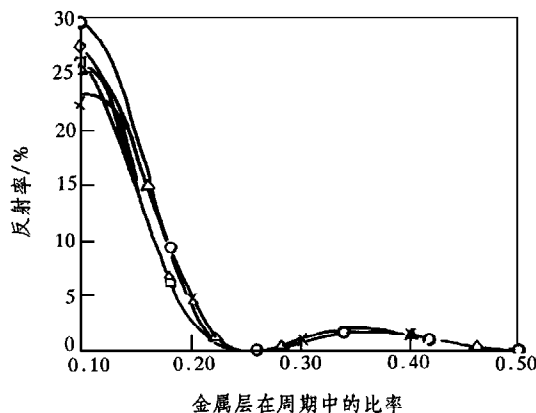


图 3 在三级反射峰设计时, 反射率随金属层厚度在周期中的比率的变化情况 图注同图 1

次的设计结果. 因为首先为尽可能地获得连续的金属膜层, 放大金属层的厚度是不可避免

的;其次放大了金属层的厚度后,则不能不考虑间隔层膜的厚度可能对金属层膜的生长特性的影响.直观而言,金属层膜与间隔层的生长是互为基底的,而不连续的金属层其表面必定相当粗糙,无疑会加剧间隔层生长时的难度.有实验数据表明,间隔层材料如 C, B, $\text{Si}^{[12]}$ 有一定的光滑表面的作用,但其厚度有一定的要求,二、三级设计中间隔层的厚度比一级设计有很大的增加,这是对获得相对光滑的界面十分有利.此外,在实际的镀制过程中,较大的周期厚度更有利于监控.这就是高级次峰设计在短波长软 X 射线多层膜中获得应用的主要原因.

2) 反射率与周期厚度

在考察了 γ 对反射率的影响之后,有必要对反射率与周期厚度的关系作同样的考察.图 4—图 6 给出在一、二、三级设计下,反射率随周期厚度的变化情况.从图中可以发现,反射峰对周期厚度的偏移十分敏感.

