

基于严格耦合波理论的硬 X 射线菲涅耳波带片设计

高雅增^{1,2,4}, 吴鹿杰^{1,5}, 卢维尔^{1,2,4*}, 刘虹遥^{1,2**}, 夏洋^{1,2,4}, 赵丽莉^{1,2,4},
李艳丽³, 孔祥东³, 韩立³

¹中国科学院微电子研究所, 北京 100029;

²中国科学院大学微电子学院, 北京 101407;

³中国科学院电工研究所, 北京 100080;

⁴北京市微电子制备仪器设备工程技术研究中心, 北京 100029;

⁵北京交通大学理学院, 北京 100044

摘要 菲涅耳波带片(FZP)能实现光源聚焦,是硬 X 射线显微成像最重要的组成元件之一。分辨率与衍射效率是 FZP 最重要的两个参数,但在实际设计与制备中,两者往往难以同时兼顾。因此,提出了一种基于严格耦合波理论的硬 X 射线 FZP 设计方法。该方法在指定分辨率的基础上优化衍射效率,给出了硬 X 射线 FZP 组成材料、环带宽度、外径、厚度以及厚度控制精度等参数的优化值。同时考虑到材料色散的影响,给出了最优衍射效率随光源能量变化的分布情况,为显微成像中的光源选择提供了参考。

关键词 成像系统; 菲涅耳波带片; 分辨率; 衍射效率; 严格耦合波; 硬 X 射线

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202141.1111002

Design of Hard X-Ray Fresnel Zone Plates Based on Rigorous Coupled Wave Theory

Gao Yazeng^{1,2,4}, Wu Lujie^{1,5}, Lu Weier^{1,2,4*}, Liu Hongyao^{1,2**}, Xia Yang^{1,2,4},
Zhao Lili^{1,2,4}, Li Yanli³, Kong Xiangdong³, Han Li³

¹*Institute of Microelectronics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China;*

²*School of Microelectronics, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 101407, China;*

³*Institute of Electrical Engineering, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China;*

⁴*Beijing Engineering Research Center for Microelectronics Preparation Equipment, Beijing 100029, China;*

⁵*School of Science, Beijing Jiaotong University, Beijing 100044, China*

Abstract The Fresnel zone plate (FZP) enabling the focusing of light sources is one of the main components in hard X-ray microscopy. Resolution and diffraction efficiency are the two most important parameters of FZP, which, however, are often difficult to be considered at the same time in actual design and preparation. Therefore, a design method for hard X-ray FZP based on rigorous coupled wave theory is proposed in this paper. The method optimizes the diffraction efficiency based on the specified resolution and gives the optimized values of the composition materials, the width of the ring zone, the outer diameter, the thickness, and the thickness control accuracy associated with the hard X-ray FZP. Furthermore, considering the influence of material dispersion, the distribution of the optimal diffraction efficiency with the change in the light source energy is given, which provides a reference for the light source selection in microscopic imaging.

收稿日期: 2020-10-20; 修回日期: 2020-12-30; 录用日期: 2021-01-08

基金项目: 国家自然科学基金(61427901)、重大科学仪器设备开发重点专项(2018YFF0109100)、北京市自然科学基金(4192063)

* E-mail: luweier@ime.ac.cn; ** E-mail: liuhongyao@ime.ac.cn

Key words imaging systems; Fresnel zone plate; resolution; diffraction efficiency; rigorous coupled wave; hard X-ray

OCIS codes 110.7440; 200.1130

1 引言

硬 X 射线具有极强的穿透能力,可实现金属、细胞等样品内部组织及形貌的三维高分辨无损检测,在生物医学、材料表征、空间探测、国防军工等领域有着广泛的应用^[1-3]。聚焦是限制硬 X 射线显微成像效果的主要因素,绝大部分材料在硬 X 射线波段的折射率近似为 1,难以采用传统的折射方式进行聚焦,而低质量的聚焦光斑会直接影响成像效果^[4]。菲涅耳波带片(FZP)是由两种不同材料同心圆环组合的非周期圆形光栅器件^[5],能利用衍射实现硬 X 射线聚焦,被认为是提高硬 X 射线显微成像分辨率最有潜力的器件之一^[6]。与大穿透深度对应,硬 X 射线 FZP 需要小环带宽度、大高宽比结构实现高效的能量聚焦,这种特殊结构的制备一直是微纳加工的难点。传统电子束曝光技术采用双层堆叠方式增加波带片的厚度^[7],制备成本高且厚度难以达到最佳值。针对该问题,人们提出了在中心丝表面采用直流溅射沉积^[8]、磁控溅射^[9]、激光沉积^[10]以及原子层沉积^[11-12]等技术镀多层膜再进行切割的方法,可制备任意高宽比的 FZP,为实现高性能商用硬 X 射线 FZP 提供了新思路。

