

硬 X 射线相位光栅的设计与研制*

刘 鑫 雷耀虎 赵志刚 郭金川 牛憨笨[†]

(深圳大学光电工程学院,光电子器件与系统教育部重点实验室,深圳 518060)

(2010 年 1 月 5 日收到;2010 年 5 月 10 日收到修改稿)

针对在普通实验室和医院实现 40—100 keV X 射线相衬成像的需求,考虑到成像系统参数、X 射线源空间相干特性及光栅衍射效率,设计出硅基相位光栅结构参数.利用我们已发展的光助电化学刻蚀技术研制出直径为 5 英寸的相位光栅,其空间周期为 5.6 μm ,线宽为 2.8 μm ,深度为 40—70 μm .在理论分析的基础上,通过提高硅片两端有效工作电压和修正 Lehmann 电流密度公式,解决了实际刻蚀过程中出现的钻蚀问题.由实验结果可知,本方案对制作大面积高精度相位光栅十分有效.

关键词: X 射线, 相衬成像, 相位光栅, 硅刻蚀, 光助电化学刻蚀

PACC: 0785, 4280F, 8280F

1. 引 言

X 射线相衬成像是 X 射线成像技术发展中的一个新的里程碑,该技术的实用化将为材料科学、生命科学、物理学和医学等领域提供强有力的无损检测手段^[1-5].自 1995 年 Snigirev 等^[6]提出基于传播同轴相衬成像技术以来,多种相衬成像技术相继问世^[7-10].基于光栅的微分干涉相衬成像技术是目前最有发展潜力的技术.因为该技术相对其他相衬成像技术而言,尽管需要发展相位光栅等 X 射线光学元件,但根据其一维空间相干性特点,有可能发展出普通实验室和医院可以应用的高空间相干性和高辐射通量的 X 射线源,从而使 X 射线相衬成像不再是科学家的一种演示技术,而有可能变成一种普通实验室和医院的实用技术.为发展该技术,相位光栅的设计和研制是其中的难题之一.

针对普通实验室和医院常用的 X 射线成像波段及我们发展的结构阳极 X 射线源^[11],本文讨论了相关的 X 射线相位光栅的设计和研制问题.依据光栅周期及厚度应满足的条件对所需的相位光栅进行了优化设计.根据 X 射线源阳极的结构周期、满

足空间相干性提出的要求、考虑 X 射线源辐射通量的充分利用以及相位光栅制作难度等问题设计了光栅的周期和线宽等参数.对于硅基 X 射线相位光栅,根据相位移动为 π 时具有最大衍射效率的原理,计算出对应不同 X 射线光子能量的光栅厚度.为研制所设计出的 X 射线相位光栅,我们发展了光助电化学刻蚀技术及装置^[12,13].依据 Lehmann 电流密度计算公式,刻蚀电流密度只与温度、溶液浓度有关,这两者不变的理想情况下,电流密度保持不变且全部贡献在尖端处的刻蚀上,据此可以刻蚀出二维甚至三维结构图形.但实验上并没有呈现出理想的刻蚀图形.依据 Lehmann 模型,在刻蚀过程中,硅片分为空间电荷区、有场区及无场区.理论上讲,由于光照产生的空穴经无场区后在局域电场的作用下聚集到刻蚀尖端处,而不会进入到带正电的空间电荷区内,因此,空间电荷区并不会被腐蚀.事实上,实验结果与理论模型有一定差距,实验证明刻蚀中存在相对来说较为严重的侧向腐蚀现象,这不利于高深宽比相位光栅的刻蚀.为获得合格的硬 X 射线相位光栅,需采取有效措施抑制侧向腐蚀,保证刻蚀图形的理想结果.

* 国家自然科学基金重点项目(批准号:60232090)、广东省高等学校创新团队项目(批准号:06CXTD009)和深圳市科技局(批准号:2008340,JC200903130326A)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: hbniu@szu.edu.cn

2. 相位光栅参数设计

2.1. 光栅周期

X 射线光栅的衍射效率直接影响到 X 射线的利用率问题,是设计相位光栅首先要考虑的问题.根据衍射效率分析^[14],当 X 射线通过相位光栅后要求 ± 1 级衍射效率最高.为此,则要求入射到相位光栅的 X 射线在其一个空间周期内通过两种不同介质的 X 射线产生的相位差为 π ,此时衍射能量的 80% 以上集中在 ± 1 级.根据周期性物体的 Talbot 效应,在 Talbot 距离处,干涉条纹强度分布取 0, ± 1 级近似为

$$I_c(x) = \frac{8}{\pi^2} \left[1 + \cos\left(\frac{2\pi x}{p_2}\right) \right], \quad (1)$$

p_2 为干涉条纹周期.对点源,干涉条纹周期 p_2 与相位光栅周期 p_1 关系为^[14]

$$p_2 = \frac{R + L}{R} \frac{p_1}{2}, \quad (2)$$

其中 R 为 X 射线源到相位光栅的距离, L 为 Talbot 距离.