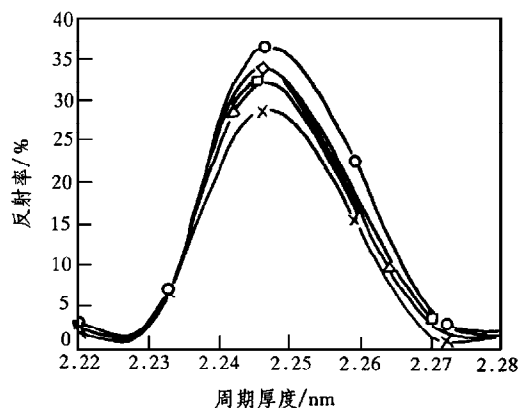


图 4 在一级设计下,反射率与周期厚度的关系 图注同图 1

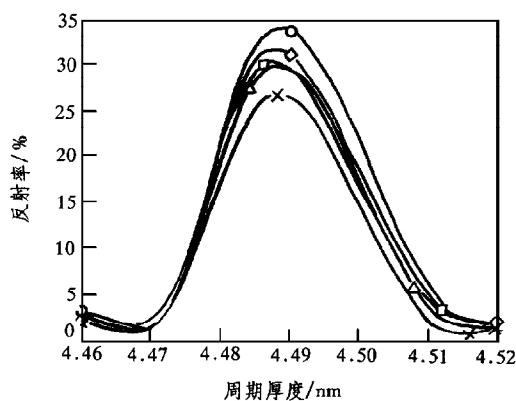


图 5 在二级设计下,反射率与周期厚度的关系 图注同图 1

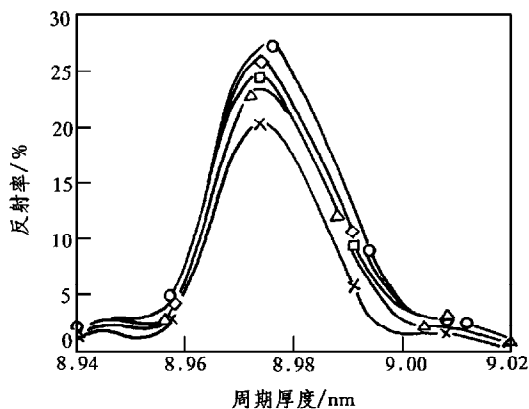


图 6 在三级设计下,反射率与周期厚度的关系 图注同图 1

表 1 和表 2 列出的膜层厚度是忽略了后面的有效位数之后给出的结果,但要获得表中所列的反射率结果,计算中将不得不使用更多有效位数的周期厚度与金属层厚度对周期厚度的比率.对于 Co/C 膜系,其周期厚度严格理论设计值为 $2.247\,039\,5\text{ nm}$, γ 为 $0.361\,524\,3$,表 3 列出不同周期厚度与比率有效位数后给出的一级设计反射率结果.设计针对 4.4765 nm 波长,正入射,周期数为 100.5 个.从表 3 可看出,理论上近似只允许在 ± 0.005 左右,这样的监控精度在实际镀制过程中很难达到.如以周期

厚度的绝对值偏移为 $\pm 0.02\text{ nm}$ 看,一、二、三级设计的反射率分别下降到 8.77% , 7.63% , 7.82% ;而偏移为 -0.02 nm 时,反射率分别下降到 1.26% , 1.47% , 2.64% . 比较而言,周期厚度往大的方向偏移能给出稍好些的反射率.

表 3 不同周期厚度与比率的有效位数对一级设计反射率的影响					
周期厚度/nm	2. 247 039 5	2. 247	2. 25	2.3 ^{a)}	2.2 ^{b)}
金属层与周期厚度的比率	0. 361 524 3	0.362	0.36	0.4	0.4
反射率/%	36.67	36.67	35.48	0.66	1.01

- a) 该膜系的反射峰在 12.1° 入射角上出现,反射率为 34.94% .
- b) 该膜系对设计波长的反射率将完全消失,而在更短波长出现.

3)反射率与周期数

设计中要考虑的另一因素是多层膜的周期数.在所有的设计中,我们给出的多层膜周期数是 100.5 个.在实际沉积中,这样的周期数还是可以达到的.计算还表明,在周期厚度严格精确的情况下,就 Co/C 膜系而言,更高的周期数可以使反射率达 50% 左右(500 个周期数).但考虑到厚度的些许误差不可避免,这时周期数的增加,随反射峰半宽度的急剧降低,在设计的波长和入射角度下,其反射率将不但不会上升,反而会下降,如图 7 所示.在周期厚度往大处偏移时,反射峰将偏移设计的零度入射角,而在其他角度下出现,如表 3 中情况 a);而周期厚度小于设计厚度,那么设计波长处的反射峰将不再出现,如表 3 中情况 b),当然在更短波长处仍会有反射峰出现.

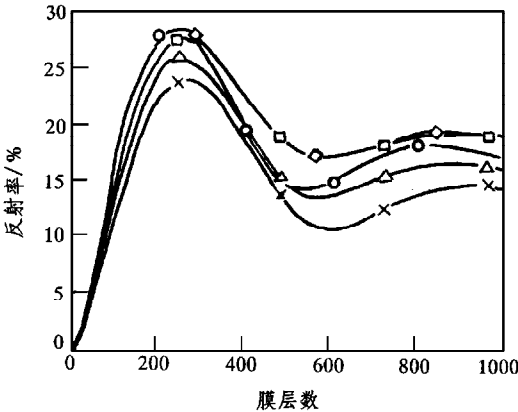


图 7 在一级设计下,反射率与多层膜层数的关系 计算中采用的周期厚度和金属层厚度与周期厚度的比率均为近似的情况 图注同图 1

同样的分析结论也可应用到反射率随入射角变化的情况中.但是正如上面所讨论的.短波长的软 X 射线多层膜,在周期厚度往大的方向偏移时,总可以找到另外一个能给出高反射的入射角度来.

3 实际镀制短波长软 X 射线多层膜反射镜的考虑

不连续金属膜层对软 X 射线多层膜反射性能的影响,我们已在另外工作中进行了讨论^[11],不连续金属膜层对光学特性的影响是很明显的.我们认为,不解决不连续金属膜层问题,要获得有良好特性的短波长软 X 射线多层膜是不可能的.所以在实际镀制短波长软 X 射线多层膜时,除了上述分析中给出的高级次设计为尽量创造获得较为光滑的界面以外,在选择多层膜材料时,有必要尽量选择有较高的金属层比率的膜系,即使有时要降

低多层膜的理论设计反射率. 不过从设计的结果来看, 在该波段 Co/C 组合应是一个十分有利的材料配对. 这不仅是它给出了最高的设计反射率, 更重要的是它对金属层所占比率的容忍度也比其他材料更强.

