

多层膜劳厄透镜对 8 keV X 射线的聚焦性能模拟研究

李浩川 黄秋实 朱京涛 王占山

(同济大学物理系精密光学工程技术研究所先进微结构材料教育部重点实验室, 上海 200092)

摘要 基于多层膜技术的劳厄(Laue)透镜能实现硬 X 射线纳米级聚焦,在 X 射线微纳分析领域具有重要的应用前景。基于衍射动力学理论,分析了 X 射线在多层膜劳厄透镜中的传播,计算了不同结构的多层膜劳厄透镜对 8 keV X 射线的聚焦性能。结果表明,最外层厚度为 5 nm 的倾斜多层膜劳厄透镜可获得 5.7 nm 的聚焦光斑和 26% 的平均衍射效率。

关键词 X 射线光学;多层膜劳厄透镜;衍射动力学;波带片;分辨率

中图分类号 O434 **文献标识码** A **doi:** 10.3788/AOS201131.0834001

Simulation on Focusing Performance of X-Ray Multilayer Laue Lens for 8 keV X-Ray

Li Haochuan Huang Qiushi Zhu Jingtao Wang Zhanshan

(Key Laboratory of Advanced Microstructure Materials, Ministry of Education, Institute of Precision Optical Engineering, Department of Physics, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract A nanometer-scale focused spot of hard X-ray can be achieved by multilayer Laue lenses (MLLs). X-ray propagation in MLL is analyzed using dynamical diffraction theory. The focusing performance of tilted MLL is calculated for 8 keV X-ray. The results show that a focused beam size of 5.7 nm and a mean efficiency of 26% can be obtained by a tilted MLL with an outmost zone thickness of 5 nm. MLL is proved theoretically to be an effective method to focus X-ray beam.

Key words X-ray optics; multilayer Laue lens; dynamical diffraction theory; zone plate; resolution

OCIS codes 340.0340; 340.7440; 340.7460

1 引 言

X 射线分析方法在材料、环境、生物、医学和物理与化学等多个领域内具有重要的应用。为了研究微小样品或样品的局部区域,科学家们一直致力于获得尽可能小的 X 射线光斑。目前,已有折射式的复合折射透镜^[1]、反射式的 Kirkpatrick-Baez(K-B)镜^[2]、衍射式的菲涅耳波带片^[3]等几种能获得小于 50 nm 分辨率的 X 射线聚焦元件。复合折射透镜由几十至上百个单透镜组成,通过多个透镜会聚结果的累加实现 X 射线有限距离的会聚。K-B 镜是

由两块正交放置的凹球面反射镜组成,在掠入射条件下实现 X 射线的二维聚焦。到目前为止,利用 K-B 镜聚焦 X 射线的最小光斑已达 7 nm^[4],此时,对聚焦反射镜的加工质量和装调精度都有极高的要求。菲涅耳波带片实质上是圆形衍射光栅,由线密度沿径向向逐步增加的明暗相间的同心圆环组成。采用衍射方式容易获得较大的数值孔径,因此,菲涅耳波带片非常适合实现高分辨率 X 射线聚焦。

