

ЗОННАЯ ПЛАСТИНКА НА МЕМБРАНЕ ДЛЯ ЖЁСТКОГО РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ*Котляр В.В.¹, Налимов А.Г.¹, Шанина М.И.¹, Сойфер В.А.^{1,2}, О'Фаолейн Л.³*¹ Учреждение Российской академии наук

Институт систем обработки изображений РАН,

² Самарский государственный аэрокосмический университет

имени академика С.П. Королёва (национальный исследовательский университет),

³ Школа физики и астрономии Университета Сэнт-Эндрюса, Шотландия**Аннотация**

Описывается моделирование и изготовление Френелевской зонной пластинки из серебра на мембране из нитрида кремния, созданной совместно ИСОИ РАН и Университетом Сэнт-Эндрюса (Шотландия), с диаметром 200 мкм, крайней зоной 287 нм (всего 176 зон, или 88 периодов), глубиной рельефа 460 нм, фокусным расстоянием 250 мм, рассчитанной для длины волны 2,29А (Сг) (энергия кванта 5,4 Кэв) и с расчётной эффективностью около 3%.

Ключевые слова: рентгеновское излучение, зонная пластинка, мембранная технология.

Введение

В настоящее время активно ведутся исследования по созданию и применению дифракционной оптики для мягкого и жёсткого рентгеновского излучения. Несмотря на то, что история создания рентгеновской оптики (кристаллы Брегга, линзы Кумахова, Брегг-Френелевская оптика) насчитывает более 30 лет, рентгеновские микроскопы с разрешением в десятки нанометров существуют пока в экспериментальном варианте в нескольких ведущих лабораториях мира (в лаборатории Беркли в Университете Калифорнии, Стокгольмском королевском технологическом институте и Швейцарском институте Пауля Шеррера).

Ниже приводится краткий обзор современного состояния дифракционной рентгеновской оптики. В [1] создали зонную пластинку (ЗП) с высоким разрешением (крайняя зона – 24 нм), диаметром – 133 мкм и высотой рельефа 300 нм. Рельеф формировался с помощью гальванического осаждения золота. В этой работе достигнуто высокое аспектное отношение – 300/24 = 12,5. ЗП использовалась для фокусировки рентгеновского излучения с энергией 8,6 Кэв и длиной волны 1,44 А. Дифракционная эффективность для ЗП с глубиной рельефа 300 нм – 2,7%, а для глубины рельефа 600 нм – 9,7%. Поэтому для увеличения рельефа в два раза две ЗП сложили вместе – рельеф к рельефу. В [2] методом напыления иридия поверх рельефа в кремнии создана ЗП диаметром 100 мкм с шириной крайней линии 15 нм, которая использовалась в рентгеновском микроскопе с энергией источника 1,2 Кэв (длина волны 1,03 нм) и разрешала линии на тестовой структуре шириной 12 нм. Суть предложенной технологии в том, что сначала по обычной технологии электронной литографии изготавливают рельеф ЗП в мембране из кремния, а потом напыляют в углубления рельефа металл. Оценка эффективности такой ЗП – 10%. По технологии многослойной литографии в [3] была создана ЗП диаметром 70 мкм и с фокусным расстоянием 200 мм (для длины волны 1 А) и толщиной 35 мкм, которая с эффективностью 51% фокусировала жёсткое рентгеновское излучение с энергией 70 Кэв (длина волны 0,177А). ЗП была изготовлена в 6 этапов: базовый рельеф из золота, в углубления которого добавля-

лись композитные слои с другими показателями преломления (алюминий, медь) – всего 6 разных типов слоёв. В [4] описана ЗП, изготовленная в Королевском технологическом институте в Стокгольме по технологии литографии на мембране. Зонная пластинка была изготовлена с помощью ионного травления в полимере ARC XL-20 толщиной 150 нм, в качестве маски использовался тонкий слой титана толщиной 5 нм и слой резиста ZEP-700 толщиной 25 нм. После этого углубления в полимере были заполнены никелем по технологии гальванопластики, а полимер был удалён повторным ионным травлением. В итоге получилась ЗП из никеля на мембране (Si_3N_4) с внешней зоной 25 нм диаметром 54 мкм, фокусным расстоянием 546 мкм, с глубиной рельефа 130 нм, которая рассчитывалась на длину волны мягкого рентгеновского излучения 2,48 нм. Энергетическая эффективность была 13%. Результаты по использованию для изображения или фокусировки рентгеновского излучения не приводятся.

