08

Оптимизация состава, синтез и изучение широкополосных многослойных зеркал для ЭУФ диапазона

© М.М. Барышева,¹ С.А. Гарахин,¹ С.Ю. Зуев,¹ В.Н. Полковников,¹ Н.Н. Салащенко,¹ М.В. Свечников,¹ Р.М. Смертин,¹ Н.И. Чхало,¹ Е. Meltchakov²

¹ Институт физики микроструктур РАН, 607680 Нижний Новгород, Россия ² Laboratoire Charles Fabry, Institut d'Optique Graduate School, 91127 Palaiseau, France e-mail: mmbarysheva@ipmras.ru

Поступило в Редакцию 28 марта 2019 г. В окончательной редакции 28 марта 2019 г. Принято к публикации 15 апреля 2019 г.

Разработаны и изготовлены широкополосные Mo/Si и Mo/Be многослойные зеркала стекового типа для диапазонов длин волн 11.1–13.8, 17–21 и 28–33 nm. Показано, что для таких структур равномерное отражение может быть достигнуто за небольшое число коррекций технологического процесса.

Ключевые слова: ЭУФ, широкополосные зеркала, апериодические зеркала, стековые структуры, рефлектометр с лазерно-плазменным источником.

DOI: 10.21883/JTF.2019.11.48341.116-19

Введение

Многослойные рентгеновские зеркала с изменяющимся по глубине периодом и уширенной спектральной или угловой кривой отражения широко применяются в рентгенооптических исследованиях [1]. В солнечной астрономии они являются рабочим элементом спектрогелиографов [2], в спектроскопии лабораторной плазмы [3] позволяют собрать на порядок больше информации от исследуемого объекта благодаря высокому интегральному коэффициенту отражения; актуальны как элементы для транспортировки, коллимации и фокусировки аттосекундных импульсов электромагнитного излучения [4].

В настоящий момент разработано два принципиально разных подхода к дизайну многослойных зеркал, обладающих максимальным равномерным отражением в заданном спектральном диапазоне. В обоих случаях в качестве отправной точки берется периодическое многослойное зеркало (ПМЗ), образованное тонкими чередующимися слоями материалов с разной диэлектрической проницаемостью, однако "период" структуры изменяется по глубине. В случае апериодической структуры (АМЗ) все слои имеют индивидуальную толщину. Распределение толщин в жестком рентгеновском диапазоне подчиняется степенному закону [5-7], или хаотическому, рассчитываемому численно [8,9] — в мягком рентгеновском и экстремальном ультрафиолетовом (ЭУФ) диапазонах. Второй подход, так называемый стековый [10] (от английского stack): многослойное зеркало представляет собой несколько напыленных одно на другое ПМЗ с разными характеристиками: $\{N_i, d_i, \gamma_i\}$ количество периодов, величина периода, доля сильнопоглощающего вещества соответственно (i — номер ПМЗ в составе стековой структуры). С увеличением числа ПМЗ и $N_i = 1$ такая структура, очевидно, сводится к АМЗ. Отсюда же следует неизбежно меньшая гладкость кривой отражения оптимизированной стековой структуры и несколько меньшие коэффициенты отражения: при оптимизации состава АМЗ должен быть найден компромисс между гладкостью "полочки" и ее высотой.

Плюсы стекового подхода определяются, прежде всего, технологией. Фактически, чтобы корректно напылить N различных толщин, необходимо провести порядка N калибровок, что в случае AM3 с большим (несколько десятков) числом слоев оказывается чрезвычайно трудозатратным. Что касается решения обратной задачи, для классического AM3 она практически нерешаема из-за большого числа параметров и неоднозначности полученного решения. В случае стекового многослойного зеркала (СМЗ) число восстанавливаемых параметров существенно меньше, обратная задача может быть достоверно решена, и проведена соответствующая коррекция технологического процесса. Приведенные соображения объясняют преимущество использования стекового дизайна при изготовлении широкополосных рентгеновских зеркал.

В ИФМ РАН имеется опыт изготовления апериодических широкополосных зеркал на основе пар материалов Мо/Si и Мо/Ве для космической аппаратуры исследования солнца КОРТЕС [9,11]. Настоящая работа посвящена разработке и изготовлению стековых структур с равномерным отражением в диапазонах длин волн 11.1–13.8, 17–21 и 28–33 nm.