实际使用的 X 射线源其焦斑为有限大小的一维空间相干源.为解决 X 射线源的空间相干性问题, Pfeiffer 等提出利用吸收光栅构造结构光源的方案.这种方案最主要的问题是存在视场和对比度的矛盾.为此,我们提出并研制成功一种特殊设计的 X 射线管,它利用结构阳极和平面聚焦系统形成 X 射线一维空间相干的线列阵源^[11].采用此种 X 射线源时,干涉条纹强度分布(1)式可写为

$$I(x) = (2N + 1) \gamma \frac{8Lp_2}{\pi^2 R} \left[1 + \frac{\sin(\gamma\pi)}{\gamma\pi} \cos\frac{2\pi x}{p_2} \right], \quad (3)$$

其中 N 为线列阵源的条纹个数, $\gamma = a/p_0$ 为列阵源的占比, p_0 为线列阵源的空间周期, a 为列阵源一个空间周期内发射 X 射线部分的线宽, R, L 应满足 $\frac{p_0}{R} = \frac{p_2}{L}$ 的关系式^[1].从干涉条纹强度分布中得到其条纹对比度为 $\sin(\gamma\pi)/(\gamma\pi)$, 图 1 给出对比度随光源占比的变化曲线.

若要求条纹对比度大于 0.5, 由图 1 可知,

$$\gamma = \frac{a}{p_0} \leq 0.6. \quad (4)$$

同时,相位光栅自成像对成像距离 L 有一定

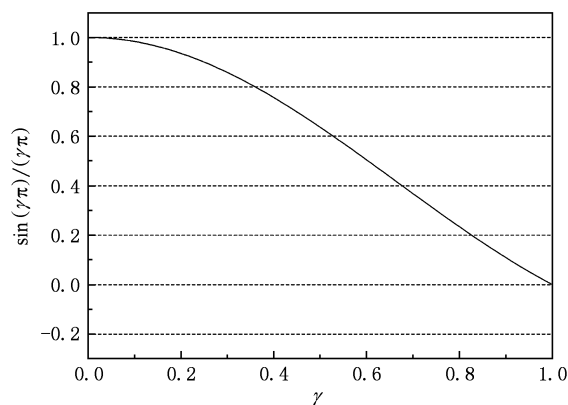


图 1 干涉条纹对比度随光源占比变化

要求^[14],

$$\frac{LR}{R + L} = \frac{p_1^2}{8\lambda}. \quad (5)$$

其中, λ 为 X 射线波长.由以上关系式可得到

$$p_1 \leq \frac{2.4\lambda R}{a}. \quad (6)$$

考虑光源足够的亮度和现有制作工艺水平, a 取值范围为 10—50 μm , X 射线源到相位光栅的距离 R 取值范围为 1.5—2.5 m.一般 X 射线源光子能量范围在 20—100 KeV, 则光栅最大周期 P_{\max} 范围与光子能量的关系如图 2 所示.

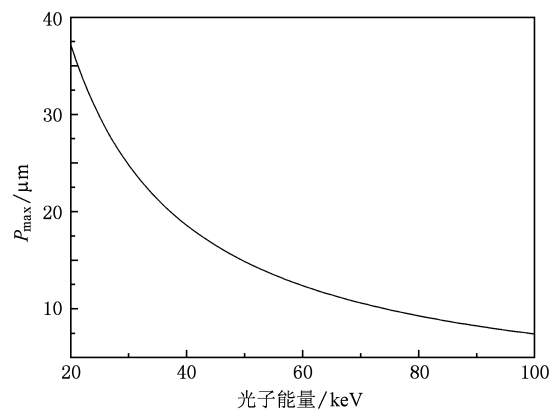


图 2 最大相位光栅周期随 X 射线光子能量的变化范围

2.2. 光栅厚度

微分干涉相衬成像利用光栅各级衍射相互干涉形成干涉条纹,各级衍射中,0 级衍射形成干涉图样本底,对干涉成像没有贡献,应尽量消除 0 级衍射.各级衍射能量与光栅对入射 X 射线相位移动有关,正如上述,当相位移动为 π 时,光栅可消除 0 级

