

文章编号 1004-924X(2013)02-0253-07

光学表面的 X 射线异常散射现象

孟艳丽^{1,2,3*}, 李 达^{1,2}, 陈 波¹

(1. 中国科学院 长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130033;
2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 东北师范大学 物理学院, 吉林 长春 130024)

摘要:研究了用掠入射散射法测量光学表面散射分布实验中存在的异常散射现象。首先,介绍了实验装置,并用原子力显微镜(AFM)测量了样品的表面粗糙度,给出了工作波长为 0.154 nm 时不同样品在不同掠入射角下的表面散射分布。然后,分析了异常散射角与临界角的关系。最后,对影响散射强度的因素进行了分析。实验结果表明:当掠入射角大于临界角时能观测到光学表面的异常散射现象。在波长一定的情况下,异常散射角与样品材料有关,与掠入射角和表面粗糙度无关;异常散射角略小于临界角,误差变化为 $-8.6\% \sim -0.9\%$ 。另外,镜像反射强度随着入射角和表面粗糙度的增大而迅速减弱,但异常散射强度与镜像反射强度的比值(峰值比)反而随着掠入射角或表面粗糙度的增大而增大,其比值在 0.012~2.667 变化。结果证明样品的材料和表面形貌是影响异常散射分布的两个重要因素。

关键词:X 射线异常散射;镜像反射;异常散射角;散射强度;临界角;表面粗糙度

中图分类号:O434.19; O436.1 **文献标识码:**A **doi:**10.3788/OPE.20132102.0253

X-ray anomalous surface scattering on optical surface

MENG Yan-li^{1,2,3*}, LI Da^{1,2}, CHEN Bo¹

(1. *Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China;*
2. *University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;*
3. *School of Physics, Northeast Normal University, Changchun 130024, China;*)
* *Corresponding author, E-mail: mengyl002@nenu.edu.cn*

Abstract: An Anomalous Surface Scattering (ASS) phenomenon was researched during the measurement of surface roughnesses for a smooth surface by a grazing X-ray scattering method. Firstly, an experimental facility based on an X-ray diffractometer were introduced. Several kinds of samples with different surface roughnesses were measured by an Atomic Force Microscope (AFM) and their surface scattering distributions in different grazing incident angles were given at working wavelength of 0.154 nm. Then, the relationship between anomalous scattering angles and critical angle was analyzed. Finally, the factors affecting on the scattering intensity were studied. Experimental results indicate that ASS can be observed when the grazing angle is larger than the critical angle. The anomalous scattering angle is related to the sample materials when incidence wavelength is a constant and it

收稿日期:2012-02-03;修订日期:2012-03-12.

基金项目:国家自然科学基金资助项目(10878004)

changes slightly with the grazing angle and surface roughness(Root Mean Square (RMS)). Moreover, all the measured anomalous scattering angles are slightly smaller than the nominal critical angle values of Si, fused quartz, Ni and Au respectively, and the measurement errors range from -8.6% to -0.9% . On the other hand, the equiangular reflection intensity is reduced obviously as the increasing of the grazing angle and surface roughness, whereas the intensity of ASS radiation is apt to increase instead of being weakened and the ratio of ASS peak intensity to equiangular reflection peak intensity ranges from 0.012 to 2.667. These results prove that sample materials and surface roughness are two principal factors affecting on ASS radiation distribution.

Key words: X-ray anomalous surface scattering; equiangular reflection; anomalous scattering angle; scattering intensity; critical angle; surface roughness

1 引言

掠入射成像系统主要用于对太阳活动及其它天体活动进行空间环境监测。对短波段光学成像系统而言,表面散射是影响成像质量的重要因素^[1-3],对光学表面散射的研究与超光滑表面质量的检测是评价高性能光学系统成像质量不可或缺的一部分,因此备受相关研究者关注。V. E. Asadchikova 等人开展了 X 射线掠入射散射法测量超光滑表面的研究^[4-9],该方法具有检测面积大、对面形要求不高、无损测量的优点。