Рис. 1. Схема многослойного зеркала стекового типа.

1. Оптимизация состава стековых структур

Традиционной парой материалов, применяемой в диапазоне 12.5–35 nm является Mo/Si, однако в области 12.3–12.4 nm расположен край поглощения Si и в качестве "спейсера" в этой области применяется Ве. Таким образом, в диапазонах 17–21 и 28–33 nm были рассчитаны и изготовлены Mo/Si стековые зеркала, в диапазоне 11.1–13.8 nm — Mo/Be, как обладающие наибольшим экспериментально полученным коэффициентом отражения в этой области [12–14].

Схематическое изображение стековой структуры, состоящей из трех МПЗ, приведено на рис. 1. Поиск параметров СМЗ, обеспечивающих равномерное отражение в заданном диапазоне длин волн, представляет собой задачу многомерной оптимизации, сводящуюся к минимизации функционала

$$F = \int [R(\lambda) - R^{ ext{target}}]^{2m} d\lambda,$$

где $R(\lambda)$ — зависимость коэффициента отражения от длины волны, R^{target} — целевая функция для коэффициента отражения (определяет высоту "плато"), интеграл вычисляется в области определения R^{target} . Процедура содержит несколько итераций, вначале высота "плато" выбирается на уровне, соответствующем отражению ПМЗ, и постепенно понижается до достижения удовлетворительной гладкости.

В качестве параметров оптимизации рассматривается набор $\{N_i, d_i, \gamma_i\}$, в случае использования защитного

покрытия или прослоек к варьируемым параметрам добавляются их толщины. Плотности материалов и характеристики интерфейсов считаются известными из экспериментов с периодическими зеркалами. Так, для пары Mo/Si ширины переходных областей, понимаемых в смысле среднеквадратичной шероховатости σ , составляют $\sigma = 1.2$ nm (Mo-на-Si) и $\sigma = 0.6$ nm (Si-на-Mo) [13], плотности пленок табличные. Случай Мо/Ве изучен хуже [14–16], при расчетах мы закладывали $\sigma = 0.7$ nm (Мо-на-Ве) и $\sigma = 0.3$ nm (Ве-на-Мо). Как показано в [9], в случае апериодических зеркал результат решения задачи оптимизации будет существенно разным для нулевых и ненулевых значений σ , поэтому важно изначально учитывать реалистичные параметры переходных областей. Анализ, однако, показывает, что незначительное (порядка А) отличие величин шероховатостей не должно приводить к драматическому искажению кривой отражения, т.е. строгое выполнение приведенных выше соотношений не необходимо.



Рис. 2. Спектры источника излучения ЭУФ диапазона, промеренные дифракционными решетками 900 (1) и 300 (2) lines/mm.



Рис. 3. Экспериментально полученные (1-3 -номера итераций) и расчетная (4) кривые отражения Mo/Si CM3, оптимизированных на равномерное отражение в диапазоне 17-21 nm.

Журнал технической физики, 2019, том 89, вып. 11

Номер ПМЗ от поверхности	Число периодов, N _i	Материал	Толщины слоев ПМЗ, nm			
			Расчет	Первичная структура	1-я коррекция	Финальная коррекция
пленка Si	1	Si	1.40	1.40	1.40	1.40
1	3	Mo Si	4.30 6.72	4.34 6.66	4.33 6.66	4.34 6.72
2	3	Mo Si	3.43 5.37	3.35 5.21	3.35 5.21	3.44 5.39
3	32	Mo Si	4.50 4.50	4.30 4.30	4.40 4.40	4.52 4.52

Таблица 1. Расчетные и восстановленные толщины слоев Mo/Si CM3 для диапазона 17-21 nm

Таблица 2. Расчетные и восстановленные параметры Mo/Si CM3 для диапазона 28-33 nm

Номер ПМЗ от	Число периодов, N	Материал	Толщины слоев ПМЗ, nm	
поверхности			Расчет	Эксперимент
пленка Si	1	Si	5.3	7.6
1	2	Mo Si	5.58 10.36	4.81 10.99
2	1	Mo Si	10.57 12.5	11.12 13.09
2	5	Mo Si	5.62 12.5	5.45 12.49
2	1	Mo Si	5.62 15.21	6.63 16.49
3	20	Mo Si	4.95 13.38	4.68 13.20

