

文章编号: 0253-2239(2004)06-1004-5

X 射线荧光全息术中入射能量对原子像的影响*

谢红兰 陈建文 高鸿奕 熊诗圣 李儒新 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘要: X 射线荧光全息术是一种新型的显微成像技术,它能在原子水平上直接观察到晶体内部的三维结构。然而它所得到的原子像存在明显的孪生像现象。因此,采用多重能量的全息记录来消除孪生像。分别以单个和多个铁原子为模型,数值模拟了它们在 4π 立体角范围内、不同范围的入射能量的情况下记录的全息图。比较由这些全息图重构得到的原子像,发现入射能量范围越宽,其消除孪生像的效果越好,而且随着入射能量的提高,其原子像的分辨力也越高。

关键词: X 射线荧光全息术; 同步辐射; 晶体结构; 傅里叶变换

中图分类号: O434.11, O72 文献标识码: A

Influence of Incident Energy on Reconstructed Atomic Images in X-Ray Fluorescence Holography

Xie Honglan Chen Jianwen Gao Hongyi Xiong Shisheng Li Ruxin Xu Zhizhan

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

(Received 21 April 2003; revised 1 August 2003)

Abstract: X-ray fluorescence holography is a novel microscopic imaging method, which can provide the information of three-dimensional atomic arrangement in a single crystal. However, obvious twin images appear on the atomic images obtained by this method. Therefore, the method called "multiple-energy X-ray holography" that images reconstructed from holograms recorded at several incident energies are combined properly is used to remove the twin images. In this work, a single Fe atom and multi Fe atoms as model respectively, holograms recorded in a complete 4π solid angle with different range and magnitude of incident energies are calculated. Compared reconstructed atomic images from these holograms, it is found that the wider range of incident energies, the better effect of removing twin images is. Moreover, the difference between simulated peak positions and actual atomic positions decreases and the resolution of reconstructed atomic images increases with increasing incident energy.

Key words: X-ray fluorescence holography; synchrotron radiation; crystal structure; Fourier transform

1 引 言

近十年来, X 射线显微成像技术发展迅速,光源已由软 X 射线波段拓展到硬 X 射线波段,成像分辨力也由微米量级提高到纳米量级^[1~5]。人们一直试图用 X 射线光源来观测物质内部的原子是如何排列的。1948 年, Gabor^[6]首次提出了全息成像方法。

它是一种相干成像方法,能够完全重现物波的振幅和相位。全息成像的分辨力受限于两个因素,即光源的波长和光源或探测器的大小。这两个因素阻碍了研究人员用全息的方法在原子水平上观测样品内部的三维结构。为克服这些限制, Szöke^[7]在 1986 年提出了内源全息术的概念。他建议把样品内部的受激发的原子作为光源。样品内部的原子受到外来的硬 X 射线源激发后,发射出荧光。直接到达探测器的荧光(作为参考波)和经邻近原子散射后到达探测器的荧光(作为物波)发生干涉形成全息图,利用

* 国家自然科学基金(60278030)资助课题。

E-mail: honglanxie@163.com

收稿日期: 2003-04-21; 收到修改稿日期: 2003-08-01

计算机数值法重构,能够获得邻近原子在实空间的三维分布情况。这种全息术叫做内源全息术,其成像分辨力只受限于原子的尺度和激发光源的波长。根据光学中的光路可逆原理,光源和探测器的位置在光路中可以互换,因此内源全息术的逆光路被称为内探测器全息术,也称为逆全息术,而内源全息术则被称为正全息术。而内探测器全息术因为允许记录全息图的入射能量只要超过待测原子的吸收限即可,因此可以在多个能量上记录全息图,所以又叫多重能量 X 射线全息术。

在最近的几年里,因为成像分辨力能达到原子的水平,X 射线荧光全息术已经成为一大研究热点,国外的几个研究小组在这一领域已取得相当的进展^[8~15],而我国在这一领域还刚刚起步^[16~18]。和传统的全息术一样,X 射线荧光全息术也遇到了自 Gabor 发明全息术以来就一直存在的孪生像问题。Barton 提出将在不同入射能量上记录的全息图所重构的原子像叠加,其结果可以压制孪生像效应,但选择多高及多宽范围的入射能量对消除孪生像的效果更好,还没有讨论过。本文中,我们分别以单个和多个铁原子为模型,数值模拟了它们在 4π 立体角范围内、不同范围的入射能量的情况下记录的全息图。比较由这些全息图重构得到的原子像,发现入射能量范围越宽,其消除孪生像的效果越好,而且随着入射能量的提高,其原子像的分辨力也越高。

