

文章编号 1004-924X(2004)02-0230-05

窄光谱带宽 X 射线刻蚀多层膜光栅

吴文娟¹, 王占山¹, 秦树基¹, 王凤丽¹, 王洪昌¹,
张众¹, 陈玲燕¹, 徐向东², 付绍军²

(1. 同济大学 精密光学工程技术研究所 物理系, 上海 200092;

2. 中国科技大学 同步辐射国家重点实验室, 安徽 合肥 230029)

摘要: 结合 X 射线荧光分析和同步辐射单色器对窄光谱带宽多层膜的需求, 开展了窄光谱带宽刻蚀多层膜光栅的理论和实验研究。用平均密度法从理论上阐明将多层膜刻蚀成不同刻蚀比的多层膜光栅后, 光谱分辨率将得到提高。用磁控溅射方法制备了 W/C 多层膜, 并用常规的光刻工艺对其进行刻蚀, 得到了刻蚀后的多层膜光栅。掠入射 X 射线衍射测量表明, 刻蚀后多层膜的衍射峰位置向小角方向移动, 多层膜光栅没有改变剩余多层膜的结构, 而且带宽减小, 光谱分辨率得到提高, 说明实验采用的工艺方法和工艺路线可以满足制作窄光谱带宽刻蚀多层膜光栅的要求, 为今后进一步研究实用化元件打下了基础。

关键词: 多层膜; 光栅; 带宽; 刻蚀; 光谱分辨率; 刻蚀比

中图分类号: TB43 文献标识码: A

Etching of multiplayer grating using a narrow spectral band X-ray

WU Wenjuan, WANG Zhan-shan, QIN Shu-ji, WANG Feng-li, WANG Hong-chang,
ZHANG Zhong, CHEN Ling-yan, XU Xiang-dong, FU Shao-jun

(1. Institute of Precision Optical Engineering, Department of
Physics, Tongji University, Shanghai 200092, China;

2. National Synchrotron Radiation Laboratory,
University of Science and Technology of China, Hefei 230029, China)

Abstract: Theories and technologies of extreme ultraviolet, soft X-ray and X-ray regions have made great progress since 1970s, and multilayer mirrors have found wide applications in astronomy, microscopy, material science, synchrotron radiation applications, and plasma diagnostics for their high reflectivity and good stability, however, they have a poor spectral resolution for X-ray fluorescent measurement and synchrotron radiation monochromator. The spectral resolution of the multilayer must be improved for some high spectral resolution measurements. The spectral resolution can be improved by etching the multilayer into a multilayer grating at different etching ratios by the average density calculation method. W/C multilayers were fabricated by magnetron sputtering and the multilayer gratings were made by normal optical lithography. The results measured by grazing angle X-ray diffraction show that the multilayer structure in an etched multilayer grating has not been destroyed and the spectral resolution has been improved, which demonstrates that methods proposed for making etched multilayer gratings are suitable for further research.

Key words: multilayer; grating; spectral band; etching; spectral resolution; etched ratio

收稿日期: 2003-12-14; 修订日期: 2004-02-16.

基金项目: 国家自然科学基金资助课题(No. 60378021); 国家 863-804-7-5 资助课题

1 引言

自 20 世纪 70 年代以来, 作为成像和色散元件, 多层膜反射镜已在软 X 射线成像和软 X 射线光谱学方面得到了广泛的应用^[1], 特别是在对低原子序数材料的荧光探测上, 软 X 射线多层膜具有明显的优势。然而, 多层膜的宽带宽的特性限制了其在高光谱分辨率测试中的应用。因此, 在天然晶体不适合应用的软 X 射线区, 发展窄光谱带宽的软 X 射线多层膜具有特殊意义。这样的窄光谱带宽多层膜可望在飞秒激光的高次谐波选频和低原子序数材料的荧光探测等方面得到应用。虽然现有的多层膜具有高反射率和高稳定性的性能, 但带宽较宽, 如 Mo/Si 多层膜在 13 nm 处的带宽为 0.4 nm, 而且带宽会随着波长的增加而进一步增宽。

