

· 激光物理与器件 ·

月基极紫外相机 Mo/Si 多层膜反射镜的空间质子辐照稳定性

李云鹏¹, 陈波², 吕鹏³, 杨洪臣¹, 王华朋¹¹ 中国刑事警察学院, 沈阳 110854;² 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 长春 130033;³ 江苏大学, 江苏 镇江 212013

摘要:为研究月基极紫外相机 Mo/Si 多层膜反射镜能否在月面辐照环境下长期稳定工作,从理论仿真、光学性能、微观形貌三方面对其辐照稳定性进行了研究。采用 Monte-Carlo 方法模拟了不同能量质子束辐照 Mo/Si 多层膜后薄膜内部的损伤情况,结果表明:质子能量越高,对薄膜深层损伤越大。进行了 50KeV 高能质子辐照实验,Mo/Si 多层膜辐照后周期厚度降低、界面粗糙度增加,30.4 nm 反射率下降 2.8%,中心波长向短波方向偏移 0.2nm。TEM 显示 Mo/Si 多层膜辐照后出现了局部烧蚀和膜层间渗透,周期结构被破坏。制备的 Mo/Si 多层膜反射镜在辐照后虽然性能发生一定退化,但仍可正常工作,说明其具有良好的辐照稳定性。

关键词:Mo/Si 多层膜;质子辐照;反射率;等离子体层**中图分类号:**O434 **文献标识码:**A **doi:**10.14016/j.cnki.jgzz.2021.11.024

Proton irradiation stability of Mo/Si multilayer mirror for Moon-based EUV camera

LI Yunpeng¹, CHEN Bo², LV Peng³, YANG Hongchen¹, WANG Huapeng¹¹ Criminal Investigation Police University of China, Shenyang 110854, China;² Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China³ Jiangsu University, Zhenjiang 212013, China

Abstract: To study whether the Mo/Si multilayer mirror of lunar-based extreme ultraviolet (EUV) camera can work stably for a long time in the lunar radiation environment, the radiation stability of 30.4 nm Mo/Si multilayer was analyzed from the aspects of theoretical simulation, optical performance and morphology. Monte-Carlo technique was used to emulate the damage distribution in Mo/Si multilayer after proton irradiation with different energy in lunar surface, and the results show that the higher the proton energy is, the greater the damage in the deep layer of the film is. The Mo/Si multilayer film was irradiated by 50 KeV protons. After irradiation, the periodic thickness of Mo/Si multilayer film decreased, the interface roughness increased, the reflectivity at 30.4 nm decreased by 2.8%, and the central wavelength shifted by 0.2 nm to short wavelength. TEM shows that the Mo/Si multilayer film is partially ablated and infiltrated after irradiation, and the periodic structure is destroyed. The prepared Mo/Si multilayer mirror can still work normally after irradiation although the optical performance is degraded, which indicates that it has excellent irradiation stability.

Key words: Mo/Si multilayer film; proton irradiation; reflectivity; plasma layer

收稿日期:2021-09-21

基金项目:国家重点研发计划项目(No. 2017YFC0821000)、辽宁省自然科学基金计划重点项目(No. 20180540048)、中央高校基本科研业务费中国刑事警察学院项目(No. D2017020)、辽宁省教育厅科学研究经费项目(No. ZGXJ2020008)

作者简介:李云鹏(1988-),男,理学博士,讲师,研究方向为短波光学、安全防范技术。E-mail: lypciomp@126.com

通信作者:杨洪臣(1964-),男,教授,研究方向为安全防范技术。E-mail: 352816211@qq.com

1 引言

地球等离子体层是地球磁层中最接近地球的区域,它会受太阳剧烈活动的影响而发生大规模无规律的地磁扰动,这种扰动对卫星通讯、地面通信、安防设备、航空航天器的正常工作造成巨大影响。为减少空间天气活动对人类生产、生活、公共安全的影响,避免

