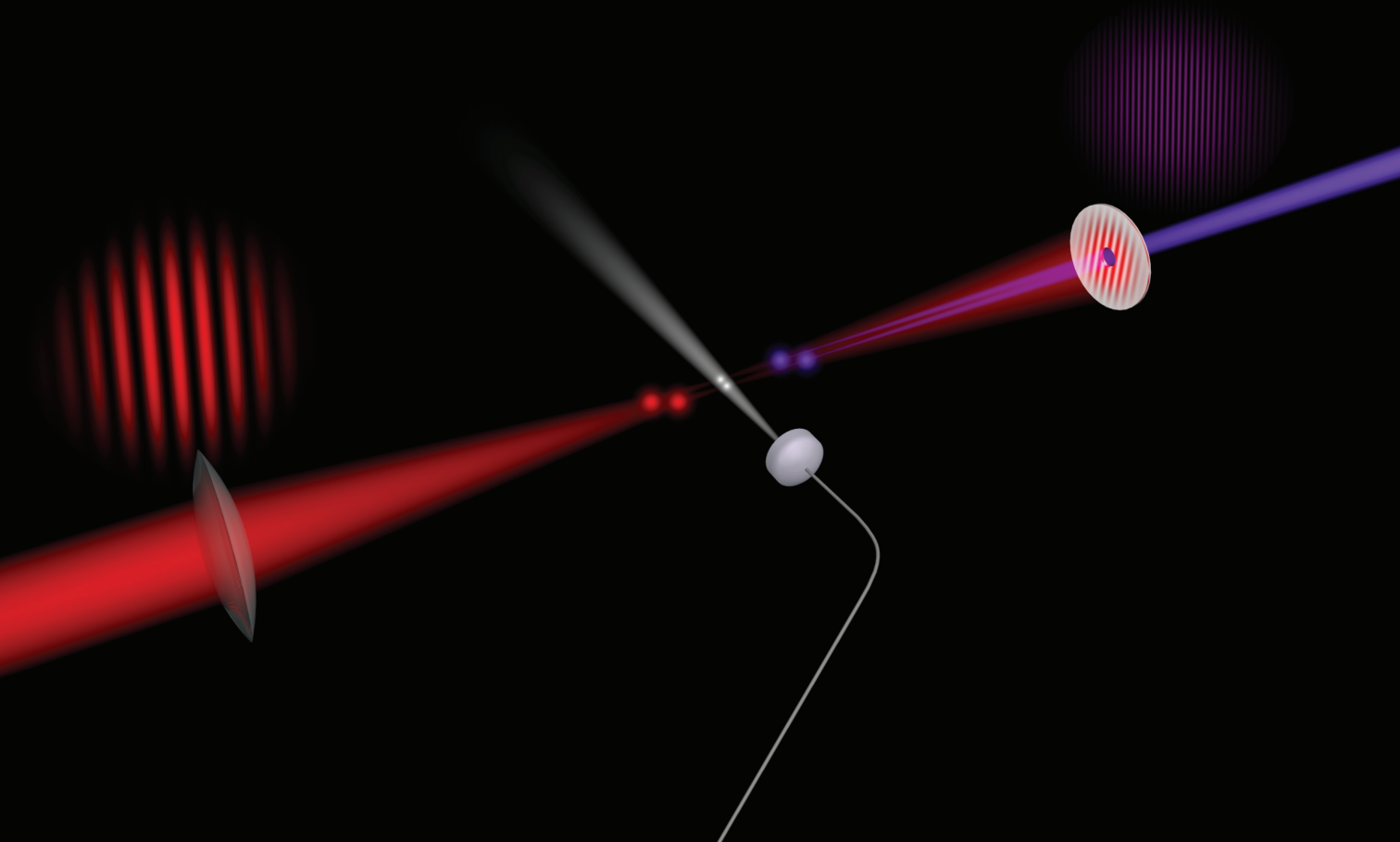


De kleur van röntgenstraling

Fouriertransformatiespectroscopie bij korte golflengtes

Zoals kleurenfotografie veel meer informatie overbrengt dan zwart-witfotografie, zo kan spectroscopie ook veel bijdragen aan microscopie en metrologie bij andere, voor het oog onzichtbare golflengtes. In het bijzonder is dit interessant in het extreem ultraviolette domein (EUV), waar de korte golflengte uitzonderlijk hoge resolutie mogelijk maakt. Vanwege de hoge fotonenergie is EUV daarnaast bijzonder gevoelig voor de elementaire samenstelling van het te onderzoeken object. Zo belooft spectroscopische EUV-microscopie exacte kwaliteitscontrole van de nieuwste generaties transistoren in moderne elektronica mogelijk te maken. Bestaande EUV-meettechnieken zijn echter afhankelijk van monochromatische belichting, wat een combinatie met spectroscopie bemoeilijkt.