2 多重能量 X 射线全息术消除孪生像的原理

考虑样品中的一个原子,该原子位置视作原点。来自外部的硬 X 射线源照射样品,直接到达该原子的 X 射线与经邻近原子散射后到达该原子的 X 射线相互干涉,干涉场激发该原子发出荧光,荧光强度与干涉场强度成正比。在 \mathbf{k} 方向、距离样品 R 处,探测到的荧光强度可表示为^[19]

$$I(\mathbf{k}) = \frac{I_0}{R^2} \left| 1 + \sum_j a_j \right|^2 = \frac{I_0}{R^2} \left[1 + 2\text{Re}\left(\sum_j a_j\right) + \left|\sum_j a_j\right|^2 \right], \quad (1)$$

其中 $a_j = (1/r_j)F_j(\Theta_j^k)\exp[i(\mathbf{r}_j\mathbf{k} - \mathbf{r}_j \cdot \mathbf{k})]$ 是被位于 \mathbf{r}_j 处的单个原子散射的波幅。 $F_j(\Theta_j^k)$ 是散射因子,取决于 \mathbf{r}_j 与 \mathbf{k} 间的夹角 Θ_j^k 的大小。(1) 式的第二项包含全息信息,可写为

$$\chi(\mathbf{k}) = \sum_j 2\text{Re}(a_j) = \sum_j (a_j + a_j^*), \quad (2)$$

其中 a_j^* 是 a_j 的复共轭项。如果能从探测得到的全息图强度中分离出第二项,根据亥姆霍兹-基尔霍夫理论^[20],全息图的数字重构能够表示为^[21]

$$U(\mathbf{r}) = \iint \chi(\mathbf{k}) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) d\sigma_k, \quad (3)$$

其中 $d\sigma_k$ 为全息图球面的表面元。因为 $\chi(\mathbf{k})$ 包含两个复共轭项,所以(3)式将在 $\mathbf{r} = \mathbf{r}_j$ 处重构得到位于 \mathbf{r}_j 处的原子的真像,在 $\mathbf{r} = -\mathbf{r}_j$ 处重构得到该原子的孪生像。为了打破(3)式的真像和孪生像的对称性,Barton 提出将在不同入射能量上记录的全息图,它们所重构得到的原子像叠加,其结果可以压制孪生像的影响,得到真实的原子像,其重构公式表示为^[22]

$$U(\mathbf{r}) = \int k^2 \iint \chi(\mathbf{k}) \exp[-i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - kr)] d\sigma_k dk, \quad (4)$$

3 计算结果和讨论

3.1 单原子模型

为简单起见,我们数值模拟了 z 轴上距离荧光原子 0.29 nm 处的单个铁原子的全息图。荧光原子位置视作原点,入射的硬 X 射线源的波数 k 为 $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-1}$,记录全息图的方位角范围为 $0^\circ \sim 360^\circ$,极角范围为 $0^\circ \sim 180^\circ$,步长都为 1° 。图 1 显示了该原子的荧光全息图在 $k_x - k_y$ 平面上的投影,为一系列明暗相间,由疏到密的同心圆图案。

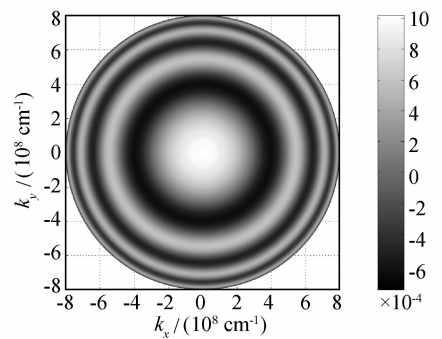


Fig. 1 Hologram of a Fe atom at 0.29 nm from the source, with a wave number of $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-1}$