在掠入射散射法测量光学表面散射分布的实验中存在异常散射现象。Yoneda 于 1963 年首先对该现象进行了研究^[10]。当 X 射线以掠入射角 θ_0 入射到样品表面时,除了发生反射角与掠入射角 θ_0 相等的镜像反射,还产生与入射角不对称的异常反射峰。异常反射角为 α , α 值与掠入射角 θ_0 无关,与入射光波长和物质材料相关。该现象的观测必须满足入射光强足够强、光束足够窄、以及几何精度高等条件,且所采用的实验装置较复杂、不易实现。Yoneda 只是把该现象看作反射现象,并没有对表面粗糙度对散射的影响进行更多的研究。1990 年, Filatova 等人在超软 X 射线波段证明了该现象的存在^[11],但只是定性地提出异常散射角小于镜像反射角,且与掠入射角无关、与波长有关,没有进行深入的、定量的研究。目前,大部分研究表面散射对掠入射成像系统影响的文献都未考虑表面异常散射的影响。本文着重对异常散射现象进行了定量研究,为进一步研究异常散射对掠入射系统成像质量的影响奠定了基础。实验中采用的 X 射线散射法装置为商用 X 射线衍射仪,它

结构简单且便于加工件的在线检测^[12-13]。

2 实验装置与样品

2.1 表面散射分布

通常情况下,超光滑表面高度都是二维随机分布的。当一束光入射到这样的光学表面上,反射光由镜向反射光和散射光两部分组成,坐标系统和散射角如图 1 所示。

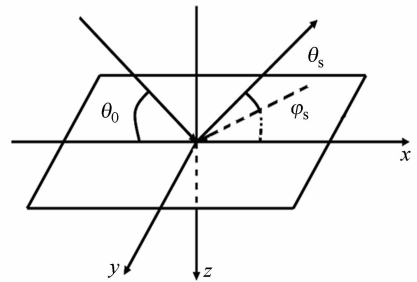


图 1 粗糙表面上 X 射线散射略图

Fig. 1 Schematic diagram of scattering geometry on arbitrarily rough surface

θ_0 为掠入射角, x - y 平面与样品表面平行, x 方向为镜像反射方向, z 方向为表面高度方向。 θ_s 与 φ_s 分别为掠散射角和方位散射角, 通常 $\varphi_s \ll \theta_s$ 。入射光为具有一定宽度的平行光束, 测量时探测器和接收狭缝沿 φ_s 方向有足够的宽度, 相当于在 φ_s 方向进行了积分, 因此, 本研究主要针对散射光线沿掠散射角 θ_s 方向的分布展开。

2.2 散射测量系统

用于掠入射 X 射线散射测量的装置为飞利浦 X'pert Pro X 射线衍射仪, 实验装置如图 2 所示。

实验选用铜 K_α 谱线作为 X 射线源, 辐射波长 λ 为 0.154 nm, 该光源具有较稳定的辐射功

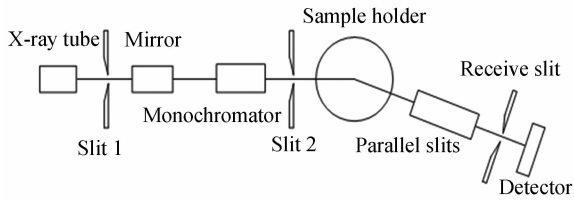


图2 X射线异常散射测量装置示意图

Fig. 2 Framework of X-ray anomalous scattering measuring system

率。为得到较高的入射光强,实验工作电压为 40 kV、工作电流为 40 mA。狭缝 1 用来控制光束的发散程度,实验时选用的狭缝发散度为 $(1/8)^\circ$ 。梯度多层膜抛物面 X 射线镜可将发散的入射光转化为单色的 (K_α 谱线) 准平行光, K_β 谱线被抑制到 0.5% 以下。抛物面镜对发散光具有会聚作用,因此出射光强较强。装置右端的索拉狭缝可进一步控制光线的发散程度。为了进一步保证 X 射线的单色性,使用了 Ge(220) 单色仪。为了使入射光束足够窄、定制了一个可调入射狭缝 2,实验选取的宽度为 0.04 mm。该测量系统角度计的转角精度可达 $(1/10\ 000)^\circ$ 。平行狭缝及该装置右端的索拉狭缝抑制了不同散射角度信号的重叠。接收狭缝的宽度为 0.1 mm,探测器为充 Xe 密封正比探测器。

