

X 射线成像光学的新进展： Bragg-Fresnel 多层膜元件*

乐孜纯 王占山 马月英

(中国科学院长春光学精密机械研究所,应用光学国家重点实验室,长春 130022)

摘要 简要叙述了 X 射线反射式衍射光学元件——Bragg-Fresnel 多层膜元件产生和发展的过程。介绍了它的基本原理及它的设计和制作步骤。对其应用前景作了简要分析,并对开展这方面的研究工作提出了一些设想。

关键词: 多层膜;刻蚀;Bragg 反射;Fresnel 衍射

1 引 言

在 X 射线波段,成像元件一直局限于全反射式的光学元件、多层膜反射镜^[1]及利用衍射效应的透射式 Fresnel 波带片^[2,3]。近来,由于亚微米微细加工技术和纳米级超薄膜技术的发展,一种高分辨率的反射式衍射光学元件——Bragg-Fresnel 多层膜元件成为人们关注的焦点^[4~9]。Bragg-Fresnel 多层膜元件的工作原理基于 Bragg 反射原理及 Fresnel 波带片的衍射原理的共同作用,因此这种光学元件的特性由 Fresnel 原理(平面内的微细结构)和 Bragg 原理(多层膜微细结构)共同决定。这种新型的 X 射线反射式衍射光学元件集中了多层膜反射镜和衍射光学元件的优点,它在非掠入射条件下有较高的反射率,可用平面光学元件实现软 X 射线的会聚成像;同时又具有较高的空间分辨率,其空间分辨率由衍射图形的精细度决定。此外,它直接制备于厚基板上,有极好的机械强度和热稳定性;同时它还具有很高的光谱选择性。因此,Bragg-Fresnel 多层膜元件是一种既可作为色散,又可用于会聚成像的新型光学元件。

Bragg-Fresnel 多层膜元件的设想起源很早。早在 X 射线被发现的最初几年,人们就试图将多层膜应用于 X 射线波段。1930 年 Von Deudner^[7]首先做了这样的尝试。但由于微细结构制造技术的限制,直到 70 年代多层膜仍只限于可见光波段。1972 年 Spiller^[10]首先明确提出可在经过超光滑表面加工的平面和曲面上交替镀 $\lambda/4$ (λ 为工作波长)波堆,用与可见光波段类似的多重反射干涉原理大幅度提高软 X 射线的反射率,使得以此方法制作的元件可在 X 射线波段做为非掠入射反射型光学元件使用。这一设想在八十年代获得了很大的成功,目前用多层膜技术制作的 X 射线光学元件已在许多领域得到应用。

* 国家自然科学基金资助项目

收稿日期:1995年8月24日

另一方面,早在 1900 年之前,Cornu 就对不等空间沟槽结构的聚焦效应进行了观察和测试^[7],那时不等空间的沟槽结构是由制造业的不完善造成的。1963 年,Denisiuk^[11]提出了一个基于 Bragg 反射原理及 Fresnel 或 Fraunhofer 衍射原理来记录和重现光学全息图像的想法,并在 1982 年由 Aristov 等人^[12]将该原理首先应用于 X 射线波段。

1986 年,Aristov^[13]提出把微细刻蚀技术与超薄膜制备技术结合起来可以制作出一种新型的软 X 射线光学元件。这种元件把多层膜结构的 Bragg 反射和 Fresnel 衍射概念拓展到了软 X 射线波段,这就是我们所说的 X 射线 Bragg-Fresnel 多层膜元件。

2 Bragg-Fresnel 多层膜元件的原理

在 Bragg-Fresnel 多层膜元件中包含了两种光学现象:多层膜结构上的 Bragg 反射现象及类波带片图形模式的衍射效应所形成的聚焦现象。Bragg-Fresnel 多层膜元件的原理正是基于这两种光学现象。

