

折射型 X 射线组合透镜研制进展

梁静秋¹ 黄鑫华^{1,2} 乐孜纯³ 梁中翥¹

1 (应用光学国家重点实验室 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所 长春 130033)

2 (中国科学院研究生院 北京 100039)

3 (浙江工业大学理学院 杭州 310023)

摘要 折射型 X 射线聚焦组合透镜(XCRLs)是一种利用折射效应对 X 射线聚焦成像的新型光学元件。本文从制作材料和结构设计两方面,系统介绍了目前 X 射线折射聚焦组合透镜在国内外的的发展状况及其主要的应用领域。

关键词 XCRLs, X 射线微束, 折射聚焦

中图分类号 O434.19

用各种技术聚焦 X 射线所得到的微米—纳米尺度的 X 射线微束,能提供高分辨率信息,且其高强度又使多种 X 射线技术的应用具有高灵敏度。因此,聚焦光学元件的研究显得尤为重要。现已有多种类型的 X 射线聚焦元件,如菲涅尔波带片、布拉格—菲涅尔光学元件、X 光导管、Kirkpatrick-Baez 球面全反射镜(K-B 镜)和折射型 X 射线聚焦组合透镜(XCRLs-X-ray compound focusing refraction lens)等。其中,K-B 镜的空间分辨率高,但非球面镜难于加工,像差较大,并且基于 K-B 镜的 X 射线光学系统的光路调整也很困难^[1-3]。X 光导管属于非成像器件,虽能对 X 射线聚束,但样品须非常靠近毛细管出口,容易污染样品^[2,4]。透射式 X 射线波带片可使 X 射线微束的空间分辨率达到亚微米量级^[5],但在高能 X 射线辐射下稳定性较差^[4],且波带片为衍射器件,有多个焦点,影响 X 射线微束的性能。与这些元件相比,XCRLs 具有很多优点,如无需折转光路、结构简单紧凑、易于排列和操作、对透镜表面粗糙度要求低、聚焦效率高、高温稳定性好且容易冷却、可消除球差等^[4,6,7]。

XCRLs 是 Snigirev 于 1996 年提出 XCRLs 的 X 射线聚焦器件^[6]。自该器件提出以来,对其研究一直非常活跃^[4,6,8]。本文从制作材料和透镜结构两方面介绍了目前国内外 XCRLs 的发展情况。

1 XCRLs 制作材料

X 射线的折射率极小($n = 1 - \delta + i\beta$, $\delta \sim 10^{-6}$, 其中, n 和 β 分别为折射率和吸收率),故其传播过程

中衰减很快而折射却很小,在选择制作 XCRLs 材料时须平衡最大增益和最小吸收之间的关系。1993 年, Yang 等^[9]提出了使用对 X 射线的吸收不大的低 Z 元素材料制作透镜来聚焦硬 X 射线的设想。研究表明,材料的 δ 与 $Z\rho$ 成正比,而吸收则与 $Z^4\rho$ 成正比^[6],因此可选择密度较大而原子序数较小的物质作为透镜材料,例如: Li、Be、B、C、Al、Cu 等,也可选择对 X 射线辐射吸收较小,密度较大的有机聚合物作为透镜材料,例如:聚四氟乙烯、聚酰亚胺等。

1.1 Li、Be、B 材料

Li 是室温下原子序数最低的固态材料。对低能量 X 射线带,它的衰减系数是所有固体材料中最低的,就吸收而言, Li 是制作 XCRLs 最好的材料。但 Li 与空气中的湿气反应强烈,使其制作和使用非常困难,须有专门的制作环境和支架。而且,因 Li 的低密度(0.53 g/cm^3)和柔软特性,须用模压 Li 金属薄片的方法来制作透镜,而这种方法又会由于 Li 与模具的高黏附性使得透镜表面光滑性很差。目前的冶金技术已经可以在室温下制得尺寸达 1 mm 左右的纯金属 Li 晶体,刚刚接近单个透镜的尺寸。每一单独晶体可加工成一个透镜,使透镜材料较均匀,具有不用退火、在单个晶体中无断层的优点^[10]。

