

Формирование фазово-контрастных изображений наноструктур мягким рентгеновским излучением фемтосекундной лазерной плазмы

С. В. Гасилов⁺¹⁾, А. Я. Фаенов^{+*}, Т. А. Пикуз^{+*}, И. Ю. Скобелев⁺, Ф. Калегари[∇], К. Воцци[∇], М. Нисоли[∇], Д. Сансоне[∇], Д. Валентини[∇], С. Де Силвестри[∇], С. Стажира[∇]

⁺Объединенный институт высоких температур РАН, 127412 Москва, Россия

^{*}Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency, Kizugawa-shi, Kyoto 619-0215, Japan

[∇]National Laboratory for Ultrafast and Ultraintense Optical Science – CNR-INFM, Politecnico, 20133 Milano, Italy

Поступила в редакцию 14 января 2008 г.

После переработки 28 января 2008 г.

Проведены исследования возможности формирования фазово-контрастных изображений наноструктур с использованием в качестве пространственно-когерентного источника мягкого рентгеновского излучения фемтосекундной лазерной плазмы, а в качестве рентгеновского детектора кристаллов LiF, обладающих субмикронным пространственным разрешением в большом поле зрения и высоким контрастом. Продемонстрировано, что уже на расстоянии 30 см от источника на основе фемтосекундной лазерной плазмы длина пространственной когерентности излучения в диапазоне длин волн 1–13 нм составляет $\simeq 1.5$ мкм. Достигнутой пространственной когерентности источника оказалось достаточно для получения высококачественных фазово-контрастных рентгеновских изображений пленок с различным химическим составом и толщиной $\simeq 100$ нм.

PACS: 52.38.Ph, 52.59.Ye, 87.64.Rr

Уже с первых работ Рентгена радиография зарекомендовала себя как уникальный метод исследований в различных областях науки, техники и медицины [1]. Однако для ряда применений, особенно при получении изображений биологических тканей или клеток, различных наноструктур или композиционных материалов традиционная абсорбционная радиография не может быть эффективно использована, поскольку в таких объектах поглощение рентгеновского излучения чрезвычайно мало. Для улучшения контраста регистрируемых рентгеновских изображений подобных объектов в последние годы начал эффективно использоваться метод распространительного фазового контраста (propagation based phase contrast, РФК) [2–6]. К достоинствам этого метода относится то, что он не требует монохроматичности излучения и применения каких-либо оптических приборов (см. [2], раздел 4.4.4). Хотя расположение рентгеновского источника, объекта и детектора в экспериментах по регистрации изображений методом РФК такое же, как и в традиционной рентгеновской радиографии, этот метод по своей физической сущности принципиально отличается от традиционной абсорбционной радиографии. В то время как формирование изображе-

ния в абсорбционной радиографии основано на разнице в поглощении излучения различными элементами предмета, изображения, получаемые методом РФК, основываются на регистрации изменений фазы волны при прохождении через предмет. Действительно, при прохождении через вещество волна не только поглощается, но и изменяется ее фаза или, другими словами, изменяется кривизна волнового фронта. При этом некоторые части волнового фронта можно аппроксимировать сходящейся сферической волной, а некоторые – расходящейся, поэтому интенсивность при распространении волны будет, соответственно, в некоторых областях увеличиваться, а в некоторых уменьшаться. Так изменения фазы волны в плоскости предмета преобразуются в изменения интенсивности в плоскости изображения за счет свободного распространения волны в пространстве. В результате появляется возможность определения изменений толщины или плотности исследуемого образца, даже если он практически не поглощает излучение.

В этой связи методы получения рентгеновских изображений, основанные на РФК, являются очень перспективными методами для применения в биологических и медицинских приложениях [3, 6], исследованиях различных наноструктур или композиционных материалов, поскольку они позволяют исследовать