2.1 多层膜结构上的 Bragg 反射原理

多层膜结构又称层状合成微结构(LSM)。从固体物理学角度来看,多层膜结构是一种晶格常数可以控制的一维人造晶体。通常,它由两种具有不同折射率的材料(高原子序数的高吸收层及低原子序数的空层)交替沉积在基底上。从很多界面上弱反射的相干波叠加而产生较高的反射率。

设波长为 λ 的 X 射线的掠入射角 θ 入射到多层膜并在各界面上反射。为了使各个界面上的反射波相干涉而达到最大的反射率,需要满足 Bragg 方程条件:

$$m\lambda = 2d\sin\theta \quad (1)$$

其中 m 为反射级数。Bragg-Fresnel 多层膜聚焦元件的反射效应正是由此原理而形成。

2.2 Fresnel 衍射原理及波带片

Fresnel 衍射是指光源或考察点(或二者)到衍射屏的距离为有限的情况下的衍射。而波带片的最基本形式是 Fresnel 波带片,它由相继透明和遮暗的同心圆环(波带)组成。圆环的半径由如下公式给出:

$$r_n^2 = n\lambda f + (n\lambda)^2/4 \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (2)$$

式中 f 为一级衍射焦距, λ 为入射辐射波长, n 为波带片的环带数。当波带片的环带数大于 100 时,它可被视为一个单色透镜,可以对单色辐射成像并且服从薄透镜成像规律:

$$\frac{1}{f} = \frac{1}{z} \quad (3)$$

式中 z 和 z' 分别为物距和像距。由于 $n\lambda \ll z + z'$ 因此圆环半径公式可被近似为:

$$r_n^2 = n\lambda f \quad (4)$$

波带片成像有一系列虚实焦点,其焦距为:

$$f_m = r_m^2/m\lambda \quad m = \pm 1, \pm 2, \dots \quad (5)$$

即 $f_m = f_1/m$, m 为衍射级次。由于波带片焦距和波长呈反比关系,我们也可以将其用作色散元件。

波带片最外环宽度 $dr_n = r_n - r_{n-1}$ 可以近似为:

$$dr_n = r_n/2n = \lambda f_1/2r_n \quad (6)$$

依据 Rayleigh 判据,波带片成像的衍射极限分辨率为:

$$\delta_1 = 1.22\lambda f_1/2r_n = 1.22dr_n \quad (7)$$

即波带片成像的分辨率由波带片最外环宽度决定。

使用高级衍射成像可改善成像分辨率且 $\delta_m = \delta/m$, 不过由于高级衍射效率随衍射级数的平方而降低, 因此成像效率也将大大降低。

从以上讨论可知, Bragg-Fresnel 多层膜元件的成像特性由 Fresnel 衍射原理决定, 而它的分辨率取决于最外环的宽度。有文献报道用电子束光刻技术制造的 X 射线波带片的最外环宽度已能达到 300 \AA , 可见 Bragg-Fresnel 多层膜元件可达到很高的分辨率。

3 Bragg-Fresnel 多层膜元件的设计和制作

3.1 设计原理

对于透射式 Fresnel 波带片, 可以依据以上讨论对其环带边界 r_n 及其他参数精确计算。但对于反射式 Bragg-Fresnel 多层膜元件, 由于 X 射线不是正入射到光学元件上, 环带族的形状不再是同心圆环而是椭圆。这使得图形模式的计算变得十分复杂。

一种算法是依据球面波从一个点入射经反射系统反射到另一点时, 其不存在球差的反射面为旋转椭球面。考虑 Bragg 反射面为一族与旋转椭球面族相切的平面, 并在椭圆坐标下以下式描述 Bragg-Fresnel 多层膜聚焦元件^[7]:

$$X_n = \frac{1}{\sqrt{1+k^2}} [a\xi_n\gamma_n(1+k^2) - b_1k] - \frac{ka^2}{b_1\sqrt{1+k^2}} \quad (8)$$

其中 $\xi_0 + 2n \frac{\lambda}{4a} \leq \xi_n \leq \xi_0 + (2n+1) \frac{\lambda}{4a}$ 。