2.3 样品及其表面粗糙度的测量

实验所采用的样品有:表面粗糙度不同的 3 片硅片 (S_1, S_2, S_3)、熔石英、镍薄膜及金薄膜。其中,镍薄膜和金薄膜采用电子束蒸发法制备,膜层厚度约为 300 nm。

用原子力显微镜 (Atom Force Microscope, AFM) 测得 3 片硅片、熔石英、金薄膜及镍薄膜表面粗糙度 RMS 值分别为 0.78, 0.84, 1.43, 2.49,

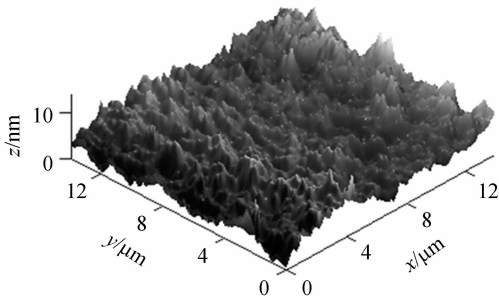


图3 用原子力显微镜 (AFM) 测得的金薄膜样品表面粗糙度

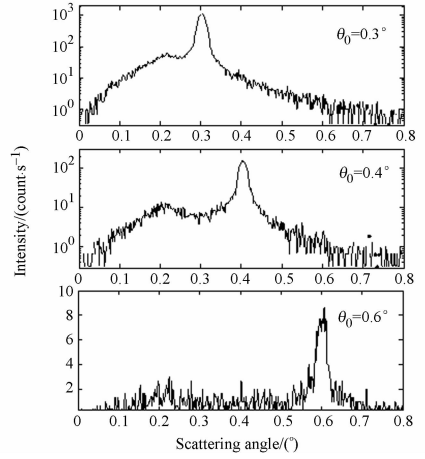
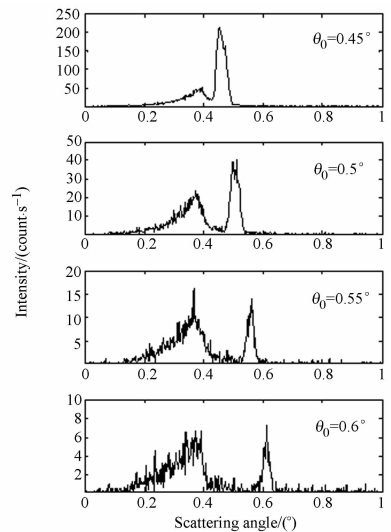
Fig. 3 Roughness of Au thin film with AFM

1.75 和 5.41 nm。AFM 的扫描区域为 $14\ \mu\text{m} \times 14\ \mu\text{m}$, 空间频率为 $0.07\ \mu\text{m}^{-1} < p < 9.1\ \mu\text{m}^{-1}$ 。金薄膜样品的表面粗糙度分布如图 3 所示。

3 实验结果和讨论

3.1 散射分布及异常散射角位置

图 4 给出了掠入射角 θ_0 分别为 $0.3^\circ, 0.4^\circ$ 和 0.6° 时,硅片 S_3 表面散射光强随散射角分布的测

图4 不同掠入射角度下硅片 S_3 表面的散射光强分布图Fig. 4 Angular distributions of scattered radiation of silicon sample S_3 under grazing incidence angles of $0.3^\circ, 0.4^\circ, 0.6^\circ$ and λ of 0.154 nm图5 掠入射角分别为 $0.45^\circ, 0.5^\circ, 0.55^\circ$ 和 0.6° 时镍薄膜表面的散射光强分布图Fig. 5 Angular distributions of scattered radiation of thin film nickel under grazing incidence angles of $0.45^\circ, 0.5^\circ, 0.55^\circ, 0.6^\circ$ and λ of 0.154 nm

量结果。如图所示,随着掠入射角的增大,镜像反射光强迅速降低。通常偏离镜像反射方向越远,散射光强越弱。但实验表明,当掠入射角大于临界角 θ_c 时(对于波长 λ 为 0.154 nm 的 X 射线,硅的临界角约为 0.223°),在散射光强的角度分布图上除镜像反射峰之外还会出现另一峰值,对应的散射角即为异常散射角 α 。