多层膜光栅可以提高光谱分辨率是在很早提出来的, Fialin 等人^[2]提到用多层膜光栅的 0 级反射不但可以提高光谱分辨率, 而且可以降低背景。Sammar 等人^[3]首次在实验上验证了这一观点, 随后人们逐渐发展了这一方法, 制作了这类窄带宽软 X 射线多层膜反射镜^[4,5]。

由于多层膜在软 X 射线和 X 射线波段的高反射特性使其适合于用作单色器中的分光元件, 尤其是在同步辐射单色器上使用时, 它可比同一波段使用的晶体衍射效率高 1~2 个数量级。若在软 X 射线和 X 射线波段既保持较高的反射率, 又能提高其光谱分辨率, 将对同步辐射应用特别有利。本文在常规多层膜研究的条件下, 开展了刻蚀多层膜的理论 and 实验研究工作。

2 窄带宽刻蚀多层膜的原理和性能模拟计算

和可见光波段不同, 在软 X 射线波段, 任何材料的折射率都小于 1, 且接近于 1, 同时吸收系数不为零。随着波长的增加, 吸收系数增大。因此, 在软 X 射线波段工作的多层膜性能除受材料折射率限制外, 还受吸收限制。这种限制导致多层膜的峰值反射率随多层膜层数增加不趋近于 1, 而是

趋近于一个小于 1 的数。随着软 X 射线波长的增加, 参加多层膜相长干涉的膜层数逐渐减小, 从而导致软 X 射线多层膜的带宽逐步增加。这时虽可增加多层膜的层数, 但由于吸收, 软 X 射线不能穿透所有的膜层。因此, 可以用有效参加相长干涉的多层膜周期数 N_{eff} 来衡量多层膜的带宽。要想提高多层膜的光谱分辨率, 即减小带宽, 必须增加多层膜内参加相长干涉的层数。 N_{eff} 值越大, 多层膜的光谱带宽越小, 即光谱分辨率越高。如果膜层结构中的周期数足够大, N_{eff} 要受光入射过程光波的吸收损失和界面反射等因素的制约。所以为了增加有效周期数, 必须减少影响 N_{eff} 的因素, 即使光的吸收系数 k 尽可能小。

光学常数的实部和虚部记作 $n(\omega) = 1 - \delta(\omega)$ 和 $k(\omega) = \beta(\omega)$, 式中 $\delta(\omega) = r_0 \lambda^2 / 2\pi n f_1 = r_0 \lambda^2 / 2\pi \sum_q n_q f_{1q}$, $\beta(\omega) = r_0 \lambda^2 / 2\pi n f_2 = r_0 \lambda^2 / 2\pi \sum_q n_q f_{2q}$, (其中 r_0 是经典电子半径值, n_q 是单位体积中 q 类原子的原子个数, f_1 和 f_2 分别是原子散射因子的实部和虚部。式中忽略了固体中原子的相互作用对电子结构的影响), 由此可推出消光系数 k 和折射率量 δ 都与介质的平均密度成正比。所以可以通过在多层膜上刻蚀掉不同周期不同刻蚀比 Γ (未刻蚀部分与光栅周期的比值) 的光栅来减小介质密度的方法提高多层膜的分辨率。刻蚀以后的 k 和 δ 等于未刻蚀时的值乘上 Γ 因子, 这就是平均密度法^[4]。

用菲涅耳递推公式, 计算了膜对数 $N = 40$, 周期 $d = 8 \text{ nm}$, $\gamma = 0.7$ (γ 是 C 膜膜厚与多层膜周期比), C 在顶层的 W/C 周期多层膜。这个 W/C 多层膜在波长为 0.154 nm (Cu 的 K_α 线), 反射率随掠入射角的变化关系如图 1 所示。用平均密度方法, 求出刻蚀比 $\Gamma = 0.9 \sim 0.1$ 时的 W 层和 C 层的平均密度及相应的光学常数, 再用菲涅耳递推公式计算出 $\Gamma = 0.9 \sim 0.1$ 时反射率同掠入射角的关系。表 1 列出了它们的带宽、峰值及分辨率。在图 1 中也画出了 $\Gamma = 0.2$ 的曲线。由图可知, 多层膜刻蚀变成多层膜光栅后, 其反射光谱带宽减小, 也就是光谱分辨率得到了提高, 但多层膜光栅的反射率也随着刻蚀而减小。