对图 1 的全息图进行数字重构,得到的原子像显示在图 2(a)中。可以看到在 $z = 0.29 \text{ nm}$ 处和在 $z = -0.29 \text{ nm}$ 处各出现一个强度最大的波峰,即代表原子所在的位置。可知前者为原子的真像,后者为原子的孪生像。对于未知的样品,因为两者的强度相等,我们根本不能分辨出哪个才是真正的原子像,哪个才是孪生像,因此消除孪生像是十分必要

的。两个波峰旁边还有一些小波峰,它们是单能量全息图重构所带来的固有的像差和假像。

为了消除孪生像的影响,我们计算了在不同入射能量上记录的全息图,并将由这些全息图重构得到的原子像叠加,其结果显示在图 2(b)中。记录全息图的入射能量范围为 $(8\sim 9)\times 10^8\text{ cm}^{-1}$,步长为 10^7 cm^{-1} 。很明显,在 $z=-0.29\text{ nm}$ 的孪生像几乎被完全消除了,即证明了多重能量的全息图重构可以消除孪生像的影响。

我们考虑不同范围的入射能量对消除孪生像效果的影响。把入射 X 射线的能量范围由上面的 $(8\sim 9)\times 10^8\text{ cm}^{-1}$ 扩大到 $(6\sim 11)\times 10^8\text{ cm}^{-1}$,步长为 $5\times 10^7\text{ cm}^{-1}$,其重构结果显示在图 3(c)中。与图 2(b)相比,原子像周围的小波峰几乎被完全消

除。即证明,入射能量范围越宽,消除孪生像的效果更好,能完全消除孪生像的影响。

再考虑入射能量的高低对原子像的影响。提高记录全息图的入射 X 射线能量范围到 $(280\sim 33)\times 10^8\text{ cm}^{-1}$,步长为 $5\times 10^7\text{ cm}^{-1}$,图 2(d)显示了由这 11 个全息图重构得到的原子像。与图 2(c)中的原子像相比,其原子像的位置更接近真实的原子位置,且其背景噪声被完全消除。原子位置的波峰宽度被压缩到更窄,原子像的空间分辨力由图 2(c)的 0.03 nm 提高到 0.01 nm 。这说明了,这记录全息图的入射 X 射线源的能量越高,由这些全息图重构得到的原子像空间分辨力就越高,其原子像的空间位置与真实的原子位置就更接近。