每一族同心的旋转椭球面决定一族 Bragg 反射面及图形模式的一条环带位置。

另一种算法则是依据动力学原理。对于 X 射线多层膜衍射光栅, 目前已有成熟的设计原理。根据动力学原理, 多层膜光栅的电磁场 (EMF) 可以计算到任意精度^[11], 由此可以获得整个多层膜结构的 EMF。由于 Bragg-Fresnel 多层膜元件是非周期性的, 因此 EMF 的计算比周期性光栅更加困难。Bloch 公式不能直接应用于 Bragg-Fresnel 多层膜元件, 但可以用一种近似的方法^[6], 对图形的每一个环带用双光栅近似算法来计算 Bragg-Fresnel 多层膜元件的 EMF 值。

无论采用上述原理中哪一种, 都需研究出一套复杂的数值计算方法来

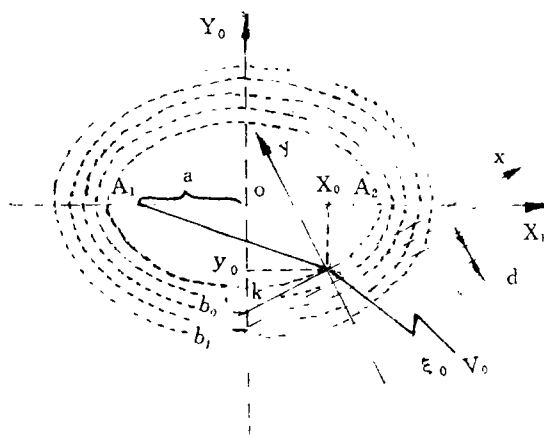


图 1 反射式 Bragg-Fresnel 多层膜元件的计算图示
Fig. 1 Diagram for calculating the reflection of Bragg-Fresnel multilayer mirrors

确定 Bragg-Fresnel 多层膜元件的具体参数。这些参数包括环带形状、环带数目、每条环带的位置尺寸(特别是最外环的环带宽度,它决定了 Bragg-Fresnel 多层膜元件的分辨率)。同时也需根据光学系统的要求确定元件的结构尺寸、工作波长、焦距及多层膜的周期等参数。

3.2 制作过程

Bragg-Fresnel 多层膜元件的制作过程一般分为两个步骤。首先是多层膜的制作,然后在多层膜上生成衍射图形结构。图形的生成一般采用电子束刻蚀的方法^[15,16],它可以很高的精度用聚焦电子束直接刻出图形形状。由于 Bragg-Fresnel 多层膜元件的图形模式通常采用曲线形状(如椭圆),因此它的制作较为困难。

3.2.1 多层膜的制作

根据元件性能要求,多层膜制备之前要结合 X 射线波段光学常数的特性,确定镀膜的材料、最佳膜厚值、膜层数等参数。目前常用的制作多层膜的方法主要有电子束蒸镀和离子溅射两类^[17]。另外分子束外延(MBE)和原子层外延(ALE)等方法近年来也被用于制备 X 射线多层膜。

设计和制备多层膜的基本要求是:

1. 材料的选择:除光学常数的要求外,两种材料的物理和化学性质必须相对稳定。相对扩散和起化学反应的材料不能形成稳定的多层膜结构。

2. 膜的结构:要能形成连续、均匀的膜,膜与膜之间的界面要清晰、平整。

3. 膜的厚度:必须根据设计要求,严格控制形成干涉所需的厚度。

4. 基板必须物化性质稳定,表面超光滑。

3.2.2 图形的生成

在多层膜结构上生成图形一般首先采用电子束刻蚀方法刻划出所需的图形,然后再来用反应性离子束刻蚀方法将图形变换到多层膜上。这一过程需经过几个步骤:

1. 在多层膜上旋涂一层电子敏感的光刻胶。见图 2-(1)。
2. 用电子束刻蚀方法刻蚀出图形模式,见图 2-(2)。
3. 表面涂镀一层镍膜,见图 2-(3)。
4. 去掉不必要的光刻胶及金属,即镍膜脱膜过程。如图 2-(4)所示。
5. 用反应性离子束刻蚀将图形转写到多层膜上。如图 2-(5)所示。