表 1 不同刻蚀比 Γ 的 W/C 多层膜光栅第 1 级次的性能比较Tab. 1 Feature comparison of different Γ W/C multilayer gratings at the first order

Γ	1	0.9	0.8	0.7	0.6	0.5	0.4	0.3	0.2	0.1
峰值位置 $\theta(^{\circ})$	0.63	0.62	0.62	0.61	0.6	0.6	0.58	0.57	0.56	0.56
带宽 $\Delta\theta(^{\circ})$	0.14	0.13	0.12	0.1	0.09	0.08	0.07	0.05	0.05	0.04
$\theta / \Delta\theta$	4.5	4.8	5.2	6.1	6.7	7.5	8.3	11.4	11.2	14

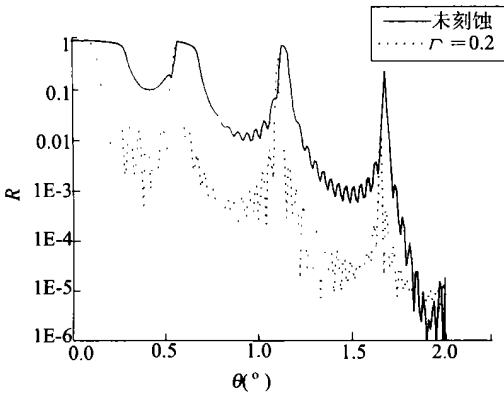


图 1 刻蚀前后的 W/C 多层膜光栅反射率随掠入射角的变化曲线

Fig. 1 Reflectivity vs grazing angle curve for etched and unetched W/C multilayer gratings

3 多层膜反射镜的制作

多层膜反射镜样品是用 JGP560C6 型高真空多功能磁控溅射镀膜设备镀制的。这个镀膜设备的真空室底部有 4 个圆形磁控溅射靶枪, 相互间隔 90° 。每个靶枪的正上方都装有一个承载基片的样品架, 在镀制过程中, 样品架一直处在自转状态, 以保证膜层的均匀性。镀制 W/C 多层膜时, 设备的本底气压小于 5.0×10^{-5} Pa, 工作气压为 0.36 Pa。W 和 C 的镀制都是采用直流恒功率模式, W 的功率是 25 W, C 的功率是 130 W。在制备 W/C 多层膜时, 膜厚的精确定标和每层膜的控制精度非常关键。采用原子力显微镜和 X 射线掠入射衍射仪相结合的方法完成膜厚的精确定标。膜厚是由基片在靶材上方停留时间决定。要在镀膜过程中有稳定的镀膜速率, 就要求镀膜过程

中所有工作参数保持恒定。经过定标, 得出在这样的条件下, W, C 的速率分别为 0.12 nm/s, 0.05 nm/s。定标后, 将 W/C 多层膜的衬底放入镀膜设备的样品架上, 按照定标时的工作参数进行多层膜的镀制, 得到实验所需的 W/C 多层膜。需要指出的是, 在进行多层膜镀制时, 需要对靶材进行 10~20 min 的预溅射, 以去除靶材表面的污染物并保证溅射靶处于较好的热平衡状态。

4 刻蚀多层膜光栅的制作

刻蚀多层膜光栅是用常规的紫外光刻和离子束刻蚀方法制作的。制备好的多层膜光栅周期 $D = 10 \mu\text{m}$, 保留的多层膜线条宽度为 $2 \mu\text{m}$, 即刻蚀比 $\Gamma = 0.2$, 刻蚀的总面积为 $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$ 。具体的制作工艺过程如下。