衍射而有最大 ± 1 级衍射能量,即最大衍射效率. 物质复合折射率可写为 $n = 1 - \delta + i\beta$, δ, β 分别表征物质对 X 射线的相移和吸收. 对于厚度为 T 的光栅,其相位移动 $\Delta\varphi$ 为

$$\Delta\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} T\delta, \quad (7)$$

不同光子能量成像时,相位移动仍然为 π ,则光栅厚度也要随之变化. 如图 3 所示,硅材料光栅厚度随光子能量的变化而变化,如当 X 射线光子能量选择 40 KeV 时,其厚度应该为 50 μm .

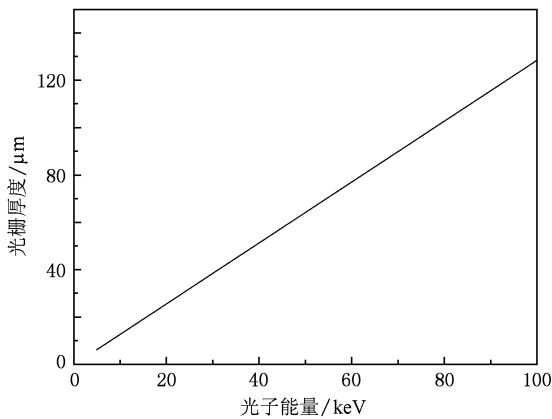


图 3 相位光栅对入射光子能量相位移动为 π 时,光栅厚度随光子能量变化图

事实上,在进行 X 射线相衬成像时,我们希望使用时间非相干源,即成像时所用的 X 射线存在一定的带宽,这样才有可能利用韧致辐射实现 X 射线相衬成像. 为此,我们计算了同一硅基相位光栅在不同能量下所获得的条纹,如图 4 所示. 当设计中心能量在 33 keV 时,在 28—38 keV 范围内,干涉条纹都有很好的对比度,即在近 30% 谱宽下,光栅能较好成像.

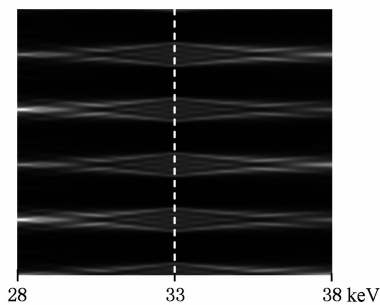


图 4 同一厚度光栅在不同 X 射线能量下,在同一距离的干涉图像 (光栅厚度为 42.4 μm ,成像距离为 55.2 mm)

3. 相位光栅制作

利用光助电化学刻蚀技术制作硅基硬 X 射线相位光栅,其基本原理是利用光波在硅中激发出电子-空穴对,在外加电场的作用下,硅片的背光面形成空间电荷区,受光面形成无场区. 空穴从无场区扩散到硅基预置图形的尖端,在此处参与硅和刻蚀溶液的化学反应,并完成质量和电荷的传输,从而使刻蚀能够持续进行,控制刻蚀电流及时间,最终形成所要求的图形. 刻蚀之前,需在硅基上预置刻蚀图形,具体步骤^[15]如图 5 所示.

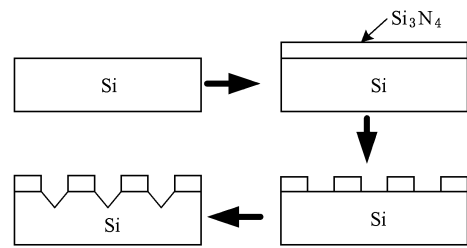


图 5 硅基预置图形的流程

图 6 为光助电化学刻蚀实验装置示意图,反应室用聚四氟乙烯材料制成. 刻蚀溶液由腐蚀性氢氟酸和表面活性剂酒精的水溶液组成,使用小泵搅动,保证溶液的均匀性. 硅片受光面制作有透明导电电极,用于做阳极,并通过铝环固定在反应室的底部. 在靠近硅的背光面放置铂金属网,用于做阴极. 光照由卤钨灯提供,并使用可控硅控制加在卤钨灯上的电压以调节光强. 实验过程中使用循环水冷系统,一方面确保刻蚀系统的温度恒定,另一方面用于滤除 1100 nm 以上的红外光.