理论或仿真设计最优性能结构的 FZP 是制备 FZP 的必要工作,目前,硬 X 射线 FZP 的理论计算与仿真工作较少。常见的波带片分析方法包括复振幅叠加法(CASM)、时域有限差分(FDTD)法以及严格耦合波(RCW)法。其中,CASM 通过对波带片透过率函数积分进行分析,计算速度快,但忽略了硬 X 射线 FZP 大高宽比结构中的体效应,计算误差较大^[13-14]。FDTD 法基于麦克斯韦方程组在时域的递推精确模拟电磁波通过 FZP 的传播过程^[15-16],但硬

X 射线频段极小的网格需求带来的计算量较大,严重阻碍了该方法的应用。RCW 法将外部叠层材料近似为多个小周期线性光栅,再将所有线性光栅的衍射场矢量进行叠加,从而模拟 X 射线衍射^[17],能实现任意高宽比结构的 FZP,且计算速度不受光源能量的限制。但现有基于 RCW 的硬 X 射线 FZP 仅对几个特定光源能量下硬 X 射线 FZP 的衍射效率进行预估,并分立讨论了 FZP 某一结构参量(如组成材料、最外环宽度、厚度)的变化对其性能的影响^[18-19]。但任一结构参量的变化均会引起其他最优参量的变化,而现有工作无法基于不同显微成像需求预测最优的 FZP 结构。

针对上述问题,本文提出了一种基于 RCW 的硬 X 射线 FZP 设计方法。该方法以成像系统分辨率为出发点,通过 RCW 仿真得到该分辨率下最佳衍射效率对应的硬 X 射线 FZP 组成材料、波带宽度、入射波长以及最佳厚度等参数,并提出了厚度容忍度的概念,分析了波带片厚度偏差对衍射效率的影响。实验结果表明,该方法能针对硬 X 射线显微成像中的多种需求,得到指定分辨率下衍射效率最高的硬 X 射线 FZP 结构,也可以应用至其他类型的波带片分析,实现波带片的结构设计。

2 基于 RCW 的硬 X 射线 FZP 仿真模型

基于硬 X 射线的 FZP 结构由中心丝与环形光栅两部分组成,如图 1(a)所示。其中,中心丝位于 FZP 结构的中间,是半径为 r_c 、厚度为 d 的不透光圆片;环形光栅位于 FZP 结构外部,厚度也为 d ,由折射率分别为 n_1 、 n_2 的叠层材料交替生长而成,每环的面积 S 相同,第 n 环的宽度 $\Delta r_n =$

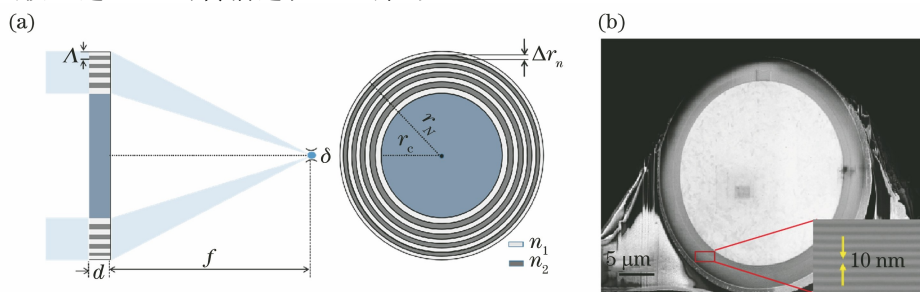


图 1 硬 X 射线 FZP 的结构。(a) FZP 结构示意图;(b) SEM 图像

Fig. 1 Structure of the hard X-ray FZP. (a) Schematic diagram of the PZP structure; (b) SEM image

