文章编号: 1005-5630(2015)06-0535-06

多层膜 Laue 透镜对 10 keV 硬 X 射线聚焦性能的 理论计算

成丽华,李浩川,岳帅鹏

(同济大学物理科学与工程学院,上海 200092)

摘要: 采用 NbC/Si 材料组合设计多层膜 Laue 透镜,总膜厚为 $40~\mu m$,利用衍射动力学理论分析 多层膜 Laue 透镜对硬 X 射线的衍射效率及聚焦分辨率。通过两种方法提高多层膜 Laue 透镜的分辨率。第一种方式是减小膜层的最外层宽度,该方法要求结构必须是楔型结构,制备极其 困难。第二种方法是使用多层膜 Laue 透镜的高级次,该方法在不增加制备难题的前提下能有效提高分辨率。通过使用多层膜 Laue 透镜的 $-3~\mu m$, 对 $10~\mu m$ 0 keV 硬 X 射线获得了分辨率为 $6.72~\mu m$ 0, 行射效率为 49.31%的聚焦光斑。

关键词: X 射线; 多层膜 Laue 透镜; 衍射动力学; 衍射效率; 高级次

中图分类号: O 434 文献标志码: A doi: 10.3969/j.issn.1005-5630.2015.06.014

Calculation on focusing performance of hard X-ray multilayer Laue lens with 10 keV X-ray

CHENG Lihua, LI Haochuan, YUE Shuaipeng

(School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract: The dynamical diffraction theory is employed to analyze the diffraction efficiency and the resolution ratio of hard X-ray waves inside the multilayer Laue lenses. The multilayer Laue lenses are made from NbC/Si with a zone thickness of 40 μ m. There are two ways to improve the resolution ratio. The first way is to reduce the outmost zone thickness and use wedge structure, but it is hard to form the structure. The second way is to use the high order. This way can improve the resolution ratio without changing the structure. The results show that a focused beam size of 6.72 nm and a mean efficiency of 49.31% can be obtained by the -3rd order of multilayer Laue lens with 10 keV X-ray.

Keywords: X-ray; multilayer Laue lens; dynamical diffraction theory; diffraction efficiency; high order

引言

X 射线显微术具有极限分辨率高,穿透性强等优势。伴随着第三代同步辐射光源的发展,需要大量

收稿日期: 2015-03-09

基金项目: 国家自然科学基金大科学装置联合重点项目(U1432244)

作者简介: 成丽华(1988—),女,硕士研究生,主要从事多层膜 Laue 透镜的研究。E-mail:cheng6lihua@163.com

高分辨率硬X射线聚焦元件[1]。目前研究比较多的X射线聚焦元件有折射式复合折射透镜[2],掠入射式KB镜[3-4]和衍射式波带片[5]。

多层膜 Laue 透镜是一种新型的硬 X 射线聚焦元件,能够实现高效率的纳米级硬 X 射线聚焦。现阶段用一维波带片能够形成聚焦效率为 30%,分辨率为 11.2 nm 的聚焦光斑^[6]。通过两个多层膜 Laue 透镜正交放置能够形成聚焦效率为 17%,大小为 25 nm×27 nm 的二维聚焦光斑^[7]。在实际应用中,二维聚焦更加具有价值,但是光通过两个正交放置的多层膜 Laue 透镜后,消光严重,以至到达焦平面的光通量小,而且分辨率也变差,严重影响了显微镜的成像质量和采集时间,所以在提高多层膜 Laue 透镜的聚焦效率时也迫切希望提高分辨率。

为了获得更高的衍射效率,在选择材料前,计算了 14 种常用的高原子序数材料与 Si 组合构成的多层 膜 Laue 透镜对 10 keV 硬 X 射线的衍射效率。通过衍射动力学理论,分析了入射光在 Laue 透镜内的衍射特性,在分析过程中考虑了 Laue 透镜内 5 个级次衍射光的相互作用。对比发现 NbC/Si 多层膜 Laue 透镜的衍射效率最高,于是本文设计多层膜 Laue 透镜的材料组合为 NbC/Si。在设计多层膜 Laue 透镜的过程中需要重点考虑聚焦分辨率,依据瑞利判据可以通过增加数值孔径提高分辨率,但是这种方法会增加实际制备的难度,于是本文提出了两种新的方法来提高聚焦分辨率。