首先, 在 W/C 多层膜上旋涂一层约 $2 \mu\text{m}$ 厚的光刻胶 (AZ1500), 在 100°C 烘烤 90 s (见图 2(a)); 第 2 步, 用掩模板 (Cr/glass) 对多层膜进行 UV 接触式曝光 (见图 2(b)); 第 3 步, 将曝光后的多层膜样品放入配制好的显影液 (NaOH 溶液) 进行显影, 显影后在 120°C 烘烤 120 s (见图 2(c)); 第 4 步, 以光刻胶上的光栅图形为掩模, 用 LKJ-1C 离子刻蚀机进行离子束刻蚀 (见图 2(d)), 从而把光刻胶的光栅图形刻到多层膜上。最后, 用丙酮除去表面的光刻胶 (见图 2(e)), 就得到 W/C 多层膜光栅。刻蚀时, 刻蚀机的本底真空度为 1.3×10^{-4} Pa, 充 Ar 气后, 气压为 1.8×10^{-2} Pa, 流量为 2.4 ml/min, 离子束流 120 mA, 离子能量 500 eV, 束流密度是 $0.4 \text{ mA}/\text{cm}^2$ 。在这种工艺条件下, W/C 多层膜的刻蚀速率为 14.8 nm/min。

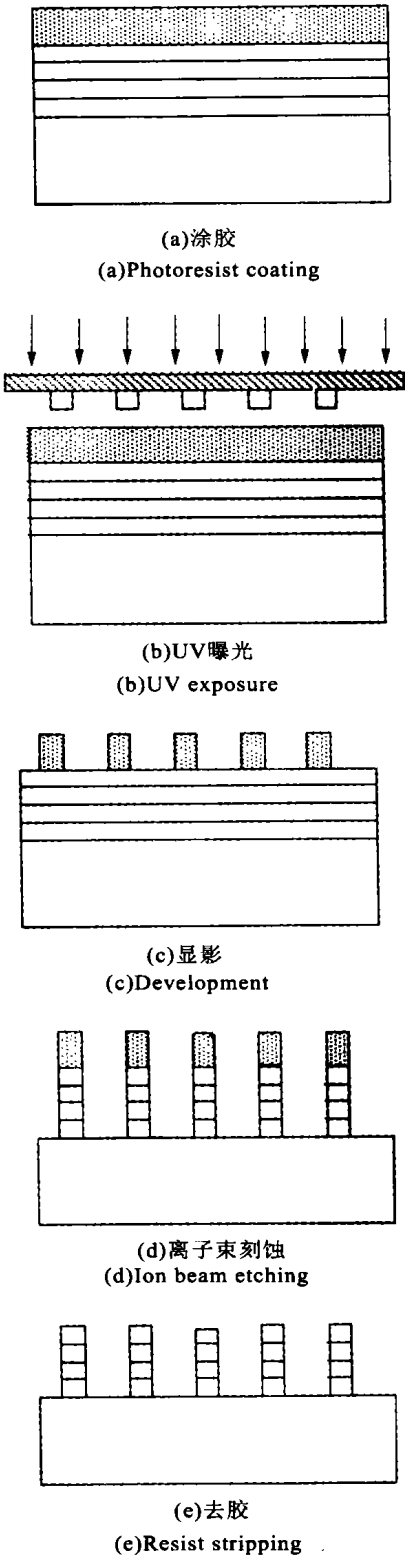


图 2 刻蚀多层膜制作工艺流程图

Fig. 2 Schematic of the fabrication of etching the multilayer grating

5 实验结果

用光学显微镜对刻蚀多层膜光栅进行了测量,图 3 是显微镜拍摄的刻蚀比为 $\Gamma = 0.2$ 的光栅显微镜图,从图中可以看出刻蚀后光栅结构清晰。

用 X 射线衍射仪对刻蚀前后的 W/C 多层膜进行了测试,结果见图 4。图中多层膜刻蚀前后测试曲线的峰值位置,带宽及分辨率如表 2。由此可以看出,刻蚀后,多层膜的衍射峰位置向小角方向移动,光谱带宽比未刻蚀时明显减小。这一结果说明,实验采用的工艺方法和工艺路线可以满足制作窄光谱带宽刻蚀多层膜光栅的要求,为今后制作和测试刻蚀多层膜光栅奠定了基础。

