

X 射线纳米成像单毛细管椭球镜的设计与检测

陶 芬^{1,2}, 王玉丹¹, 任玉琦¹, 丰丙刚¹, 佟亚军¹, 杜国浩¹, 邓 彪^{1,2}, 孙天希³, 谢红兰¹, 肖体乔¹

¹中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201204;

²中国科学院大学, 北京 100049;

³北京师范大学, 北京 100875

摘要 设计并成功研制了单毛细管椭球镜, 并通过光学及 X 射线方法测试了它的特性。椭球镜的面形误差为 15 μrad , 能量为 9 keV 时聚焦光斑直径为 40 μm , 聚焦光斑发射角为 1.75 mrad。基于研制的椭球镜, 在上海光源 X 射线成像线站搭建 X 射线纳米成像系统, 并实现了纳米成像, 这表明该椭球镜可满足 X 射线纳米成像的需求。

关键词 X 射线光学; X 射线显微镜; 单毛细管椭球镜; 检测; 同步辐射

中图分类号 O434.19 **文献标识码** A

doi: 10.3788/AOS201737.1034002

Design and Detection of Ellipsoidal Mono-Capillary for X-Ray Nano-Imaging

Tao Fen^{1,2}, Wang Yudan¹, Ren Yuqi¹, Feng Binggang¹,

Tong Yajun¹, Du Guohao¹, Deng Biao^{1,2}, Sun Tianxi³, Xie Honglan¹, Xiao Tiqiao¹

¹Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Science, Shanghai 201204, China;

²University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

³Beijing Normal University, Beijing 100875, China

Abstract An ellipsoidal mono-capillary is designed and fabricated, and its performance is measured by both optical measurement and X-ray testing. The profile errors of the ellipsoidal mono-capillary is 15 μrad . The diameter of focusing spot is 40 μm and the launching angle of focusing spot is 1.75 mrad at energy of 9 keV. Based the developed ellipsoidal mono-capillary, a X-ray nano-imaging system is designed and constructed at the X-ray imaging beamline (BL13W1) in Shanghai synchrotron radiation facility (SSRF). The X-ray nano-imaging is achieved with utilization of the ellipsoidal mono-capillary, which indicates that the ellipsoidal mono-capillary can meet the requirement of X-ray nano-imaging.

Key words X-ray optics; X-ray microscope; ellipsoidal mono-capillary; detection; synchrotron radiation

OCIS codes 340.7460; 340.7440; 340.7470

1 引 言

全场透射 X 射线显微镜(TXM)可实现厚样品内部三维结构的成像, 世界上许多光源都已建立了硬 X 射线 TXM 成像系统, 如斯坦福同步辐射光源(SSRL)^[1-2]、国家同步辐射光源(NSLS)、国家同步辐射研究中心(NSRRC)^[3]和北京同步辐射装置(BSRF)^[4]。TXM 系统目前已实现了 20 nm 的空间分辨^[5], 广泛应用于材料、生物、能源、纳米等诸多科学领域^[1,3,6]。

TXM 是光学成像显微镜在 X 射线波段的发展, 它们的成像原理和光路结构基本相同。TXM 以 X 射线(同步辐射或 X 光机)作为光源, 聚焦镜将 X 射线聚焦到样品上, 经 X 射线透镜(波带片)放大后成像。聚焦

收稿日期: 2017-05-10; **收到修改稿日期:** 2017-06-05

基金项目: 国家自然科学基金(U1532118, 11775297, 11405261)

作者简介: 陶 芬(1994—), 女, 硕士研究生, 主要从事 X 射线和光学检测方面的研究。E-mail: taofen@sinap.ac.cn

导师简介: 邓 彪(1981—), 男, 博士, 研究员, 硕士生导师, 主要从事 X 射线成像及成像光学方面的研究。

E-mail: dengbiao@sinap.ac.cn(通信联系人)

镜是 TXM 的核心部件,具有 2 个功能:1) 将次级光源点的 X 射线会聚到样品点,以提高样品点处的光通量密度;2) 根据成像系统的要求,聚焦镜出射光的数值孔径应与波带片环状照明的数值孔径一致。目前应用于全场纳米成像装置上的聚焦镜主要有复合折射透镜^[7-9]、光束整形器^[10-11]和椭球聚焦镜^[12-13]。复合折射透镜具有立体接收角大的优点,但是它制备困难,效率相对较低,且焦距对能量敏感。光束整形器的衍射效率低(1%~10%),且有带宽限制,这限制了它在 TXM 成像中的应用。椭球聚焦镜的传输效率高达 90%以上,具有像差小、体积小、易于调节等特点,还可以提供 TXM 所需的均匀照明视场,因此大多数 TXM 装置都将它作为聚焦元件^[3]。