Hogere harmonische generatie

Een veelbelovende lichtbron voor spectroscopische extreem-ultravioletmetingen (EUV: 10 tot 100 nanometer, ook wel zachte röntgenstraling genoemd) is hogere harmonische generatie (HHG). Hiervoor wordt een korte infrarode laserpuls gefocuseerd in een gaswolk. Het elektrisch veld van deze lichtpuls wordt daarbij zo sterk dat een elektron uit het atoom kan tunnelen. In een proces waarbij het elektron versneld en weer geabsorbeerd wordt (figuur 1a), worden hoogenergetische fotonen geproduceerd. Aangezien dit proces door een coherente lichtpuls gestuurd wordt en bij vele atomen tegelijk gebeurt, ontstaat zo een coherente, laserachtige EUV-bundel. Een karakteristiek HHG-spectrum is weergegeven in figuur 1b en bestaat uit een serie pieken die overeenkomen met boventonen (harmonischen) van de oorspronkelijke laser.

Individuele harmonischen worden al veel gebruikt voor microscopie in het EUV-spectrale gebied. Door de korte golflengte en hoge coherentie zijn hogere harmonischen uitermate geschikt voor coherente diffractiemicroscopie (*coherent diffractive imaging*, CDI). In deze variant van lensloze microscopie [1] wordt de hogere harmonische gebruikt om een object te belichten. Daar verstrooit de lichtbundel, resulterend in een diffractiepatroon dat met een camera wordt waargenomen. Vervolgens wordt een iteratief algoritme gebruikt om aan de hand van het diffractiepatroon een beeld van het object te reconstrueren.

Fouriertransformatie-spectroscopie

Om alle golflengtes die geproduceerd worden door HHG te gebruiken voor spectroscopische metingen, is het noodzakelijk om deze onafhankelijk van elkaar te kunnen detecteren. Dit kan gedaan worden door middel van Fouriertransformatiespectroscopie (FTS). Zoals uitgelegd in figuur 2, wordt in FTS het volledige spectrum bepaald aan de hand van de interferentie van twee identieke pulsen. Omdat een meting op basis van dit principe slechts een enkele intensiteitsdetector nodig heeft, is het mogelijk om met een camera de ruimtelijke variatie van het spectrum op verschillende pixels te meten. Dit kan gebruikt worden om beelden met een complex ruimtelijk en

spectraal profiel, zoals een meerkleurig diffractiepatroon, vast te leggen. Dit is een opvallend verschil met andere methodes om het spectrum te meten, waarbij de verschillende golflengtes bijvoorbeeld door een tralie ruimtelijk gescheiden worden. FTS wordt al veel gebruikt voor spectroscopie van infrarood en zichtbaar licht. Voor EUV wordt FTS echter bemoeilijkt door de korte golflengte en de beperkingen van optische elementen voor EUV. Anders dan voor langere golflengtes is het niet mogelijk om met een bundelsplitser van één lichtbundel twee identieke bundels te maken. Een mogelijke oplossing is om de bundel ruimtelijk te splitsen met behulp van een gespleten spiegel. Hier leidt diffractie aan de rand van de spiegels tot bundels met een sterk gestructureerd en verschillend intensiteitsprofiel. Aangezien een complex bundelprofiel het beeld vervormt, zijn dergelijke *split mirror*-technieken niet goed geschikt voor microscopie.