在软 X 射线波段,使用电子束光刻技术制备的菲涅耳波带片已获得 12 nm^[5]的聚焦分辨率并有望

收稿日期: 2011-03-11; **收到修改稿日期:** 2011-03-23

基金项目: 国家自然科学基金(10825521)、上海市科委资助项目(09XD1404000)和科技部国际合作项目(2008DFA01920)资助课题。

作者简介: 李浩川(1986—),男,博士研究生,主要从事 X 射线多层膜方面的研究。E-mail: dolphin.cnc@gmail.com

导师简介: 王占山(1963—),男,博士,教授,主要从事短波光学方面的研究。E-mail: wangzs@tongji.edu.cn

达到 $10 \text{ nm}^{[6]}$ 以下。在硬 X 射线波段,需要波带片的高宽比(波带片宽度与最薄层厚度之比)达到数百甚至上千才能实现高衍射效率,且 X 射线能量越高需要的高宽比越大。电子束光刻技术制备波带片的典型高宽比在 20 以下,难以实现硬 X 射线波带片的制备,但利用镀膜技术可制备大高宽比的波带片。最早用镀膜方法制备的波带片是先圆柱形细丝基底上镀制环形多层膜,再将其切片,最后经抛光达到需要的厚度^[7]。这种方法能实现任意高宽比波带片的制备,而且越大高宽比越容易制作。这种制备波带片的方法存在如下缺点:首先,圆柱基底很难高精度加工成超光滑表面;其次,在圆柱基底上沉积薄膜时,大部分原子倾斜沉积将导致膜层的粗糙度增大;最后,由于最薄膜层需要在镀膜过程的最后沉积,所以长时间镀膜造成的粗糙度生长和厚度误差积累将严重影响波带片的质量。这使得这种方法很难制备高分辨率的波带片。为克服以上方法的缺点,美国 Argonne 国家实验室提出一种新方法制备线性波带片^[8~10]:在平面基底上首先镀制波带片中的最薄膜层,然后逐步增加膜层厚度直到完成最厚膜层的镀制,将镀制好的薄膜切片,经抛光达到需要的厚度。这样得到的线性波带片被称为多层膜劳厄透镜(MLL),它能获得任意的高宽比及较好的成膜质量。单个 MLL 只能实现一维的纳米聚焦,若将两个线性波带片正交拼装在一起可以实现二维聚焦。Argonne 国家实验室已成功使用 MLL 实现了 16 nm 的线聚焦^[11]。

随着同步辐射光源的发展^[12],我国在 X 射线微聚焦领域也展开了研究。中国科学技术大学研制了软 X 射线聚焦波带片^[13],同济大学^[14]和浙江工业大学^[15]都对复合折射透镜进行了研究,同济大学还研制了 K-B 显微镜,其分辨率优于 $5 \mu\text{m}^{[16]}$ 。

MLL 也能够实现纳米级聚焦,因此本文对其进行理论上的研究。由于 MLL 的高宽比很大,所以不能用衍射运动学理论解释 X 射线在其中的传播,而需要采用衍射动力学理论进行研究。本文首先介绍 MLL 的结构模型,然后采用衍射动力学理论分析 MLL 中 X 射线的传播,最后结合实验室常用的铜靶 X 射线,计算不同结构参数 MLL 的聚焦性能,为 MLL 的制备提供理论指导。

2 多层膜劳厄透镜的结构模型

X 射线 MLL 是基于多层膜技术制备的具备很大高宽比的线性波带片。首先在平面基底上由最薄

膜层开始镀制两种材料组成的周期渐变多层膜(由于较好的成膜质量和较小的应力,Argonne 实验室选择了 WSi_2/Si 这种材料组合^[17]),然后将多层膜切片、抛光至所需的宽度,就得到了一维聚焦的 MLL,使用两块正交的一维 MLL 可以实现二维聚焦。MLL 的基本结构与波带片相似,如图 1 所示。

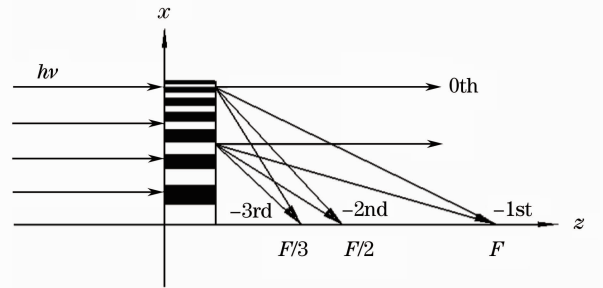


图 1 MLL 聚焦 X 射线示意图

Fig. 1 Schematic diagram of MLL focusing X-ray

第 n 层薄膜的位置由波带片公式^[11]决定:

$$x_n^2 = n\lambda f + \frac{n^2 \lambda^2}{4}, \quad (1)$$

式中 λ 为入射 X 射线波长, f 为 MLL 的焦距。第 n 层薄膜的厚度为

$$\Delta x_n = \frac{\lambda f}{2x_n} \sqrt{1 + \frac{x_n^2}{f^2}},$$

相应的局域周期为 $d_n = 2\Delta x_n$ 。第 h 级次的衍射光将聚焦在 f/h 处。当入射 X 射线与膜层间的夹角 θ 满足布拉格条件 $2d_n \sin \theta = h\lambda$ 时,局域衍射效率有较大提高^[18]。