航空航天活动的危险,科学家们提出了用极紫外(extreme ultraviolet, EUV)探测的方法对地球等离子体层成像。中国探月工程“嫦娥三号”卫星成功着陆月球,搭载了中国科学院长春光机所研制的 EUV 相机,在月面完成了国际上首次对地球等离子体层整体的一次性成像^[1]。EUV 相机工作时受到恶劣的月面空间环境影响^[2],如高真空、高温、低温、高能粒子辐照、冷黑、污染、空间碎片,其中到达月面的银河宇宙射线中高能质子和 α 粒子对航天器的影响最大。EUV 相机中 Mo/Si 多层膜反射镜是相机的核心光学器件,质子辐照损伤效应会引起光学薄膜的光学性能和物理性能的退化,退化严重时会造成 EUV 相机成像失效^[3]。因此研究 Mo/Si 多层膜反射镜对高能质子辐照的稳定性十分有必要。

对空间环境试验研究的基本方法包括:辐射飞行试验,地面模拟试验^[4-6],理论方法与数值模拟^[7-9]。由于辐射飞行试验成本高、周期长,当前空间光学载荷的空间环境试验主要采用地面模拟试验和数值模拟的方式进行研究^[10]。Pelizzo 等人^[11]制备了具有 Ir/Mo 和 Ru/Mo 保护层的 30.4 nm Mo/Si 多层膜,并用 1 KeV 的低能质子辐照 Mo/Si 多层膜,中心波长处反射率最大下降 5%,中心波长最多偏移 0.6 nm。Nardello 等人^[12]采用 4KeV 的低能 α 粒子对镀制了 Ir/Mo、Ir/Si 保护层的 Mo/Si 多层膜进行辐照,在不同剂量下有 5%~10% 的下降。Delmotte 等人^[13]改进了材料,研究了 1KeV 低能质子对 Al/Mo/SiC 和 Al/Mo/B₄C 多层膜的辐照稳定性,该结构经辐照后反射率下降 5%,但 Al 基极紫外多层膜的高温稳定性低于 Mo/Si 多层膜,因此尚未实际应用于空间极紫外成像。为深入分析 Mo/Si 多层膜经辐照后性能下降的原因,研究人员采用透射电镜对辐照前后的微观形貌进行了研究。Kuznetsov 等人^[14]通过对 Mo/Si 多层膜透射电镜图像分析,Mo/Si 多层膜光学性能的退化均因辐照后 Mo/Si 多层膜顶层部分的破裂和分层,以及层与层之间的分子扩散。江苏大学材料学院吕鹏等人^[15]对 Mo/Si 多层膜质子辐照后的微观缺陷进行了研究,辐照造成的 Mo/Si 多层膜层状结构扭曲和折断现象是造成光学性能下降的原因。

上述研究中的质子能量普遍较低,大多研究的质子能量在 1~10 KeV 之间,但这一能量范围只适用较低的地球轨道,月球表面属于深空辐射环境,其强度要高于低地球轨道能量。当前,针对月面环境下高能质子束辐照的理论仿真和实验研究较少。鉴于此,本文采用 Monte-Carlo 方法模拟计算了月面辐照环境下,低能质子束与高能质子束辐照 Mo/Si 多层膜后在薄膜内的浓度分布以及缺陷浓度分布。并采用 50 KeV 高能质子对 Mo/Si 多层膜进行了辐照实验,对比

分析了高能质子辐照前后的 Mo/Si 多层膜光学性能变化。最后采用 TEM 对多层膜辐照后的损伤情况进行微观表征。辐照损伤的仿真和实验表明,本文所制备的 30.4 nm Mo/Si 多层膜反射镜具有较高抗辐照能力,可长期、稳定的在月面辐照环境下工作。