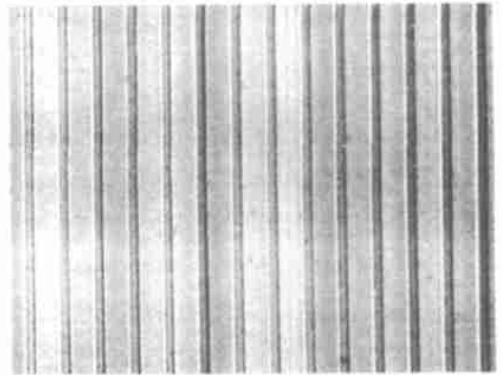


图 3 显微镜拍摄到的刻蚀比为 $\Gamma = 0.2$ 的显微图
Fig. 3 Microscopic picture of the $\Gamma = 0.2$ multilayer grating

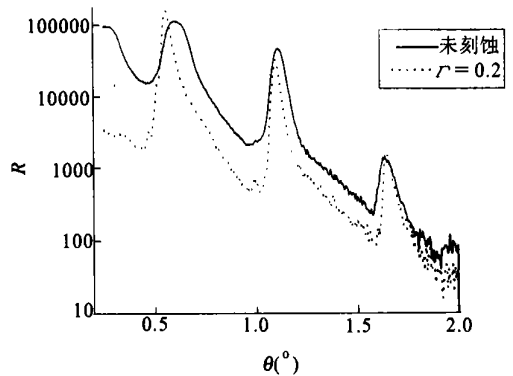


图 4 刻蚀前后小角衍射仪测量结果

Fig. 4 Results of the test with XRD for etched and unetched multilayer

表 2 刻蚀前后 W/C 多层膜不同级次性能比较

Tab. 2 Feature comparison of the etched and unetched W/C multilayer at different orders

Γ	1			0.2		
	第 1 级峰	第 2 级峰	第 3 级峰	第 1 级峰	第 2 级峰	第 3 级峰
峰值位置 $\theta(^{\circ})$	0.605	1.11	1.635	0.56	1.095	1.645
带宽 $\Delta\theta(^{\circ})$	0.135	0.1	0.08	0.085	0.065	0.05
$\theta / \Delta\theta$	4.5	11.1	20.4	6.6	16.8	32.9

6 结 束 语

在多层膜制作的基础上,结合 X 射线荧光分

析和同步辐射单色器对窄光谱带宽多层膜的需求,开展了窄光谱带宽刻蚀多层膜光栅的理论和实验研究。结果表明,W/C 刻蚀多层膜光栅比未刻蚀的多层膜光谱分辨率有了一定的提高。

参考文献:

- [1] SPILLER E. *Soft X-ray optics* [M]. SPIE Optical Engineering Press, Bellingham, WA, 1994.
- [2] FIALIN M, RÉMY H, ANDRÉ J M, *et al.* Extending the possibilities of soft X-ray spectrometry through the etching of layered synthetic microstructure monochromator[J]. *X-Ray Spectrom*, 1996, 25: 60-65.
- [3] SAMMAR A, KRASTEV K, ANDRÉ J M, *et al.* Narrow bandpass multilayer X-ray monochromator[J]. *Rev Sci Instrum*, 1997, 68 (8): 2969-2972.
- [4] BENBALAGH R, ANDRÉ J M, BARCHEWITZ R, *et al.* Fabrication and characterization of a Mo/Si multilayer monochromator with a narrow spectral bandwidth in the XUV domain[J]. *Nucl Instrum Methods Phys Res A*, 2001, 458: 650-655.
- [5] ANDRÉ J M, BENBALAGH R, BARCHEWITZ R, *et al.* Soft X-ray multilayer monochromator with improved resolution and low spectral background[J]. *X-ray Spectrom*, 2001, 30: 212-215.

作者简介:吴文娟(1980-),女,安徽池州人,同济大学物理系硕士研究生,主要研究方向为 X 射线光学。E-mail: juanwu3@hotmail.com