3 多层膜劳厄透镜的衍射动力学模型

在硬 X 射线波段,达到高效率的 MLL 最优化厚度超过 $1 \mu\text{m}$,因此,需要考虑 X 射线与物质内原子的多重散射以及入射 X 射线和各级衍射光的相互作用。此时,描述“薄”波带片的衍射运动学理论不再适用,需要采用衍射动力学理论。Yan 等^[19]借鉴了描述 X 射线在畸变晶体中传播的 Takagi-Taupin 方程,发展了一种适用于 MLL 的衍射动力学理论。

单色 X 射线在非磁性介质中传播满足波动方程:

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) + k^2 [1 + \chi(\mathbf{r})] \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0, \quad (2)$$

式中 \mathbf{E} 为电场强度矢量, χ 为介质的极化率, $k = 2\pi/\lambda$ 为 X 射线在真空中的波数。根据 MLL 的结构式(1)式,可以将 $\chi(\mathbf{r})$ 展开为

$$\chi_{\text{MLL}}(x) = \sum_{h=-\infty}^{\infty} \chi_h \exp[i\Phi_h(x)], \quad (x \neq 0) \quad (3)$$

式中

$$\chi_{h,h \neq 0} = \frac{\chi_A - \chi_B}{i2h\pi} [1 - (-1)^{|h|}],$$

$$\chi_0 = (\chi_A + \chi_B)/2, \quad \Phi_h = hk(\sqrt{x^2 + f^2} - f),$$

χ_A 和 χ_B 分别为组成 MLL 两种材料的极化率。对于任意波前 $\mathbf{A}_{\text{inc}}(\mathbf{r})$ 入射的平面波：

$$\mathbf{E}_{\text{incident}} = \mathbf{A}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) \exp(ik\mathbf{s}_0 \cdot \mathbf{r}),$$

式中 \mathbf{s}_0 是入射方向的单位矢量, 根据(1)式, 取波动方程的级数试解为

$$\mathbf{E} = \sum_h \mathbf{A}_h(\mathbf{r}) \exp[i(k\mathbf{s}_0 \cdot \mathbf{r} + \Phi_h)], \quad (4)$$

式中 $\mathbf{A}_h(\mathbf{r})$ 是第 h 级次的复振幅。将级数试解(4)式与劳厄透镜结构展开(3)式代入波动方程(2)式, 经过整理得到标量方程：

$$\nabla A_h \cdot \left(\mathbf{s}_0 + \frac{\nabla \Phi_h}{k} \right) = \frac{i\pi}{\lambda} \left[\beta_h(\mathbf{r}) A_h + \sum_{l=-\infty}^{\infty} \chi_{h-l} A_l \right], \quad (5)$$

($h = 0, \pm 1, \dots$)

式中 $\beta_h(\mathbf{r}) = i \frac{\nabla^2 \Phi_h}{k^2} - 2\mathbf{s}_0 \cdot \frac{\nabla \Phi_h}{k} - \left(\frac{\nabla \Phi_h}{k} \right)^2$ 。方程的初始条件为 $A_{h,h \neq 0}(z=0) = 0, A_0(z=0) = A_{\text{inc}}$ 。(5)式是各衍射级次所满足的偏微分方程组, 对其求数值解可以得到出射面上各级次的电场分布。利用出射面上的电场分布可求得各级次的局域衍射效