2 样品制备与实验方法

2.1 样品制备

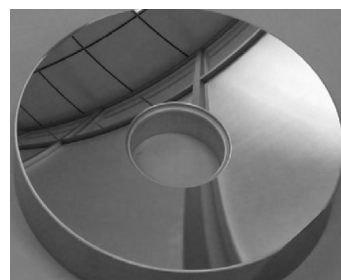


图1 EUV 相机 30.4 nm Mo/Si 多层膜反射镜

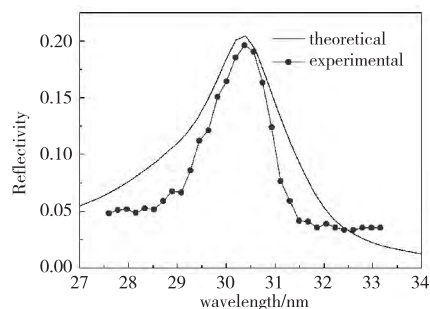


图2 Mo/Si 多层膜理论反射率与实际反射率

采用 JGP-600 型四靶共溅射镀膜机制备了 Mo/Si 多层膜反射镜。该设备配备两个 RF 电源和两个 DC 电源。如图 1 所示是用于 EUV 相机正样件的 30.4 nm 多层膜反射镜。图 2 为该反射镜的实际反射率曲线,可见实际反射率曲线中心波长反射率为 19.5%,与理论中心波长反射率 21.9% 相比仅低 2.4%。本文辐照实验所采用样品的基底为超光滑硅片,表面粗糙度 RMS<0.8 nm,与正样件的制备工艺相同。

2.2 辐照与测试实验方法

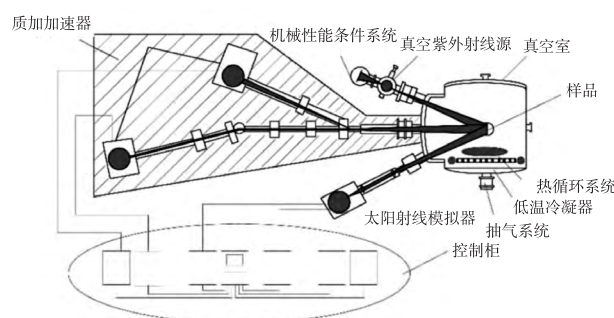


图3 空间环境综合模拟装置示意图

采用哈尔滨工业大学的空间环境综合模拟装置

进行辐照实验。该设备可以模拟高真空环境、太阳电磁辐照环境、高能质子及电子辐照环境、冷黑环境、真空紫外辐照环境等因素。该设备由质子加速器、太阳射线模拟器、真空紫外射线源模拟空间辐照环境,并配备热循环系统和低温冷凝器进行散热。该系统产生的质子束能量范围为 30–160 KeV。

样品的结构、形貌,以及性能测试设备。采用 Rigaku D/Max 2500 大功率转靶 X 射线衍射仪对多层膜周期结构进行测试。采用自行搭建的极紫外反射率计进行反射率测试,该反射率计由激光轰击铜靶产生等离子光源,再采用单色仪进行分光,分光后的不同波段光谱通过狭缝选择进入样品室,经多层膜反射镜样品反射后被探测器接收。微观结构测试采用的 JEM-2100F 型 TEM 电镜和 NEW VIEW 6000 STP 型轮廓仪。