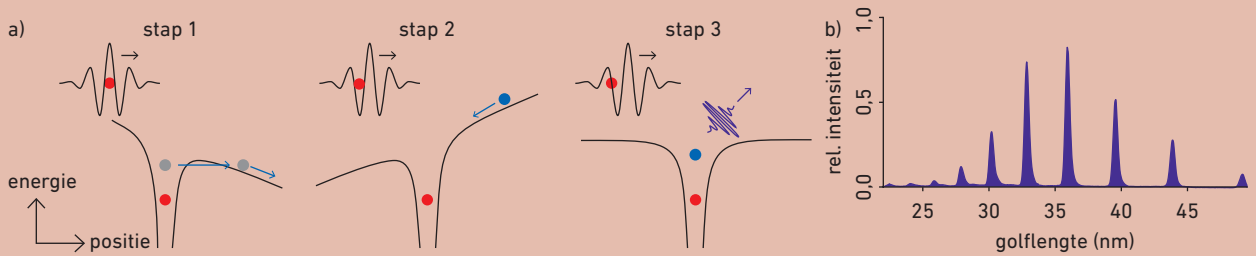
Ultrastabiele interferometer

Om toch een glad EUV-bundelprofiel te houden, maken wij gebruik van de coherentie van hogere harmonische generatie. Twee identieke laserpulsen in identieke gaswolken genereren precies dezelfde EUV-lichtpuls. Door de EUV-pulsen te overlappen en in de tijd te verschuiven is het dan mogelijk om EUV-FTS te doen zonder speciale optische elementen voor extreem ultraviolet licht. Hoe maken we dan twee identieke laserpulsen om HHG mee te doen? Daarbij is de stabiliteit van het tijdsverschil tussen de pulsen erg belangrijk, aangezien dit voor FTS beter dan een fractie van de oscillatieperiode van het licht moet zijn. De meeste interferometers voor zichtbaar licht zijn niet stabiel genoeg voor EUV, waarvan de oscillatieperiode slechts een fractie van een femtoseconde (fs, 10^{-15} s) is. Daarom maken wij gebruik van een interferometer gebaseerd op dubbelbrekende wiggen (zie figuur 4 en kader *Interferometrie door dubbelbreking*). Een enkele laserpuls wordt hierin opgesplitst in twee pulsen waarvan het tijdsverschil op attosecondes nauwkeurig gecontroleerd kan worden. Aangezien de laserpulsen hetzelfde pad volgen kunnen vibraties van spiegels het tijdsverschil tussen de pulsen niet beïnvloeden, waardoor de interferometer extreem stabiel is. De interferometer wordt als een module

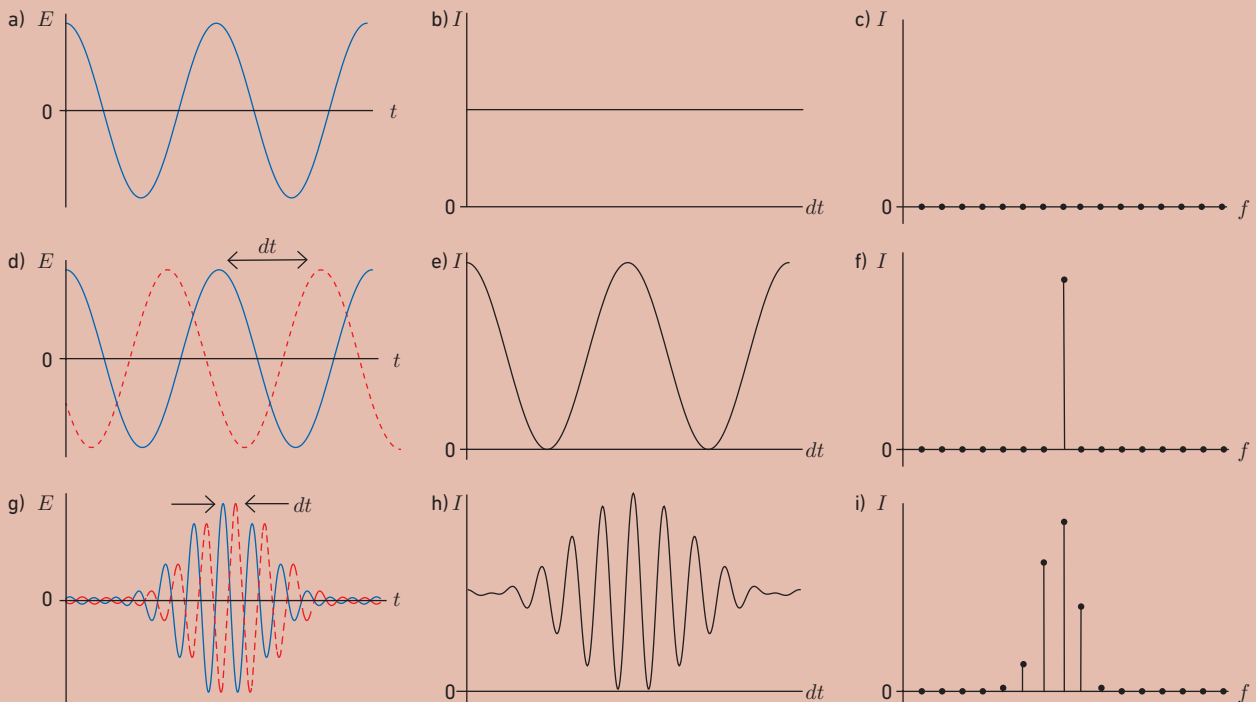
Figuur linkerpagina. Twee laserpulsen worden gefocuseerd in een gaswolk om coherent extreem ultraviolet licht te genereren door middel van hogere harmonische generatie. De interferentie tussen de twee laserpulsen wordt daarbij doorgegeven aan het extreem ultraviolette licht, waarbij de periodiciteit korter wordt vanwege de kortere golflengte.