率 $\eta_h(x) = \frac{A_h(z=t)A_h^*(z=t)}{A_{\text{inc}}(z=0)A_{\text{inc}}^*(z=0)}$, 使用菲涅耳-基尔霍夫积分将出射面的各级次球面波传播到焦平面上, 可以得到 MLL 焦平面上的光强分布。聚焦光斑的半峰全宽(FWHM)即是 MLL 的空间分辨率。

4 多层膜劳厄透镜聚焦性能分析

4.1 多层膜劳厄透镜倾斜角对聚焦性能的影响

采用铜 $K\alpha$ 线(8 keV)作为 X 射线光源的检测仪器在常规实验室中得到广泛应用, 因此, 本文设计了针对能量 8 keV 的硬 X 射线聚焦 MLL, 其最外层厚度为 5 nm, 膜层总厚度为 30 μm , 焦距为 1.95 mm, 厚度为 6 μm , 使用的多层膜材料组合为 WSi_2/Si 。计算结果如图 2 所示。图 2(a) 是不同倾斜角下 MLL -1 级局域衍射效率分布曲线。当膜层所处位置 $x < 5 \mu\text{m}$ 时, 不同入射角的衍射效率都约为 20%。这是因为 MLL 这部分区域的高宽比较低, 还处于衍射运动学区域, 衍射效率不依赖于入射角。当 $x > 5 \mu\text{m}$ 时, 倾斜角 $\theta = 0$ 的衍射效率逐渐降低至接近 0; 而倾角 $\theta = 2, 3.9$ 和 7.7 mrad 时, 衍射效率除了在相应布拉格条件满足的位置 $x = 8, 15$ 和 30 μm 附近取得较大的值外, 在其他位置都较低。