Be 的 $Z=4$,也是很好的透镜材料,具有较好的机械性能,能精细抛光而加工出近乎完美的透镜。Be 是较弱的散射体,具有良好的环境稳定性,不会积聚辐射损耗。但 Be 是有毒材料,制作过程须有

国家自然科学基金资助项目(10174079),北京正负电子对撞机国家实验室、中国科学技术大学国家同步辐射实验室用户课题资助

第一作者:梁静秋,女,研究员,博士生导师,研究方向:微光机电系统及微光学

收稿日期:2007-08-06,修回日期:2008-02-18

安全措施。Be 透镜可用精确钻孔制作^[11], 在 10 mm 厚的 Be 基底上钻 150 个 $\Phi 1\text{ mm}$ 、深 5 mm 的孔。测量表明, 侧壁的粗糙度大约为 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ (Rms), 好于预期的 $0.4\text{ }\mu\text{m}$ (Rms)。另外, Be 也能够被塑铸成精确的旋转抛物面形状。Aachen 大学于 2002 年制作了 Be 抛物面 XCRLs^[7]。目前, 曲率半径约为 $200\text{ }\mu\text{m}$ 的 Be 透镜也已研制成功^[12]。

B 的折射与吸收的比值虽低于 Li 与 Be, 但其小角 X 射线散射(SAXS)较小, 故也是一种良好的制作 XCRLs 的材料。德国的 Physikalisches 实验室和 Aachen 大学首次采用 B 材料制作了 XCRLs^[12], 并且在欧洲同步辐射装置(ESRF)的 ID22 光束下进行了测试。透镜系统($N=100$)放在离光源 41.8 m 处, 透镜单元曲率半径为 $3.6\text{ }\mu\text{m}$ 。在 22 keV 下 B 的 XCRLs 得到的焦斑尺寸为 $B_h=180\pm 20\text{ nm}$ 。测得的光束尺寸值与预期值有差异, 系刻蚀深度较小所致。

1.2 C 材料

有三种形态的 C 材料为人们感兴趣的 XCRLs 制作材料: 金刚石、热解石墨和玻璃化炭黑。金刚石的高密度(3.51 g/cm^3)对于制作 X 射线透镜十分有利, 然而, 实际制作中很难在多层金刚石层面上加工出透镜结构。热解石墨($\rho=2.20\sim 2.26\text{ g/cm}^3$)和玻璃化炭黑($\rho=1.5\sim 2.0\text{ g/cm}^3$)可由反应离子刻蚀来制作透镜, 但它们的散射较强。

1.2.1 金刚石 在低 Z 的无机材料和塑料中, 具有合适折射/吸收比的金刚石似乎是最有吸引力的材料之一。用金刚石作透镜材料能极大地提高透镜的光学特性, 使透过效率和有效孔径都符合第三代同步辐射源的光束尺寸。金刚石具有良好的热稳定性和机械稳定性, 其高热传导率和低热扩散率等性能极好地抵抗热冲击, 尤宜于同步辐射应用。化学气相沉积技术可在微结构衬底上大面积生长金刚石。另外, 较成熟的金刚石切割和抛光技术也使其透镜制作成为可能。

金刚石透镜可在成型模上复制, 例如, 在成型硅模子上沉积金刚石, 然后去除硅牺牲层, 即得到粘在玻璃衬底上的金刚石透镜结构。也可通过刻蚀金刚石材料得到。德国 Physikalisches 实验室和 Aachen 大学进行了金刚石材料的刻蚀^[12], 刻蚀深度为 $6\text{ }\mu\text{m}$, 但因刻蚀速率较低, 及掩膜边缘局部破坏, 导致所刻蚀的金刚石结构侧壁有较严重的倾斜。目前金刚石的刻蚀深度尚不足以制作 XCRLs, 须研发更好的刻蚀工艺。