在选择多层膜材料组合时, 另外一个要考虑的问题是所选择的金属材料的生长形态. 文献[10]中证明, Pt 和 Ni 是二维生长的, 而 Cu 与 Au 是三维生长的. 这意味着, Pt 与 Ni 有比较小的最小连续膜厚, 而 Cu 与 Au 则有大得多的最小连续膜厚. 文献给出的 Pt, Ni, Cu, Au 的最小连续膜厚分别为 1.8, 2.0, 18.0, 10.0 nm. 可惜的是无论在理论与实验中给出的各种材料的最小连续膜厚还是一个有待进行的研究课题, 可资设计中直接引用的并不多. 这也是研制短波长软 X 射线多层膜的一个主要困难所在.

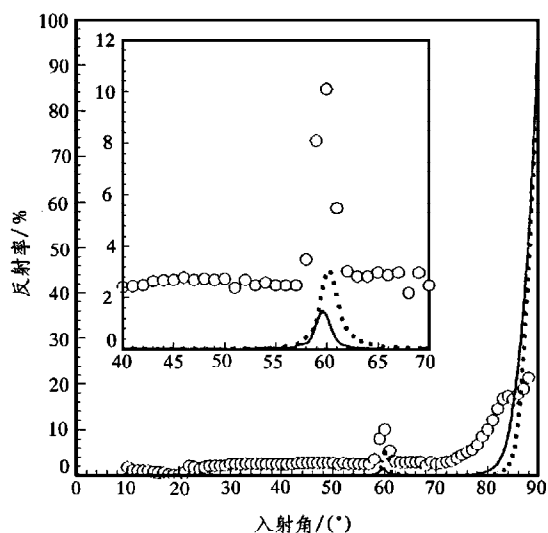


图 8 Mo/Si 多层膜反射镜实测的反射率结果 多层膜的结构参数包括膜层数为 41 层, Mo 层厚度为 2.84 nm, Si 层厚度为 1.67 nm, 膜层在最上层, 基底为 K9 玻璃. 多层膜采用磁控溅射方法沉积. ○为测量点; ····为 Windt 的反射率; —为 Henke 的反射率

在这种情况下, 并不是针对零度入射. 在理论计算中, 分别采用了 Henke 的散射因子^[13]和 Windt 的光学常数^[14], Mo/Si 多层膜在该波长给出的 4.47 nm 波长的理论反射率分别仅在 1.1%, 2.7% 左右 (相当于二级设计的结果). 该多层膜的沉积工艺采用了磁控溅射方法, Mo 靶采用了直流溅射, 溅射电流为 0.25 A; Si 靶采用了射频溅射, 功率为 450 W. 真空系统的本底真空为 3×10^{-3} Pa, 溅射气体为 Ar 气, 溅射气压为 1 Pa. 监控方法为转速控厚法^[15], 基片架的转动速度用电流指示为 40 μ A, 基片与靶面的距离为 7 cm 左右. 测量是在中国科学院高能物理研究所同步辐射实验室进行. 上述情况说明短波长软 X 射线多层膜的设计与制备工作还有待进一步进行, 尤其光学常数的确定. 虽然测量给出的是斜入射情况下的反射率, 但同时说明二级设计下获得具有良好光学特性的多层膜反射镜是可能的.

另一方面, 由于设计中采用的光学常数均来自理论的计算结果, 而实际沉积的薄膜态的各种材料的光学常数往往与沉积工艺条件有十分密切的关系, 在早期的长波长软 X 射线多层膜研究中, 也曾经出现过实际镀制的多层膜实测反射率大于理论设计反射率的情况. 同样地, 在实际的沉积中, 也发现了在短波段实测反射率大于理论反射率的情况.