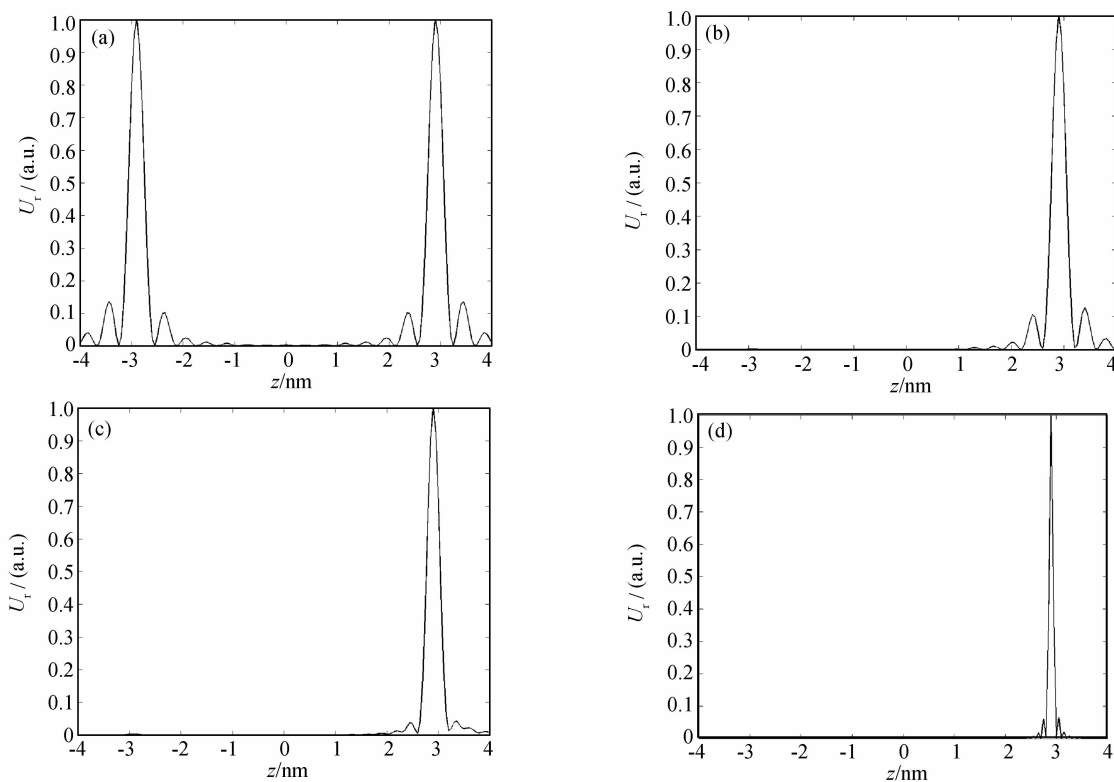


Fig. 2 The reconstructed atomic image of Fe single atom at $z=0.29\text{ nm}$. (a) The atomic image reconstructed from the hologram at a single energy $k=8\times 10^8\text{ cm}^{-1}$, (b) $(8\sim 9)\times 10^8\text{ cm}^{-1}$, (c) $(6\sim 11)\times 10^8\text{ cm}^{-1}$, (d) $(28\sim 33)\times 10^8\text{ cm}^{-1}$

3.2 多原子模型

为不失一般性起见,我们考虑多原子的模型。以一个由 27 个 Fe 原子立方排列的晶格为模型,来讨论入射能量对原子像的影响。

图 3 是该样品在入射能量为 $8\times 10^8\text{ cm}^{-1}$ 情况下,计算得到的全息图。其信号强度为 10^{-3} 的量级,比图 1 中的单散射原子全息信号强度高一个数量级。这是因为散射原子越多,其信号强度越高,但

两者不成正比关系。一般的单晶样品,其信号强度在 10^{-3} 量级。

图 4(a)显示了由图 3 中的全息图重构得到的 $z=0$ 平面上的原子像。图像上最亮的点代表原子。根据我们的模型,在 $z=0$ 平面上应该有 9 个原子,然而在图 4(a)上,却只有四个很亮的点。这是因为在我们的计算中,选定了 $z=0$ 平面中央的一个原子作为荧光原子,所以这个原子未被成像,在图 4(a)上

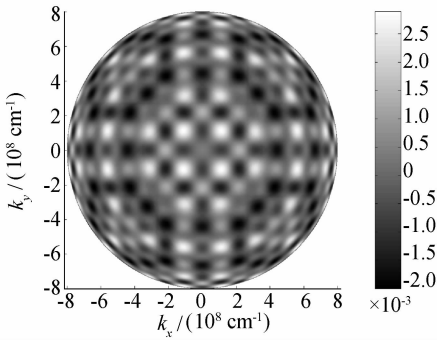


Fig. 3 The hologram of a 27-Fe-atom simple cubic lattice

看不到该原子的像。另外四个原子的像的消失是因为孪生像的影响。每个原子的真像都与和它中心对称的原子的孪生像相互叠加,导致原子像的强度相消或强度相加。当散射原子与荧光原子的距离满足 $kr=\pi(2m+1)/2$ 时,该原子的真像与和它中心对称的原子的孪生像的强度相互抵消,即在该原子的位置上,强度为零。其中 m 是一个不为零的正整数。当 $k=8\times 10^8 \text{ cm}^{-1}$ 时,位于 $(\pm 0.29 \text{ nm}, \pm 0.29 \text{ nm}, 0 \text{ nm})$ 处的四个原子满足这样的条件,此时 $m=10$ 。所以在这四个原子相应的位置上,未出现原子的像。

