

光电子学与光电子产业专题系列介绍

用于 X 射线光学的多层膜

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)

用于 X 射线,特别是软 X 射线(波长范围约为 30—1nm)光学中的多层膜近十年来引起了人们的广泛重视,取得了许多重要进展。本文对这类多层膜的特点、制备和检测方法以及应用等作简要介绍。

每层膜厚为 nm 量级的多层膜制备与应用研究近十年来取得了一系列进展。本文只简要介绍用于 X 射线光学及其相关领域中的多层膜。

早在本世纪 20 年代人们就发现,基于全反射机制的掠入射反射镜是 X 射线波段中能够应用的唯一光学元件。这一限制起源于该波段所有物质的折射率都很接近并小于 1 (除了在某些物质的吸收边处折射率略大于 1 以外),没有合适的透镜材料,同时非掠入射反射率也极低(10^{-4} — 10^{-12} 量级)。掠入射光学系统集成光本领差,象差严重,同时还需要大尺寸光学元件,给加工带来很大困难。为了从根本上克服这些困难,IBM 公司的 Spiller 于 1972 年首先提出^[1],可以象可见光波段那样在 X 射线波段应用多层膜技术,在经过超光滑加工的平面或曲面基板上用轻元素和重元素交替镀上光学厚度

为 $1/4$ 波长的薄膜,由此制作的多层膜反射镜有可能大幅度地提高反射率,发展成 X 射线波段非掠入射光学元件。要实现这一设想当然并非易事。根据简单的标量散射理论,表面反射率随 $(\sigma/\lambda)^2$ 的增加呈指数形式下降,其中 σ 为表面粗糙度的均方根值, λ 为入射光波长。以 $\lambda = 10\text{nm}$ 的软 X 射线为例,“光滑表面”意味着 σ 要小于 1nm ($\lambda/10$),而 $\lambda/4$ 意味着每层膜厚在 2.5nm 左右。考虑到原子线度为零点几个 nm 量级,制备这样的薄膜元件要求基板加工、粗糙度检测以及膜厚控制的精度都要提高到原子尺度。

到 80 年代初,Spiller 以及美国洛伦兹-利弗莫尔实验室的 Barbee 等人制备的多层膜反射镜在 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。80 年代末, 40nm 以上波段正入射实测反射率大于 10% 的

经过二、三年的努力,正电子显微镜已达到普通光学显微镜的分辨率和放大倍数,放大倍数为 1000 倍左右,分辨率达亚微米量级。有人相信以后能达埃的量级。

由于正电子的独特性质,人们希望用正电子显微镜研究空位、位错等缺陷或生物样品,希望看到表面下的“单空位”。但现在由于慢正电子产额低和要使用强放射性源,在经济上和技术上都有一些困难,也许不久会成为一种有用的技术。

- [1] J. V. House and A. Rich, *Phys. Rev. Lett.*, **60**(1988), 169
- [2] J. V. House and A. Rich, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1988), 488.
- [3] G. R. Brandes, K. F. Canter et al, *Appl. Phys.*, **A46**(1988), 335.
- [4] G. R. Brandes, K. F. Canter et al, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1988), 492.
- [5] L. D. Hulett et al., *Mater. Sci. Forum*, **2**(1984), 133.
- [6] A. Rich and J. V. House, *J. Electron Microsc. Tech.*, **9**(1988), 209.
- [7] G. R. Brandes et al, *Positron Annihilation*, Edited by L. Dorikens-Vanpraet et al., World Scientific Publ., Singapore, (1988), 600.