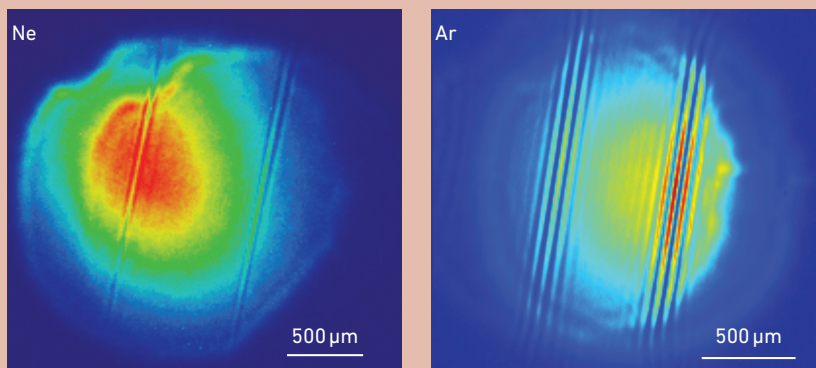
Matthijs Jansen studeerde natuurkunde aan de VU en deed zijn promotieonderzoek *Wavelength resolved Extreme Ultraviolet Lensless Imaging and Metrology* aan het Advanced Research Center for Nanolithography (ARCNL). Tegenwoordig werkt hij als postdoc aan de universiteit van Göttingen, waar hij onderzoek doet naar het visualiseren van moleculaire elektronodynamica op basis van foto-elektronenspectroscopie.
gsmjansen@uni-goettingen.de



Figuur 1. a) Schematische weergave van hogere harmonische generatie. In stap 1 verstoort een intense laserpuls de Coulomb-potentiaal van een atoom. Een elektron tunnelt daarbij het atoom uit, waarna het versneld wordt door het elektrisch veld van de lichtpuls. In stap 2 is het elektrisch veld van richting veranderd, waardoor het elektron weer bij het oorspronkelijke atoom komt. In stap 3 wordt het elektron weer geabsorbeerd door het atoom. De kinetische energie van het elektron komt daarbij vrij in de vorm van een EUV-foton. b) Een typisch HHG-spectrum bestaat uit een reeks boventonen van de laser met golflengtes in het EUV-regime. Afbeelding a is aangepast overgenomen van S. Witte, *NTvN* 74-3, 2008.



Figuur 2. Het werkingsprincipe van Fouriertransformatiespectroscopie. Als een enkele monochromatische lichtgolf (a) op een licht-sensor zoals een camera valt, dan detecteert die een constante intensiteit (b). Hier is geen nuttige spectrale informatie uit te winnen (c). Wanneer de som van twee identieke lichtgolven met een controleerbaar tijdsverschil dt wordt gemeten (d), hangt de waargenomen intensiteit van het tijdsverschil af (e). Met behulp van een Fouriertransformatie wordt de golffrequentie bepaald (f). Dit werkt ook bij twee identieke complexere golven (g). Uit het resulterende interferentiepatroon (h) kan het volledige spectrum herleid worden (i).