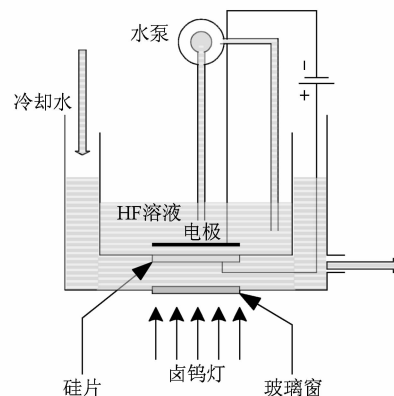


图 6 光助电化学刻蚀实验装置

3.1. 原始刻蚀方法

依照 Lehmann 电流密度计算式 $J_{ps} = Cc^{1.5} \exp(-E_a/K_B T)$, 其中 J_{ps} 下标 ps 表示多孔硅, 刻蚀常数 $C = 3300 \text{ A/cm}^2$, c 表示 HF 重量比浓度, 激活能 $E_a = 0.345 \text{ eV}$ [16], k_B 为 Boltzmann 常数, T 为刻蚀处的绝对温度. 常温下刻蚀溶液浓度为 5% 时的 Lehmann 电流密度为 43.76 mA/cm^2 . 在此前提下利用上述实验装置制作的 5 英寸相位光栅侧壁的电镜照片如图 7 所示.

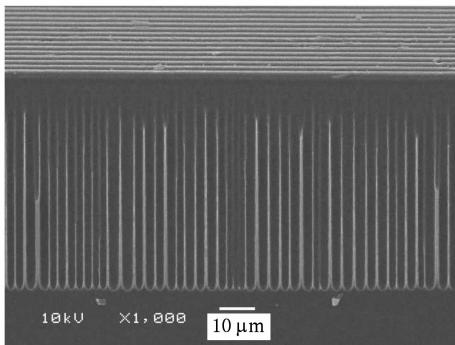


图 7 扫描电镜下的相位光栅侧壁照片

显然, 相位光栅的侧壁槽内仍存在一些没有完全刻蚀的孔壁, 但在顶部十几微米的范围内并不存在. 随着刻蚀深度的增加, 孔壁越来越明显. 可以推断出, 刻蚀初期实际刻蚀电流密度保持为 43.76 mA/cm^2 , 孔壁被完全刻蚀, 说明此电流密度值满足刻蚀要求. 但在随后几十微米的范围内对于相同的槽内尖端刻蚀面积, 刻蚀电流密度值不能满足要求, 即在刻蚀尖端处电流密度不足 43.76 mA/cm^2 .

3.2. 改进刻蚀方法

实验使用波长范围从紫外延伸至近红外光的卤钨灯作刻蚀光源. 实验所用 n 型硅的非平衡少数载流子寿命 τ_p 为 10 μs , 空穴的扩散系数为 $D_p = 11.7 \text{ cm}^2/\text{s}$, 根据扩散长度 $L = \sqrt{D_p \tau_p}$ 可得空穴在硅中 L 约为 108 μm . 以厚度为 400 μm 的硅片为例, 光在硅中的穿透深度需达到 292 μm 才能保证初始时硅背表面被刻蚀, 此穿透深度值对应于 900 nm 的光波 [17]. 也就是说, 在刻蚀初期只有 $900 \text{ nm} \leq \lambda \leq 1100 \text{ nm}$ 范围内的光对硅基刻蚀尖端处的电流贡献最大. 与此同时, 该波段范围内的光也会照射到空间电荷区, 在这里产生电子-空穴对. 在刻蚀初期, 这里产生的空穴由于靠近刻蚀尖端, 在刻蚀尖端强场