¹⁾e-mail: sergei.gasilov@gmail.com

объекты с очень малыми величинами коэффициента поглощения δ и толщины d (или) с очень слабыми различиями δ и d в различных частях объекта. Для реализации метода РФК, как правило, применяются источники жесткого рентгеновского излучения ($E \sim 10$ кэВ): синхротроны [5], рентгеновские трубки [6] или, как было продемонстрировано недавно, источник на основе фемтосекундной лазерной плазмы [3]. В настоящей работе для получения изображений методом РФК предложено использовать мягкое рентгеновское излучение ($E < 1$ кэВ) фемтосекундной лазерной плазмы. Увеличение длины волны рентгеновского излучения повышает эффективность его взаимодействия с веществом и, следовательно, позволяет исследовать объекты с более низкими плотностями и/или имеющие очень малую (≈ 100 нм) толщину. Например, в работах [7, 8] показано, что, используя мягкое рентгеновское излучение (МРИ) источника на основе фемтосекундной лазерной плазмы ($E \approx 50\text{--}1000$ эВ), можно успешно определять толщину или состав нанопленок, даже используя обыкновенные абсорбционные изображения, полученные при размещении детектора вплотную к образцу. Более того, как показано в настоящей работе, благодаря небольшим размерам источника на основе фемтосекундной лазерной плазмы (ФЛП) и сравнительно большой длине волны излучения, уже на расстоянии 30 см от источника можно получить сравнительно большие значения пространственной когерентности излучения, что позволяет регистрировать изменения фазы волны и, тем самым, значительно улучшать контраст изображений. В частности, в данной работе были получены изображения париленовых фильтров толщиной 100 нм, на которых видимость различных особенностей фильтра, таких как отверстия, перекрытие нескольких слоев и т.п., значительно улучшалась по сравнению с контактными абсорбционными изображениями.

Эксперименты проводились на лазерной установке лаборатории ULTRAS Миланского Политехнического Университета. Установка представляет собой Ti:Sa-лазер ($\lambda = 800$ нм), генерирующий импульсы длительностью от 60 фс до 1 пс с максимальной энергией 130 мДж и частотой повторения 10 Гц. Плазма создавалась при фокусировке лазерного пучка с помощью внеосевого параболического зеркала на тефлоновую (C_nF_{2n}) мишень. Предымпульс, попадающий на мишень за несколько десятков пикосекунд перед основным импульсом, улучшал эффективность генерации рентгеновского излучения. Цилиндрическая мишень сдвигалась и вращалась для того, чтобы лазерное излучение фокусировалось каждый раз на чис-

тую поверхность. Для того чтобы контролировать параметры получаемой плазмы, в камере был установлен фокусирующий спектрограф с пространственным разрешением (ФСР, [9]). Типичные значения параметров плазмы, измеренные рентгеноспектральными методами, составляли: плотность электронов $N \approx 10^{20}$ см $^{-3}$, температура электронов $T_e \approx 100$ эВ [10]. МРИ и вакуумное ультрафиолетовое излучение (ВУФ) такой плазмы формируются, главным образом, спектральными линиями H- He- и Li-подобных ионов фтора и углерода, а также фоторекомбинационным и тормозным континуумами. Примерный вид излучательного спектра в области 10–270 Å показан на рис.1 сплошной линией. Этот спектр рассчитан

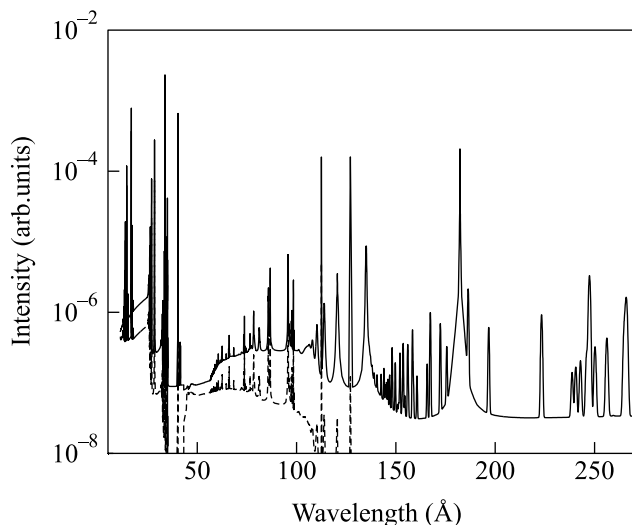


Рис.1. Спектр рентгеновского излучения тефлоновой (C_nF_{2n}) плазмы с температурой электронов $T_e = 100$ эВ – сплошная линия. Штриховая линия – спектр излучения после прохождения через полипропиленовый фильтр толщиной 1 мкм

в стационарном приближении по программе FLY Ричарда Ли [11] для приведенных выше значений электронной плотности и температуры плазмы. Поскольку между плазмой и исследуемым объектом, как правило, устанавливался полипропиленовый фильтр толщиной 1 мкм, то в спектре излучения, падающего на объект, отсекалась длинноволновая часть с $\lambda > 130$ Å. Соответствующий спектр излучения показан на рис.1 пунктирной линией.