多层膜已有大量报道, 10nm 以上波段已有接近 60% 的结果^[2], 比块状材料提高了几个数量级。这些多层膜少则有几十层, 多的有几百层, 它们形成的多重反射干涉其反射峰半宽度随层数的增加可以做得很小, 具有良好的波长选择性。图 1 给出一个典型的多层膜反射率实测结果。膜系镀在碳化硅 (SiC) 基板上, $\sigma < 0.3$ nm, 镀膜材料为 Mo/Si, 周期为 9.39 nm (Mo 4.31nm), 共 27 层。各曲线上方标出了入射角。很明显, 只要改变入射角, 就可以从入射的连续谱中作波长选择。

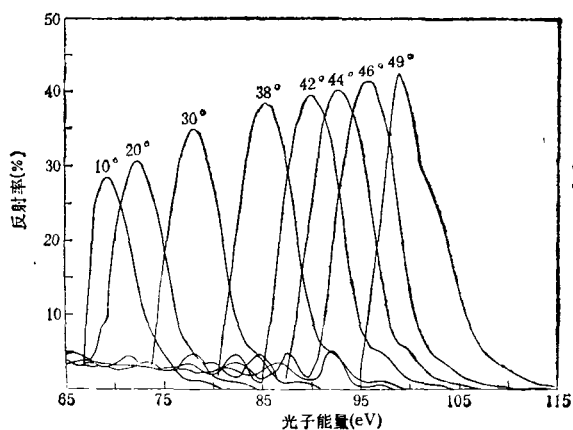


图 1 多层膜的实测反射率

多层膜的高反射率特性和波长选择特性在 X 射线光学及其相关的同步辐射、等离子体诊断、X 射线激光、大气层外天文观测、光刻及 X 射线显微术等领域的研究中已经或即将得到应用。由于这些领域对科学技术的发展, 对经济和国防建设都有重要意义, X 射线多层膜的制备与应用研究已发展成一个相当活跃的学科。美国、联邦德国、日本、法国、英国、荷兰及苏联等发达国家的 50 多个实验室或研究小组都在开展此工作, 一些公司已经或正准备推出商品。

一、X 射线多层膜的制备和检测

由于以麦克斯韦方程组为基础的经典光学

物理

理论在 X 射线波段反射率计算中仍可使用, 因而可以借用可见光波段薄膜光学中发展起来的方法, 结合 X 射线波段光学常数的特性, 解决选择镀膜材料、决定最佳膜厚值以及元件性能计算等设计问题。另外, 也可以用 X 射线衍射理论来解决上述问题。一般地说, 我们把以提高反射率为主要目标的 X 射线多层膜对材料的主要要求归结为:

(1) 工作波段内两种材料的复折射率其实部之差应尽量大 (使每个界面的反射率尽量大), 同时两种材料的复折射率的虚部都应尽量小 (减少吸收损耗);

(2) 两种材料的界面要稳定, 不能有化学反应或严重的扩散。

制备多层膜的主要工作有以下几项:

1. 超光滑表面加工和检测

高质量的基板是制备 X 射线多层膜光学元件的前提。目前, 传统的液体抛光技术已相当成熟, 能够用于光学玻璃、熔石英、单晶硅片和 SiC 等材料加工, 可获得 $\sigma < 0.5$ nm 的超光滑表面, 并有 $\sigma < 0.1$ nm 的结果报道。离子束抛光、喷流抛光以及直接磨削抛光等方法也已用于超光滑表面加工。

除了表面超光滑之外, X 射线成像光学元件还对曲面基板的面型精度有严格要求。目前球面的面型精度已能达到 10 nm 量级。

在上述加工工作中, 准确的测量无疑是至关重要的。以美国的 WYKO 和 ZYGO 公司的非接触式表面轮廓仪为代表的新一代测量仪器, 将干涉测量技术和计算机技术结合, 其纵向分辨率已能达到 0.1 nm。另外, 扫描隧道电子显微镜以及传统的触针式轮廓仪也常用于检测表面粗糙度。

2. 镀膜

目前常用的镀膜方法主要有电子束蒸镀和离子溅射两类。

电子束蒸镀真空度高, 适于蒸镀易氧化材料, 但这种方法的蒸镀粒子的动能小, 膜层疏松, 实现稳定的镀膜速率控制也比较困难。离

子溅射方法包括离子束溅射、射频磁控溅射及直流溅射等几种。溅射粒子的动能较大,它在基板上堆积紧密,溅射过程容易控制,易于得到稳定的镀膜速率。这种方法的缺点是需工作气体,真空度低。另外,分子束外延(MBE)、原子层外延(ALE)等方法近年来也被用于制备X射线多层膜,其存在的主要问题是生长高熔点材料相当困难。