$1/2 \times \sqrt{S/(n\pi)}$, 其中, 环数 $n = a_1, a_2, \dots, a_N, a_1$ 和 a_N 分别为最内环与最外环对应的环数, 实际总环带数为 N , 焦距为 f 。在衍射作用下, FZP 能聚集入射硬 X 射线, 得到直径为 δ 的聚焦光斑, δ 也是 FZP 的分辨率, 衍射效率即聚焦光斑与入射光斑能量的比值。图 1(b) 为硬 X 射线 FZP 的扫描电子显微镜 (SEM) 图像, 该 FZP 采用原子层沉积技术制备^[20], 是一种最常用的硬 X 射线 FZP 结构。可以发现, 硬 X 射线 FZP 最内环的环数 a_1 很大, 环形光栅区环带间的宽度差异较小, 其宽度比近似为 1:1, 因此, 可以将环带宽度相近的局部区域等效成占空比为 1:1 的周期性二维无限长光栅。由于硬 X 射线 FZP 总环带数 N 远小于 a_1 , 且不同环的宽度差距较小, 可近似为均匀光栅, 光栅周期 $\Delta = 2\Delta r_N$, 其中, Δr_N 为最外环的宽度。采用 RCW 进行周期性二维光栅衍射分析, RCW 基于麦克斯韦方程组和边界条件求解矩阵的特征值和特征向量, 进而得到电磁场分布, 是一种精确描述光栅衍射问题的矢量分析方法。RCW 既不受计算量的制约, 其波动方程又考虑了材料与光子之间的能量交换, 从而得到体效应对衍射效率的影响。

3 基于 RCW 的硬 X 射线 FZP 设计

FZP 每一环带的面积相同, 进行硬 X 射线 FZP 结构设计时应针对需求给出制备材料组合、厚度、每环面积、环带数等参数, 并考虑材料色散的影响。结构设计以成像等应用中的分辨率为出发点, 分辨率越高, 优化得到的衍射效率越低。FZP 的分辨率 $\delta = 1.22\Delta r_N$ 由最外环宽度 Δr_N 决定。考虑到目前高分辨率 FZP 的设计以及现有原子层沉积技术的厚度控制水平, 以 1 组分辨率为 12.2 nm 的 FZP 为

例进行设计, 此时 FZP 的最外环宽度为 10 nm。基于现有工艺可生长的薄膜材料, 计算了多种高吸收和低吸收材料组合的衍射效率, 并基于此选择制备大高宽比 FZP 的最优材料。在确定最外环宽度的情况下, 衍射效率受 FZP 厚度、波长等因素的影响。图 2 是光源能量为 8 keV 和 15 keV 时基于 RCW 计算的 4 种材料组合 ($\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ir}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ta}_2\text{O}_5$ 及 $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$) FZP 衍射效率随 FZP 厚度的变化曲线, 4 种材料的 FZP 最外环宽度均为 10 nm。可以发现, 任意材料组合的 FZP 衍射效率分布均有三个显著特点: 1) 衍射效率随 FZP 厚度的增加呈波动变化, 原因是 X 射线穿过 FZP 时相位变化具有周期性; 2) 衍射效率峰值随 FZP 厚度的增加逐渐减小, 原因是 X 射线在材料中穿过的距离越长, 光子与原子间由散射碰撞引起的能量损耗就越多; 3) 同种结构 FZP 衍射效率的波动周期与光源能量有关, 能量越高, 波动越小。以 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ir}$ 为例, 在光源能量为 8 keV 时, FZP 厚度从 0~20 μm 出现了 6 个衍射效率极大值, 而光源能量为 15 keV 时仅出现了 3 个衍射效率极大值。原因是光源能量越低, 相邻环带的衍射光实现 π 角度的相位差在材料中穿过的距离更短。尽管不同材料的 FZP 衍射效率呈相似的变化规律, 但 4 种材料的最佳衍射效率及对应的最佳厚度不同。其中, $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ir}$ 组合的 FZP 最大衍射效率在光源能量为 8 keV 和 15 keV 下均是最优的, 分别为 22.9% 和 21.3%; $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ta}_2\text{O}_5$ 组合的最大衍射效率次之, 分别为 18.0% 和 18.6%; 而 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2$ 及 $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ 组合的 FZP 最大衍射效率均低于 10%, 难以满足需求。因此, 后续实验均以 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ir}$ 组合作为优选材料进行结构设计。