В [5] описывается схема рабочего рентгеновского микроскопа для мягкого рентгеновского излучения (длина волны водного окна прозрачности 2,48 нм). В качестве источника используется азотная плазма, возбуждаемая коротким лазерным импульсом. Собирающая ЗП (конденсор) диаметром 4,53 мм имеет внешнюю зону 49 нм. Объективом служит ЗП диаметром 100 мкм с внешней зоной 25 нм. Приёмником рентгеновского излучения является матрица ССД 2048×2048 пикселей и с размером пикселя 13,5×13,5 мкм. Приводятся примеры изображений, но величина разрешения этих изображений не указывается. В [6] описан интерференционный рентгеновский микроскоп с двумя ЗП диаметром 155 мкм и с внешней зоной размером 100 нм. ЗП были изготовлены из тантала с глубиной рельефа 1 мкм и расположены на двойном фокусном расстоянии друг от друга. Использовался источник рентгеновского излучения с энергией 10 Кэв (длина волны 1,23А). ССД приёмник имел фосфорный экран и элементы размером 3,14 мкм на один пиксел. Но размеры микроскопа (от источника до приёмника) очень большие – 240 м. Это нужно для того, чтобы пятно когерентности было больше диаметра ЗП. Экспериментально были

восстановлены 3D изображения полистироловых шариков диаметром 2,8 мкм.

В Национальной лаборатории синхротронного излучения в Китае [7] для рентгеновского микроскопа создана Френелевская ЗП с внешней зоной 45 нм, с помощью которой строилось изображение объекта типа «спицы колеса» из золота и разрешались линии шириной 50 нм. В качестве фильтра Цернике использовалось золотое кольцо толщиной 2,5 мкм и шириной 4 мкм, расположенное в фокусе ЗП, экспериментальный контраст фазового изображения был равен 30%. Энергия источника рентгеновского излучения равна 8 Кэв (длина волны 1,55 А). В [8] описано использование композиционной ЗП диаметром 50 мкм, состоящей из двух ЗП с одинаковой внешней зоной шириной 50 нм. Внутренняя ЗП имеет диаметр $D/3$, где D – диаметр всей ЗП, и работает в первом порядке, а внешняя ЗП работает в третьем порядке, фокусное расстояние у обеих частей ЗП одинаковое (поэтому композиционная ЗП имеет числовую апертуру в 3 раза большую, чем у внутренней ЗП). ЗП была рассчитана на длину волны водного окна 3,37 нм и имела фокусное расстояние 300 мкм (увеличение при изображении было в 2430 раз). В качестве объекта использовалась золотая решётка глубиной 100 нм и с разным периодом. Экспериментально показано разрешение решётки с периодом 25 нм. В [9] описано изготовление в лаборатории Беркли по технологии двойной литографии ЗП из золота диаметром 24 мкм (всего 500 зон) с внешней зоной 12 нм и экспериментально показано разрешение с помощью этой ЗП линий толщиной 12 нм. Глубина рельефа золотой ЗП была равна 30 нм, а энергетическая эффективность равна всего 0,6%. Золото заполняло в процессе электролиза промежутки в резисте. После гальванопластики резист устранялся. Эта ЗП использовалась в рентгеновском микроскопе и имела фокусное расстояние 164 мкм для длины волны 1,75 нм (энергия источника 707 эв). В микроскопе излучение собиралось ЗП-конденсором из золота с диаметром 9,8 мм, фокусным расстоянием 170 мм и внешней зоной 30 нм и глубиной рельефа 60 нм (всего ЗП имела 40820 зон). Эффективность конденсора была 2%. Центральная часть ЗП была закрыта круглым диском. В фокусе конденсора для устранения высших порядков дифракции располагалась круглая диафрагма с диаметром 10 мкм. За диафрагмой располагался многослойный тест-объект из кремния и молибдена толщиной 100 нм с решётками разных периодов (минимальный полупериод 10 нм). Увеличенное в 10600 раз изображение решётки регистрировалось с помощью CCD-камеры. В [10] моделируется композиционная ЗП, внутренняя часть которой является «фотонным ситом», рассчитанная для жёсткого рентгеновского излучения с длины волны $\lambda = 0,619\text{А}$ (энергия источника 20Кэв). Внешняя часть – обычная ЗП, работающая в 3-ем дифракционном порядке. Крайняя зона ЗП имеет ширину $\Delta r = 100$ нм, фокусное расстояние – 10 мм. Числовая апертура композиционной ЗП с «фотонным ситом» равна $NA = 3\lambda/\Delta r$. Такая ЗП формирует фокус-