1 多层膜 Laue 透镜的结构模型

多层膜 Laue 透镜是一种特殊的线性波带片,图 1 给出了楔型 Laue 透镜的结构以及 3 个级次的聚焦光路。从图中可以看到 Laue 透镜具有多个衍射级次。

当多层膜 Laue 透镜中透光层的厚度等于吸收层的厚度时,Laue 透镜中第 n 层薄膜的位置由波带片公式 [8] 决定:

$$R_n^2 = n\lambda f + n^2 \lambda^2 / 4 \tag{1}$$

式中: R_n 是 Laue 透镜中第 n 层薄膜距离近光轴的距离;f 是多层膜 Laue 透镜的一级次衍射光的焦距, λ 为人射光的波长。

改变光栅的厚度比($\gamma = d_{absorb}/\Lambda$), Laue 透镜结构中膜层的位置为:

$$R_{n} = \begin{cases} \sqrt{n\lambda f} & n=2,4,6\cdots \\ \sqrt{(n+1)\lambda f} \times (1-\frac{\gamma}{n+1}) & n=1,3,5\cdots \end{cases}$$
 (2)

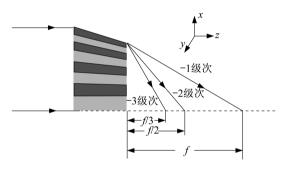


图 1 多层膜 Laue 透镜 X 射线聚焦示意图 Fig. 1 Schematic diagram of multilayer Laue lens to focuse a X-ray

式中: Λ 为第n 个周期多层膜的周期厚度; d_{absorb} 为多层膜第n 个周期中吸收层的厚度。

2 多层膜 Laue 透镜的衍射动力学模型

在硬 X 射线波段工作的波带片要想取得高效率的聚焦光斑,需要有较大的高宽比。传统的电子束光刻技术最多能使波带片的高宽比达到 20。为了进一步提高波带片的高宽比,美国 Argonne 国家实验室提出了先在平面基地上镀制多层膜,然后切片、减薄和抛光制备线性波带片,通过这种方式便可以使波带片获得任意高宽比。此时适用于"薄"波带片的衍射运动学理论已不再适用,而需要考虑硬 X 射线与物质内原子的多重散射以及硬 X 射线和各级次衍射光的相互作用。Yan 等^[9]在研究硬 X 射线在厚波带片中的传播路径时发现硬 X 射线在畸变晶体中的衍射与多层膜 Laue 透镜中相似,于是借鉴了硬 X 射线在畸变晶体内传播的 Takagi-Taupin 方程,发展了适用于多层膜 Laue 透镜的衍射动力学理论。

在研究硬 X 射线在多层膜 Laue 透镜中的衍射过程时,通过把多层膜 Laue 透镜结构和一个严格周期结构映射,如图 2 所示,图中 1st 表示多层膜劳厄透镜距离光轴的第一个周期结构,nth 表示沿膜层生长方向多层膜 Laue 透镜的第 n 个周期。将多层膜 Laue 透镜结构中极化率的表达式展为准傅里叶级数形式。

考虑到均匀光栅与多层膜 Laue 透镜同样是由 A、B两种物质组成的,均匀光栅的傅里叶表达式展开为

$$\chi_{P}(x') = \frac{1}{\chi} + \sum_{h=-\infty,h\neq 0}^{\infty} \frac{\Delta \chi}{i2h\pi} [1 - (-1)|h|] \cdot \exp\left(i2h\pi \frac{|x'|}{T}\right), x' \neq 0$$
(3)

式中: $\chi = (\chi_A + \chi_B)/2$; $\Delta \chi = \chi_A - \chi_B$, χ_A 和 χ_B 为组成多层膜 Laue 透镜两种材料的极化率。

由式(1)中波带片公式,可解出

$$n = \frac{2}{\lambda} (\sqrt{x_n^2 + f^2} - f) \tag{4}$$

光栅第 n'周期满足

$$n' = \frac{2 \left| x'_n \right|}{T} \tag{5}$$

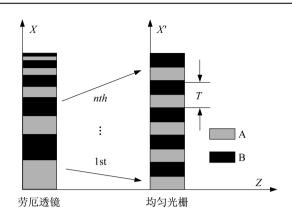


图 2 两种材料厚度比为 1:1 的 Laue 透镜和 均匀光栅的结构图

Fig. 2 A mapping of layer between a Laue lens and grating composed by binary bars with thickness rato of 1:1