МРИ образующейся плазмы использовалось для формирования изображений микрометровых периодических структур (металлических сеток) и нанопленок (пленки с толщиной ≈ 100 нм). Исследуемый объект помещался на расстоянии $z_o = 30$ см от источника. Увеличение расстояния z_o приводит к увеличе-

нию пространственной когерентности, однако рентгеновский поток в плоскости объекта уменьшается с увеличением z_0 . Таким образом, z_0 должно выбираться с учетом обоих факторов. Детектор рентгеновского излучения на основе кристалла фторида лития [12] размещался на расстоянии $z_d = 3-8$ мм за плоскостью образца, параллельно ей. При маленьких дифракционных расстояниях $z_d = 3$ мм ширина дифракционных максимумов не превышала 1–2 мкм, так что для их наблюдения не могли применяться прибор с зарядовой связью (ПЗС детектор) или рентгеновская пленка с минимальным разрешением ≈ 4 мкм и ≈ 2 мкм, соответственно. Поэтому был использован детектор на основе кристаллов LiF, который имеет большой динамический диапазон и позволяет достигнуть субмикронного пространственного разрешения [13].

Поскольку пространственная когерентность излучения является основным требованием для получения РФК изображений, вначале мы продемонстрируем наличие пространственной когерентности описываемого ФЛП источника на примере френелевской дифракции мягкого рентгеновского излучения ФЛП источника на краю проволоочки. Вообще говоря, пространственная когерентность излучения в плоскости освещаемого объекта определяется размером источника, расстоянием до освещаемого объекта и длиной волны излучения. Для изучения и измерения пространственной когерентности источника могут использоваться интерференционные картины Юнга или дифракция Френеля на границе раздела предмет – вакуум [14]. Последний метод широко используется в настоящее время для оценки размеров ФЛП источника [15]. В данной работе размер ФЛП источника определялся, исходя из моделирования дифракционных картин, образующихся на границе проволоочки, и сравнивался с размером плазмы, определенным с помощью рентгеновского спектрографа и детектором на основе ПЗС.

На рис.2 показаны увеличенные изображения фрагментов проволоочной никелевой решетки (диаметр проволоки 20 мкм, период решетки 360 мкм), поддерживающей алюминиевый фильтр толщиной 150 нм. Представленные изображения получены для различных дифракционных расстояний $z_d = 0$ мм (рис.2а) и $z_d = 3$ (рис.2б) мм за время $t \sim 10000$ выстрелов лазера. Видно, что уже при расстоянии между объектом и детектором 3 мм вдоль краев проволоочек, образующих один из узлов решетки, появляются светлые полоски, выглядящие как локальные максимумы на распределении интенсивности, построенном в направлении, перпендикулярном