ное пятно с диаметром по полуспаду интенсивности $\text{FWHM} = 40$ нм. Моделирование BPM-методом (Beam Propagation Method) показало, что при глубине 2 мкм эффективность металлической ЗП будет равна 3%, при глубине 1 мкм эффективность – 1%. В [11] описывается установка для рентгеновской томографии с источником с энергией фотонов 5,4 Кэв (Cr), длиной волны 2,29А и диаметром 1×1 мм. Изображающим оптическим элементом служила линза-капилляр диаметром 200 мкм, внутри которой были 67 воздушных пузырьков, разделённых полимером длиной 15 мкм. Объект диаметром 1 мм изображался такой пузырьковой линзой с 2-х кратным увеличением и с расчётным разрешением 1 мкм. В [12] описывается ещё одна разновидность линзы для рентгеновского излучения. Линза представляет собой выгравленную в плёнке плавленого кварца толщиной 300 нм на кремниевой подложке толщиной 500 мкм цепочку из отверстий в виде параболических цилиндров длиной 62 мкм (аналог линзы из воздушных пузырьков). Такая линза имеет фокусное расстояние 10 мм для длины волны 0,826 А (энергия кванта 15 Кэв) и диаметр фокусного пятна 40 нм. Примеров изображения с помощью такой линзы не приводится. В [13] с помощью процесса Боша (Bosch) достигнута высота травления кремния и германия 100 мкм (маска из резиста SU8). Кремниевая линза-киноформ с апертурой 800 мкм была рассчитана на длину волны 1,55А (Cu) (энергия кванта 8 Кэв) с фокусным расстоянием 1 м. Эксперимент проводился на расстоянии 47 метров от источника рентгеновского излучения. В качестве приёмника использовалась тонкая золотая проволока, которая перемещалась поперёк фокуса. Регистрировалась флуоресценция от золотой проволоки. Размер фокусного пятна оказался равным $\text{FWHM} = 1$ мкм.

В перечисленных работах не приводятся результаты прямого измерения фокусного пятна от изготовленных ЗП, что связано с невысоким разрешением CCD-камер для жёсткого рентгеновского излучения (пиксель CCD-камеры имеет размер 3-13 мкм). Приводятся только результаты измерения многократно увеличенного изображения (в 4000-10000 раз) тестовых металлических решётчатых структур, полученных с помощью высокоразрешающих (крайняя зона 12-24 нм), но малоэффективных (1-3%) ЗП на сложных рентгеновских микроскопах длиной в несколько метров и имеющихся всего в нескольких лабораториях мира. Заметим также, что ни в одной из перечисленных выше работ ЗП не получали путём ионного травления металла (золота или серебра).

В данной работе описывается изготовление и моделирование ЗП из серебра на мембране, созданной совместно ИСОИ РАН и Университетом Сэнт-Эндрюса (Шотландия), с диаметром 200 мкм, крайней зоной 287 нм (всего 176 зон, или 88 периодов), глубиной рельефа 460 нм (максимальное аспектное отношение 1,6), фокусным расстоянием 250 мм, рассчитанной для длины волны 2,29 А (Cr) (энергия кванта 5,4 Кэв) и с эффективностью около 3%.