 $|x'| = \frac{T}{\lambda} (\sqrt{x^2 + f^2} - f)$ (6)

把式(6)代入式(3)展开得到极化率在多层膜 Laue 透镜中的表达式:

$$\chi_{\text{MIL}}(x) = \sum_{h=-\infty}^{\infty} \chi_h \exp[i\varphi_h(x)], x \neq 0$$
 (7)

式中: $\chi_0 = \chi$; $\chi_{h,h\neq 0} = (\Delta \chi/i2h\pi)[1-(-1)|h|]$; φ_h 为相位函数, $\varphi_h = hk(\sqrt{x^2+f^2}-f)$ 。

为了取得高效率和高分辨率的聚焦光斑,本文计算了楔型结构的多层膜 Laue 透镜。在透镜入射面处,楔型多层膜 Laue 透镜的每层位置都遵从传统波带片法则,并且倾斜不同的角度 $\theta_B \approx k\lambda/[2(d_{NbC}+d_{Si})]^{[9]}$ 以满足布拉格衍射条件。在楔型多层膜 Laue 透镜中,随着截面深度的增加,膜层厚度开始收缩,收缩因子 $^{[10]}$ 为

$$a_n = 1 - z/[2f(1 + n_{\text{max}}\lambda/8f)]$$
(8)

随着截面深度 z 的增加,同一膜层中厚度的变化量为

$$\Delta x_n = a(z) \, \frac{\lambda f}{2x} \sqrt{1 + \frac{x^2}{f^2}} \tag{9}$$

随着截面深度 z 增加,相位函数 φ_h 变为

$$\varphi_h = hk \left[\sqrt{\frac{x^2}{a(z)^2} + f^2} - f \right], \qquad h = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3, \cdots$$
(10)

现假设一束入射光,振幅如下:

$$\mathbf{E}_{\text{incident}} = \mathbf{E}_0^{(a)}(\mathbf{r}) \exp(\mathrm{i}k\mathbf{s}_0 \cdot \mathbf{r}) \tag{11}$$

式中: s_0 为入射波传播方向的单位矢量; $E_0^{(a)}(r)$ 为入射波的复振幅。取波动方程的试解

$$\mathbf{E} = \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{E}_{h}(\mathbf{r}) \exp[\mathrm{i}(k\mathbf{s}_{0} \cdot \mathbf{r} + \varphi_{h})]$$
 (12)

式中: $E_h(r)$ 为第 h 级次的复振幅。将试解及多层膜 Laue 透镜电极化率的展开式代入波动方程

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) + k^2 [1 + \gamma(\mathbf{r})] \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0$$
 (13)

式中:E 为电场强度矢量; χ 为极化率; $k=2\pi/\lambda$ 为硬 X 射线在真空中的波数。取第 h 级项系数相等,经过整理及忽略二阶导数项,得

$$\frac{2\mathrm{i}}{k} \nabla E_h \cdot \left(\mathbf{s}_0 + \frac{\nabla \varphi_h}{k}\right) + \frac{k^2 - (\mathbf{k}_0 + \nabla \varphi_h)^2}{k^2} E_h + \sum_{l=-\infty}^{\infty} \chi_{h-l} E_l \cos\theta_{hl} = 0, h = 0, \pm 1, \pm 2, \cdots$$
 (14)

式中: θ_{ll} 是 E_{ll} 和 E_{ll} 的夹角。由此得到的方程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。通过菲涅耳基尔霍夫积分可求出射面各衍射级次在多层膜 Laue 透镜焦平面上的光强分布。

3 10 keV 处 NbC/Si 多层膜 Laue 透镜衍射性能

3.1 一级次衍射性能

设定工作能量 $E=10 \text{ keV}(\lambda=0.124 \text{ nm})$,考虑到现阶段实际制备的多层膜 Laue 透镜的最大厚度为 $43.4 \, \mu\text{m}^{[6]}$,于是本文设计了整体膜厚为 $40 \, \mu\text{m}$ 的多层膜 Laue 透镜。多层膜 Laue 透镜的膜层周期厚度渐变,周期厚度的差异使不同的区域对入射光线的衍射效率截然不同[11]。图 3 对比了最外层宽度分别为 $10 \, \text{nm}$ 和 $2 \, \text{nm}$,水平型和楔型多层膜 Laue 透镜一1 级次的衍射效率。研究时,Laue 透镜的材料组合是 NbC/Si。图中四种结构的截面深度为平均衍射效率最高所对应的截面深度。