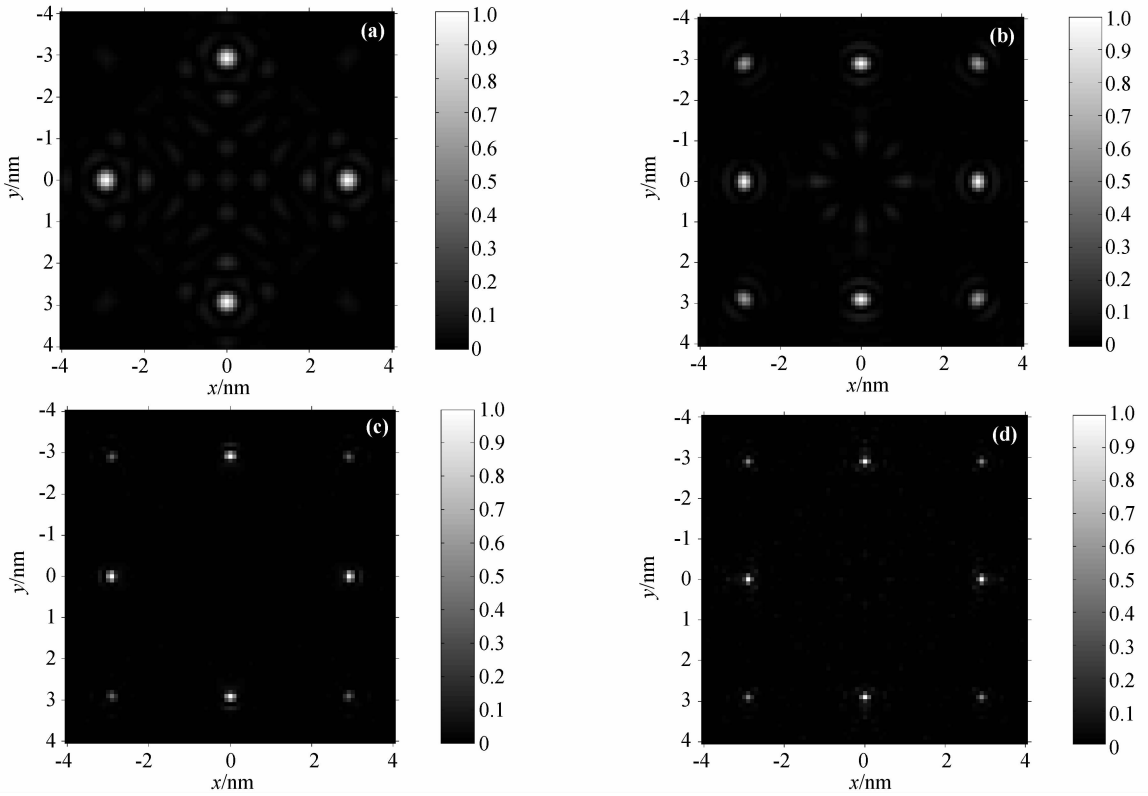


Fig. 4 The reconstructed atomic image of the 27-Fe-atom simple cubic lattice in the $z=0 \text{ nm}$ plane. (a) The atomic image reconstructed from the hologram at a single energy $k=8\times 10^8 \text{ cm}^{-1}$, (b) $(8\sim 10)\times 10^8 \text{ cm}^{-1}$, (c) $(16\sim 18)\times 10^8 \text{ cm}^{-1}$, (d) $(8\sim 18)\times 10^8 \text{ cm}^{-1}$

为了消除孪生像的影响,我们计算了 11 个不同入射能量上记录的全息图并进行重构,能量范围为 $k=(8\sim 10)\times 10^8 \text{ cm}^{-1}$,步长为 $2\times 10^7 \text{ cm}^{-1}$,得到的原子像如图 4(b)所示。图 4(b)与图 4(a)最显著的不同在于,图 4(a)中因为孪生像的影响,未出现的四个原子像,在图 4(b)中出现。而且,图 4(a)中出现的很多暗点是来自单能量全息图重构固有的假像,在图 4(b)中大部分被消除,即证明了多重能量全息术对孪生像的消除是有效果的。

考虑用高能量的 X 射线来辐照样品,我们计算了入射能量范围为 $k=(16\sim 18)\times 10^8 \text{ cm}^{-1}$ 、步长为

$2\times 10^7 \text{ cm}^{-1}$ 的 11 个全息图重构得到的原子像,如图 4(c)所示。可以看到原子像的分辨力被大幅度地提高,由图 4(b)的 0.03 nm 提高到 0.02 nm 。即再次证明了随着入射能量的提高,原子像的分辨力也随之被提高。

扩大入射能量范围到 $k=(8\sim 18)\times 10^8 \text{ cm}^{-1}$,步长为 10^6 cm^{-1} ,重构得到的原子像如图 4(d)所示。比较图 4(c),原子像的分辨力几乎相同,但是在图 4(c)中出现的很微弱的一些噪声,在图 4(d)中已被完全消除。