Минимизация (1) осуществлялась при помощи алгоритма дифференциальной эволюции, реализованного в рамках программы Multifitting [17], в отличие от широко распространенной IMD [18] позволяющей рассматривать N_i в качестве параметра оптимизации. Мы не накладывали априорных ограничений на характер изменения d_i вглубь структуры, устанавливая на первом шаге достаточно широкий (избыточный с точки зрения условия Брэгга) и одинаковый для всех d_i диапазон изменения (например, 5–100 nm при диапазоне 28–33 nm). Из всех решений, соответствующих минимуму (1), оптимальными считались параметры, обеспечивающие максимальную гладкость кривой отражения в заданном спектральном интервале при максимально доступной высоте "полочки".

Параметры рассчитанных СМЗ и соответствующие им кривые отражения можно видеть в таблицах 1-3 и на рисунках 3-7. Во всех приведенных случаях рассчитанные стековые структуры демонстрируют рост d_i к подложке

аналогично [10,19] (отметим, что в "жестком" диапазоне наблюдается другая картина [20]). При этом верхние слои играют роль фильтра, подавляющие межстековые отражения и ослабляющие осцилляции кривой отражения зеркала.

2. Метод напыления

Образцы изготавливались методом магнетронного распыления в атмосфере аргона при давлении $1 \cdot 10^{-3}$ Torr; в качестве подложек использованы кремниевые пластины для микроэлектронной промышленности с эффективной шероховатостью в диапазоне пространственных частот $0.024-65\,\mu\text{m}^{-1}\ \sigma = 0.3\,\text{nm}\ [21]$. Подробное описание напылительной установки содержится в [22]. Толщина осажденной пленки материала определяется временем прохождения подложки над мишенью и величиной тока на магнетроне, поэтому процессу изготовления зеркала предшествует процедура калиб-



Рис. 4. Экспериментально полученная (1) и расчетная (2) кривые отражения Mo/Si CM3, оптимизированных на равномерное отражение в диапазоне 28–33 nm (первая итерация).



Рис. 5. Окно программы Multifitting: одновременная подгонка экспериментальных кривых отражения при $\lambda = 0.154$ nm и 20–35 nm Mo/Si CM3 для 28–33 nm, теоретический расчет показан сплошной линией.

ровки. Однако неизбежный дрейф режима в установке, микропробои, незначительные изменения давления рабочего газа могут приводить к отклонению толщин пленок от заданных значений. Процедура изготовления многослойного покрытия, таким образом — итерационная, требующая определения параметров зеркала и соответствующей коррекции процесса напыления.

3. Характеризация структур

Для контроля за технологическим процессом с целью его коррекции проводилась характеризация образцов методом малоугловой дифракции рентгеновских



Рис. 6. Экспериментально полученные усреднением по пяти реализациям (1) и расчетная (2) кривые отражения Мо/Ве СМЗ, оптимизированных на равномерное отражение в диапазоне 11.1-13.8 nm (сплошные линии).



Рис. 7. Окно программы Multifitting: одновременная подгонка экспериментальных кривых отражения при $\lambda = 0.154$ nm и 9.6–15.2 nm Мо/Ве СМЗ для 11.1–13.8 nm, теоретический расчет показан сплошной линией.

Номер ПМЗ от	Число	Толщины слоев ПМЗ, nm			
поверхности	периодов, N	Материал	Расчет	Эксперимент	
1	2	Be Mo	2.72 2.22	BeO: 1.43 Be: 2.93 Mo: 2.22 Be: 26.8 Mo: 2.26	
2	4	Be Mo	3.38 2.25	3.32 2.31	
3	6	Be Mo	2.95 3.07	2.87 3.19	
4	8	Be Mo	3.08 3.33	3.02 3.41	
5	11	Be Mo	3.20 3.75	3.18 3.82	
3	6	Be Mo	2.95 3.07	2.87 3.19	
4	8	Be Mo	3.08	3.02	
6	10	Be Mo	3.05 4.38	2.93 4.54	

Таблица 3. Расчетные и восстановленные параметры Мо/Ве СМЗ для диапазона 11.1-13.8 nm

лучей на длине волны Cu K_{α} 0.154 nm с использованием дифрактометра PANalitycal X'Pert Pro. Дифрактометр оснащен четырехкристальным ассиметричным монохроматором Ge (220); образец закрепляется на столе с 6-ю степенями свободы, механика прибора обеспечивает точность установки углов на уровне 0.001°. Измерения проводились в диапазоне углов скольжения излучения на образец $\theta = 0-5^{\circ}$, доступный динамический диапазон по интенсивности рентгеновского пучка составляет 10⁶.