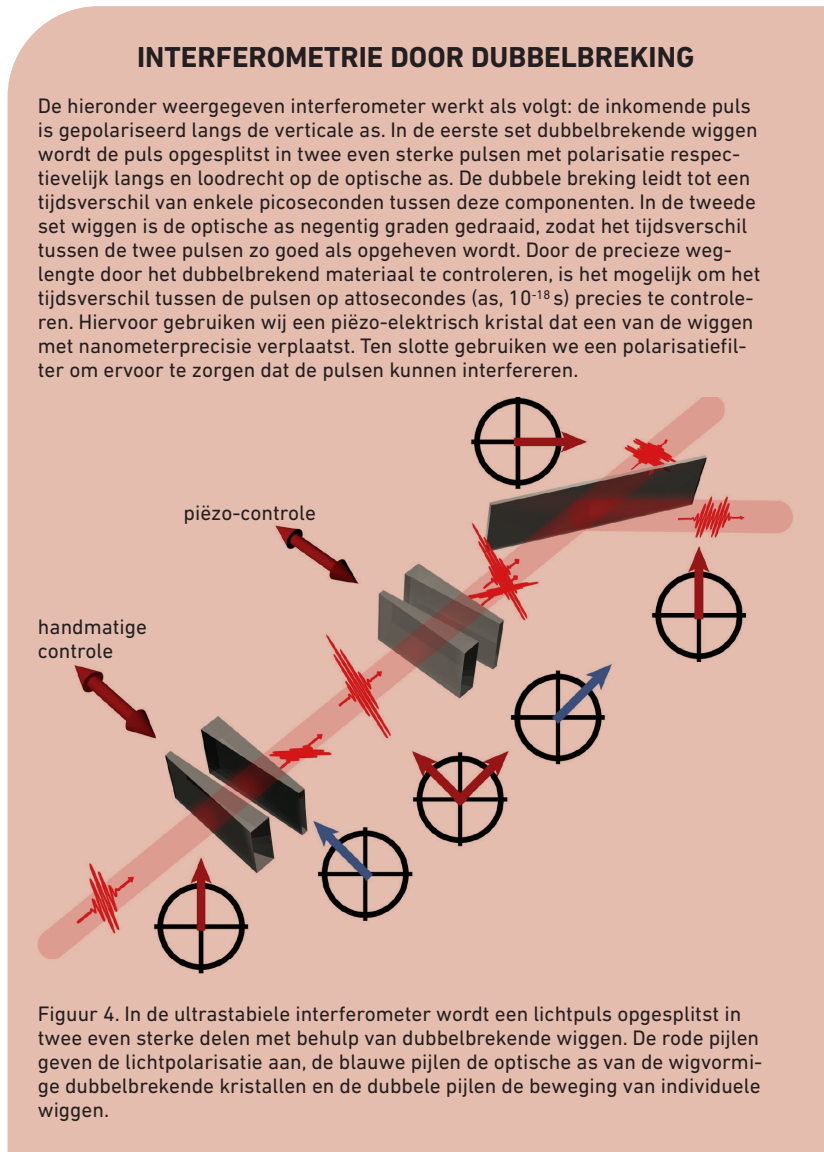
Figuur 3. Interferentie tussen twee EUV-bundels, zoals gemeten op de camera.

tussen de laser en de HHG-bron geplaatst. De oorspronkelijke laserpulsen worden opgesplitst in pulsparen met een tijdsverschil van maximaal 25 fs en vervolgens in een gaswolk gefocusseerd voor HHG (weergegeven op de openingsfoto). Belangrijk is dat de laatste wig van de interferometer zo gedraaid is dat de twee pulsen van elk paar fysiek gescheiden gefocusseerd worden. Dit zorgt ervoor dat het sterke elektrische veld van de ene puls het HHG-proces van de andere niet beïnvloedt en dat onafhankelijk van het tijdsverschil identieke EUV-pulsen worden gegenereerd.

Interferentie van hogere harmonischen

Na de HHG is het nodig om het infrarode van het EUV-laserlicht weg te filteren. Hiervoor gebruiken wij een kleine opening, die het grootste deel van de infrarode laser blokkeert maar de hogere harmonischen doorlaat, gecombineerd met een 200 nm dun aluminiumfolie. Dit folie heeft als eigenschap dat het EUV goed doorlaat en infrarood goed reflecteert. Het is dan mogelijk om met een camera het EUV-bundelprofiel waar te nemen. Zoals in figuur 3 te zien is, bevat dit profiel strepen als gevolg van interferentie tussen de twee HHG-pulsen.