最外层宽度为 10 nm 时,在膜厚 Rn 小于16.45 μm 处,楔型多层膜 Laue 透镜与水平型多层膜 Laue 透镜的 衍射效率均低于 35%,并且水平型多层膜 Laue 透镜对 应的衍射效率略高于楔型多层膜 Laue 透镜。楔型多层 膜 Laue 透镜为了满足 Bragg 条件,使每层膜都倾斜一个

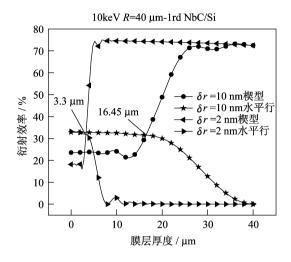


图 3 局部多层膜 Laue 透镜一级次理论衍射效率 Fig. 3 —1st order diffraction efficiency distribution of multilayer Laue lens

对于最外层宽度为 2 nm 的结构,水平型多层膜 Laue 透镜与楔型多层膜 Laue 透镜的衍射效率在 Rn 为 3.3 μ m 时开始分离。水平型多层膜 Laue 透镜对应的局部衍射效率迅速降低,楔型多层膜 Laue 透镜的衍射效率迅速增大,当 $Rn \ge 5$ μ m 时,衍射效率趋于平稳并且大于 70%。入射光波长和膜层厚度不发生改变时,当最外层宽度减小,在相同的区域内,Bragg 角的变化范围增大,所以衍射效率增长的过渡区变小。

整片多层膜 Laue 透镜的分辨率数值近似等于最外层宽度。单片多层膜 Laue 透镜数值孔径减小了一半,依据瑞利判据,光学元件的空间分辨率 θ =0.61 λ /NA(λ 是人射光波长,NA 是数值孔径)随着数值孔径的减小,聚焦光斑的分辨率值应该扩大两倍。图 4 中的曲线为四种结构的分辨率。最外层宽度取 10 nm时,楔型多层膜 Laue 透镜的半高全宽为 18.78 nm,水平型多层膜 Laue 透镜的半高全宽为 21 nm。最外层宽度取 2 nm 时,楔型多层膜 Laue 透镜的半高全宽为 3.54 nm,水平型多层膜 Laue 透镜的半高全宽为 33.6 nm。最外层宽度为 2 nm 时,水平型多层膜 Laue 透镜对光线的会聚能力很弱,主要是由于膜层厚度薄,导致 Laue 透镜有较大的区域高宽比达到了衍射动力学条件。膜层在满足 Bragg 条件时才能实现光线会聚,水平型多层膜 Laue 透镜内的光线进行无规则的相互干涉,以致在出射面上产生大的相位偏差,使分辨率变差[1]。通过计算可知:当最外层宽度较小时,水平型多层膜 Laue 透镜无法实现硬 X 射线的有效聚焦,楔型多层膜 Laue 透镜能够会聚高强度,高分辨率的聚焦光斑。

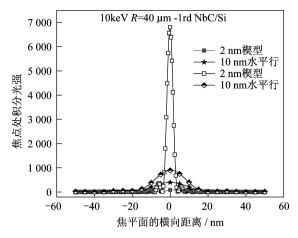
3.2 高级次的衍射效率

多层膜 Laue 透镜的入射光波长以及焦距确定后,要想取得较高的分辨率,可以采用两种方法:第一种是减小膜系的最外层宽度,本文在 3.1 已经进行了讨论;第二种方法是使用多层膜 Laue 透镜的高级次,高级次在理论上相当于把多层膜 Laue 透镜的数值孔径增大了 k 倍($NA_k \approx k \times NA_1$, k 是衍射级

次)[13],数值孔径增加了,空间分辨率也会得到提高。

基于高级次对于 Laue 透镜聚焦的重要性,本文研 究了 NbC/Si 的高级次的衍射效率。理论上,三级次的 衍射效率只有一级次衍射效率的10%左右[14]。但是 依据衍射动力学理论可以推断出:通过优化截面深度 和膜层的γ值,可以提高高级次的衍射效率。