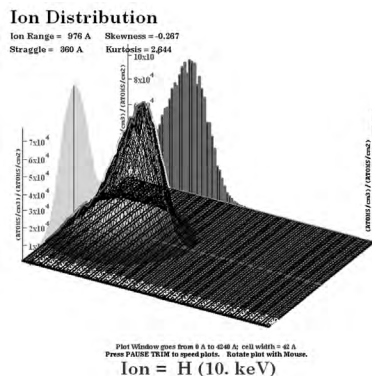
3 实验结果及分析

3.1 辐照模拟仿真

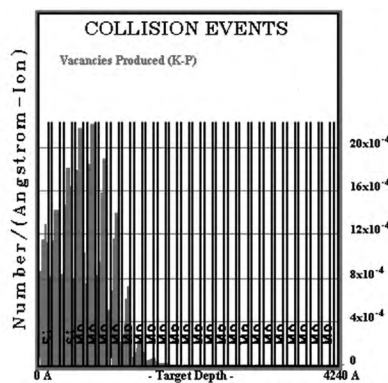
高能辐射粒子与物质的相互作用是十分复杂过程,它涉及到射线粒子的种类、能量、剂量,及被辐照材料的元素、晶态、结构等因素。Monte-Carlo (M-C) 法可对不同能量的质子在不同材料的运输过程进行数值模拟分析,为空间高能粒子对光学薄膜的物理损伤机制研究进行参考。SRIM 软件将 M-C 法植入其中^[16],该软件可以计算一个粒子从进入目标材料中后,从开始发生随机碰撞到全部能量损失而停止或者穿出材料过程中对目标材料造成的损伤参数。根据统计学原理,只要入射粒子足够多即可达到指定的精度。本文采用 SRIM 软件对 30.4 nm Mo/Si 多层膜进行建模,并选择 10 keV、50 keV、100 keV 的不同能量质子对多层膜进行辐照损伤仿真,追踪了 99 999 个质子的沉积分布,模拟仿真具体参数见表 1。

表 1 SRIM 软件模拟质子辐照主要参数

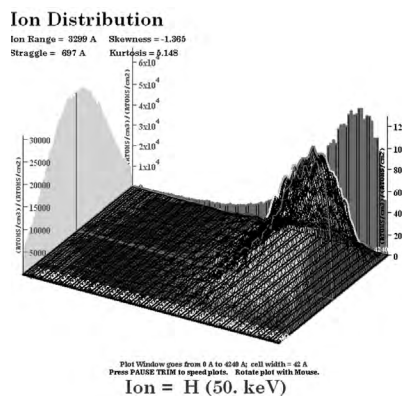
层元素	层数	厚度 (Å)	原子量	离位能 (eV)
Mo	25	40	42	35
Si	26	125	14	22