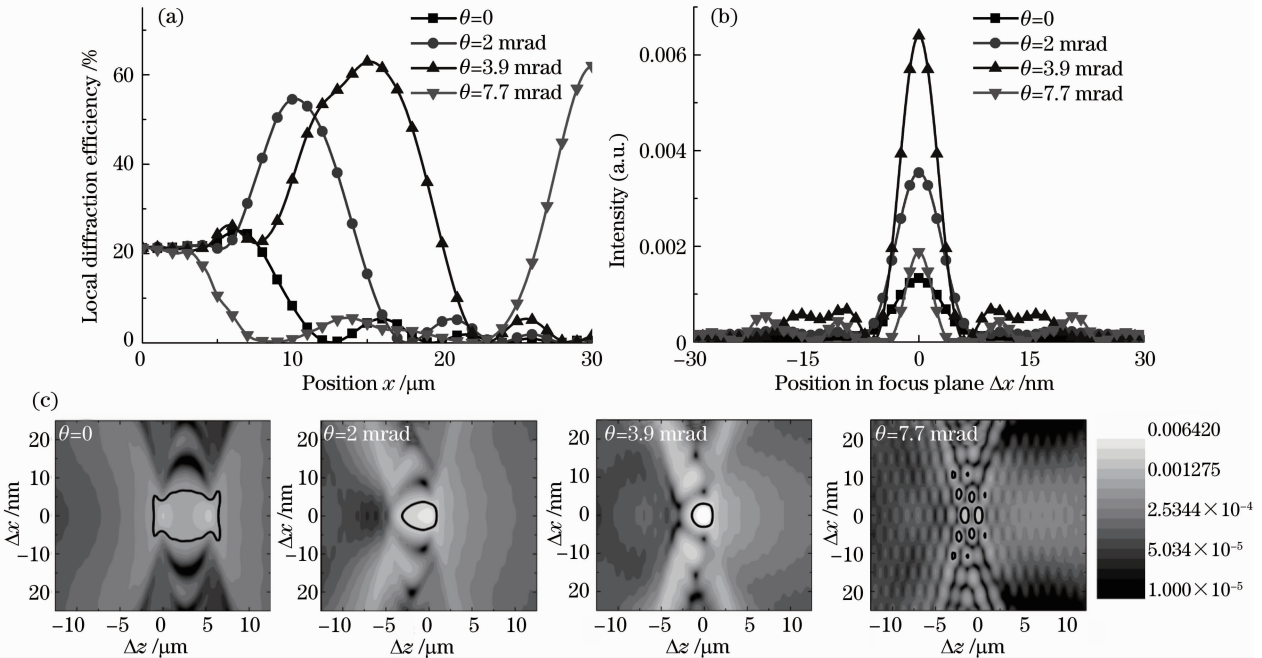


图 2 倾斜角 θ 分别为 0, 2, 3.9 和 7.7 mrad 时, MLL 的计算结果。(a) -1 级局域衍射效率分布; (b) 焦平面光强分布; (c) 焦点附近光强分布

Fig. 2 Calculated results for MLL at tilt angle θ of 0, 2, 3.9, 7.7 mrad. (a) -1 order diffraction efficiency distribution; (b) intensity distribution at the focal plane; (c) isophote pattern of the light intensity near focus

这说明衍射效率的高低依赖于布拉格条件是否满足,满足布拉格条件的区域衍射效率有较大提升,不满足的区域效率非常低。对整个区域的衍射效率进行积分,可以得到倾斜角 $\theta=0, 2, 3.9$ 和 7.7 mrad时,MLL的平均衍射效率分别为 $8\%, 18\%, 26\%$ 和 11% 。从图中也可以看出,当倾斜角 $\theta=3.9$ mrad时,更多的区域能满足或近似满足布拉格条件,因此其平均衍射效率最高。

图2(b)是在上述4种倾斜角条件下焦平面上的光强分布。 $\theta=3.9$ mrad时的聚焦光强最大,然后依次为 $2, 7.7$ 和 0 mrad,这与平均衍射效率的高低顺序相同,说明聚焦光斑的强度取决于平均衍射效率,平均衍射效率决定了会聚到焦点的能量所占的比例。倾斜角为 $0, 2, 3.9$ 和 7.7 mrad的半峰全宽分别为 $7.4, 7, 5.7$ 和 4 nm,说明倾斜角越大,中心光斑的直径越小,这是因为随倾斜角增大,较外层区域的布拉格条件得到满足,具有更小厚度的较外层对聚焦的贡献更大。随着倾斜角增大,旁瓣的强度(相对于中心光斑)也会变高。

图2(c)是焦点附近的光强分布图,图2(c)中黑色实线是半光强线。由图同样可以看出,聚焦中心光斑的直径随倾斜角的增大而减小,旁瓣随倾斜角增大逐渐变强,倾斜角为 7.7 mrad时,焦点附近甚至形成了较强的震荡分布,这将严重影响MLL的聚焦。这时已经不能用主峰的半峰全宽衡量分辨能力,而应该综合考虑旁瓣的影响,因此,倾斜角为 7.7 mrad时的分辨率只有约 20 nm。旁瓣随倾斜角变大而增强的效应可以由MLL出射面上的强度分布(即效率分布)解释。倾斜角为 7.7 mrad时,只有

MLL的中心与最边缘的衍射波有较显著的衍射强度,它们之间会发生干涉,形成类似多狭缝衍射的条纹。根据上面的分析,为了提高聚集性能,需要将MLL倾斜一个适当的角度。对于最外层厚度为 5 nm的MLL,最佳倾斜角是 3.9 mrad,此时平均衍射效率为 26% ,一维线聚焦的分辨率为 5.7 nm。