Изготовление

Зонная пластинка изготавливалась на кремниевой подложке толщиной 200 мкм, в которой было сделано квадратное отверстие 1,5×1,5 мм. На поверхности подложки и над отверстием имеется мембрана из нитрида кремния (Si₃N₄) толщиной 200 нм. На поверхность мембраны были напылены тонкая плёнка хрома толщиной 25 нм и толстый слой серебра толщиной 900 нм. На поверхность серебра с помощью центрифуги был нанесён слой негативного резиста SU-8. Картина концентрических колец зонной пластинки «рисовалась» на резисте с помощью электронного луча на электронном микроскопе ZEISS GEMINI с литографической приставкой RAITH ELPHY PLUS с шагом 50 нм.

Непроэкспонированные участки резиста удалялись в процессе проявления. Рельеф в серебре производился с помощью ионного травления в среде аргона. Глубина рельефа в серебре была 460 нм. Зонная пластинка имела диаметр – 200 мкм, число зон (число колец) – 90, ширина крайней зоны – 287 нм. ЗП рассчитывалась для фокусировки рентгеновского излучения с длиной волны 2,29 Å на расстоянии 250 мм. На рис.1 показана схема ЗП на мембране.

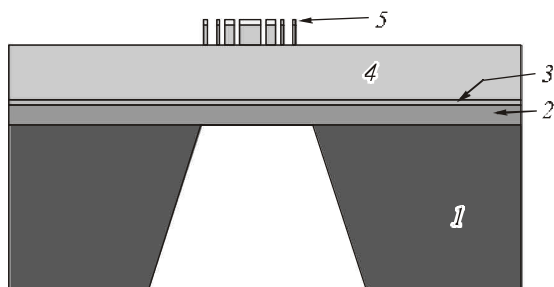


Рис. 1 Схема ЗП на мембране: 1 - кремниевая подложка, 2 - мембрана из нитрида кремния, 3 - тонкий слой хрома, 4 - серебро, 5 - остатки резиста

Измерение параметров ЗП

На рис. 2 показан увеличенный вид сверху под углом на электронном микроскопе центральной части ЗП размером 30×40 мкм.

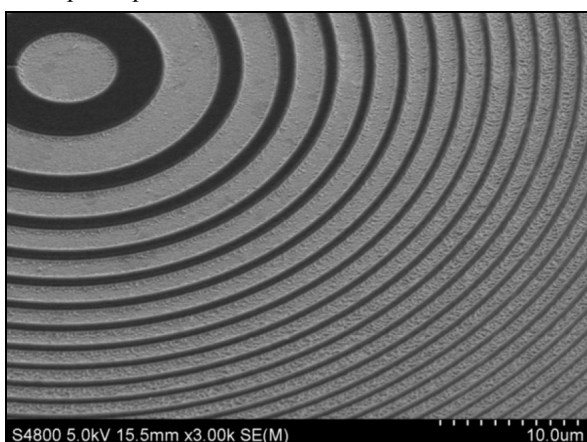


Рис. 2. Вид под углом на электронном микроскопе ЗП: светлые кольца – серебро в местах углублений, темные кольца – остатки резиста в местах возвышений

На рис. 3 показан вид сверху на атомном силовом микроскопе центральной части ЗП размером 50×50 мкм. На рис. 4 показан рельеф центральной части ЗП размером 30×30 мкм, снятый на атомно-силовом микроскопе. На рис. 5 показано радиальное сечение рельефа на рис. 4 для ЗП. Видно, что глубина рельефа составляет примерно 450-460 нм.

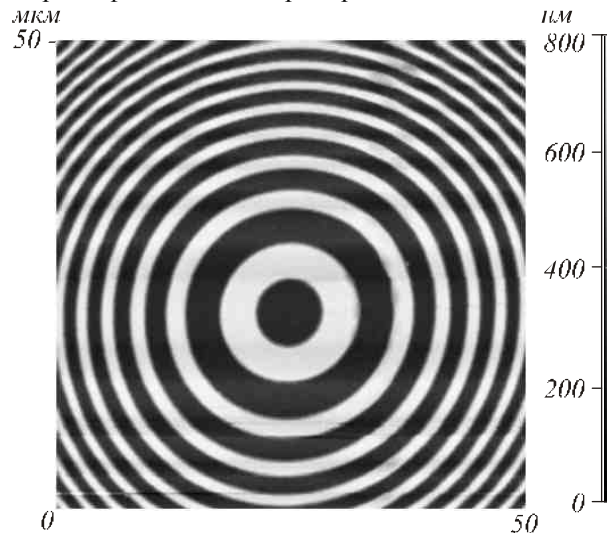


Рис. 3. Вид сверху на атомном силовом микроскопе центральной части ЗП размером 50×50 мкм: светлые кольца – возвышения, темные кольца - углубления в соответствии со шкалой высот, показанной справа