В рабочем ЭУФ диапазоне широкополосные зеркала изучаются на разработанном в ИФМ РАН рефлектометре, в котором монохроматизация излучения осуществляется с помощью высокоразрешающего спектрометра Черни-Тюрнера с плоской дифракционной решеткой и двумя сферическими коллимирующими зеркалами и лазерно-плазменным источником излучения [23]. В отличие от традиционно применяемых спектрометровмонохроматоров роуландовского типа такая схема, обладая высоким спектральным разрешением и широким рабочим диапазоном, сохраняет входную и выходную щели неподвижными, практически полностью снимая ограничения на массогабаритные характеристики источника излучения. Рефлектометр оснащен пятиосным гониометром, позволяющим изучать многослойные зеркала, нанесенные на криволинейные подложки.

Источником рентгеновского излучения в описываемом рефлектометре является высокоионизованная плазма, генерируемая при взаимодействии мощного лазерного пучка (плотность мощности $10^{11}-10^{12}$ W/cm²) на твердотельную мишень. Для стабилизации эмиссионных характеристик необходимо избегать образования глубоких кратеров на мишени, что достигается ее постоянным смещением, поступательным линейным и вращательным. Сканирование по спектру осуществляется поворотом дифракционной решетки; калибровка спектра производится по краям поглощения свободновисящих фильтров Be, Al, MoZrSi₂, MoSi₂ и ZrSi. Монохроматический зондовый пучок падает на тороидальное зеркало, формирующее на образце зондовый пучок размером 0.29 × 0.16 mm. Расходимость пучка по горизонтали (в плоскости сканирования) составила 0.008°, по вертикали — 0.07°.

Спектры источника с мишенью из нержавеющей стали измерены в диапазоне 4–60 nm (рис. 2) с использованием дифракционных решеток 900 и 300 lines/mm (спектральное разрешение 0.03 и 0.06 nm соответственно). Первая решетка позволяет эффективно работать в диапазоне 5–15 nm, вторая — 9–24 nm, а при дополнительном использовании Al-фильтра для отсечения второго порядка дифракции — вплоть до 34 nm. Для оценки точности измерений рефлектометра в диапазоне длин волн 11–14 nm было проведено сравнение спектральных и угловых зависимостей коэффициентов отражения Mo/Si и Мо/Ве зеркал с результатами, полученными на BESSY-2, которые показали совпадение в пределах $\pm 1.5\%$.

На основе данных, полученных в жестком и мягком рентгеновских диапазонах, решается обратная задача, для чего применяется авторская программа "Multifitting" [18], позволяющая одновременно производить подгонку нескольких кривых отражения, полученных в разных частотных диапазонах. В качестве параметров подгонки выступают характеристики стеков, составляющих широкополосное зеркало: толщины и плотности материалов, шероховатости/масштабы переходных областей. После восстановления параметров реальной структуры, отличных от теоретически рассчитанных, производится коррекция процесса напыления.

4. Экспериментальные результаты и обсуждение

В рамках настоящей работы были синтезированы и изучены образцы широкополосных Мо-содержащих СМЗ, изготовленных по описанной выше схеме и оптимизированных на равномерное отражение в диапазонах длин волн 17–21, 28–33, 11.1–13.8 nm.