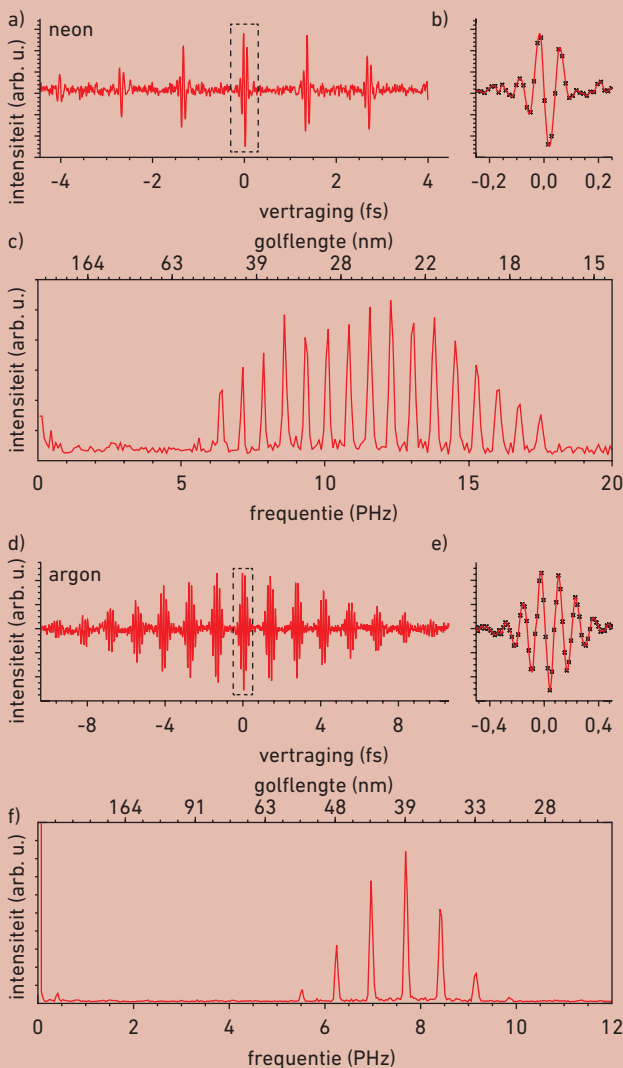
Het waargenomen interferentiepatroon hangt sterk van het tijdsverschil tussen de twee bundels af. In een typische meting variëren wij dit tijdsverschil tussen -10 en +10 fs in stapjes van 15 as. Op de camera verschuift het diffractiepatroon ieder tijdstapje een beetje naar rechts. Er verschijnen aan de linkerkant van de bundel dan steeds nieuwe interferentielijnen, terwijl de lijnen aan de rechterkant wegllopen. In figuur 5a en d zijn typische interferentiepatronen als functie van de tijd te zien zoals die op een enkele pixel gemeten worden. Het interferentiepatroon is karakteristiek voor het EUV-spectrum, wat direct berekend kan worden met een enkele Foeriertransformatie. De uiteindelijke spectra voor de EUV-pulsen gegenereerd in neon en argon zijn te zien in respectievelijk figuur 5c en 5f. Deze analyse kan voor elke pixel op de detector uitgevoerd worden, waardoor het mogelijk is een ruimtelijk varië-



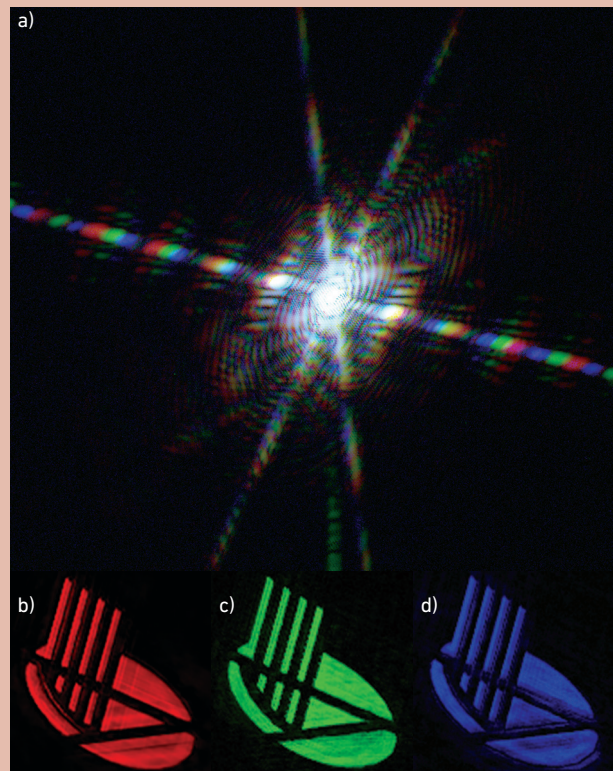
rend spectrum te meten. Daarnaast is FTS een flexibele techniek die makkelijk aan de eisen van het experiment aangepast kan worden. Zo is het mogelijk om de spectrale resolutie te verbeteren door eenvoudig over een langere tijdspanne te meten. In dit experiment hebben wij spectra met golflengtes tussen de 17 en 55 nm gemeten, maar het experiment kan goed aangepast worden op andere golflengtes. Uit stabiliteitsmetingen blijkt dat onze interferometer een stabiliteit heeft van 0,25 nm. Dit maakt FTS met hogere harmonischen mogelijk voor alle golflengtes langer dan een enkele nanometer.