椭球聚焦镜是反射面为椭球面的单毛细管,如何控制面形误差是研制椭球镜的关键,该技术长期被国外厂商垄断。上海光源二期拟建设一条纳米三维成像线站,分辨率的设计指标为 20 nm。为实现这一设计目标,实现关键光学元件的国产化,本课题组设计并成功研制了单毛细管椭球镜,并通过光学及 X 射线方法对它的特性进行了测试。基于研制的椭球镜,在上海光源 X 射线成像线站搭建 X 射线纳米成像系统,并实现了纳米成像,这表明研制的椭球镜可满足 X 射线纳米成像的需求。

2 椭球镜的物理设计与制备

图 1 为上海光源 X 射线成像线站(BL13W1)TXM 的示意图。TXM 包括椭球镜、针孔、波带片与探测器等,空间分辨率设计目标为 100 nm@9 keV。根据空间分辨率的要求,选择直径为 100 μm、最外环宽度为 70 nm 的波带片,能量为 9 keV 时波带片的焦距为 50.8 mm,数值孔径(NA)为 0.98 mrad。

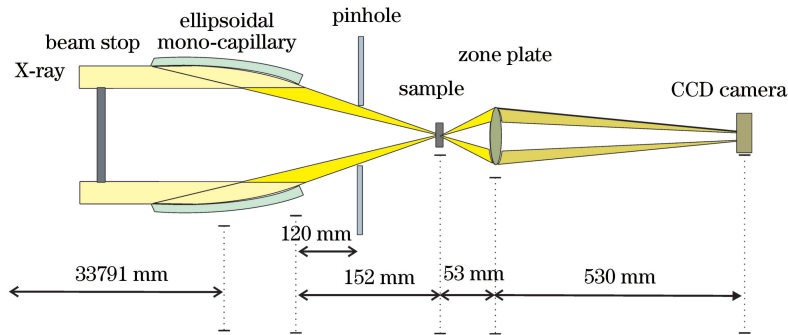


图 1 上海光源成像线站(BL13W1)TXM 示意图

Fig. 1 TXM schematic of imaging beamline (BL13W1) in Shanghai Synchrotron Radiation Facility

椭球镜为全反射元件,反射面为椭球面,图 2 为椭球镜的光学原理示意图。光源点位于椭圆的焦点 F (当椭球的长半轴 a 远大于短半轴 b 时,焦点靠近顶点)处,入射光照射到椭球镜表面后在表面发生全反射,将光源成像在椭球镜的另一个焦点 F' (样品)处,再经过光束挡光器后形成环状光斑照射在波带片上,为波带片提供空心光锥照明。

p_1 和 p_2 为椭球镜入射光的 2 个边界线段,对应的 q_1 和 q_2 为出射光的 2 个边界线段。 p_1 和 FF' 光轴的夹角为最大接收角(α_1)。为了最大限度地接收到光,最大接收角为光束次级光源点垂直发散角的一半。空心光锥照射到波带片上,形成环状带照明,该区域为 R_1 与 R_2 之间的范围,与此对应的椭球镜的发散角 θ 范围为 $[\varphi_1, \varphi_2]$ ^[12]。

由图 2 的几何关系可知:

$$p_1 + q_1 = 2a, \quad (1)$$

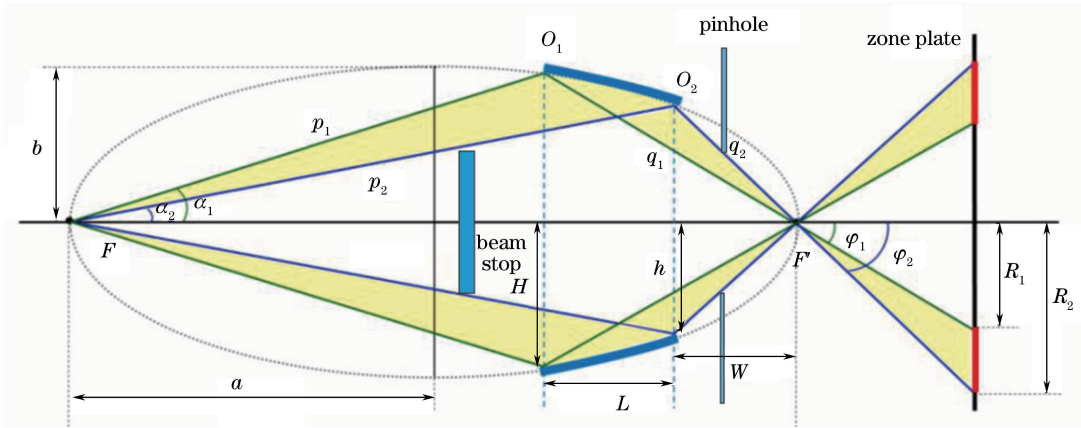
$$p_1 \sin \alpha_1 - q_1 \sin \varphi_1 = 0, \quad (2)$$