在利用同步辐射测量 Mo/Si 多层膜时, 得到如图 8 所示的实测结果, 考虑到反射谱线上可能存在的背景噪声, 估计实际反射率在 8.5% 左右. 该膜系的原始设计并非针对 4.47 nm 设计, 而是针对 8.89 nm 的正入射反射膜设计. 测量时由于缺少 8.89 nm 波长, 改以 4.47 nm 测量. 从以上讨论中来看, 这样的周期厚度就设计上而言, 对 4.47 nm 波长是二级设计. 当然在

4 结 论

1. 短波长软 X 射线多层膜反射镜在设计上将不得不考虑薄膜的最小连续膜厚, 为了避免不连续膜厚对反射镜光学特性的破坏性的影响, 适当增加金属层在周期中的比率是必需的。

2. 在选择膜系组合时, 短波长软 X 射线多层膜的材料不能仅仅选择反射率高的膜系, 同时要考虑金属材料的生长特性. 在缺乏可资引用的理论和实验数据的情况下, 必须对拟采用的材料的生长特性进行研究, 以选取具有较小的最小连续膜厚的材料来沉积多层膜结构。

3. 在选取已沉积的多层膜时, 在使用中入射角度可调节的情况下, 应选取较大的周期厚度的多层膜. 一般地, 该多层膜总能找到一个有效的入射角度来获得较高的反射特性。

4. 在实际沉积多层膜时, 其膜层数必须考虑到膜层厚度的实际随机误差对反射峰半宽度的影响, 更高的膜层数并不能总是获得更高的反射率. 100 个周期左右的膜层数在该波段较为合适。

5. 我们已测得了实际镀制 Mo/Si 多层膜在 4.47 nm 波长的反射率结果, 这证明获得在 4.47 nm 波长有较高反射率的多层膜是可能的。

更进一步的讨论还有待于进行实际制备过程中不可避免的膜厚监控随机误差、过渡层、界面粗糙度对不同级次设计的反射率的影响. 限于篇幅, 在此不再展开。

- [1] D. G. Stearns, R. S. Rosen and S. P. Vernon, *Appl. Opt.*, **32**(1993), 6952.
- [2] G. Gutman, *J. X-Ray Sci. Technol.*, **4**(1994), 142.
- [3] C. Montcalm, P. A. Kearney, J. M. Slaughter *et al.*, *Appl. Opt.*, **35**(1996), 5134.
- [4] A. D. Akhsakhalyan, N. N. Kolachevsky, M. M. Mitropolsky *et al.*, *Phys. Scr.*, **48**(1993), 516.
- [5] I. V. Kozhevnikov, A. I. Fedorenko, V. V. Kondratenko *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.*, **A345** (1994), 594.
- [6] 范正修、金 磊、邵建达, *中国激光*, **19**(1992), 74.
- [7] 邵建达、范正修、殷功杰等, *物理学报*, **43**(1994), 2016.
- [8] Fan Zhengxiu, Shao Jianda, Yi Kui *et al.*, *Proc. SPIE*, **2364**(1994), 208.
- [9] A. E. Rosenbluth, *Rev. Phys. Appl.*, **23**(1988), 1599.
- [10] S. Xu, B. L. Evans, D. I. Flynn *et al.*, *Thin Solid Films*, **238**(1994), 54.
- [11] 邵建达、易 葵、范正修等, *中国激光*, 待发表.
- [12] 邵建达、范正修、易 葵等, *中国激光*, **23**(1996), 801.
- [13] B. L. Henke, P. Lee, T. J. Tanaka *et al.*, *AIP Conf. Proc.*, **75**(1981), 340.
- [14] D. L. Windt, *Appl. Opt.*, **30**(1991), 15.
- [15] 邵建达、范正修、金 磊等, *中国激光*, **18**(1991), 171.

DESIGN OF SOFT X-RAY MULTILAYERS FOR SHORTER WAVELENGTHS

SHAO JIAN-DA YI KUI FAN ZHENG-XIU WANG RUN-WEN

(*Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800*)

CUI MING-QI

(*Institute of High Energy Physics, Academia Sinica, Beijing 100039*)

(Received 20 January 1997)

ABSTRACT

This paper discussed a method of designing soft X-ray multilayers for shorter wavelengths and showed that a difference between the designing of longer wavelength soft X-ray multilayers and that of the shorter one. For the latter, the minimum continuous thickness of the metal layer have to be considered. The method of second order designing could be a way to deposit high-quality multilayer mirrors for shorter wavelengths. The measured reflectivity of a Mo/Si multilayer for 4.47 nm is also reported.

PACC: 7865; 4278H; 6855