Mo/Si, 17-21 nm. Итерационная процедура напыления трех-стэкового Mo/Si широкополосного зеркала для диапазона 17-21 nm проиллюстрирована на рис. 3. При первом напылении кривая отражения далека от "полочки", дифрактометрия в жестком диапазоне выявила заметное отклонение толщин зеркала от расчетных (табл. 1), однако последовательно проведенная процедура коррекции позволила за три итерации добиться "плато" в области 17-21 nm. Плотность Мо составила 0.98 от табличного значения, плотность Si табличная. Значения шероховатостей для разных ПМЗ в составе стековой структуры составили $\sigma = 0.5 - 0.9$ nm (Мо-на-Si) и $\sigma = 0.2 - 0.5$ nm (Si-на-Mo). Обращает на себя внимание чувствительность кривой отражения к изменениям толщин пленок порядка 1 А. В то же время незначительные отличия плотностей и значений шероховатости не приводят к заметному ухудшению вида кривой отражения, что важно с точки зрения решения прямой задачи, т.е. поиска оптимальных параметров СМЗ.

Мо/Si, 28–33 nm. Для диапазона 28–33 nm было рассчитано теоретически и изготовлено одно Mo/Si CM3, образованное тремя ПМЗ с прослойками Мо и Si оптимальной толщины (табл. 2). Для удобства напыления эта структура представлена более мелким разбиением на 5 ПМЗ (столбец 2 табл. 2). Спектральная характеристика экспериментального образца приведена на рис. 4, а на рис. 5 — подгонка кривых отражения в жестком и мягком рентгеновских диапазонах в программе Multifitting [17]. Можно видеть, что ошибки в толщинах слоев составили 0.5–1 nm, что будет учтено на следующей стадии работы со структурами данного типа. Плотности Si, Мо аналогично CM3 для 17–21 nm

близки к табличным (толщины Мо находятся в диапазоне 5-10 nm, что существенно превышает характерную толщину кристаллизации для Мо), шероховатость также находится в рамках стандартных значений, наблюдается характерная для Мо/Si асимметрия границ.

Мо/Ве, 11.1—13.8 nm. Серия измерений коэффициента отражения $R(\lambda)$ 6-стекового Мо/Ве зеркала в диапазоне длин волн 10—15 nm приведена на рис. 6. Несмотря на изрезанный характер как спектра источника ЭУФ-излучения (рис. 2), так и самой кривой отражения, продемонстрирована хорошая воспроизводимость результатов измерений; погрешность составила 0.5%.

Для корректного описания вида кривых отражения (рис. 7), в том числе в области критического угла при $\lambda = 0.154$ nm, необходимо моделировать образование на поверхности зеркала окисла BeO толщиной 1.4 nm и "разбухание" приповерхностного слоя приблизительно на 1 nm: вместо толщины h(Be) = 2.72 nm имеем h(Be + BeO) = 3.82 nm. Толщины остальных слоев, как показывает анализ, соответствуют расчетным с точностью до 0.15 nm (табл. 3), плотности материалов табличные, шероховатости составили $\sigma = 0.65$ nm (Мо-на-Ве) и $\sigma = 0.36$ nm (Be-на-Мо). Кроме того, для улучшения отражательных характеристик Мо/Ве стековых зеркал в диапазоне 11.1–13.8 nm в дальнейшем необходимо использовать защитное покрытие.

Выводы и заключение

Таким образом, в ИФМ РАН разработана методика расчета, изготовления и анализа многослойных структур стекового типа. Созданы и изучены экспериментальные образцы Mo/Si и Mo/Be, представляющие интерес для диагностики плазмы.