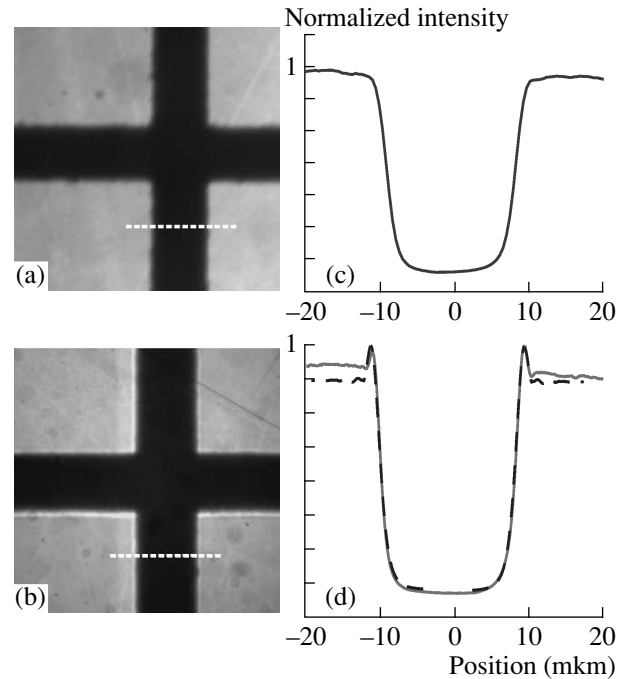


Рис.2. Увеличенные изображения металлической решетки (Ni, толщина проволоки 20 мкм, период решетки 360 мкм), поддерживающей алюминиевый фильтр толщиной 150 нм; (с) и (d) – профили интенсивности в направлении, перпендикулярном границе раздела проволоочка-вакуум для $z_d \approx 0$ и $z_d = 3$ мм, соответственно. При некотором расстоянии от детектора (b) и (d) начинают появляться дифракционные максимумы, отсутствующие на контактном изображении (a) и (с). Пунктирной линией на рис.(с) показана кривая интенсивности, рассчитанная в приближении дифракции Френеля на полуплоскости

границе раздела проволоочка-вакуум (рис.2с и d, сплошные линии). Для уменьшения уровня шума на экспериментальных распределениях интенсивности в работе производилось суммирование по некоторой области параллельно границе раздела предмет – вакуум. Теоретическая кривая интенсивности рентгеновского излучения (рис.2d, пунктир) для $z_d = 3$ мм была рассчитана в приближении одномерной дифракции Френеля на полуплоскости [14]: $I = \frac{1}{2} \{ [\frac{1}{2} + C(w)]^2 + [\frac{1}{2} + S(w)]^2 \} I^{(0)}$, что допустимо при данном z_d и толщине проволоки. Наилучшее совпадение теоретической и экспериментальной кривых было получено для гауссовой функции яркости источника с шириной на полувысоте 100 мкм. Размер наиболее интенсивной центральной области и полный размер источника плазмы хорошо согласуются с величинами, измеренными с помощью ФСПР спектрографа. Видимость дифракционных максимумов уменьшается из-за фона, одинакового

для всей поверхности кристалла LiF и возникающего за счет шумового рентгеновского излучения, не проходящего через образец. Полное количество видимых максимумов (дифракционных полос) не превышало двух–трех, так как спектр описываемого источника достаточно широкий, и оптическая разность путей интерферирующих волн быстро превышает величину продольной когерентности источника $l_c \sim \lambda^2/\delta\lambda$. Кроме того, дифракционные максимумы быстро исчезали из-за достаточно большого полного размера источника ($d_s \leq 200$ мкм). Область когерентного освещения в плоскости объекта имеет поперечный размер $d_c \approx 0.16\lambda z_o/d_s$ [14]. Оценка данной величины для описываемого эксперимента дает $d_c \approx 1.6$ мкм. Следует отметить, что, как было показано в работе [3], пространственной когерентности в 0.5 мкм уже достаточно для получения РФК изображений и применения источника в томографии. Уменьшение эффективных размеров источника за счет улучшения условий фокусировки, уменьшения длительности импульса и увеличения расстояния от источника до объекта может увеличить значение пространственной когерентности до 20 мкм и более, что сравнимо с пространственной когерентностью излучения синхротронов. Таким образом, появление светлой полоски на изображении проволочек вдоль их края обусловлено дифракцией и возможно только при освещении предмета пространственно когерентным излучением. Светлая или темная полосы на границах раздела предмет – вакуум, соответствующие первому дифракционному максимуму (минимуму), дают основной вклад в улучшение видимости контуров предметов на изображении [16] и формируют так называемое дифракционно-улучшенное изображение.

В рассмотренном выше примере наблюдались дифракционные эффекты на краях полностью непрозрачных для излучения объектов. Однако подобные полосы могут появляться и на изображениях практически прозрачных (непоглощающих излучение) объектов. Например, на рис.3 показаны фрагменты поврежденного париленового фильтра (Lebow Co, толщина 100 нм, поддерживаемого металлической сеткой (Ni) с толщиной проволоки 20 мкм и периодом 360 мкм). Изображения, полученные при расстоянии от объекта до детектора $z_d = 3$ мм (рис.3b) и 8.5 мм (рис.3c) более контрастные, на них четко видны темные полосы, ограничивающие края отверстий в фильтре, участки, где несколько слоев фильтра наложены друг на друга, и другие особенности объекта. На контактном изображении (рис.3a) также видны различные участки поверхности, однако мелкие детали пленки, например, складки, возникающие