作用下, 绝大多数空穴被集中到尖端处, 实现有效刻蚀, 而侧向腐蚀忽略不计. 随着刻蚀深度的增加, 空间电荷区由于光照产生的空穴离刻蚀尖端越来越远, 刻蚀尖端处的场对其作用越来越弱, 其中的部分空穴就会在侧壁参与化学反应, 使侧壁被腐蚀. 相反, 由于总刻蚀电流不变, 随着侧壁电流的加大, 在刻蚀尖端处的电流就会减小, 从而导致钻蚀现象, 呈现出不能被完全刻蚀的孔壁. 鉴于此, 一方面, 采取提高硅片两端电压的方法. 根据

$$w = \frac{\sqrt{2\epsilon_0\epsilon_{Si}V_{\text{eff}}}}{qN_D}, \quad (8)$$

w 表示空间电荷区宽度, ϵ_0 和 ϵ_{Si} 分别表示真空介电常数和硅片的相对介电常数, V_{eff} 为硅片两端的有效电压, q 为单位电荷电量, N_D 为硅片的掺杂浓度 [18]. 推得 $V_{\text{eff}} = \frac{w^2 q N_D}{2\epsilon_0\epsilon_{Si}}$, 可知提高电压有助于减缓侧向腐蚀, 有利于空穴向刻蚀尖端移动, 所加电压在不至于引起负面作用的前提下可大于此计算值. 另一方面, 采用修正的 Lehmann 电流密度经验公式

$$J_{ps} = Cc^{1.5} \exp(-E_a/K_B T) (1 + \alpha t + \beta t^2), \quad (9)$$

式中 t 代表时间, 以分钟计, α, β 是修正刻蚀电流密度的两个参数. 以随时间变化的电流密度计算式取代与时间无关的 Lehmann 电流密度计算式, 显然, 刻蚀电流密度与反应温度的倒数成负指数关系. 在腐蚀液浓度相同的情况下, 温度越高, 刻蚀时间越长, 所需电流密度越大, 这就要求光源提供更高的光强. 因此, 在实验中, 一方面要使反应温度恒定, 另一方面应使反应温度相对低一些, 避免在刻蚀的过程中因光照不足影响电流密度的正常调节.

依照上述两种途径, 我们得到了满足设计要求的相位光栅刻蚀结果, 即周期为 5.6 μm , 厚度 $40\text{—}70 \text{ μm}$, 上述刻蚀不尽的现象不复存在, 且整个 5 英寸的硅片上的深度均匀性能够控制在 6% 左右. 如图 8 所示, 图 (a) 给出固定在支撑环上的 5 英寸相位光栅全貌, 图 (b) 和 (c) 是相位光栅一部分的扫描电镜照片, 分别给出侧壁和光栅条纹的刻蚀情况. 光栅刻蚀深度在溶液浓度和溶液温度一定的条件下可由刻蚀时间精确控制.

4. 讨论与结论

为将 X 射线相衬成像技术应用于普通实验室或医院, 须解决以下几个难点: (1) X 射线源在满足

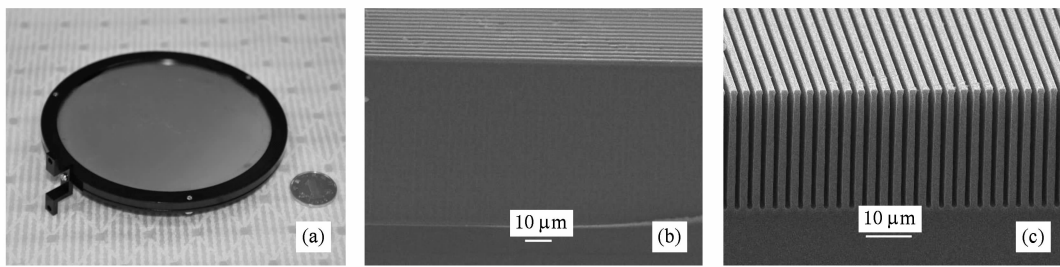


图 8 (a) 相位光栅面积与 1 角硬币, (b) 利用改进后的刻蚀工艺制作的相位光栅侧壁图, (c) 相位光栅截面图

相干性条件下要有足够的辐射通量, 保证成像时间短到可以被接受的程度; 2) 成像 X 射线光子要具有足够高的能量, 以减小 X 射线对样品的吸收损伤; 3) X 射线相位光栅和探测器面积必须足够大, 以获得像人体这样大样品的图像. 我们正是为了满足这些要求提出和研制了基于结构阳极的线列阵 X 射线源、大面积高分辨数字 X 射线固体探测器和本文所述的大面积高精度 X 射线相位光栅.