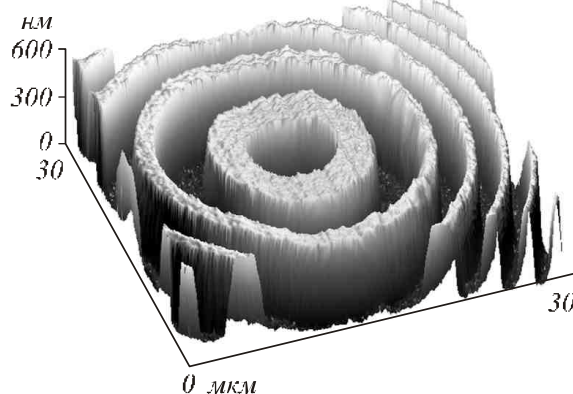


Рис. 4. Профиль центральной части ЗП размером 30×30 мкм, снятый на атомно-силовом микроскопе. Глубина рельефа – 460 нм

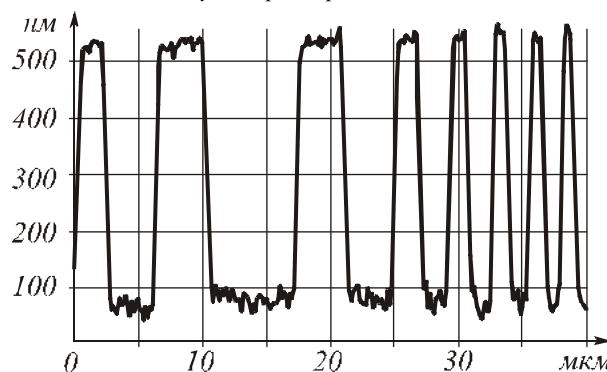


Рис. 5. Радиальное сечение рельефа центральной части ЗП (рис. 4) длиной 40 мкм, глубина рельефа 450-460 нм

Моделирование

Моделирование работы ЗП было проведено с помощью программы BeamProp (фирмы RSoft) в двумерном варианте, так как трёхмерное моделирование такой ЗП является очень ресурсоёмкой задачей и не может быть выполнено на современном ПК (количество узлов сетки будет более 10^{14}). Диаметр 2D ЗП $2R = 200$ мкм, глубина рельефа – 460 нм, толщина подложки из разных материалов (серебро, хром, нитрид кремния) в сумме 650 нм, длина волны – 2,29 А, фокусное расстояние – 250 мм.

На рис. 6 показана схема определения параметров фокусировки при моделировании. Дифракционная эффективность вычислялась по формуле

$$\eta_D = \frac{S_1}{S_2}$$

FWHM ко всей энергии, пришедшей в фокальную плоскость. Ширина области моделирования равна диаметру ЗП $2R$.

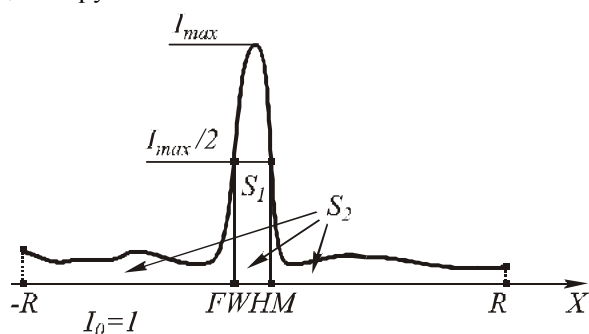


Рис. 6. Схема для расчёта параметров фокусировки на основании интенсивности в фокальной плоскости