$$p_1 \cos \alpha_1 + q_1 \cos \varphi_1 = 2c, \quad (3)$$

$$b = \sqrt{a^2 - c^2}, \quad (4)$$

式中 a 为椭球的长半轴, b 为短半轴, c 为半焦距, α_1 为椭球镜的接收角, φ_1 和 φ_2 为反射光与椭球聚焦镜长轴的夹角^[14]。

由于椭球镜的离心率很大,所以用椭球镜的长度 L 来代替圆弧的长度, L 的计算公式为



2 椭球镜的光学原理示意图

Fig. 2 Optical principle schematic of ellipsoidal mono-capillary

$$L = q_1 \cos \varphi_1 - q_2 \cos \varphi_2. \quad (5)$$

由图 2 可知,工作距离 W 、入口半径 H 、出口半径 h 分别为

$$W = q_2 \cos \varphi_2, \quad (6)$$

$$H = q_1 \sin \varphi_1, \quad (7)$$

$$h = q_2 \sin \varphi_2. \quad (8)$$

TXM 成像要求椭球镜出射光的数值孔径与波带片的数值孔径相匹配。根据实践经验^[15],椭球镜提供的空心光锥约为照明波带片总面积的 1/2,即 φ_1 为 NA 的 70%~78%。为实现基于波带片的最高分辨率,一般要求空心光锥照射到波带片的最外环,即 φ_2 为 NA 的 90%~100%。当 $\varphi_2 > NA$ 时,系统的分辨率没有明显提高,成像衬度下降明显,而且会造成波带片漏光。选择 $\varphi_1 = 0.78NA$, $\varphi_2 = NA = 0.98$ mrad 作为设计依据。上海光源 X 射线成像线站的光束是从插入件扭摆器引出的,光源点到样品的距离为 34 m^[16-18]。由此可知椭球镜的长半轴 $a = 17$ m,光源点垂直发散角为 0.012 mrad,即 $\alpha_1 = 0.012$ mrad/2 = 0.006 mrad。设计的椭球镜参数如表 1 所示。

表 1 椭球镜的参数

Table 1 Parameters of ellipsoidal mono-capillary

Parameter	Value	Parameter	Value
X-ray energy E /keV	9	Length L /mm	105.7
Entry radius H / μ m	202.4	Semi-major axis a /mm	17000
Exit radius h / μ m	157.5	Semi-minor axis b /mm	1.148
Maximum divergence angle of focusing ring $2\varphi_2$ /mrad	0.98	Working distance W /mm	160.67
Minimum divergence angle of focusing ring $2\varphi_1$ /mrad	0.76	Maximum acceptance angle /mrad	0.012

为保证椭球镜的面形符合设计要求,综合考虑吸收、材料密度与 X 射线全反射临界角的关系,以高密度硼硅酸盐玻璃管作为母管^[19],基于温度精密可控的玻璃拉丝塔进行拉制,成功研制了一批椭球镜,如图 3 所示^[13]。

3 椭球镜的相关检测

3.1 光学检测

为分析研制椭球镜的面形误差,采用光学千分尺对椭球镜的外径进行检测,再通过外径推导出内径,从而实现内径的检测。光学测试采用的是 LS-7030M 型千分尺,可实现 $\pm 0.5 \mu\text{m}$ 的测量精度和 $\pm 0.06 \mu\text{m}$ 的重复精度。测试时扫描间隔为 0.2 mm。图 4 为测试得到的内径曲线与理论椭球面曲线的比较,分析可得到该椭球镜的面形误差为 $15 \mu\text{rad}$ 。