结论 由上面的讨论可知,在一个 4π 立体角范围内、大范围并且高入射能量的情况下,记录的全息图所重构得到的原子像不仅孪生像可以完全被消除,而且分辨力高,原子位置准确。全息图记录在 4π 立体角范围内,能够提供完全的全息信息,而不会导致重构的原子像太大的结构信息损失。入射 X 射线能量范围越大、能量越高,得到的原子像分辨力越高、原子位置越准确。

参 考 文 献

- Jiang Shiping, Zhang Yuxuan, Zhang Xinyi *et al.*. Soft X-ray microscopy of wet samples in helium environment. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2000, **20**(1): 142~144 (in Chinese)
- Zhu Peiping, Gao Hongyi, Jiang Shiping *et al.*. X-ray image holography. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2001, **21**(7): 850~852 (in Chinese)
- Xie Honglan, Gao Hongyi, Chen Jianwen *et al.*. A method of eliminating scattered light in X-ray fluorescent tomography. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2003, **23**(4):385~389 (in Chinese)
- Jacobsen C, Chapman H N, Kirz J *et al.*. Biological microscopy and soft X-ray optics at stony brook. *J. Elect. Spect. and Related Pheno.*, 1996, **80**(5):337~341
- Wang Yuxin, Jacobsen Chris. A numerical study of resolution and contrast in soft X-ray contact microscopy. <http://xray1.physics.sunysb.edu/~jacobsen>
- Gabor D. A new microscopic principle. *Nature*, 1948, **161**(5):777~778
- Szöke A. X-ray and electron holography using a local reference beam. in *Short Wavelength Coherent Radiation: Generation and Applications*, edited by T. Atwood and J. Boker, *AIP Conf. Proc.* 147 (AIP, New York), 1986, 361~367
- Len P M, Gog T, Fadley C S *et al.*. X-ray fluorescence holography and multi-energy X-ray holography: a critical comparison of atomic images. *Phys. Rev. B*, 1997, **55**(6): R3323~R3327
- Tegze M, Faigel G. X-ray holography with atomic resolution. *Nature*, 1996, **380**(3):49~51
- Adams B, Novikov D V, Hiort T *et al.*. Atomic holography with X-rays. *Phys. Rev. B*, 1998, **57**(13): 7526~7534
- Tegze M, Faigel G, Marchesini S *et al.*. Three dimensional imaging of atoms with isotropic 0.5 Å resolution. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **82**(24):4847~4850
- Marchesini S, Schmithüsen F, Tegze M *et al.*. Direct 3D imaging of Al_{70.4} Pd₂₁ Mn_{8.6} quasicrystal local atomic structure by X-ray holography. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, **85**(22):4723~4726
- Spence J. Holograms of atoms. *Nature*, 2001, **410**(4): 1037~1040
- Kopecky M, Lausi A, Busetto E *et al.*. X-ray absorption holography. *Phys. Rev. Lett.*, 2002, **88**(18):185503-1~185503-3
- Kopecky M, Busetto E, Lausi A *et al.*. Recording of X-ray holograms on a position-sensitive detector. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **78**(19):2985~2987
- Xie Honglan, Gao Hongyi, Chen Jianwen *et al.*. Numerical simulation study for atomic-resolution X-ray fluorescence holography. *Acta Physica Sinica* (物理学报), 2003, **52**(9):2223~2229 (in Chinese)
- Xie H L, Chen J W, Gao H Y *et al.*. X-ray fluorescence holography, *ISTM/2003 5th International Symposium on Test and Measurement* Vol. 5, 3703~3706
- Xie H L, Chen J W, Gao H Y *et al.*. A method of improving spatial resolution in X-ray fluorescence holography. *Optik*, 2003, **114**(7): 317~321
- Faigel G, Tegze M. X-ray holography. *Rep. Prog. Phys.*, 1999, **62**:355~393
- Born M, Wolf E. *Principles of Optics*. London: Pergamon, 1959
- Barton J J. Photoelectron holography. *Phys. Rev. Lett.*, 1988, **61**(12):1356~1359
- Barton J J. Removing multiple scattering and twin images from holographic images. *PHys. Rev. Lett.*, 1991, **67**(22):3106~3109