3. 膜厚控制

膜厚控制中目前主要使用的是X射线反射监控、椭圆仪、石英晶体振荡器以及镀膜时间控制等方法。

X射线反射监控与可见光膜厚控制方法类似。由X射线源、参考样品(反射镜)及探测器组成的测量系统实时测出参考样品反射光强随膜厚的变化,经过定标计算可得出实际样品的对应膜厚值。其控制精度可优于0.1nm。椭圆仪方法则是通过测量椭圆函数(反射光中 p 分量和 s 分量之比)在镀膜过程中的变化,并经数据解析得出膜厚值,灵敏度可优于0.05nm。石英晶体振荡器是使用最广泛的一种方法。在镀膜过程中测出作为参考样品的石英晶片由于沉积上镀膜材料后引起的振荡频率变化,经定标测量即可用于监控膜厚变化。这种方法的膜厚控制精度可优于0.1nm。

4. 检测

典型的X射线多层膜反射率测量装置由连续谱光源、单色仪以及反射率计组成。反射率计中的样品和探测器要能作共轴旋转,以测量反射率随入射角的变化,其精度一般要优于 $1'$ 。另外,大气对该波段辐射有强烈吸收,全部装置必须在真空条件下工作。目前比较理想的这类装置都使用同步辐射作光源,安装在同步辐射光束线上。一些设备先进的小组用大功率脉冲激光打靶产生高温等离子体,利用它的连续辐射作光源,构成反射率测量装置。

除了实际测量反射率之外,用电子显微镜等研究、检查多层膜的结构和表面、界面状态,了解这些因素对反射率的影响也是很重要的工作。

二、多层膜的应用

1. 软X射线显微术

软X射线显微术在X射线光学中历史较长。它的一些独特优点一直吸引着人们的注意力。由于有机物质的X射线吸收边集中在该波段,提供了高观察对比度,因而观察生物样品时不必对样品进行切片、脱水及染色,可以对细胞进行活的实时观察。软X射线显微镜在分辨率上处于光学显微镜和电子显微镜之间,性能上还可弥补两者的不足^[3]。

几乎所有的同步辐射实验室目前都在进行使用多层膜反射镜的正入射软X射线显微术研究。此外,利用激光等离子体作光源,使用多层膜反射镜的软X射线显微镜研究在美国、法国、英国及苏联等国家都在进行。就目前的工艺水平看,人们已可以制造使用两块多层膜反射镜的Schwarzschild型正入射软X射线显微镜,分辨率优于100nm^[4],估计分辨率很快即可达到20~30nm。

2. 正入射X射线望远镜

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测中最重要、最有意义的组成部分。正入射可以减少象差,在相同光通量条件下大大减少光学系统所占的空间。

美国已发射了装有两块多层膜反射镜的Cassergain正入射软X射线望远镜,清晰地拍下了17.1nm,17.4nm的日冕照片,分辨率达到12弧秒,望远镜的口径和长度分别只有7.5cm和62cm。这样的望远镜已发展成阵列^[5]。

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,它可以在一定范围内变化反射峰的波长,作波长选择(见图1)。由于多层膜的反射率很高,这类色散元件特别适用于那些对辐射通量要求高,单色性要求则不太严格的场合,如光刻、光化学实验等。

联邦德国BESSY实验室的科学家们用

400层 W/Si 薄膜作色散元件,用在同步辐射光束线上 200—1600eV 波段单色仪中,得到了比使用传统晶体色散元件高得多的输出通量^[6]。日本东北大学科学计测研究所和日本国立高能物理研究所光子工厂的小组,用图 1 所示的多层膜反射镜作为反射滤光片,进行 SiH₄ 的光化学气相沉积 (PCVD) 实验,经过 26 小时同步辐射强照射 (反射光强为 10¹⁴—10¹⁵ 光子/s),反射率仍有初期值的 70%^[7]。Barbee 等人还试制了镀多层膜的 X 射线波段用光栅,以改善其性能^[8]。这类使用多层膜作色散元件的工作遍及所有同步辐射实验室,飞利浦公司、理学公司和 OVONYX 公司还推出了商品器件以及使用这类元件的 X 射线光谱仪。