3.2 同步辐射 X 射线检测

为实现椭球镜的同步辐射 X 射线检测,在上海光源成像线站搭建了椭球镜测试系统。基于同步辐射光

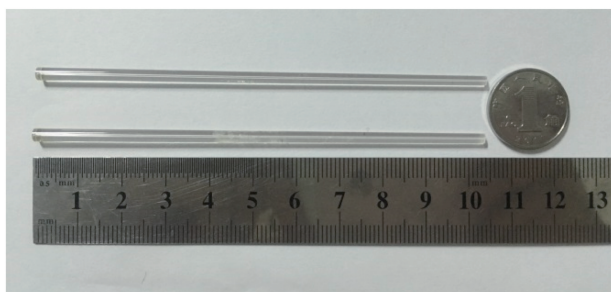


图 3 研制的椭球镜照片

Fig. 3 Picture of developed ellipsoidal mono-capillary

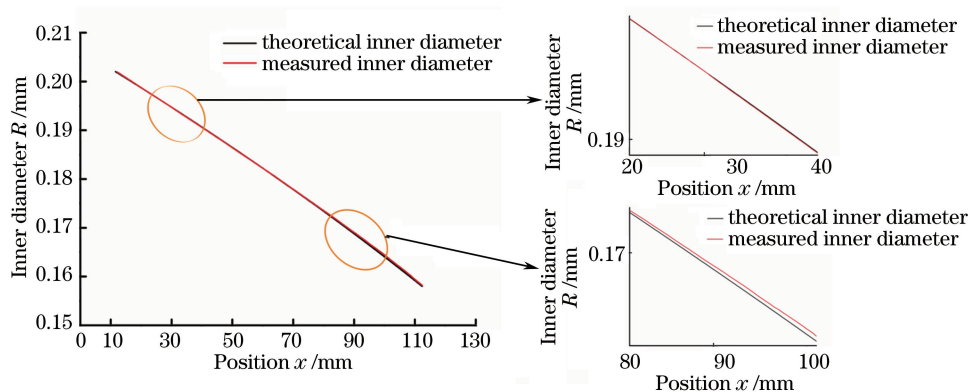
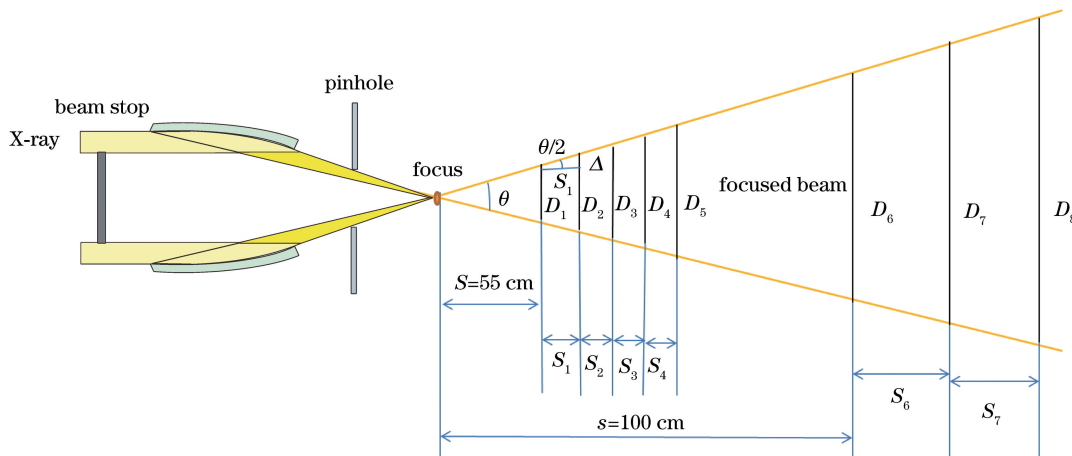


图 4 椭球镜的光学测试结果

Fig. 4 Optical testing result for an ellipsoidal mono-capillary

和高分辨 X 射线成像探测器检测椭球镜的性能,包括聚焦光斑的焦斑尺寸、均匀度及椭球镜后不同位置处的环带照明光斑尺寸,从而计算发散角。测试原理图如图 5 所示,光束挡光器放置在椭球镜的前端,探测器上得到圆环状光斑,此圆环反映了空心锥光束照射位置处的椭球镜的内部形状。如果椭球镜的制造很完美,那么会产生均匀理想的细圆环。当椭球镜存在面形误差时,圆环就会产生形变。

测量过程中,通过调节椭球镜的旋转角(ω)和俯仰角(ν)2 个维度方向来调整聚焦光环的形状与光斑均匀度。首先大范围粗调 ω 或 ν 的方向找到聚焦光斑,再小范围细调聚焦光斑的形状及均匀度。



S : distance between focused beam and focus
 $S_1, S_2, S_3, S_4, S_6, S_7$: the distance between the adjacent focused beam
 $D_1, D_2, D_3, D_4, D_5, D_6, D_7$: diameter of focused beam
 Δ : difference value between diameter of two adjacent focused beams