1.2.2 热解石墨 热解石墨中, 石墨层面沿着 c 轴排列。热解石墨的 $\rho=2.20\sim 2.26\text{ g/cm}^3$, 而 2.26 g/cm^3

较为理想, 其密度差异使热解石墨产生 SAXS。

目前, 热解石墨的刻蚀深度已达 $25\text{ }\mu\text{m}$, 刻蚀的透镜已在 ESRF 的 ID13 光束下进行了测试^[13]。透镜放在距离光源 47 m 处, 透镜($N=60$)曲率半径为 $3\text{ }\mu\text{m}$, 透镜后的积分通量测试值为 $F_{\text{total}}=2.2\times 10^9\text{ photons/s}$, 得到了 $2\text{ }\mu\text{m}$ 尺寸的焦斑, 与计算值 50 nm 相差很大, 其原因可能为: 侧壁不陡直(倾斜 $3\sim 5^\circ$), 破坏了石墨聚焦组合透镜的聚焦性能; 石墨的低密度引起的 SAXS 严重影响焦斑处的聚焦效果。

1.2.3 玻璃化炭黑 玻璃化炭黑散射较强, 一般认为它并非制作 XCRLs 的理想材料。然而, 俄国 Kurchatov 实验室于 2005 年报道了玻璃化炭黑制作的平抛物面 XCRLs 聚焦同步辐射源的实验结果^[13], 两组组合透镜的曲率半径分别为 $5\text{ }\mu\text{m}$ 和 $200\text{ }\mu\text{m}$, 几何孔径为 $40\text{ }\mu\text{m}$ 和 $900\text{ }\mu\text{m}$ 。组合透镜中双凹面单元透镜的个数为 4~200 个。实验在 ESRF 的弯转磁铁束流线 BM-5 上进行, 观测到焦斑为 $1.4\text{ }\mu\text{m}$, 与理论计算的 $0.05\text{ }\mu\text{m}$ 相差很大, 可能原因: 玻璃化炭黑密度的异质节引起的小角散射及抛物面表面形状的背离。

1.3 Si 材料

迄今为止, Si 材料是最常用的 XCRLs 制作材料, 其熔点低、化学和结构稳定、具有固态氧化物, 且其制作工艺成熟, 如 Si 晶体的生长、在 Si 衬底上光刻、掩蔽以及刻蚀等。几年来, 已制作的 Si 平抛物面透镜有: 单抛物面透镜、组合抛物面透镜、具有最小吸收的 Kniform 透镜、fern-like 透镜、曲率半径逐层降低的透镜^[14-17]。

Si 的 XCRLs 在 ESRF 的 ID13 束线上用 21 keV 的 X 射线获得了较好的实验结果。透镜系统(水平: $N=100$, $R=2.0\text{ }\mu\text{m}$; 垂直: $N=71$, $R=2.86\text{ }\mu\text{m}$)放在距光源 47 m 处, 测得微束的水平和垂直焦斑尺寸分别为 47 nm 和 55 nm。镜后积分通量测试值 $F_{\text{total}}=1.7\times 10^8\text{ photons/s}$ ^[12]。

1.4 Al、Ni、Cu 材料

Al 易于加工、高温稳定性好、易散热, 常被选为实验和实际应用的材料。对于 10~30 keV X 射线, 铝 XCRLs 的聚焦性能更好。1996 年, Snigirev 等^[6]用计算机控制钻孔法首次制成铝铜合金透镜阵列。

近年来, 对 40 keV 以上的 X 射线聚焦需求巨大。Al 材料透镜虽可用以聚焦 100 keV 的 X 射线, 但能量高于 100 keV 时, 其适用性就会受到透镜排列的物理尺寸的限制, 因为要产生合理的焦距, 透镜单元的数目随能量迅速增加。而使用高密度材料,