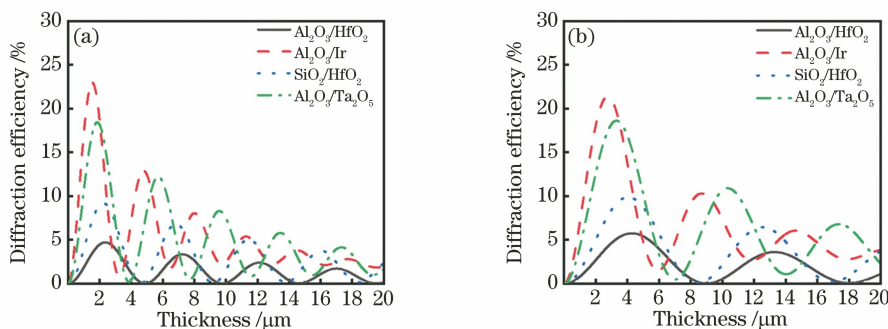


图 2 不同组合 FZP 衍射效率随厚度的变化曲线。(a)光源能量为 8 keV;(b)光源能量为 15 keV

Fig. 2 Variation curves of the diffraction efficiencies of different combination FZP with thickness. (a) Energy of the light source is 8 keV; (b) energy of the light source is 15 keV

在已选材料的基础上选择合适的 FZP 厚度及最佳工作光源能量, 基于 RCW 理论计算衍射效率

随能量的变化曲线, 以给定分立能量状态下的最大衍射效率与其对应的 FZP 厚度作为因变量, 以入射

光能量作为自变量,得到 FZP 最大衍射效率和最优 FZP 厚度随光源能量的变化曲线如图 3 所示。可以发现,受材料色散与厚度变化的影响,相同材料组合及环带宽度的 FZP 最大衍射效率随光源能量呈波动变化,当光源能量为 5~10 keV 时,最大衍射效率逐渐增大;当光源能量为 8~10 keV 时,最大衍射效率均大于 23%;当光源能量为 10 keV 时,最大衍射效率可达到 24%;当光源能量为 10~11.5 keV 时,最大衍射效率快速下降;当光源能量为 11.5~12.5 keV 时,最大衍射效率呈上升趋势;当光源能量为 13 keV 时,最大衍射效率开始呈下降趋势;当光源能量为 13~16 keV 时,最大衍射效率呈上升趋势。因此,选择的最佳光源能量为 10 keV。除此之外,FZP 的最佳厚度也受光源能量的影响。与最大衍射效率的起伏变化不同,最佳厚度随光源能量的增加而增大,原因是高能量光源下 X 射线发生相位差 π 需要穿过更大厚度的材料,最大衍射效率处的最优厚度为 $2.1 \mu\text{m}$ 。尽管 FZP 在 10 keV 光源处可以实现最大衍射效率,但受到可选光源及焦距等因素的限制,设计 FZP 时一般不以最优衍射效率为标准确定光源能量,而是尽可能选择合适的衍射效率对应的光源能量范围,并根据光源能量确定对应的波带片厚度。

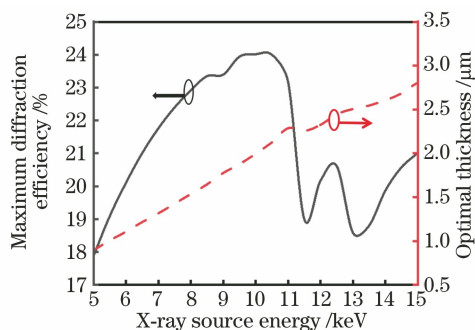


图 3 最大衍射效率、最佳厚度与光源能量的关系
Fig. 3 Relationship between maximum diffraction efficiency, optimal thickness and source energy

上述分析结果表明,FZP 的厚度是影响衍射效率的关键因素之一,尽管能通过最大衍射效率得到 FZP 的最佳厚度,但实际制备的 FZP 厚度会有一定偏差。考虑到 FZP 在不同光源能量下相同厚度偏差引起的衍射效率误差不同,可根据能容忍的最大衍射效率降低范围给出 FZP 的厚度控制精度参数。分辨率为 12.2 nm 、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ir}$ 组合材料的 FZP 衍射效率波动分别为 5% 及 10% 时的厚度可选择范围如图 4 所示,其中,实线为不同光源能量下的最佳厚度。由于高能量 X 射线产生相同相位变化时需要