表 1 为楔型多层膜 Laue 透镜 - 2 级次和 - 3 级次的 衍射效率。占宽比γ取值范围为 0.2~0.9。对于-2级 衍射,当γ值大于0.3时,随着γ值的增大,衍射效率不 断增大。当γ值取 0.8 时,平均衍射效率达到了最大值 $\eta_{-2} = 50.23\%$ 。对于-3级次,当 γ 值取 0.9 时,平均衍 射效率达到了最大值 $\eta_{-3}=49.31\%$ 。在高级次衍射中, 衍射效率会随着 γ 值的增大而增大。这是由于在多层 膜 Laue 透镜中,随着γ值的增大 NbC 膜层的厚度逐渐



冬 4 NbC/Si 在焦点处的一级次聚焦光强分布 Fig. 4 The intensity distribution of the -1st order in the best focal plane NbC/Si

减小。吸收层厚度减小了,使更多的能量可以穿过多层膜 Laue 透镜,分配到目标级次上。

表 1 NbC/Si -2 级次和-3 级次不同 γ 值对应的平均衍射效率

Tab. 1 Diffriction efficiency curves of the -2nd order, -3rd order for different γ

| <u>γ</u> 值 | 0.2 | 0.3 | 0.4 | 0.5 | 0.6 | 0.7 | 0.8 | 0.9 |
|---------------|-------|-------|-------|--------|-------|-------|-------|-------|
| -2级次平均效率 $/%$ | 19.56 | 15.85 | 12.99 | 23. 23 | 38.38 | 46.39 | 50.23 | 50.06 |
| -3级次平均效率/% | 12.40 | 5.68 | 19.39 | 20.47 | 10.90 | 29.19 | 47.11 | 49.31 |

图 5 中的 3 条曲线分别表示: γ 值为 0.5, -1 级次 多层膜 Laue 透镜局部衍射效率; γ 值为 0.8,-2 级次多 层膜 Laue 透镜局部衍射效率; γ 值为 0.9,-3 级次多层 膜 Laue 透镜局部衍射效率,其中 drouto 为沿膜生长方 向多层膜劳厄透镜最后一个周期的厚度。观察曲线变 化趋势可以发现:对于一1级次的衍射光,在距离近光轴 15 μm 以内,局部衍射效率较低。这是因为在这段区域 内,高宽比较小。较小的高宽比使能量分散到了更多的 级次上,以至于分配到目标级次上的能量减少[12]。对于 -2级次,当距离近光轴区大于10 μm时,局部衍射效率 迅速增大。对于一3级次的衍射光,当距离近光轴区 8 µm时,局部衍射效率开始增大。可以发现衍射级次越 高,衍射效率开始增大时,对应的膜厚距离近光轴区的 距离就越小。因为衍射级次越高,对 Bragg 条件就越敏 Fig. 5 Diffriction efficiency curves of different γ value. 感,满足 Bragg 衍射条件的区域也越大。

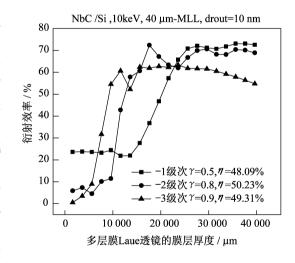


图 5 不同参数 γ 的衍射效率曲线

3.3 会聚光斑的半高全宽

为研究高级次多层膜 Laue 透镜的聚焦性能,计算了 $\gamma=0.5$, order =-1; $\gamma=0.8$, order =-2; $\gamma = 0.9, order = -3$ 的衍射光在焦平面附近的光强分布,如图 6 所示。一级次的积分光强为 898. 6,二级 次的积分光强为1794,三级次的积分光强为2681。二级次的最大光强度接近于一级次的2倍,三级次在 焦点处最大积分光强接近于一级次 3 倍。很明显,研究多层膜 Laue 透镜二级次时,相当于把元件的数值 孔径扩大 2 倍。使用多层膜 Laue 透镜三级次相当于使用一个数值孔径扩大 3 倍的元件。接收入射光的 面积增大了,所以焦点处的透射光强也就增加了。