基于光栅衍射成像, 由成像光子能量及光栅衍射

效率确定出硅基光栅厚度参数, 由成像光源空间相干性及各种距离条件确定出光栅周期参数. 现有光助电化学刻蚀技术制作硅基相位光栅存在钻蚀问题, 理论分析认为刻蚀电压和电流需修正. 改进的光助电化学刻蚀技术具体措施为, 提高硅片两端有效工作电压和修正 Lehmann 电流密度计算公式. 利用改进技术研制出直径为 5 英寸的相位光栅, 其空间周期为 $5.6 \mu\text{m}$, 线宽为 $2.8 \mu\text{m}$, 深度为 $40\text{--}70 \mu\text{m}$. 改进的刻蚀技术对其他硅基微制作工艺有参考意义.

- [1] Pfeiffer F, Weitkamp T, Bunk O, David C 2006 *Nat. Phys.* **2** 258
- [2] Pfeiffer F, Bech M, Bunk O, Kraft P, Eikenberry E F, Bronnimann C H, Grünzweig C, David C 2008 *Nat. Mater.* **7** 134
- [3] Zhu H F, Xie H L, Gao H Y, Chen J W, Li R X, Xu Z Z 2005 *Chin. Phys.* **14** 796
- [4] Zhang D, Li Z, Huang Z F, Yu A M, Sha W 2006 *Chin. Phys.* **15** 1731
- [5] Gao D C, Pogany A, Stevenson A W, Gureyev T, Wilkins S W 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2357 (in Chinese) [高大超, Pogany A, Stevenson A W, Gureyev T, Wilkins S W 2000 *物理学报* **49** 2357]
- [6] Snigirev A, Snigireva I, Kohn V, Kuznetsov S, Schelokov I 1995 *Rev. Sci. Instrum.* **66** 5486
- [7] Cloetens P, Barrett R, Baruchel J, Guigay J P, Schlenker M 1996 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **29** 133
- [8] Momose A, Takeda T, Itai Y, Hirano K 1996 *Nat. Med.* **2** 473
- [9] Chapman D, Thomlinson W, Johnston R E 1997 *Phys. Med. Biol.* **42** 2015
- [10] David C, Nohammer B, Solak H H, Ziegler E 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 3287
- [11] Niu H B, Guo J C, Wang K G, Yang Q L 2006 *China Patent* 200610062487.1
- [12] Zhao Z G, Bai C L, Guo J C, Niu H B 2007 *Proc. SPIE* **6836** 68360W
- [13] Zhao Z G, Niu H B, Guo J C 2009 *China Patent* 200910105069.X
- [14] Liu X, Guo J C, Peng X, Niu H B 2006 *Chin. Phys.* **16** 1632
- [15] Lehmann V 1993 *J. Electrochem. Soc.* **140** 2836
- [16] Lehmann V 2002 *Electrochemistry of Silicon* (Weinheim: Wiley-VCH) p133
- [17] Geppert T, Schweizer S L, Gösele U, Wehrspohn R B 2006 *Appl. Phys. A* **84** 237

Design and fabrication of hard x-ray phase grating^{*}

Liu Xin Lei Yao-Hu Zhao Zhi-Gang Guo Jin-Chuan Niu Han-Ben[†]

(*College of Optoelectronic Engineering, Shenzhen University, Key Laboratory of Optoelectronic Devices
and Systems of Ministry of Education, Shenzhen 518060, China*)

(Received 5 January 2010; revised manuscript received 10 May 2010)

Abstract

The x-ray phase grating made on silicon wafer was designed under considerations of the parameters of the phase contrast imaging system, the spatial coherence characteristics of x-ray source and its diffraction efficiency for x-ray of 40—100 keV, which is usually used for phase contrast imaging in laboratories and hospitals. The phase grating with diameter of 5 inch, pitch of 5.6 μm , wall width of 2.8 μm and depth of 40—70 μm depending on the energy of x-ray photon, was fabricated using the technique of photo-assisted electrochemical etching developed in our lab. Two special methods, namely, the enhancement of the voltage applied to the silicon wafer and modification of the current density defined by Lehmann formula, have been used to reduce the lateral etching. A reproducible technique has been developed for fabrication of precise and large x-ray phase grating on silicon wafer.

Keywords: x-ray, phase contrast imaging, phase grating, silicon etching, photon-aided electrochemical etching

PACC: 0785, 4280F, 8280F

^{*} Project support by the Key Program of the National Natural Science Foundations, China (Grant No. 60232090), the Natural Science Foundation of Guangdong Province (Grant No. 06CXTD009) and the Science and Technology Project from Shenzhen Government, China (Grant Nos. 2008340, JC200903130326A).

[†] Corresponding author. E-mail: hbniu@szu.edu.cn