穿过更厚的材料,厚度容忍度随着光源能量的增加也逐渐增加。当光源能量为 5 keV 时, $\pm 0.28 \mu\text{m}$ 的厚度误差会使衍射效率降低 5%;当光源能量为 15 keV 时, $\pm 0.85 \mu\text{m}$ 的厚度误差才会使衍射效率降低 5%。在最优光源为 10 keV 时,FZP 厚度在 $1.7 \sim 2.28 \mu\text{m}$ 范围内的衍射效率均高于 22.8%,在 $1.58 \sim 2.41 \mu\text{m}$ 范围内的衍射效率均高于 21.6%。

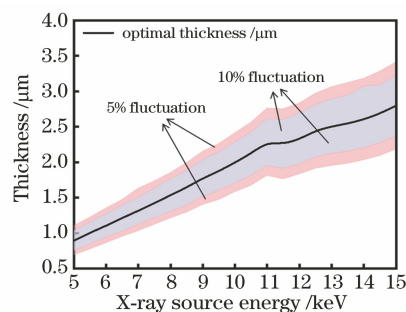


图 4 不同光源能量下 FZP 的最佳厚度及波动范围
Fig. 4 Optimal thicknesses and fluctuation ranges of the FZP under different source energy

最后,根据系统焦距要求及工艺制作水平确定每环带面积 S 及中心丝尺寸。取光栅一阶衍射光作为 FZP 聚焦光,最外环对应的环带数 $r_N = f\lambda / (2dr_N)$,其中, f 为波带片焦距, λ 为入射光波长,每环面积 $S = \pi r_{a_N}^2 / a_N$ 。确定 FZP 半径、最外环宽度以及相邻环带宽度后,实际制备时还需要考虑增加 FZP 实际环带数 N 时,制作时长及制作成本的增加;且多层膜坍塌、裂开的风险也会增大。因此,需要根据工艺水平及成本预算确定 N ,进而选择中心丝的尺寸。实验得到的最终参数:选择 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ir}$ 材料在能量为 10 keV 的光源下制备分辨率为 12.2 nm 、理论衍射效率达到 24% 的硬 X 射线 FZP,厚度为 $2.1 \mu\text{m}$ 。当所需焦距为 10 mm 时,该结构的最外环半径为 $62.1 \mu\text{m}$;若生长小于 1000 环的多层膜,则选择直径约为 $110 \mu\text{m}$ 中心丝,每环面积为 $3.9 \mu\text{m}^2$ 。

4 结 论

硬 X 射线 FZP 具有大高宽比结构,现有工艺难以兼顾高分辨率与高衍射效率,且制造成本高、周期长,因此,提出了一种基于 RCW 的高性能硬 X 射线 FZP 设计方法。该方法从指定的分辨率出发,给出了最大衍射效率下 FZP 的组成材料、环带宽度、数量、厚度等参数,并给出指定衍射效率波动下的厚度变化容忍范围。通过该设计方法由 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ir}$ 组合

材料在光源能量为 10 keV 时制备了分辨率为 12.2 nm、最大衍射效率达 24% 的大高宽比硬 X 射线 FZP, 其最佳厚度为 2.1 μm 。本方法也可以应用至其他类型的波带片分析及结构设计。