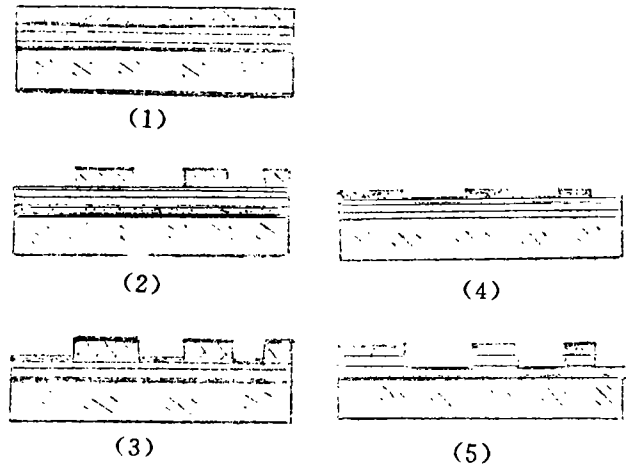


图 2 生成 Bragg-Fresnel 元件的分步过程
Fig. 2 Step-by-step fabrication process of a Bragg-Fresnel mirror

4 Bragg-Fresnel 多层膜元件的应用前景及设想

自从 X 射线发现以来,人们就一直致力于发展 X 射线光学并将其应用于生命科学、物理、化学等各个领域。而研究和制造高分辨高效能的软 X 射线光学元件是软 X 射线光学中极为重

要的方面。如上所述 Bragg-Fresnel 多层膜元件的发展将使我们得以应用它组成各种新颖的软 X 射线成像及色散系统,并将其应用于诸如高分辨的 X 射线显微镜、X 射线扫描微探针、元素微区分析及激光等高子体 X 射线诊断等领域的研究工作中。

以上对 X 射线反射式衍射光学元件——Bragg-Fresnel 多层膜元件的大量相关文献作了综述。在我国,X 射线 Bragg-Fresnel 多层膜元件的研究工作尚属空白。在 X 射线反射式衍射光学元件的研究领域中,只有上海光机所对 X 射线反射式衍射光栅做过一些初步的尝试^[18,19]。本研究组近年来在软 X 射线多层膜技术方面做了大量工作^{[17][20,21]},13nm 以上波段的多层膜元件基本达到了实用化水平,并在国内外许多 X 射线激光和 X 射线光学研究中得到了成功的应用。为开展 Bragg-Fresnel 多层膜元件的研制打下了良好的基础。为了开展这方面的研究工作,我们提出如下一些设想:

1. 首先研究 Bragg-Fresnel 多层膜元件的设计原理,并研究出一套数值计算方法来设计该元件。
2. 对具有反射率高、稳定性好、抗蚀能力强等要求的多层膜体系的设计方法、制备工艺及膜厚控制方法进行研究,并制作出满足这些要求的多层膜镜片。
3. 研究并掌握在多层膜上制备衍射图形的方法,并最终制作出 Bragg-Fresnel 多层膜镜片。
4. 建立光学系统对制作出的 Bragg-Fresnel 多层膜元件进行原理性实验。