如 Ni、Cu, 可使所需透镜数大大降低。Ni 材料透镜应用于高能 X 射线的前景广阔, 对 250 keV X 射线的衍射受限分辨率可为 100 nm 左右^[18], Ni 透镜的潜在应用有微衍射深度应力分析、高压下的 Compton 磁散射等。目前, 我国成功制作的铜材料 XCRLs, 曲率半径为 600 μm ^[19]。

1.5 SU-8 胶、聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)等聚合物材料

SU-8 胶、PMMA、环氧树脂^[20]、聚酰亚胺(PI)等聚合物材料都是较好的高能 XCRLs 材料。它们对 X 射线的吸收较小, 密度较大, 还具有良好的力学性能、抗化学腐蚀性和热稳定性。SU-8 胶和 PMMA 是目前制作 XCRLs 常用的聚合物材料。借助于深层 X 射线光刻技术, 可以得到大深/宽比的透镜结构, 大大增加了透镜的数值孔径, 提高了焦点强度。另外, 采用光刻技术可得到任意形状的结构, 对设计和制作各种形状的 XCRLs 提供了可能。此外, 还可采用准分子激光直接刻蚀技术等制作 PI、PMMA 或其他有机材料的 XCRLs。

我国已经研制出几何口径 400~1400 μm 、焦距 0.8~10 m、焦斑在 10~50 μm 的 Al、三氧化二铝、PMMA、PI 等材料的 XCRLs, 用 LIGA 技术也制作出 PMMA 材料的高能 XCRLs, 结构高度 500 μm , 单元透镜半径为 200 μm 和 600 μm ^[21,22]。

2 透镜结构

透镜结构对于透镜的聚焦和成像有决定性作用, 不同结构在像差、透镜孔径和吸收等方面都存在着差异。目前研究的 XCRLs 主要有圆柱、抛物面、锯齿状及沙漏状等结构。

2.1 圆柱结构

1996 年, Snigirev 通过模铸制作的首个透镜就是圆柱形透镜^[6]。与非球面形状相比, 其缺点为存在像差, 但其结构简单, 制作工艺易实现, 所以仍是较多采用的结构。

2.2 抛物面结构

抛物面形状透镜由 Aachen 大学于 1998 年首次提出并制作^[23], 目前是制作 XCRLs 采用最多的结构。它能消除像差, 提高聚焦和成像质量, 最重要的是其高分辨率成像的应用。但是, 该结构的吸收较强, 不仅影响焦斑处的强度增益, 也大大限制透镜的有效孔径。抛物面状透镜有平抛物面结构(图

1)和旋转抛物面结构(图 2)。

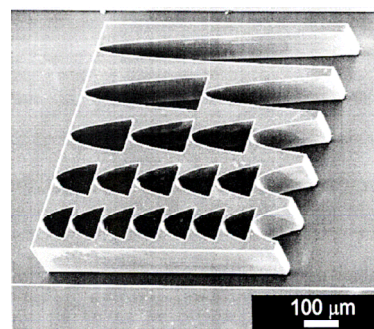


图 1 不同曲率半径的平抛物面透镜
Fig.1 Plan parabolic lenses of different radii of curvature

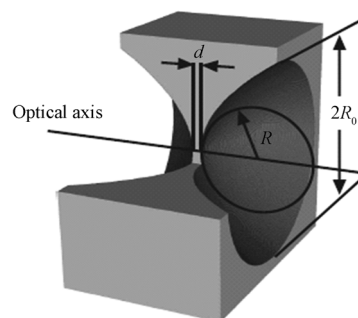


图 2 旋转抛物面状透镜
Fig.2 The rotation parabolic lens

2.3 锯齿状结构

2000 年, Cederstrom^[24]提出新型的锯齿状 XCRLs, 它结构简单, 制作容易, 且对透镜表面粗糙度的要求也远低于抛物面透镜, 还可通过调节张角的大小来调节焦距(图 3)。它是由两排棱镜沿着光束方向张开微小的角度排列组成的。该透镜的焦距为 $f = y_g \tan \theta / 2N\delta$, 其中 y_g 是透镜最后面的张开长度, N 是有效单元的数量, θ 是排列单元的底角。这种结构可以近似成一个平抛物面结构, 因此较强的吸收也是该结构的一个缺点。