4.2 多层膜劳厄透镜最外层膜厚对聚焦性能的影响

MLL的聚焦分辨率与最外层膜厚相当。为了获得更小的聚焦光斑,需要进一步减小MLL的最外层膜厚。上文讨论了最外层膜厚是 5 nm的MLL,如果把最外层膜厚减小到 2 nm,保持焦距 1.95 mm不变,则膜层总厚度变为 $75 \mu\text{m}$,宽度仍为 $6 \mu\text{m}$ 。图3给出了其聚焦性能的计算结果。图3(a)是倾斜角为 10 mrad时的衍射效率,除了满足布拉格条件的 $40 \mu\text{m}$ 处,衍射效率都非常低,平均衍射效率只有 5% 。图3(b)是对应焦点附近的光强分布,由于平均衍射效率很低,尽管通光孔径为 5 nm最外层膜厚MLL的 2.5 倍,其聚焦光斑强度却远低于最外层膜厚为 5 nm MLL的聚焦结果。图3(b)右上角的插图是焦点附近的光强分布,可见焦点附近存在很多强度较高的旁瓣,这与4.1节中得到的结论相符,即满足布拉格条件区域和中心衍射运动学区域之间部分的衍射光将发生干涉,在焦点附近形成剧烈的震荡。由于旁瓣的影响,最外层膜厚为 2 nm的MLL只能达到 20 nm的分辨率,而最外层膜厚为 5 nm的结构能实现 5 nm的分辨率。因此,单纯减小MLL的最外层膜厚不能获得更高的分辨能力, 5 nm是较适合 8 keV聚焦的最外层膜厚。

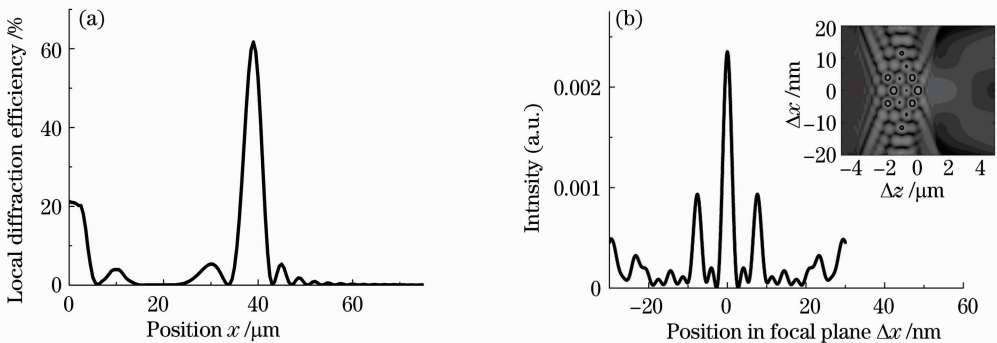


图3 最外层膜厚为 2 nm、倾斜角为 10 mrad的MLL计算结果。(a) -1级局域衍射效率分布;
(b)焦平面光强分布与焦点附近光强分布(插图)

Fig. 3 Calculated results for MLL with outmost layer thickness of 2 nm at tilt angle θ of 10 mrad. (a) -1 order diffraction efficiency distribution; (b) intensity distribution at the focal plane and the isophote pattern near focus (inset)

5 结 论

基于多层膜技术的劳厄透镜可以获得较大的高宽比,适用于 X 射线的纳米聚焦。采用衍射动力学理论分析了 X 射线在 MLL 中的传播,计算了不同结构的 MLL 的会聚性能。对能量为 8 keV 的 X 射线,采用最外层膜厚为 5 nm 的 WSi_2/Si MLL,在倾斜角为 3.9 mrad 时,能够达到 26% 的平均衍射效率及 5.7 nm 的分辨率。理论计算表明,MLL 是一种有效的 X 射线纳米聚焦手段,具有重要的应用前景。