参 考 文 献

- [1] E. N. Ragozin, et al., Characterization of Imaging Normal-Incidence Multilayer Mirrors for the 40-300 Å Range by Spectroscopic Techniques Using a Laser-Plasma Radiation Source. Proc. SPIE, 1994, **2012**:209-218
- [2] P. S. Charalambous and D. Morris, The Status of Zone Plate Fabrication at King's College London. X-Ray Microscopy **II**, 1992,79-82
- [3] J. Chrzas, et al., Material Optimization for Hard X-Ray Fresnel Zone Plates. Proc. SPIE,1993, **2011**: 108-117
- [4] V. V. Arsitov, 2-D X-Ray Focusing by Bragg-Fresnel Lens at a Bragg Angle Close to $\pi/2$. X-Ray Microscopy **II**, 1992:70-74
- [5] A. Erko, et al., Elliptical Multilayer Bragg-Fresnel Lenses with Submicron Spatial Resolution for X-Rays. Opt. Commun. 1994,**106**:146-150
- [6] Yu. A., et al., Two-Dimensional X-ray Focusing by a Phase Fresnel Zone Plate at Grazing Incidence. Opt. Commun. 1995, **114**:9-12
- [7] P. Dhez, A. Erko, et al., Kirkpatrick-Baez Microscope Base on a Bragg-Fresnel X-Ray Multilayer Focusing System. Appl. Opt. 1992, **31**:6662-6667
- [8] A. Mirone, et al., Dynamical Theory for Bragg-Fresnel Multilayer Lenses for X-UV and X-Ray Range. Opt. Commun. 1994,**111**:191-198
- [9] V. V. Aristov, et al., Image Transmission by a Bragg-Fresnel X-Ray Lens. Opt. Commun. 1988, **66**: 183-185
- [10] E. Spiller, Low-loss Reflection Coatings Using Absorbing Materials. Appl. Phys. Lett. 1972, **20**:365-372
- [11] Yu. N. Denisiuk, On the Reflection of the Optical Properties of Object in Optical Field Scattered on It.

- Opt. Spectrosc (USSR) 1963, **15**:522-527
- [12] V. V. Aristov, et al., Holography of Microobjects in Soft X-Rays. Opt. Commun. 1980, **34**:332-336
- [13] V. V. Aristov, et al., Focusing Properties of Profiled X-Ray Multilayer Mirrors. JETP Lett, 1986, **44**:265-268
- [14] A. Sammar, J. M. Andre', Diffraction and Scattering by Lamellar Amplitude Multilayer Gratings in the X-UV Region. Opt. Commun. 1991, **86**:245-254
- [15] C. Khan Malek, et al., Fabrication of Multilayer Bragg-Fresnel Zone Plates for the Soft X-Ray Range. Proc. SPIE, 1990, **1343**:56-61
- [16] Yu. A. Agafonev, et al., Fabrication of Diffractive Optical Elements for X-Ray Range. Proc. SPIE, 1993, **1992**:299-306
- [17] 曹健林,用于 X 射线光学的多层膜. 物理, 1991, **20**:288-291
- [18] 袁利祥等,亚微米光栅周期的软 X 射线多层膜光栅的衍射效率研究. 物理学报, 1995, **44**:184-188
- [19] Li Xing Yuan, et al., Soft X-Ray Phase Modulation Multilayer Dispersive Element. Opt. Eng. 1995, **34**:1508-1511
- [20] Jian Lin Cao, et al., The Current Studies of Soft X-Ray Multilayers in CIOM. Proc. SJSEO'92:193-197
- [21] 曹健林等,软 X 光激光用多层膜反射镜的制备和检测. 中国激光, 1995, **A22**:465-470

A New Opportunity at X-Ray Optics: Bragg-Fresnel Multilayer Elements

Le Zichun, Wang Zhanshan and Ma Yueying
*(The State Key Laboratory of Applied Optics,
Changchun Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Changchun 130022)*

Abstract

This paper describes the so-called Bragg-Fresnel structure which combines the Bragg reflection of multilayer with Fresnel diffraction of zone plate. In soft X-ray wavelength region such structures have both high reflectance and spatial resolution, it might be employed, therefore, as imaging and/or dispersing elements in optical systems. The methods of design and manufacture are briefly introduced with an essential research project.

Key words: Multilayer, Etching, Bragg reflection on the multilayer, Fresnel diffracting effect

乐孜纯 女, 1965年9月生。1987年毕业于浙江大学光仪系光仪专业, 获工学学士学位。先后参加“旋转轴对称掠入射式 X 光显微镜”等数项科研项目的研制工作。1994年以同等学历考入中国科学院长春光机所攻读博士学位, 目前从事国家自然科学基金“X 射线反射式衍射光学元件”的研制工作。