图 5 和图 6 分别为镍薄膜和金薄膜在不同掠入射角下的表面散射光强分布。对于波长 λ 为 0.154 nm 的 X 射线,金、镍的临界角约为 0.399° 和 0.556° 。如图所示,镍薄膜和金薄膜表面的异常散射现象更加明显。异常散射角 α 都出现在临界角附近,且异常散射峰两侧呈不对称分布。

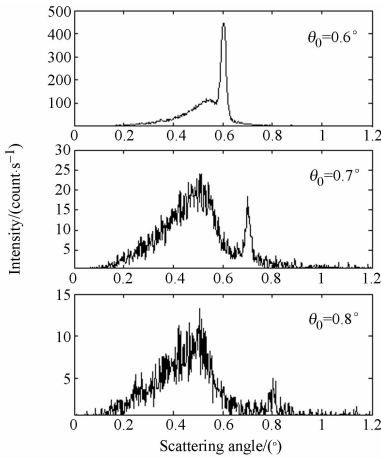


图 6 掠入射角分别为 $0.6, 0.7$ 和 0.8° 时金薄膜表面的散射光强分布图

Fig. 6 Angular distributions of scattered radiation of thin film Au under grazing incidence angles of $0.6, 0.7, 0.8^\circ$ and $\lambda = 0.154$ nm

表 1 列出了样品在不同掠入射角下的异常散射角 α 的值及其与临界角的相对误差。由表可知,随着掠入射角的增大,异常散射角 α 的变化很小,且总是略小于临界角 θ_c 。异常散射角与临界角的相对误差在 $-8.6\% \sim -0.9\%$;此外, α 随表面粗糙度的变化十分微小。因此在入射波长一定的情况下,异常散射角与样品的材料有关。

实验虽然采取了多种措施尽量使入射光接近于平行光,但入射光仍不可避免地具有一定的发散程度。入射光以大于临界角的掠入射角入射到样品表面($\theta_0 > \theta_c$)时的示意图如图 7 所示。

表 1 样品在不同掠入射角下的异常散射角及其与临界角的相对误差

Tab. 1 Anomalous scattering angle α and relative errors of α to critical angle with different grazing incident angles

sample	$\theta_c / (^\circ)$	σ / nm	$\theta_0 / (^\circ)$	$\alpha / (^\circ)$	Error / %
S_1	0.223	0.78	0.3	0.221	-0.9
			0.4	0.213	-4.5
			0.6	0.209	-6.3
S_2	0.223	0.84	0.3	0.217	-2.7
			0.4	0.212	-4.9
			0.6	0.206	-7.6
S_3	0.223	1.43	0.3	0.221	-0.9
			0.4	0.21	-5.8
			0.6	0.206	-7.6
Fused Quartz	0.216	2.49	0.3	0.209	-3.2
			0.4	0.204	-7.9
			0.5	0.205	-5.1
Au	0.556	1.75	0.6	0.213	-1.4
			0.6	0.534	-4.0
			0.7	0.513	-7.7
Nickel	0.399	5.41	0.8	0.508	-8.6
			0.45	0.394	-1.3
			0.5	0.374	-6.3
Nickel	0.399	5.41	0.55	0.366	-8.3
			0.6	0.392	-1.8

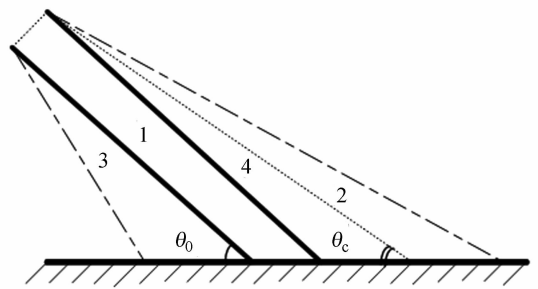


图 7 入射光束具有一定的发散度

Fig. 7 Sketch of incident beam with finite divergence

图 7 中,区域 1 位于入射光束的中心,具有很高的光强。假设该区域光线为理想的平行光,则它在光学表面发生散射的情况如图 8 所示。除镜像反射之外,在散射角 θ_s 等于临界角 θ_c 处,由于入射波、折射波和透射波的相互耦合,透射系数在临界角处被增强,散射分布产生一个极大值,即散射曲线在此处形成一个异常散射峰。另一方面,图 7 中区域 2 处光线的光强虽然远低于区域 1 处,但由于其掠入射角小于等于临界角 θ_c ,将发生