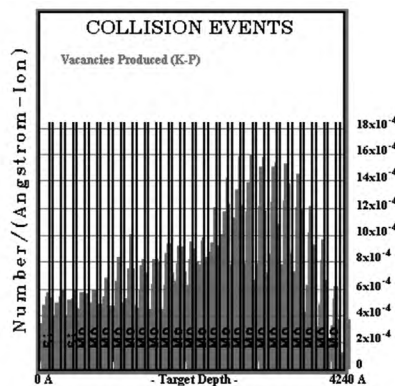
(a) 膜层内质子浓度分布



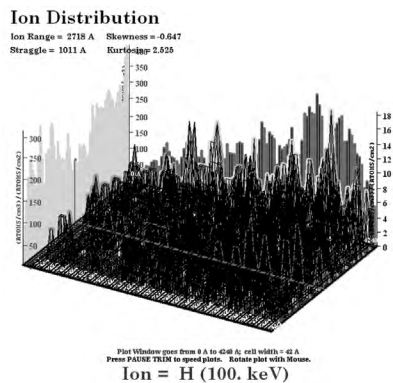
(b) 膜层内质子缺陷分布



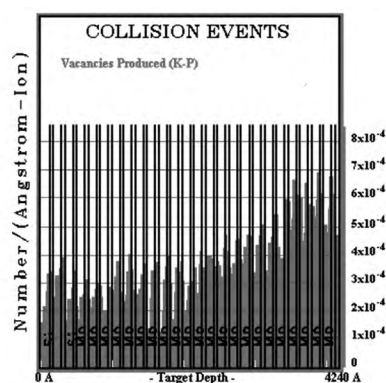
(c) 50 keV 产生的浓度分布



(d) 50 keV 产生的缺陷分布



(e) 100 keV 产生的浓度分布



(f) 100 keV 产生的缺陷分布

图4 不同能量质子辐照 Mo/Si 多层膜的 SRIM 仿真结果

图4(a)、(c)、(e)分别为10 keV、50 keV、100 keV辐照 Mo/Si 多层膜后,质子在薄膜内部的浓度分布3D示意图,图4(b)、(d)、(f)是与之对应的多层膜的缺陷分布。图4中,横坐标是膜层深度,纵坐标是质子从左至右入射进入多层膜停止后在薄膜内部的浓度分布。可以看到,能量较低10 keV时,质子主要停留在薄膜的外层,造成的损伤也主要在表层部分;随着质子能量增加至50 keV,穿透能力增强,质子的浓度分布主要集中在 Mo/Si 多层膜靠近基底的深层;而当能量增加到100 keV,高能质子基本贯穿整个薄膜,质子沉积在膜层内部很少,大部分沉积与基底,对薄膜的损伤反而最小^[17]。所以可得到结论:能量越大的质子辐照对薄膜的深层损伤越大,能量越小的质子辐照对多层膜造成的损伤越集中在表层。值得注意的是,如图4(b)、(d)、(f)所示,对比相邻的 Mo 层和 Si 层可知,沉积或穿越 Mo 层的质子数明显高于相邻的 Si 层,说明 Si 比 Mo 阻止质子的能力更强。文献[18]对质子在 Mo 和 Si 材料中的阻止本领进行了研究,发现随着质子能量的增加, Si 与 Mo 的阻止本领先增后减,但 Si 材料对质子的阻止本领始终大于 Mo 材料,该研究结论与本文仿真结果相同。

仿真结果显示:10 KeV 低能质子对 Mo/Si 多层膜损伤集中于表层,如图4(a)、(b);50 KeV 高能质子对 Mo/Si 多层膜损伤集中于深层,如图4(c)、(d)。当前极紫外多层膜辐照研究中,1-10 KeV 的低能质子对 Mo/Si 层膜的辐照研究较为充分^[11-13],其主要研究结果为 Mo/Si 多层膜光学性能的退化均因辐照后 Mo/Si 多层膜顶层部分的破裂和分层,这一结论和本文仿真结果高度吻合,如图4(a)、(b)所示。根据仿真结果50 KeV 高能质子对 Mo/Si 层膜微观结构的损伤集中于薄膜深层,但对50 KeV 的高能质子辐照 Mo/Si 多层膜的研究成果较少。因此,本文选取50 KeV 这一能量对 Mo/Si 多层膜进行了高能质子辐照实验,以全面的对月面质子辐照环境进行研究。

3.2 辐照前后光学性能变化

Mo/Si 多层膜样品在哈工大空间环境模拟系统

中进行了高能质子辐照。选取中心波长为30.4 nm 的 Mo/Si 多层膜样品。质子能量为50 keV,剂量为 $6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$,辐照时真空室真空度 $5 \times 10^{-5} \text{ Pa}$,样品温度 $22 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 。

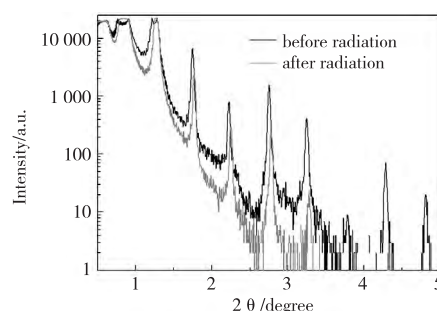


图5 辐照前后 Mo/Si 多层膜 SAXRD 曲线

图5为50 keV辐照前后 Mo/Si 多层膜 X 射线小角度衍射 (Small Angle X-ray Diffraction, SAXRD) 曲线,可以看到辐照前 Mo/Si 多层膜样品的小角衍射峰级次多、强度高、衍射峰半高宽较窄,这说明 Mo/Si 多层膜的周期厚度稳定,薄膜质量较高。经50 keV 辐照后,如图5中蓝色曲线所示;Mo/Si 多层膜的高级次小角衍射峰消失,从9个衍射峰减少到6个衍射峰;衍射峰的强度有不同程度的下降;衍射峰的位置向大角度方向略微移动。上述变化说明 Mo/Si 多层膜的微观结构因辐照发生了较大变化。图5中高级次小角衍射峰的级次减少、峰强降低是反射光相干性减弱所导致的,这说明膜层间界面粗糙度增加、多层膜的周期性结构被破坏,这会使反射率下降。高级次小角衍射峰反应了深处多层膜的周期结构情况,其减少意味着深处膜层的周期结构遭到破坏。峰位的移动说明多层膜的有效周期厚度减小,进而使多层膜中心波长向短波方向移动。反射率的实际测量也印证了 SAXRD 的测试结果。