此外,多层膜元件在 X 射线激光研究中的应用也很活跃。目前已经研制并使用了镀多层膜的平面反射镜、聚焦反射镜、分束器以及高色散反射镜等。有关的技术已成为开发 X 射线激光谐振腔的关键之一。

从 80 年代起, X 射线光学多层膜的制备和应用研究在我国也已开始。中国科学院长春光学精密机械研究所已能加工出粗糙度小于 0.5 nm (均方根值)的超光滑表面,该所从 1986 年起开始研制 X 射线多层膜反射镜,早期工作中制备的 4.47nm W/C 膜系在入射角为 73.5° 时,实测反射率为 8.2%,近期制备的 Mo/Si 膜系在波长为 13nm 处,实测反射率为 12.5% (入射角 55°)。设在该所的应用光学国家重点实验室将包括多层膜制备和应用研究在内的短波光学作为重点方向,研制了离子束镀膜机、软 X

射线单色仪等一批仪器设备,已能制备数百层的多层膜 X 射线光学元件,并能对该波段的某些波长点作反射率测量。部分工作接近国际水平。复旦大学也曾制备过 Ni/C 膜系,入射角为 60°,波长在 6.1nm 处的实测反射率为 18%^[9]。另外,中国科学技术大学等一些高等学校也在进行这方面的基础和应用研究工作。

在应用方面,中国科学院高能物理研究所同步辐射实验室与中国科学院长春光学精密机械研究所合作研制的使用多层膜作色散元件的软 X 射线反射率测量装置已经开始设计加工。该所研制的 23.2nm 正入射多层膜反射镜 (Mo/Si, 30 层,周期为 12.68nm) 已被西南核物理与化学研究所用于最近的 X 射线激光实验,取得了令人鼓舞的初步结果。

从总体说来,我国的 X 射线光学多层膜还处在起步阶段,与世界先进水平还有相当距离。我国的不少高技术项目 (除上述同步辐射应用和 X 射线激光外,还有 X 射线显微术、X 射线光刻及光电子学等)都对多层膜提出了要求,需要我们在这一领域内加紧努力工作。

- [1] E. Spiller, *Appl. Phys. Lett.*, **20**(1972), 365
- [2] S. Ogura et al., *Proc SPIE* **984**(1988), 35
- [3] 谢行恕, *物理*, **14-1**(1985), 31
- [4] R. Hoover et al., *Proc SPIE* **94**(1988), 234
- [5] R. Hooper et al., *Proc SPIE* **1140**(1989), 112
- [6] F. Schaefer et al., *Proc. SPIE* **934**(1988), 23
- [7] M. Yanagihara et al., *Proc. SPIE* **934** (1988), 288
- [8] T.W. Barbee et al., *Proc. SPIE* **1160** (1989), 636.
- [9] 郑天水等, *光学学报*, **8-6**(1988), 572.

(上接第 310 页)

段。

- [1] F. A. Cajori, *物理学史*, 内蒙古人民出版社, (1982), 第一版序。
- [2] G. Holton, *物理科学的概念和理论导论*, 上册, 人民教育出版社, (1983), viii.
- [3] A. P. 费伦奇, *大学物理*, No. 2 (1986), 37.

- [4] 同 [2] x.
- [5] 爱因斯坦, *爱因斯坦文集*, 商务印书馆, 第一卷, (1976), 527.
- [6] 爱因斯坦, *爱因斯坦文集*, 商务印书馆, 第二卷 (1977), 83.
- [7] S. R. 威尔特, M. 裴利普编, *现代物理学进展*, 湖南教育出版社, (1990), 299.