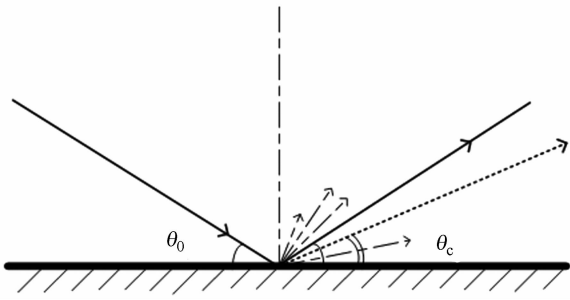


图 8 理想平行入射光束在光学表面散射示意图
Fig. 8 Sketch of optical surface scattering for ideal parallel beam

全反射,从而使小于等于异常散射角处的散射光强增强,因而异常散射峰的左侧光强分布略强,如图 4~图 6 所示。以上是异常散射峰形成的主要原因。

异常散射峰两侧光强的不对称分布使异常散射角 α 总是略小于 θ_c ,与实验测得的结果相吻合,如表 1 所示。其中,镍薄膜和金薄膜的误差相对较大,这是由于用电子束蒸发法制备的薄膜的实际密度和临界角通常小于该物质的标称值。

图 7 中区域 3,4 两部分的 X 射线由于光强较弱,且掠入射角大于 θ_c ,因而反射率较低、对异常散射峰的影响较小。这也造成了镜像反射两侧散射光强的不对称分布,如图 4 所示。

由表 1 可知,异常散射角与掠入射角和样品的表面粗糙度无关,其微小变化是由系统角度误差、样品摆放位置等因素引起的。

3.2 表面粗糙度对异常散射强度的影响

实验中所采用的硅片 S_3 的表面粗糙度比 S_1 大。从图 9 可以看出,样品 S_3 的表面散射比样品 S_1 明显(镜像反射率低,有较高的翼),样品 S_3 表面的异常散射角附近的散射光强大于样品 S_1 。即在样品材料相同、掠入射角相同时,表面粗糙度越大,异常散射峰越强。

表 2 列出了不同材料、不同表面粗糙度的样品在不同掠入射角下,异常散射峰峰值同镜像反射峰峰值的比值(峰值比)。对于同一样品,峰值比随着掠入射角的增大显著增大。这是由于当 $\theta_0 > \theta_c$ 时,镜像散射强度随着掠入射角的增大迅速衰减,而异常散射现象更加显著,如图 4~图 6 所示。当掠入射角相同时,峰值比随着表面粗糙度的增大而增大。这是由于当样品的表面粗糙度较大时,会增加异常散射的几率;但粗糙度过大时,

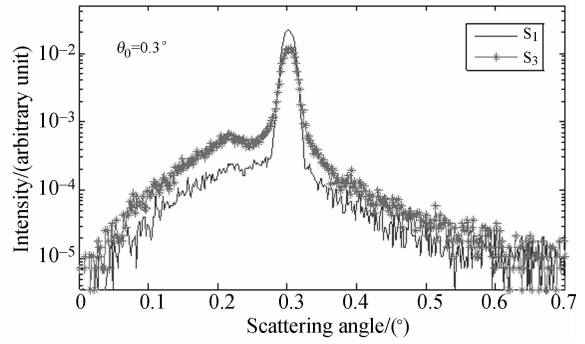


图 9 在掠入射角 θ_0 为 0.3° 时表面粗糙度分别为 1.43 nm 和 0.78 nm 的硅样品 S_1 和 S_3 的表面散射光强分布图

Fig. 9 Scattering intensity distributions of samples S_1 and S_3 with surface roughnesses of 1.43 nm and 0.78 nm respectively at grazing incidence angle $\theta_0 = 0.3$