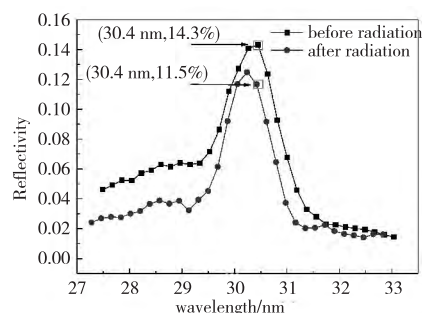


图6 Mo/Si 多层膜辐照前后反射率曲线

表2 Mo/Si 多层膜样品辐照前后光学参数
(剂量: $6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, 能量: 50 keV)

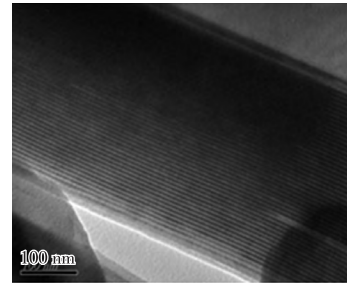
Radiation	R (%)	λ_0 (nm)	FWHM (nm)
Before	14.3	30.4	1.4
After	12.4	30.2	1.0

图6为50 keV辐照前后 Mo/Si 多层膜的反射率,表2为多层膜辐照前后光学参数。可见 Mo/Si 多层膜中心波长反射率下降 1.9%,30.4 nm 处反射率下降 2.8%,中心波长向短波方向移动 0.2 nm,半高宽减少 0.4 nm。对 EUV 相机成像来说,30.4 nm 成像波长的反射率下降 2.8% 后为 11.5%。极紫外相机的成像系统要求 30.4 nm 处反射率大于 10%,50 KeV 产生的反射率下降至 11.5% 仍可满足成像要求,说明所制备的样品有较强的抗辐照能力。为了能够深入分析多层膜反射率变化的原因,需要更直观的观察多层膜结构的变化,本文用透射电镜对辐照后 Mo/Si 多层膜的截面进行了成像。

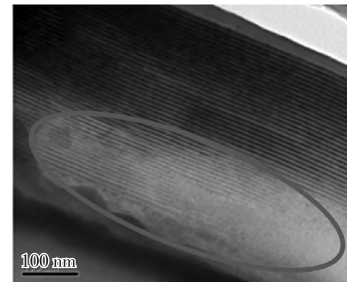
3.3 辐照前后微观结构变化

图7(a)、(b)为辐照前 Mo/Si 多层膜整体和局部透射电镜图像,由图7(a)可以看到,未被辐照的多层膜界面平整、光滑,周期性结构清晰,说明薄膜制备质量较高,印证了 SAXRD 的测试结果。而经过 50 keV 辐照后,如图7(b)中椭圆区域所示,深层 Mo/Si 多层膜的周期性结构被严重破坏,多层膜界面不再清晰,层状结构发生明显弯曲,局部区域的烧蚀现象甚至使多层膜周期结构消失,这种周期结构的改变会造成反射光干涉减弱,是导致反射率下降的原因之一。另外,图7(b)显示 50 keV 高能质子造成的多层膜损伤主要集中在深层部分,表层所受影响较小,这与 3.1 节中 Monte-Carlo 法的模拟结果吻合。