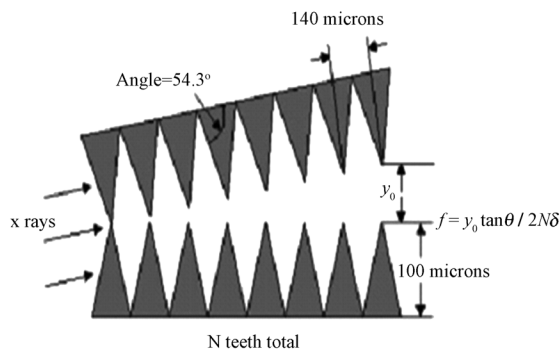


图 3 锯齿状结构
Fig.3 The saw-tooth refractive lens

2.4 Kinoform 透镜

Aristov 等^[25]提出的 kinoform 透镜具有最小吸收结构(图 4),它具有折射和衍射联合特性,能大大降低透镜的吸收和散射。该设计的主要思想是降低材料的吸收。与其他透镜相比,Kinoform 透镜去除引起 2π 整数倍相位变化的材料,从而大大降低了光学吸收损耗,但并不改变整个透镜的特性。此类光学元件的成像分辨率高,且理论上能达 94% 的聚焦效率。

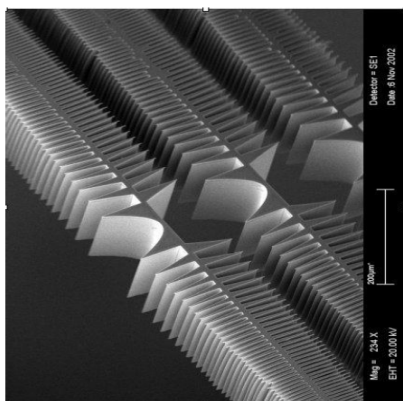


图 4 最小吸收 Kinoform 透镜
Fig.4 The Kinoform lens of minimum absorption

2.5 沙漏状结构

沙漏状透镜由一系列同样的棱镜堆叠而成(图 5)^[26]。光线沿着图中 X 轴的方向入射,通过对称的棱镜后发生偏折。透过一个棱镜后偏折角度 ϕ ,通过 j 个透镜后偏折角度为 $j\phi$,从而使光线会聚到同一点上。焦斑的尺寸取决于两组对称棱镜间距离 h ,焦距 $f = h/\phi = h \tan(\gamma)/2\delta$ 。其中 γ 为入射角度。该结构本质上是 Kinoform 透镜,所以吸收低于抛物面透镜,且透镜有效孔径大大增加,可增大到毫米量级。但沙漏状透镜结构的制作及聚焦特性受到当前工艺条件的限制。