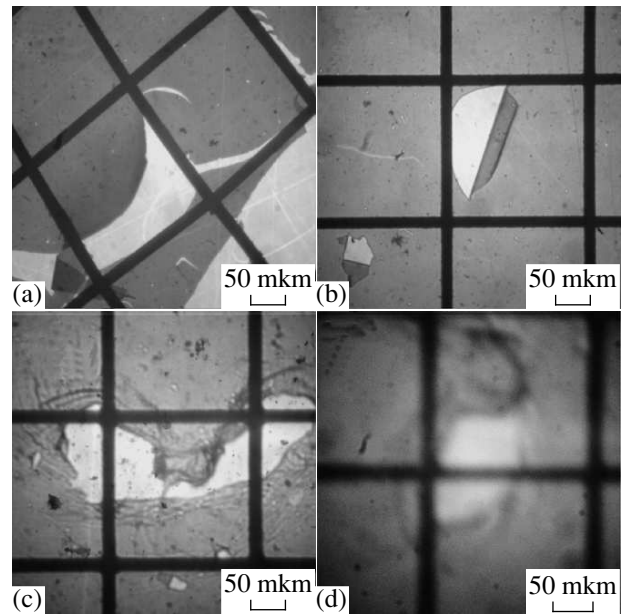


Рис.3. Контактное ((a), $z_d \sim 0$) и фазово-контрастные изображения ((b) – $z_d = 3$ мм, (c) – $z_d = 8.5$ мм, (d) – $z_d = 42.5$ мм) поврежденного париленового фильтра (толщина 100 нм)

вблизи отверстия, различить невозможно. Изображение фильтра, полученное при большом дифракционном расстоянии $z_d = 42.5$ мм (рис.3d) имеет низкую контрастность и очень размыто, так как на таких больших расстояниях уже нет конструктивной интерференции между различными участками волнового фронта. Кроме того, чем больше дифракционное расстояние, тем хуже видимость дифракционных полос из-за конечного размера источника, и, начиная с определенного расстояния, дифракционные максимумы исчезают вообще.

Для моделирования профиля интенсивности рентгеновского излучения на границе раздела пленка – вакуум с учетом как абсорбции, так и изменения фазы использовалась упрощенная модель, описанная в работе [16]. Расчет интенсивности излучения проводился на границе небольшого отверстия с размером порядка 20 мкм, показанного на рис.4b – изображение получено при расстоянии $z_d = 8.5$ мм. На рисунке 4a показано также контактном изображении подобного отверстия ($z_d \approx 0$ мм). Рассматриваемый фильтр практически полностью прозрачен для излучения с энергией больше 100 эВ [17], поэтому участки, содержащие несколько слоев, и другие особенности поверхности практически неразличимы на контактном изображении, в то время как на изображениях, полученных при $z_d = 8.5$ мм, можно легко отличить перекрывание слоев фильтра и другие дефекты, благода-

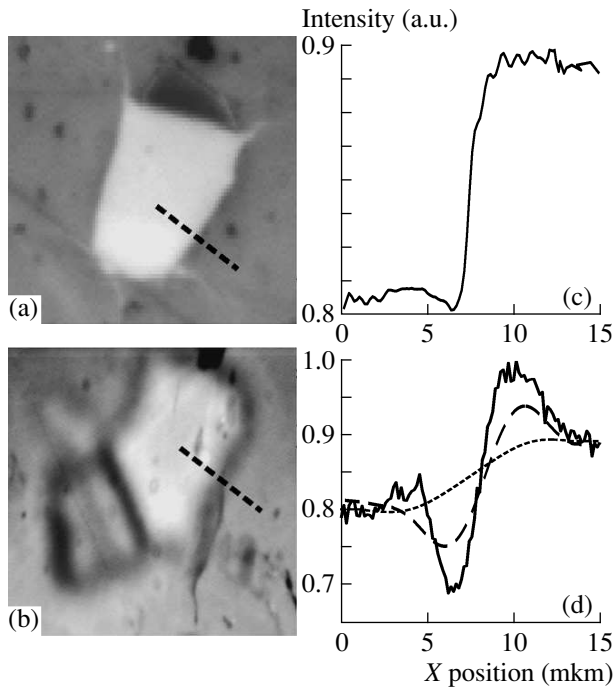


Рис.4. Фрагмент поврежденного парилового фильтра толщиной 100 нм при (a) $z_0 \approx 0$ мм и (b) $z_0 = 8.5$ мм. На (c) и (d) сплошными линиями показаны профили интенсивности рентгеновского излучения на границе раздела пленка – воздух (вдоль отрезков на рис.(a) и (b), соответственно). На рис.(d) также показаны расчетные кривые с учетом только поглощения (пунктир) и с учетом как поглощения, так и изменения фазы волны (штриховая линия)