Для случая, когда была произведена последовательная корректировка технологических параметров, продемонстрировано хорошее совпадение теории и эксперимента. В течение трех коррекций задача была решена, что позволяет изготавливать широкополосные зеркала стекового типа для различных приложений рентгеновской оптики.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках Программы Президиума РАН І.1 "Экстремальные световые поля и их взаимодействие с веществом". Часть работ поддержана Российским фондом фундаментальных исследований: разработка Multifitting поддержана грантом № 18-32-00173, напыление экспериментальных образцов грантом 17-52-150006, измерение коэффициентов отражения на длине волны 0.154 nm — грантом № 18-32-00671.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- Апериодические элементы в оптике мягкого рентгеновского диапазона / Под ред. Е.Н. Рагозина. М.: Физматлит, 2018. 131 с.
- [2] Shestov V., Ulyanov S., Vishnyakov E. // SPIE. 2002. Vol. 9144. P. 91443G1.
- [3] Yulin S. // SPIE. 2002. Vol. 4782. P. 196-203.
- [4] Вишняков Е.А., Каменец Ф.Ф., Кондратенко В.В. // Квант. электрон. 2012. Т. 42. № 2. С. 143–152
- [5] Joensen K.D., Gorenstein P., Wood J.L., Christensen F.E. // Proc. SPIE. 1994. Vol. 2279. P. 180–189.
- [6] Kozhevnikov I.V., Bukreeva I.N., Ziegler E. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A. 2001. Vol. 460. N 2–3. P. 424–443.
- [7] Ziegler E., Bukreeva I.N., Kozhevnikov I.V., Pirozhkov A.S., Ragozin E.N. // Proc. SPIE. 1999. Vol. 3737. P. 386–395.
- [8] Бейгман И.Л., Пирожсков А.С., Рагозин Е.Н. // Письма в ЖЭТФ. 2001. Т. 74. № 3. С.167–171.
- [9] Гайкович П.К., Полковников В.Н., Салащенко Н.Н., Чхало Н.И., Шеферс Ф., Соколов А. // Квант. электрон. 2016. Т. 46. № 5. С. 406-413.
- [10] Kuhlmann T., Yulin S., Feigl T., Kaiser N., Bernitzki H., Lauth H. // Proc. SPIE. 2002. Vol. 4688. P. 509–515.
- [11] Ахсахалян А.Д., Клюенков Е.Б., Лопатин А.Я. и др. // Поверхность. Рент., синхр. и нейтр. исслед. 2017. № 1. С. 5-24.
- [12] Banine V, Benschop J.P., Leenders M., Moors R. // Proc. SPIE. The International Society for Optical Engineering. 2002. Vol. 3997. P. 126–135.
- Braun S., Mai H., Moss M., Scholz R., Leson A. // Jpn.
 J. Appl. Phys. 2002. Vol. 41. P. 4074–4081.
- [14] Svechnikov M.V., Chkhalo N.I., Gusev S.A., Nechay A.N., Pariev D.E., Pestov A.E., Polkovnikov V.N., Tatarskiy D.A., Salashchenko N.N., Schäfers F., Sertsu M.G., Sokolov A., Vainer Y.A., Zorina M.V. // Opt. Express. 2018. Vol. 26. N 26. P. 33718–33731.
- [15] Chkhalo N.I., Gusev S.A., Nechay A.N., Pariev D.E., Polkovnikov V.N., Salashchenko F., Schäfers N.N., Sertsu M.G., Sokolov A., Svechnikov M.V., Tatarsky D.A. // Opt. Lett. 2017. Vol. 42. N 24. P. 5070–5073.
- [16] Svechnikov M., Pariev D., Nechay A., Salashchenko N., Chkhalo N., Vainer Y., Gaman D. // J. Appl. Cryst. 2017. Vol. 50. P. 1428–1440.
- [17] Свечников М.В. // Нанофизика и наноэлектроника. Матер. XXIII Междунар. симпозиума. 2019. Т. 1. С. 519–520.
- [18] Windt D. // Computers in Physics. 1998. Vol. 12. N 4. P. 360–370.
- [19] Kuang S., Li S., Yang H., Huo T., Zhou H. // Opt. Precision Engineer. 2018. Vol. 26. N 10. P. 2395–2406.
- [20] Yao Y, Kunieda H., Wang Z. // Opt. Express. 2013. Vol. 21. N 7. P. 8638–8651.
- [21] Барышева М.М., Вайнер Ю.А., Грибков Б.А., Зорина М.В., Пестов А.Е., Рогачев Д.Н., Салащенко Н.Н., Струля И.Л., Чхало Н.И. // Изв. РАН. Сер. Физ. 2011. Т. 75. № 1. С. 71–76.
- [22] Andreev S.S., Akhsakhalyan A.D., Bibishkin M.A., Chkhalo N.I., Gaponov S.V., Gusev S.A., Kluenkov E.B., Prokhorov K.A., Salashchenko N.N., Schäfers F., Zuev S.Yu. // Centr. Europ. J. Phys. 2003. Vol. 1. P. 191–209.
- [23] Гарахин С.А., Нечай А.Н., Чхало Н.И., Салащенко Н.Н., Зуев С.Ю., Забродин И.Г., Каськов И.А., Пестов А.Е., Полковников В.Н. // Нанофизика и наноэлектроника. Матер. XXIII Междунар. симпозиума. 2019. Т. 1. С. 447–448.