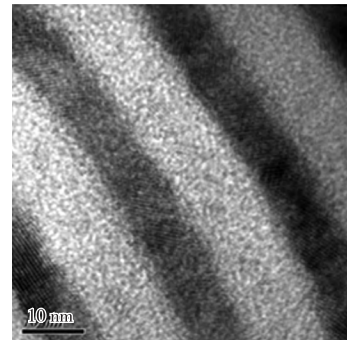
图7(c)、(d)为辐照前后 Mo/Si 多层膜局部透射电镜图像,由图可见多层膜经辐照后膜层间区域变得模糊,界面扩散严重,多层膜周期结构遭到破坏,Mo 层与 Si 层界面变得粗糙甚至弯曲。这是由于入射的质子在多层膜内部产生大量的空位和位错等结构缺陷,发进而造成 Mo 层与 Si 层间发生严重的扩散,膜层之间发生成分混合,Mo 与 Si 间过渡层厚度大大增加。文献[15]计算了 100 keV 高能质子辐照多层膜后过渡层的变化,结果表明辐照后 Mo-on-Si 扩散层厚度增加 70%,Si-on-Mo 扩散层增加 200%。这样的扩散使界面发生严重散射,这是导致反射率下降的主要原因。图5(d)为高分辨 TEM 图像,图像中可见高能质子辐照使一些 Mo 层发生区域断裂,进而形成了岛状结构。这是因为质子辐照使 Si 层产生了大量空位缺陷,Mo 原子通过空位或其他结构缺陷为路径发生强烈扩散,进而在 Mo 层产生岛状结构^[15]。另外,表面粗糙度(Root Mean Square, RMS)经辐照后也有较大幅度增加,图8为 Mo/Si 多层膜经剂量为 $6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$,能量为 50 keV 的质子辐照前后 RMS 变化, RMS 由 0.807 nm 增加至 1.904 nm。



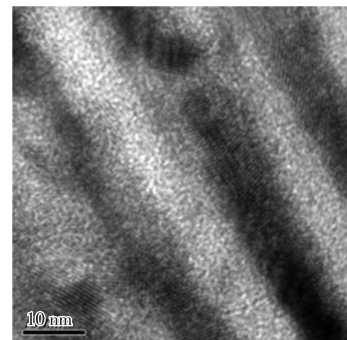
(a) 辐照前整体图像



(b) 辐照前局部图像

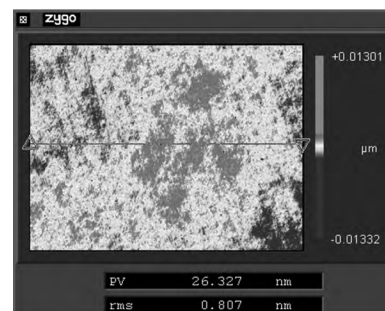


(c) 辐照后整体图像

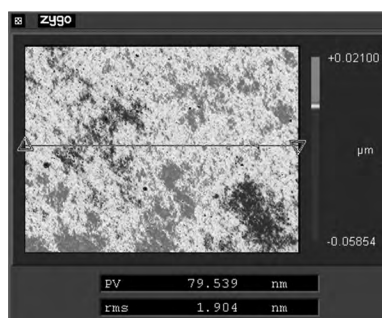


(d) 辐照后局部图像

图7 辐照前后 Mo/Si 多层膜的透射电镜图像



(a) 辐照前粗糙度



(a) 辐照后粗糙度

图8 Mo/Si 多层膜经剂量为 $6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 、能量为 50 keV 的质子辐照前后粗糙度

4 结论

制备了具有较高抗辐照能力的 30.4 nm Mo/Si 多层膜反射镜,从理论模拟、光学性能测试、微观结构表征三方面对其抗辐照能力进行了深入研究。采用 Monte-Carlo 方法模拟计算了 10 KeV、50 KeV、100 KeV 质子辐照 Mo/Si 多层膜后质子在薄膜内的浓度分布及其产生的缺陷浓度分布,得出质子能量越大,对薄膜的深层损伤越大的结论。在空间环境模拟系统中,对 Mo/Si 多层膜进行了 50 KeV 高能质子辐照实验。辐照后 Mo/Si 多层膜的 SAXRD 衍射峰强度总体有不同程度的下降,高级次衍射峰消失,并且峰位向大角度方向偏移,说明多层膜结构有被破坏,并且周期厚度降低。反射率测试显示,Mo/Si 多层膜 30.4 nm 处反射率下降 2.8%,中心波长向短波方向偏移 0.2 nm,带宽减少 0.4 nm。采用 TEM 与轮廓仪对辐照前后多层膜微观结构进行了分析,50 KeV 辐照后薄膜深层产生了大面积烧蚀结构,并且 Mo-Si 界面发生扩散,界面粗糙度与表面粗糙度增加,这些微观结构的变化是造成 30.4 nm Mo/Si 多层膜反射镜性能发生退化的主要原因。辐照损伤模拟与实验表明,制备的 30.4 nm 多层膜反射镜在月面辐照环境下光学性能比较稳定,具有较强抗辐照能力。实践证明,本文进行的地面辐照模拟试验和理论仿真具有较高的参考价值,当前,月基极紫外相机是嫦娥三号着陆器上仍可正常工作的光学载荷之一。