ря появлению темной полосы на их границе. Справа на рис.4c,d сплошными линиями показаны профили интенсивности, измеренные вдоль отрезков, обозначенных соответственно на рис.4a,b сплошными линиями. Расчет кривой интенсивности с учетом только поглощения ($\delta = 0$, пунктирная кривая на рис.4c) не дает такой же профиль кривой – локальный максимум и минимум на профиле интенсивности, наблюдаемые экспериментально, полностью отсутствуют. Наилучшее совпадение между измеренным и рассчитанным профилями интенсивности получается при расчете с учетом как поглощения, так и изменения фазы волны (штриховая кривая рис.4d). Расчетная и наблюдаемая интенсивности различаются, поскольку в расчете для всех длин волн излучения использовалось одинаковое значение комплексного показателя преломления парилена (для наиболее интенсивной части спектра), в то время как в действительности он имеет достаточно сложную зависимость от длины волны [17].

Таким образом, в настоящей работе для получения изображений методом РФК использовано мягкое

рентгеновское излучение ($E < 1$ кэВ) фемтосекундной лазерной плазмы. С помощью такого источника получены четкие изображения нанопленок со сложной структурой и различным химическим составом. Показано, что формирование изображения происходит как за счет различного поглощения МРИ в исследуемом объекте, так и за счет РФК, значительно улучшающего контраст изображений и подчеркивающего различные особенности структуры нанобъекта. Применение кристаллов LiF в качестве детекторов МРИ позволило получить изображения предметов с субмикронным разрешением. Отметим, что дальнейшее улучшение качества получаемых изображений и уменьшение времени, необходимого для их записи, может быть получено за счет уменьшения размера фокального пятна лазерного излучения и увеличения рентгеновского потока.

1. B. Holtzmann-Kevles, *Naked to the Bone (Medical Imaging in the Twentieth Century)*, Camden, NJ: Rutgers University Press, 19–22, 1996.
2. D. M. Paganin, *Coherent X-ray optics*, Oxford University Press, 2006.
3. C. M. Laperle, Ph. Wintermeyer, J. R. Wands et al., *Appl. Phys. Lett.* **91**, 173901 (2007).
4. S. W. Wilkins, T. E. Gureyev, D. Gao et al., *Nature (London)* **384**, 335 (1996).
5. A. Snegirev, I. Snegireva, and V. Kohn, *Rev. Sci. Instrum.* **66**, 5486 (1995).
6. T. E. Gureyev, D. M. Paganin, G. R. Myers et al., *Appl. Phys. Lett.* **89**, 034102 (2006).
7. F. Calegari, S. Stagira, C. D' Andrea et al., *Appl. Phys. Lett.* **89**, 111122 (2006).
8. F. Calegari, G. Valentini, C. Vozzi et al., *Opt. Lett.* **32**, 2593 (2007).
9. A. Ya. Faenov, S. A. Pikuz, and A. I. Erko et al., *Physica Scripta* **50**, 333 (1994).
10. A. Ya. Faenov, T. A. Pikuz, I. Yu. Skobelev et al., *Laser and Particle Beams* **25**, 267 (2007).
11. H.-K. Chung, W. L. Morgan, and R. W. Lee, *JQSRT* **81**, 107 (2003), программа FLY.
12. G. Baldacchini, S. Bollanti, F. Bonfigli et al. *Rev. Sci. Instrum.* **76**, 113104 (2005).
13. A. Ustione, A. Cricenti, F. Bonfigli et al., *Appl. Phys. Lett.* **88**, 141107 (2006).
14. M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon, Oxford and New York, 1980.
15. D. Boschetto, G. Mourou, A. Rousse et al., *Appl. Phys. Lett.* **90**, 011106 (2007).
16. G. Margaritondo and G. Tromba, *J. Appl. Phys.* **85**, 3406 (1999).
17. Функции пропускания и показатели преломления материалов были посчитаны с помощью "CXRO-LBNL", <http://www-cxro.lbl.gov/>.