Полная эффективность вычислялась по формуле

$$\eta_{FULL} = \frac{S_1}{I_0 2R}$$

FWHM ко всей падающей на ЗП энергии. FWHM – ширина фокусного пятна (2D случай) по полуспаду интенсивности по оси X. В результате моделирования были получены следующие значения указанных параметров: $FWHM = 0,259$ мкм, $\eta_D = 5,384$ %, $\eta_{FULL} = 4,252$ % и $I_{MAX} = 40,38$. Последнее значение – это максимальная интенсивность в фокусе в относительных единицах. Таким образом при общей эффективности всего в 4% максимальная интенсивность в фокусе в 20 раз превышает фон. Фокусное пятно имеет диаметр по полуспаду интенсивности около 260 нм, а полный диаметр фокусного пятна, рассчитанный между нулями интенсивности, равен 622 нм. На рис.7 показано рассчитанное распределение интенсивности в фокусе ЗП.

На рис. 8 приведены распределения интенсивности на расстоянии 3 мкм до и 3 мкм после фокальной плоскости. Как видно из рис. 8, центральная часть, содержащая около 7% энергии, уширяется приблизительно до 2-2,5 мкм.

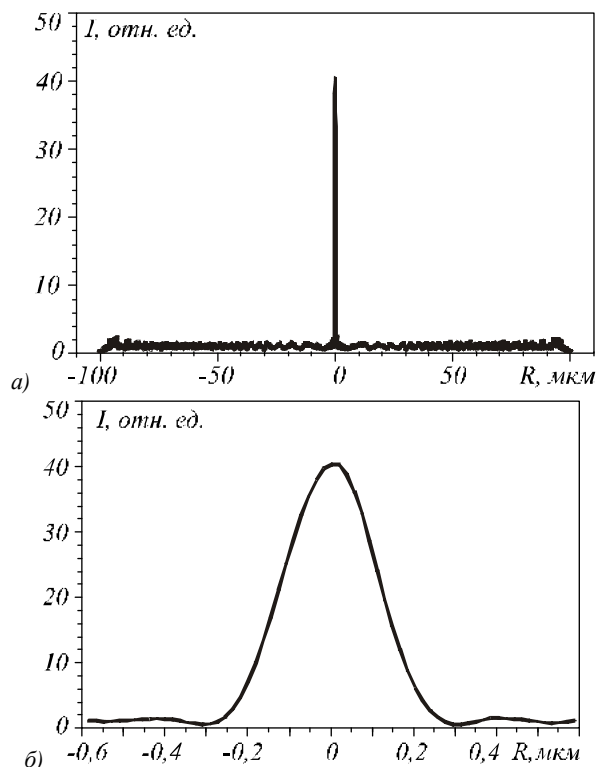


Рис. 7. Распределение интенсивности в фокусе ЗП на расстоянии 250 мм от неё (а) и центральная его часть (б)

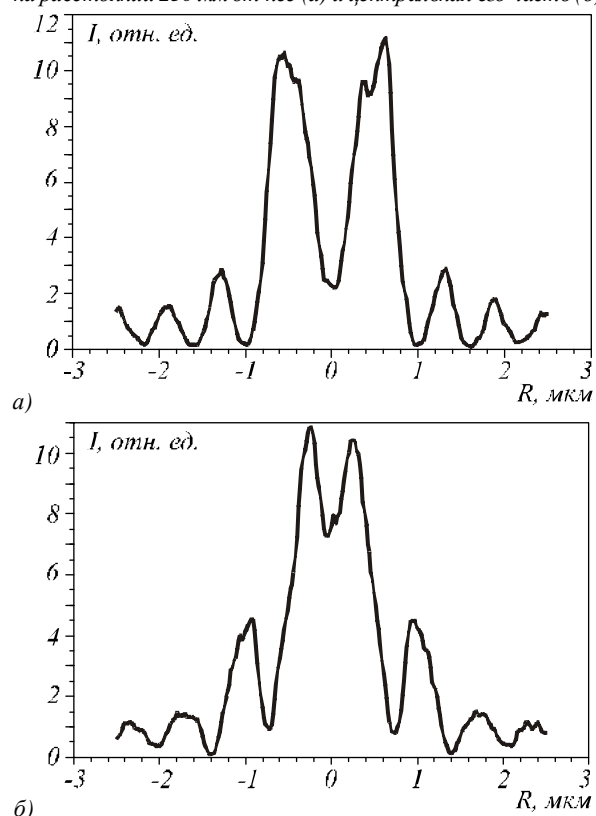


Рис. 8. Распределения интенсивности в поперечной плоскости к оптической оси до (а) и после (б) плоскости фокуса