参 考 文 献

- [1] Buonassisi T, Istratov A A, Heuer M, et al. Synchrotron-based investigations of the nature and impact of iron contamination in multicrystalline silicon solar cells [J]. *Journal of Applied Physics*, 2005, 97(7): 074901.
- [2] Zhu J Y, Zhang S C, Xie S S, et al. Nanofabrication of 50 nm zone plates through e-beam lithography with local proximity effect correction for X-ray imaging [J]. *Chinese Physics B*, 2020, 29(4): 047501.
- [3] Fu S J, Hong Y L, Tao X M, et al. Fabrication of soft X-ray condenser zone plates [J]. *Acta Optica Sinica*, 1995, 15(8): 1148-1150.
傅绍军, 洪义麟, 陶晓明, 等. 软 X 射线聚焦波带片制备工艺的研究 [J]. *光学学报*, 1995, 15(8): 1148-1150.
- [4] Hu C H, Zhao T, Li H, et al. Research progress on X-ray phase contrast imaging [J]. *International Journal of Biomedical Engineering*, 2008, 31(1): 36-40.
胡春红, 赵涛, 李辉, 等. X 射线相位衬度成像的研究进展 [J]. *国际生物医学工程杂志*, 2008, 31(1): 36-40.
- [5] Keskinbora K, Robisch A L, Mayer M, et al. Multilayer Fresnel zone plates for high energy radiation resolve 21 nm features at 1.2 keV [J]. *Optics Express*, 2014, 22(15): 18440-18453.
- [6] Wu X, Chen J N, Zhu X L, et al. Fabrication of high-aspect-ratio hard X-ray focusing zone plates [J]. *Microfabrication Technology*, 2008(6): 9-11.
吴璇, 陈军宁, 朱效立, 等. 高高宽比硬 X 射线聚焦波带片的制作 [J]. *微细加工技术*, 2008(6): 9-11.
- [7] Gleber S C, Wojcik M, Liu J, et al. Fresnel zone plate stacking in the intermediate field for high efficiency focusing in the hard X-ray regime [J]. *Optics Express*, 2014, 22(23): 28142-28153.
- [8] Koyama T, Takano H, Konishi S, et al. Circular multilayer zone plate for high-energy X-ray nano-imaging [J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2012, 83(1): 013705.
- [9] Kirz J. Phase zone plates for X rays and the extreme UV [J]. *Journal of the Optical Society of America*, 1974, 64(3): 301-309.
- [10] Eberl C, Döring F, Liese T, et al. Fabrication of laser deposited high-quality multilayer zone plates for hard X-ray nanofocusing [J]. *Applied Surface Science*, 2014, 307: 638-644.
- [11] Mayer M, Keskinbora K, Grévent C, et al. Efficient focusing of 8 keV X-rays with multilayer Fresnel zone plates fabricated by atomic layer deposition and focused ion beam milling [J]. *Journal of Synchrotron Radiat*, 2013, 20: 433-440.
- [12] Xiao K, Liu Y, Xu X D, et al. Fabrication of soft X-ray phase condenser zone plates [J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, 25(12): 1722-1723.
肖凯, 刘颖, 徐向东, 等. 软 X 射线相位型聚焦波带片的研制 [J]. *光学学报*, 2005, 25(12): 1722-1723.
- [13] Liu Q, Wu J H. Analysis and comparison of the scalar diffraction theory and coupled-wave theory about grating [J]. *Laser Journal*, 2004, 25(2): 31-34.
刘全, 吴建宏. 光栅的标量衍射理论与耦合波理论的分析比较 [J]. *激光杂志*, 2004, 25(2): 31-34.
- [14] Xiao K, Liu Y, Chen L, 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.
- [15] Zhu Y, Zhang Y J, Zhao Y. Vertical diffraction of multi-step hybrid Fresnel zone plates [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2014, 51(6): 060501.
朱艳, 张耀举, 赵艳. 多台阶相幅型菲涅耳波带片的矢量衍射 [J]. *激光与光电子学进展*, 2014, 51(6): 060501.
- [16] Ala-Laurinaho J, Hirvonen T, Tuovinen J, et al. Numerical modeling of a nonuniform grating with FDTD [J]. *Microwave and Optical Technology Letters*, 1997, 15(3): 134-139.
- [17] Sarkar S S, Solak H H, Raabe J, et al. Fabrication of Fresnel zone plates with 25 nm zone width using extreme ultraviolet holography [J]. *Microelectronic Engineering*, 2010, 87(5/6/7/8): 854-858.
- [18] Maser J. Evaluation of the efficiency of zone plates with high aspect ratios by application of coupled wave theory [M] // Michette A G, Morrison G R, Buckley C J. *X-ray microscopy III*. Springer series in optical sciences, Berlin, Heidelberg: Springer, 1992, 67: 104-106.
- [19] Schneider G, Rehbein S, Werner S. Volume effects in zone plates [M] // Erko A, Idir M, Krist T, et al. *Modern developments in X-ray and neutron optics*. Springer series in optical science. Berlin, Heidelberg: Springer, 2008, 137: 137-171.
- [20] Lu W E, Xia Y, Kong X D, et al. X-ray zone plate and its preparation method: CN108520791A [P]. 2018-09-11.
卢维尔, 夏洋, 孔祥东, 等. 一种 X 射线波带片及其制备方法: CN108520791A [P]. 2018-09-11.