参考文献

- [1] Zhang X X, He F, Chen B, et al. Correlations between plasmopause evolutions and auroral signatures during substorms observed by Chang'e-3 EUV Camera[J], Earth and Planetary Physics, 2017, 1(1): 35-43.
- [2] Lu Y, Shao Q, Yue H, et al. A review of the space environment effects on spacecraft in different orbits[J], IEEE Access, 2019, 7: 93473-93488.
- [3] Garoli D, Marcos L, Larruquert J I, et al. Mirrors for Space Telescopes: Degradation Issues[J]. Applied Sciences, 2020, 10:7538.
- [4] Darafsheh A, Zhao T Y, Khan R. Spectroscopic analysis of irradiated radiochromic EBT-XD films in proton and photon beams[J]. Physics in Medicine & Biology, 2020, 65(20):205002.
- [5] Ning R, Yang Z P, Gao Z Y, et al. Proton irradiation induced phase transformation in Ni-Mn-Ga thin films[J]. Materials Science and Engineering B, 2021, 266(2): 115078.
- [6] Ullah A, Usman M, Wang Q Y, et al. Response of structural and optical properties against proton irradiation in AlN:Ti thin films[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2021,180:109234.
- [7] Gruginskie N, Cappelluti F, Eerden M V, et al. Proton irradiation induced GaAs solar cell performance degradation simulations using a physics-based model[J]. Solar Energy Materials and Solar Cells, 2021, 223:110971.
- [8] Ophoven N, Mauerhofer E, Li J J, et al. Monte Carlo simulation of proton- and neutron-induced radiation damage in a tantalum target irradiated by 70 MeV protons[J]. Applied Physics A, 2021, 127: 576.
- [9] Moradi F, Rezaee K, Sani S, et al. Metallic nanoparticle radiosensitization: The role of Monte Carlo simulations towards progress[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2020, 180.
- [10] Garoli D, Marcos L, Larruquert J I, et al. Mirrors for Space Telescopes: Degradation Issues[J]. Applied Sciences, 2020, 10:7538.
- [11] Pelizzo M G, Corso A J, Santi G, et al. Dependence of the damage in optical metal/dielectric coatings on the energy of ions in irradiation experiments for space qualification[J]. Scientific Reports, 2021, 11:3429.
- [12] Nardello M, Zuppella P, Polito V, et al. Stability of EUV multilayer coatings to low energy alpha particles bombardment[J]. Optics Express, 2013, 21(23):28334-28343.
- [13] F Delmotte, Meltchakov E, Rossi S D, et al. Development of multilayer coatings for solar orbiter EUV imaging telescopes[J]. Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering, 2013, 8862A.
- [14] Kuznetsov A S, Gleeson M A, Bijkerk F. Hydrogen-induced blistering of Mo/Si multilayers: Uptake and distribution[J]. Thin Solid Films, 2013, 545:571-579.
- [15] 吕鹏, 荷电粒子束辐照作用下若干光学器件及半导体材料的微观结构和性能[D]. 江苏:江苏大学,2014.
- [16] Kara A, Yilmaz A, Yigit M. Monte Carlo Simulations of Chromium Target Under Proton Irradiation of 17.9, 22.3 MeV[J]. Nuclear Engineering and Technology, 2021,53(10):3158-3163.
- [17] 李云鹏. 空间环境 Mo/Si 多层膜与 Ge 膜稳定性研究[D]. 北京:中国科学院大学,2015.
- [18] 刘震,高劲松,陈波,王彤彤,王笑夷,申振峰,陈红. 月球表面环境对 Mo/Si 多层膜光学特性的影响[J]. 光学学报,2012,32(09):310-315.