Проведённое моделирование 3D ЗП с параметрами, подходящими для расчёта на современном

компьютере, показало, что её эффективность η_D и η_{FULL} меньше, чем для аналогичной 2D ЗП в 0,72 и 0,51 раза. Поэтому можно считать, что эффективность фокусировки света по полуспаду интенсивности в трёхмерном случае должна составить приблизительно $\eta_D=3,8\%$, $\eta_{FULL}=2,2\%$.

Заключение

В данной работе получены следующие результаты:
- по технологии электронной литографии и ионного травления изготовлена Френелевская зонная пластинка из серебра на мембране из нитрида кремния толщиной 200 нм, диаметром 200 мкм, с крайней зоной 287 нм (всего 176 зон, или 88 периодов), глубиной рельефа 460 нм (максимальное аспектное отношение 1,6), фокусным расстоянием 250 мм, рассчитанной для длины волны 2,29 А (Cr) (энергия кванта 5,4 КэВ);

- моделирование программой BeamProp показало, что эффективность в первом порядке дифракции для такой зонной пластинки равна около 4% в 2D случае и 2% в 3D случае, а диаметр фокусного пятна по полуспаду интенсивности равен FWHM = 0,259 нм.

Благодарности

Работа выполнена при поддержке ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» (госконтракт № 14.740.11.0016), гранта Президента РФ поддержки ведущих научных школ (НШ-7414.2010.9).

Литература (References)

1. **Feng, Y.** Nanofabrication of high aspect ratio 24 nm x-ray zone plates for x-ray imaging applications / Y. Feng, M. Feser, A. Lyon, S. Rishton, [at all.] // J. Vac. Sci. Technol. B. - 2007. - V. 25. - No. 6. - P. 2004-2007.
2. **Vila-Comamala, J.** Advanced X-ray diffractive optics / J. Vila-Comamala, K. Jefimov, T. Pilvi, M. Ritala, [at all.] // J. Physics: Conf. Ser. "9th Int. Conf. on X-Ray Microscopy". - 2009. - V. 186. - P. 012078.
3. **Tamura, S.** Quasi-kinoform type multilayer zone plate with high diffraction efficiency for high-energy x-rays / S. Tamura, M. Yasumoto, N. Kamijo, K. Uesugi [at all.] // J. Physics: Conf. Ser. "9th Int. Conf. on X-Ray Microscopy". - 2009. - V. 186. - P. 012075.
4. **Holmberg, A.** Soft x-ray zone plate fabrication at KTH, Stockholm / A. Holmberg, M. Lindblom, J. Reinspach, M. Bertilsson, H.M. Hertz // J. Physics: Conf. Ser. "9th Int. Conf. on X-Ray Microscopy". - 2009. - V. 186. - P. 012065.
5. **Bertilson, M.** First application experiments with the Stockholm compact soft x-ray microscope / M. Bertilsson, O. von Hofsten, J. Thieme, M. Lindblom, A. Holmberg [at all.] // J. Physics: Conf. Ser. "9th Int. Conf. on X-Ray Microscopy". - 2009. - V. 186. - P. 012025.
6. **Watanabe, N.** X-ray phase micro-tomography using an interference microscope with zone plates / N. Watanabe, M. Hoshino, K. Yamamoto, S. Aoki, A. Takeuchi, Y. Suzuki // J. Physics: Conf. Ser. "9th Int. Conf. on X-Ray Microscopy". - 2009. - V. 186. - P. 012021.
7. **Chen, J.** Fresnel zone-plate based x-ray microscopy in Zernike phase contrast with sub-50 nm resolution at NSRL / J. Chen, W. Li, Y. Liu, Z. Yue, J. Tian [and oth.] // J. Physics: Conf. Ser. "9th Int. Conf. on X-Ray Microscopy". - 2009. - V. 186. - P. 012005.
8. **Hofsten, O.** Sub-25-nm laboratory x-ray microscopy using a compound Fresnel zone plate / O. von Hofsten, M. Bertilsson, J. Reinspach, A. Holmberg [at all.] // Opt. Lett. - 2009. - V. 34. - No. 17. - P. 2631-2633.
9. **Chao, W.** Demonstration of 12 nm resolution Fresnel zone plate lens based soft x-ray microscopy / W. Chao, J. Kim, S. Rekawa, P. Fischer, E.H. Anderson // Opt. Express. - 2009. - V. 17. - No. 20. - P. 17669-17677.
10. **Xie, C.** Feasibility study of hard-x-ray nanofocusing above 20 KeV using compound photon sieves / C. Xie, X. Zhu, H. Li, L. Shi, Y. Wang // Opt. Lett. - 2010. - V. 35. - No. 23. - P. 4048-4050.
11. **Senin, R.A.** Gain in spatial resolution of x-ray laboratory microtomographs with enlarging x-ray optical elements / R.A. Senin, A.V. Buzmakov, A.V. Konovko, I.S. Smirnov [at all.] // J. Physics: Conf. Ser. "9th Int. Conf. on X-Ray Microscopy". - 2009. - V. 186. - P. 012035.
12. **Boye, P.** Nanofocusing refractive x-ray lenses: fabrication and modeling / P. Boye, J.M. Feldkamp, J. Patommel, A. Schwab [at all.] // J. Physics: Conf. Ser. "9th Int. Conf. on X-Ray Microscopy". - 2009. - V. 186. - P. 012063.
13. **Alianelli, L.** Germanium and silicon kinoform focusing lenses for hard x-rays / L. Alianelli, K.J.S. Sawhney, M.K. Tiwari, I.P. Doibnya [at all.] // J. Physics: Conf. Ser. "9th Int. Conf. on X-Ray Microscopy". - 2009. - V. 186. - P. 012062.