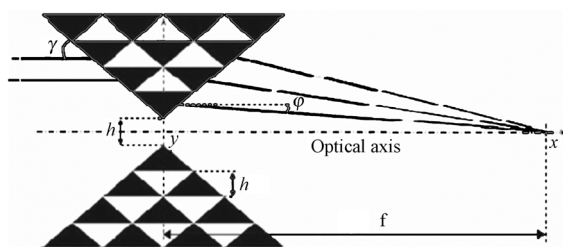


图 5 沙漏状 X 射线透镜
Fig.5 The hourglass type lens

3 应用

XCRLs 特别适用于高能 X 射线波段($>5\text{keV}$),因此它在与同步辐射相关的基础物理研究(如同步

辐射线束预聚焦、校准装置、成像系统、低发射同步辐射源的电子束诊断),以及 X 射线诊断技术(如微束 X 射线荧光分析法— $\mu\text{-XRF}$ 、微束荧光断层扫描、微束 X 射线衍射技术、X 射线显微镜、高分辨率 X 射线微探针技术)等领域有着广泛的应用前景。近几年构建了许多基于 XCRLs 的高能 X 射线实验诊断系统,如高能 X 射线成像和光刻实验系统^[27]、用于样品元素分布状态测量的高能 X 射线荧光微层析实验系统^[28],分辨率都达到了亚微米量级。还有基于金属材料高能 XCRLs 的中子显微镜^[29]、用于单细胞检测、化学微分析、早期胸部肿瘤检测等高能 X 射线实验系统^[30,31]。这些实验系统的成功构建已经显示出 XCRLs 在微技术、生物和材料科学领域的广泛应用前景。

4 总结

材料对于 X 射线较强的吸收是设计折射型 X 射线聚焦组合透镜所面临的主要问题。因此,在结合现有工艺条件的前提下,选择合适的材料和适当结构是设计透镜时必须要考虑的两个方面。通过对上述内容进行分析发现,低原子序数材料以及聚合物材料可用于聚焦高能 X 射线的较低能量带,而 Al、Ni、Cu 等高原子序数材料则适用于聚焦更高能量带($>60\text{keV}$)的 X 射线。在结构方面,目前使用最多的是抛物面结构,但却存在吸收较大的问题。而 Kinoform 透镜是解决材料对 X 射线吸收问题的最好结构,是十分有潜力的一种折射型 X 射线聚焦组合透镜结构,但这种结构对制作工艺要求非常高,还有很多问题需要解决。当前聚焦效果最好的透镜是 Si 材料的平抛物面透镜,在聚焦 21keV 的 X 射线束时,其光斑尺度达到 $47\text{nm}(h)\times 55\text{nm}(v)$ 。

目前,国外 XCRLs 发展迅速,尤其是第三代同步辐射源、NSLS 2.8 GeV 和 NSLS-II 等 X 射线光源的出现,使得聚焦后的 X 射线微束达到 10nm 量级^[32]。然而,我国 XCRLs 的研制尚处于初级发展阶段,与国外的差距在逐渐拉大。我国正在建设的第三代同步辐射装置上海光源,很易获得 $10\sim 100\text{keV}$ 的 X 射线,对 XCRLs 的需求也将变得更为紧迫,应用也将愈加广泛、深入。因此,十分有必要进一步加强这一方向的研究力度。

参考文献

- 1 Somogyi A, Tucoulou R, Martinez -Criado G, et al. J Synchrotron Rad, 2005, 12: 208—215
- 2 Adams F, Janssens K, Snigirev A. Analytical Atomic Spectrometry, 1998, 13: 319—331