会造成反射率太低而无法观测。当样品的尺寸比较小时,由于掠入射角很小,X 射线掠入射到样品表面的光束截面面积非常大,入射光只有少部分掠入射到样品表面上,因此镜像反射和散射光强都会显著降低。

表 2 不同表面粗糙度的样品在不同掠入射角下的峰值比(异常散射峰值/镜像散射峰值)

Tab.2 Ratios of anomalous scattering intensity to equiangular reflection radiation intensity with different grazing incident angles and surface RMS roughnesses

sample	σ/nm	$\theta_0(^{\circ})$						
		0.3	0.4	0.45	0.5	0.6	0.7	0.8
Si	S_1	0.012	0.018	-	-	0.03	-	-
	S_2	0.022	0.032	-	-	0.078	-	-
	S_3	0.056	0.095	-	-	0.273	-	-
Au	1.75	-	-	-	-	0.27	1.309	2.667
Fused quartz	2.49	0.061	0.155	-	0.277	0.391	-	-
Nickel	5.41	-	-	0.246	0.582	0.909	-	-

4 结 论

文中对表面粗糙度不同的 3 片硅片、熔石英、镍薄膜及金薄膜样品在不同掠入射角下的散射分布进行了测量,X 射线波长为 0.154 nm。从异常散射峰的位置、散射强度两个角度对多个样品的

衍射信息进行了分析。实验表明,异常散射角总是略小于临界角,与临界角的误差在 $-8.6\% \sim -0.9\%$,且与掠入射角和表面粗糙度无关。镜像反射强度随着入射角或表面粗糙度的增大而迅速减弱,但异常散射强度与镜像反射强度的比值(峰值比)反而随着掠入射角或表面粗糙度的增大而增大,比值变化为 $0.012 \sim 2.667$ 。因此,样品的材料和表面形貌是影响异常散射分布的两个重要因素。

文中还对掠入射角大于临界角时的异常散射现象进行了研究。当掠入射角小于样品的临界角时,由于异常散射角和镜像反射位置十分接近、且

镜像反射率很高,很难将异常散射与镜像反射区分开。由于异常散射现象仍然存在,会使反射光的角宽度变宽。对于掠入射成像系统而言,异常散射的存在会使成像系统的光斑半径增大、成像质量变差。因此,在掠入射成像系统中应尽可能降低光学元件的表面粗糙度,以提高成像质量。

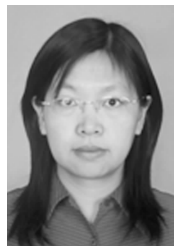
5 致 谢

文中的实验是在芬兰 Aalto 大学的 Micronova 实验室完成的,在此特别感谢 Harri Lipsanen 教授的指导和帮助。

参考文献:

- [1] HARVEY J E, THOMPSON P L, VERNOLD C L. Understanding surface scatter effects in grazing incidence X-ray telescopes[J]. *SPIE*, 1998, 3444: 518-525.
- [2] HARVEY J E, MORAN E C, ZMEK W P. Transfer function characterization of grazing incidence optical systems [J]. *Appl. Opt.*, 1988, 27: 1527-1533.
- [3] 崔天刚,王永刚,马冬梅,等. Wolter I型反射镜面形在线检测装置设计[J]. *光学精密工程*, 2010, 18(8):1801-1806.
CUI T G, WANG Y G, MA D M, *et al.*. Design of online measuring device for surface profile of Wolter Type I mirror [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2010, 18(8):1801-1806. (in Chinese)
- [4] KOZHEVNIKOV I V, PYATAKHIN M V. Use of DWBA and perturbation theory in X-ray control of the surface roughness [J]. *Journal of X-ray Science and Technology*, 2000, 8: 253-275.
- [5] ASADCHIKOVA V E, KOZHEVNIKOV I V, KRIVONOSOV Y S, *et al.*. Application of X-ray scattering technique to the study of supersmooth surfaces [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 2004, 530: 575-595.
- [6] ASADCHIKOVA V E, BUKREEVA I N, DUPARRE A D, *et al.*. X-ray study of surfaces and interfaces [J]. *SPIE*, 2001, 4449: 253-264.
- [7] HENSLER D H. Light scattering from fused polycrystalline aluminum oxide surfaces [J]. *Applied Optics*, 1972, 11: 2522-2528.
- [8] MENG Y L, WANG Y G, CHEN S Y, *et al.*. Assessment of surface roughness by use of soft X-ray scattering [J]. *SPIE*, 2009, 7451: 745116-1-8.
- [9] 尼启良,陈波. 散射法测量表面粗糙度[J]. *光学精密工程*, 2001, 9(2): 151-154.
NI Q L, CHEN B. Measurement of rough surface by scattering method [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2001, 9(2): 151-154. (in Chinese)
- [10] YONEDA Y. Anomalous surface reflection of X rays [J]. *Physical Review*, 1963, 131: 2010-2013.
- [11] FILATOVA E O, BLAGOVESHCHENSKAYA T A. The Yoneda effect in the region of ultrasoft X-ray emission [J]. *JETP Lett.*, 1990, 52: 396-398.
- [12] WANG Y G, MENG Y L, MA W S, *et al.*. Comparative study of X-ray scattering by first-order perturbation theory and generalized Harvey-Shack theory [J]. *SPIE*, 2009, 7448: 744810-1-10.
- [13] 王永刚,孟艳丽,马文生,等. 掠入射 X 射线散射法测量超光滑表面粗糙度[J]. *光学精密工程*, 2010, 9(2): 151-154.
WANG Y G, MENG Y L, MA W SH, *et al.*. Measurement of super-smooth surface by grazing X-ray scattering method [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2010, 9(2): 151-154. (in Chinese)

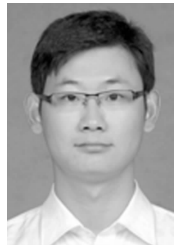
作者简介:



孟艳丽(1976—),女,河北滦县人,博士研究生,讲师,主要从事X射线表面散射及掠入射成像系统散射特性的研究。
E-mail: mengyl002@nenu.edu.cn



陈波(1961—),男,吉林长春人,研究员,博士生导师,1984于吉林大学获得学士学位,2003年于中科院长春光学精密机械与物理研究所获得博士学位,主要从事软X射线极紫外波段光学和空间光学的研究。E-mail: chenb@ciomp.ac.cn



李达(1985—),男,山东安丘人,博士研究生,主要从事日冕仪及杂散光方面的研究。E-mail: adily1985@163.com

(版权所有 未经许可 不得转载)

《中国光学》征稿启事

《中国光学》为双月刊,A4开本;刊号:ISSN 2095-1531 / CN 22-1400/O4;国内外公开发行人,邮发代号:国内12-140,国外BM6782。

★Elsevier Scopus 数据库

★美国《乌利希国际期刊指南》

★美国《化学文摘》

★波兰《哥白尼索引》

★俄罗斯《文摘杂志》

★中国光学学会会刊

★中国科技核心期刊数据库

★中国期刊全文数据库

★万方数字化期刊全文数据库

★中国科技期刊数据库

★中国光学期刊网数据库

主要栏目:微纳光学、信息光学、集成光电子、光谱学和光谱仪器、激光技术与应用、光学功能材料、光学设计与工艺、大气与空间光学、光学仪器与测试、综述等。

发稿类型:学术价值显著、实验数据完整的原创性论文;研究前景广阔,具有实用、推广价值的技术报告;有创新意识,能够反映当前先进水平的阶段性研究简报;对当前学科领域的研究热点和前沿问题的专题报告;综合评述国内外光学技术研究现状、发展动态和未来发展趋势的综述性论文。

欢迎投稿、荐稿。

主管单位:中国科学院

主办单位:中国科学院长春光学精密机械与物理研究所、中国光学学会

协办单位:激光与物质相互作用国家重点实验室

编辑:《中国光学》编辑委员会

出版:中国科技出版传媒股份有限公司

网址: <http://www.chineseoptics.net.cn>

电子邮箱: chineseoptics@ciomp.ac.cn; zggx.cn@126.com

联系电话:0431-86176852;0431-84627061 传 真:0431-84627061

地 址:吉林省长春市东南湖大路 3888 号(130033)