使用楔型多层膜 Laue 透镜的高级次,通过优化 γ 值和截面深度,可以使聚焦光斑在焦点处实现高衍射效率、高分辨率的聚焦。在 10 keV 处,通过多层膜 Laue 透镜的三级次实现了:分辨率为 10 nm 以下高效率的聚焦,半高全宽理论值为 6.72 nm。

4 结 论

当最外层宽度为 2 nm 时,水平型多层膜 Laue 透镜形成的分辨率为 33.6 nm,不再遵循分辨率近似等于最外层宽度两倍这个结论。而楔型多层膜 Laue 透镜的分辨率则是随着最外层宽度的减小而增大。当楔型多层膜 Laue 透镜的最外层宽度为 2 nm 时,分辨率为 3.54 nm。在研究最外层宽度为 10 nm 的楔型多层膜 Laue 透镜的高级次时,发现通过优化结构的高宽比和占宽比,可以实现高效率、高分辨率的聚焦。楔型结

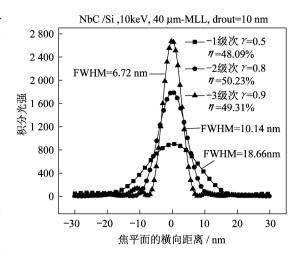


图 6 不同参数 γ 的半高全宽 Fig. 6 The intensity distribution of different γ value in the best focal plane NbC/Si

构的-3 级次可使分辨率达到 6.72 nm,同时衍射效率高达 49.31%,接近于一级次的衍射效率。减少最外层宽度和使用高级次是实现 Laue 透镜高效率聚焦的两种有效方法。

参考文献:

- [1] HUANG Q S, LI H C, ZHU J T, et al. Diffraction efficiency of multilayer-based Laue Lens for hard X-ray focusing [J]. Acta Photonica Sinica, 2009, 38(9): 2299-2304.
- [2] SCHROER C G, KURAPOVA O, PATOMMEL J, et al. Hard x-ray nanoprobe based on refractive x-ray lenses. [J]. Applied Physics Letters, 2005, 87(12):124103.
- [3] 顾泰时,王占山,穆宝忠,等. 基于非周期多层膜的 X 射线成像研究[J]. 光子学报,2006,35(6):881-885.
- [4] JARRE A, FUHSE C, OLLINGER C, et al. Two-dimensional hard x-ray beam compression by combined focusing and waveguide optics[J]. Physical Review Letters, 2005, 94(7):074801.
- [5] KANG H C, MASER J, STEPHENSON G B, et al. Nanometer linear focusing of hard x rays by a multilayer Laue lens[J]. Physical Review Letters, 2006, 96(12):127401.
- [6] HUANG X J, YAN H F, NAZARETSKI E, et al. 11 nm hard X-ray focus from a large-aperture multilayer Laue lens[J]. Scientific Reports, 2013, 3:3562.
- [7] YAN H F, ROSE V, SHU D, et al. Two dimensional hard x-ray nanofocusing with crossed multilayer Laue lenses[J]. Optics Express, 2011, 19(16):15069-15076.
- [8] KANG H C, YAN H F, WINARSKI R P, et al. Focusing of hard x-rays to 16 nanometers with a multilayer Laue lens[J]. Applied Physics Letters, 2008,92(22);221114-1-221114-3.
- [9] YAN H F, MASER J, MACRANDER A, et al. Takagi-Taupin description of x-ray dynamical diffraction from diffractive optics with large numerical aperture[J]. Physical Review B, 2007, 76(11):115438-1-115438-13.
- [10] SCHROER C G. Focusing hard x rays to nanometer dimensions using Fresnel zone plates [J]. Physical Review B, 2006, 74 (3):033405.
- [11] 王风丽,张众,朱京涛,等. 最小膜层厚度对 X 射线非周期多层膜光学性能的影响 [J]. 光学仪器,2006,28(4):48-51.
- [12] 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.
- [13] HUANG Q S, ZHU J T, LI H C, et al. Theoretical investigation of higher orders optimized Multilayer Laue Lens for hard x-ray nano-focusing[J]. Optics Communications, 2012, 285 (24):5496-5499.
- [14] SCHNEIDER G. Zone plates with high efficiency in high orders of diffraction described by dynamical theory[J]. Applied Physics Letters, 1997, 71(16):2242-2244.