Spectroscopische diffractiemicroscopie

Om de metingen voor spectroscopische microscopie te doen met onze opstelling volstaat het om een object tussen de HHG en de camera te plaatsen. Ter demonstratie hiervan hebben we een membraan met daarin een gat in de vorm van het ARCNL-logo in de bundel geplaatst. Zonder FTS detecteert de camera de som van de diffractiepatronen voor de verschillende golflengtes. Dit heeft tot gevolg dat de fijne structuur van het diffractiepatroon niet meer zichtbaar is, waardoor het niet mogelijk is om een beeld te berekenen uit het diffractie-



Figuur 5. Gemeten interferentiepatronen (a, d) van hogere harmonischen gegenereerd in neon en argon, uitvergroting van de interferentie bij nul tijdsverschil (b, e) en spectra, verkregen met behulp van een Foeriertransformatie van het interferentiepatroon (c, f).



Figuur 6. a) RGB-weergave van drie diffractiepatronen gemeten uit één FTS-meting, met de gereconstrueerde objecten in b, c en d. Rood komt hier overeen met een golflengte van 32,5 nm, groen met 30 nm en blauw met 28 nm. Het gemeten object is het ARCNL-logo, dat ongeveer 40 mm breed is.

patroon. Met behulp van FTS kunnen wij de individuele diffractiepatronen meten en een beeld reconstrueren voor elke golflengte. Uit de volledige dataset was het mogelijk om voor vier golflengten een diffractiepatroon met goede signaalsterkte te selecteren en voor elk een beeld te reconstrueren. Drie van deze diffractiepatronen en reconstructies, met een resolutie van ongeveer 300 nanometer, zijn weergegeven in figuur 6. Deze uiteindelijke resolutie wordt gelimiteerd door de relatief simpele structuur van het object, de intensiteit van de belichting en de positionering van de camera. Door het EUV-licht te focuseren op een object met fijnere structuur is het mogelijk om een resolutie vergelijk-

baar aan de golflengte te behalen met dezelfde techniek. In mijn promotieonderzoek heb ik Foeriertransformatiespectroscopie met hogere harmonischen ontwikkeld tot een breed inzetbare techniek in het volledige EUV-spectrum. Deze techniek maakt het mogelijk om HHG-lichtbronnen goed te karakteriseren en deze in te zetten voor precisie metrologie en microscopie. Zo heb ik hier laten zien hoe het mogelijk is om spectroscopische diffractiemicroscopie te doen. In ander werk hebben wij FTS gebruikt om absorptie en breking van hogere harmonischen in dunne metaallagen te meten om zo die metalen te karakteriseren. Dit is nog maar een fractie van de mogelijkheden die FTS met

hogere harmonischen biedt. Zo zou het gebruikt kunnen worden om op microscopische schaal de elementaire compositie van een object te bepalen, iets wat in het bijzonder interessant is voor moderne elektronica, die uit veel verschillende materialen bestaat. Ten slotte wordt deze techniek nog actief verder ontwikkeld, dus wie weet wat voor toepassingen er nog meer volgen.

REFERENTIES

1. S. Witte en A.J. den Boef, *Lensloze microscopie*, *NTvN* **85(9)** (2019).
2. G.S.M. Jansen et al., *Spatially resolved Fourier transform spectroscopy in the extreme ultraviolet*, *Optica* **3(10)** (2016).
3. G.S.M. Jansen et al., *Diffractive shear interferometry for extreme ultraviolet high-resolution lensless imaging*, *Opt. Express* **26(10)** (2018).