- 3 吴应荣. 核技术, 1999, **22**: 123—128
WU Yingrong. Nucl Tech, 1999, **22**: 123—128
- 4 Sylvain Bohic, Alexandre Simionovici, Richard Ortega, *et al.* Nucl Instr Meth, 2001, **B 181**: 728—733
- 5 Xiao Yanan, Cai Zhonghou, Lai Barry. Nanotechnology, 2005, **16**: 1754—1760
- 6 Snigirev A, Kohn V, Snigireva I, *et al.*, Nature, 1996, **384**: 49—51
- 7 Lengeler B, Schroer C G, Kuhlmann M, *et al.* AIP Conference Proceedings, 2004, **705**: 748—751
- 8 Schroer C G, Benner B M, Gunzler T F, *et al.* Proc & Applied Optics, 2003, **5**: 374—379
- 9 Yang B X. Nucl Instr Meth, 1993, **A 328**: 578
- 10 Pereira N R, Dufresne E M, Arms D A, *et al.* Proc SPIE, 2004, **5539**: 174—184
- 11 Bayer A, Barkusky F, Peth C, *et al.* Proc SPIE, 2006, **6317**: 1—8
- 12 Schroer C G, Kurapova O, Patommel J, *et al.* Proc 8th Int Conf, 2006, IPAP Conf. Series 7: 94—96
- 13 Artemiev A N, Snigirev A, Kohn V, *et al.* Nucl Instr Meth, 2005, **A543**: 322—325
- 14 Aristov V, Grigoriev M V, Kuznetsov S M, *et al.* Opt Comm, 2000, **177**: 33—38
- 15 Aristov V, Grigoriev M, Kuznetsov S, *et al.* Appl Phys Lett, 2000, **77**: 4058—4060
- 16 Snigireva I, Snigirev A, Rau C, *et al.* Nucl Instr Meth, 2001, **A467-468**: 982—985
- 17 Snigireva I, Snigirev A, Kuznetsov S, *et al.* Proc SPIE, 2001, **4499**: 64—73
- 18 Kohn V, Snigireva I, Snigirev A. Optics Communications, 2003, **216**: 247—260
- 19 叶坚, 乐孜纯, 梁静秋. 光学技术, 2004, **30**(1): 20-23
YE Jian, LE Zichun, LIANG Jingqiu, Optics Technology, 2004, **30**(1): 20-23
- 20 Liang Jingqiu, Le Zichun, Peng Liangqiang, *et al.* Proc SPIE, 2006, **6032**: 0U-1-6
- 21 梁静秋, 乐孜纯. 光学精密工程, 2005, **13**: 60—64
LIANG Jingqiu, LE Zichun. Optics and Precision Engineering, 2005, **13**: 60—64
- 22 乐孜纯, 张明, 梁静秋. 中国光学快报(英文版), 2006, **4**(9): 556—558
LE Zichun, ZHANG Ming, LIANG Jingqiu. Chinese Optics Letters, 2006, **4**(9): 556—558
- 23 Lengeler B, Tummler J, Snigirev A, *et al.* J Appl Phys, 1998, **84**: 5855—5861
- 24 Cederstrom B, Cahn R, Danielsson M. Nature, 2000, **404**: 951
- 25 Aristov V V, Grigoriev M V, Kuznetsov S M, *et al.* Optics Communication, 2000, **177**: 33—38
- 26 Pérennès F, Matteucci M, Jark W, *et al.* Microelectronic Engineering, 2005, **78-79**: 79—87
- 27 Schroer C G, Benner B, Günzler T F, *et al.* Rev Sci Instrum, 2002, **73**(3): 1640—1642
- 28 Schroer C G. Appl Phys Lett, 2001, **79**(12): 1912—1914
- 29 Beguiristain H R, Anderson I S, Dewhurst C D, *et al.* Appl Phys Lett, 2002, **81**(22): 4290—4292
- 30 Bohic S, Simionovici A, Snigirev A, *et al.* Appl Phys Lett, 2001, **78**(22): 3544—3546
- 31 Drakopoulos M, Zegenhagen J, Snigirev A, *et al.* Appl Phys Lett, 2002, **81**(12): 2279—2281
- 32 James M. Ablett. Nucl Instr Meth, 2005, **B241**: 238—241

Current status of compound X-ray focusing refraction lens

LIANG Jingqiu¹ HUANG Xinhua^{1,2} LE Zichun³ LIANG Zhongzhu¹

1 (State Key Laboratory of Applied Optics, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics,

Chinese Academy of Sciences, Changchun 130031, China)

2 (Graduate School of the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

3 (College of Science, Zhejiang University of Technology, Zhejiang 310023, China)

Abstract Compound X-ray focusing refraction lens is a new refraction optical device for X-ray focusing and imaging. The development and main applications of compound X-ray focusing refraction lenses are reviewed in this paper, with emphases in their fabrication materials and structure design.

Key words Compound X-ray focusing refraction lens, X-ray microbeam, Refractive focusing

CLC O434.19