参 考 文 献

- 1 C. G. Schroer, O. Kurapova, J. Patommel *et al.*. Hard X-ray nanoprobe based on refractive X-ray lenses[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **87**(12): 124103
- 2 H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama *et al.*. Efficient focusing of hard X-rays to 25 nm by a total reflection mirror[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, **90**(5): 051903
- 3 Y. S. Chu, J. M. Yi, F. Carlo *et al.*. Hard-X-ray microscopy with Fresnel zone plates reaches 40 nm Rayleigh resolution[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2008, **92**(10): 103119
- 4 H. Mimura, S. Handa, T. Kimura *et al.*. Breaking the 10 nm barrier in hard-X-ray focusing[J]. *Nature Phys.*, 2010, **6**(2): 122~125
- 5 W. Chao, J. Kim, S. Rekawa *et al.*. Demonstration of 12 nm resolution Fresnel zone plate lens based soft X-ray microscopy [J]. *Opt. Express*, 2009, **17**(20): 17669~17677
- 6 W. Chao, E. Anderson, P. Fischer *et al.*. Towards sub-10 nm resolution zone plates using the overlay nanofabrication processes [C]. *SPIE*, 2008, **6883**: 688309
- 7 N. Kamijo, Y. Suzuki, H. Takano *et al.*. Microbeam of 100 keV X-ray with a sputtered-sliced Fresnel zone plate[J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 2003, **74**(12): 125101
- 8 C. Liu, R. Conley, A. T. Macrander *et al.*. A multilayer nanostructure for linear zone-plate applications[J]. *Thin Solid Films*, 2006, **515**(2): 654~657
- 9 H. C. Kang, G. B. Stephenson, C. Liu *et al.*. High-efficiency diffractive X-ray optics from sectioned multilayers[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **86**(15): 151109
- 10 C. Liu, R. Conley, A. T. Macrander *et al.*. Depth-graded multilayers for application in transmission geometry as linear zone plates[J]. *J. Appl. Phys.*, 2005, **98**(11): 113519
- 11 H. C. Kang, H. Yan, R. Winarski *et al.*. Focusing of hard X-rays to 16 nanometers with a multilayer Laue lens[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2008, **92**(22): 221114
- 12 Cui Mingqi, Zhao Yidong, Zheng Lei *et al.*. Construction and applications of soft X-ray experimental platform on synchrotron radiation[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(9): 2271~2277
崔明启, 赵屹东, 郑雷等. 同步辐射软 X 射线光学实验平台的建立及其应用[J]. *中国激光*, 2010, **37**(9): 2271~2277
- 13 Xiao Kai, Liu Ying, Chen Liang *et al.*. Characterization of relative diffraction performance of soft X-ray zone plates by experiment[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(10): 1598~1600
肖凯, 刘颖, 陈亮等. 软 X 射线聚焦波带片相对衍射特性的实验研究[J]. *光学学报*, 2006, **26**(10): 1598~1600
- 14 Huang Chengchao, Xu Yao, Wang Zhanshan *et al.*. Design and fabrication of planar parabolic refractive lenses from SU-8 resist layer[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2007, **36**(5): 671~674
黄承超, 徐 垚, 王占山等. SU-8 平面抛物形折射透镜的设计与研制[J]. *红外与激光工程*, 2007, **36**(5): 671~674
- 15 Le Zichun, Dong Wen, Liu Wei *et al.*. Theoretical and experimental study of extremely long compound refractive X-ray lenses[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(9): 2696~2702
乐孜纯, 董文, 刘魏等. X 射线长组合折射透镜的理论和实验研究[J]. *光学学报*, 2010, **30**(9): 2696~2702
- 16 Baozhong Mu, Zhanshan Wang, Shengzhen Yi *et al.*. Study of X-ray Kirkpatrick-Baez imaging with single layer[J]. *Chin. Opt. Lett.*, **7**(5): 452~454
- 17 C. Liu, R. Conley, A. T. Macrander *et al.*. Film stress studies and the multilayer Laue lens project[C]. *SPIE*, 2006, **6317**: 63170J
- 18 Huang Qiushi, Li Haochuan, Zhu Jingtao *et al.*. Diffraction efficiency of multilayer-based Laue lens for hard X-ray focusing [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2009, **38**(9): 2299~2304
黄秋实, 李浩川, 朱京涛等. 基于多层膜技术的硬 X 射线 Laue 透镜衍射效率的理论研究 [J]. *光子学报*, 2009, **38**(9): 2299~2304
- 19 H. Yan, J. Maser, A. T. Macrander *et al.*. Takagi-Taupin description of X-ray dynamical diffraction from diffractive optics with large numerical aperture[J]. *Phys. Rev. B*, 2007, **76**(11): 5438~5450