ZONE PLATE ON A FILM FOR HARD X-RAY RADIATION

V.V. Kotlyar¹, A.G. Nalimov¹, M.I. Shanina¹, V.A. Soifer², L. O'Faolein³

¹ Image Processing Systems Institute of the RAS,

² Samara State Aerospace University named by S.P. Korolyov (National Research University),

³ School of the Physics and Astronomy of the University St-Andrus, Scotland

Abstract

Designing and modeling of a silver Fresnel zone plate on a film of silica nitride, designed together by IPSI RAS and St-Andrews University (Scotland) are discussed. The diameter of the zone plate is 200 mkm, border zone width is 287 nm (176 zones or 88 periods), relief depth is 460 nm (maximum aspect ratio is 1.6), focal distance is 250 mm, calculated wavelength is 2,29 А (Cr) (quantum energy is 5,4 keV), calculated efficiency is about 3%.

Key words: x-ray, zone plate, membrane technology.

Сведения об авторах

Налимов Антон Геннадьевич, 1980 года рождения, окончил Самарский государственный аэрокосмический университет в феврале 2003 года по специальности «Физика». Поступил в очную аспирантуру СГАУ по специальности 05.13.18 «Математическое моделирование, численные методы и комплексы программ» в 2003 году, окончил её по специальности 01.04.05 «Оптика» в 2006 году. Работает на кафедре технической кибернетики СГАУ в должности ассистента, в Институте систем обработки изображений РАН в должности научного сотрудника. Кандидат физико-математических наук, соавтор 47 работ. E-mail: anton@smr.ru.

Anton Gennadyevich Nalimov (b. 1980), finished Samara State Aerospace University in February, 2003. Entered in postgraduate study in 2003 on speciality 05.13.18 “Mathematical modeling and program complexes”, finished it in 2006 with speciality 01.04.05 “Optics”. Nalimov A.G. works on technical cybernetics department in SSAU as an assistant, works as a scientist in Image Processing Systems Institute of the Russian Academy of Sciences. Candidate in physics and mathematics, coauthor of 47 papers.

Сведения об остальных авторах – см. страницы 9 и 10 этого номера.

Поступила в редакцию 26 января 2011 г.