图 5 椭球镜 X 射线测试原理示意图

Fig. 5 Principle schematic of X-ray testing for ellipsoidal mono-capillary

图 6 是在距离焦点 55 cm 和 100 cm 处以及在焦点处聚焦光斑的形状及三维光强分布。图 6(a)是椭球镜在距离焦点 55 cm 处的近场成像,图 6(b)是距离焦点 100 cm 处的远场成像,图 6(c)是距离聚焦镜出口 14.9 cm 处,通过测量光斑的半峰全宽(FWHM)得到的 $40 \mu\text{m} \times 40 \mu\text{m}$ 的焦点光斑,焦深为 6.0 mm。实际工作距离为 155 mm,满足椭球镜工作距离约为 160.7 mm 的设计要求。

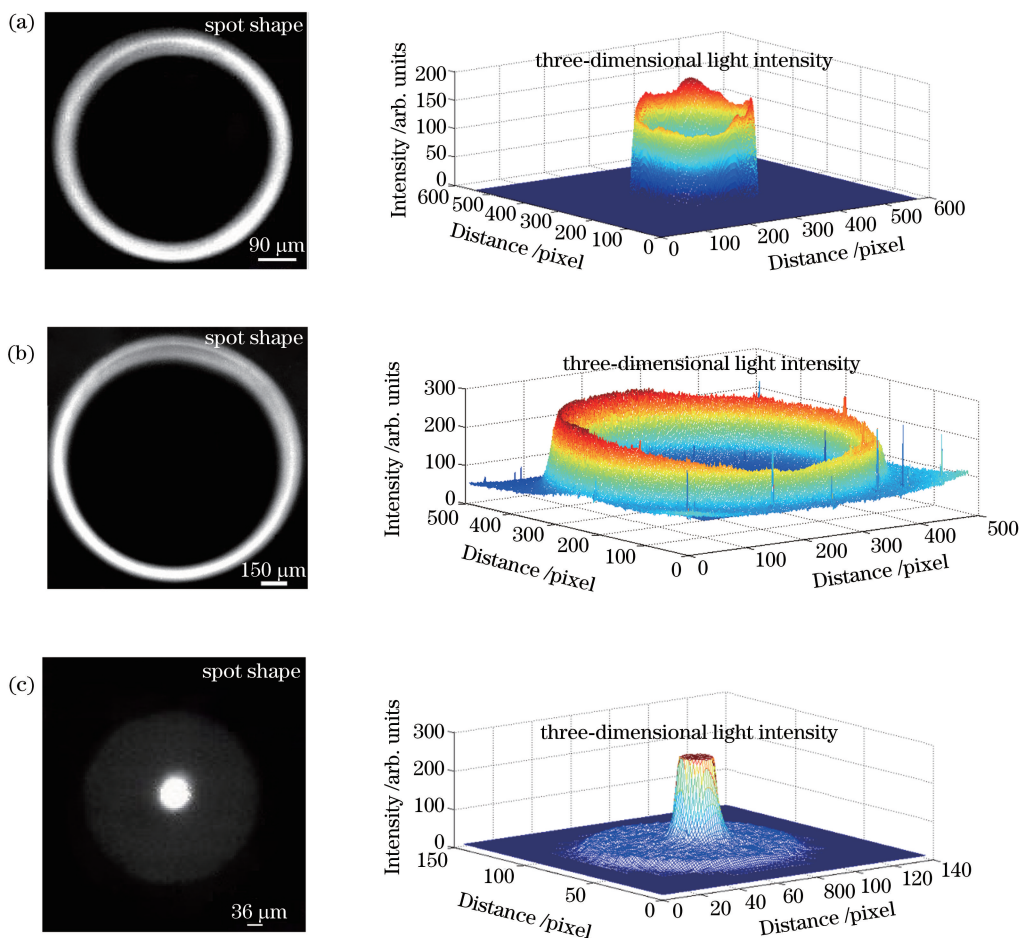


图 6 距离焦点(a) 55 cm、(b) 100 cm 处以及(c)焦点处聚焦光斑的形状及三维光强分布图
Fig. 6 Shapes and three-dimensional light intensity profiles of focusing spot at (a) 55 cm and (b) 100 cm from focal point and (c) at focal point

在距离焦点 55 cm 处及向后等间隔 $S_1 = S_2 = S_3 = S_4 = 5 \text{ cm}$ 处,分别测量聚焦圆环的内外环直径,得到近场聚焦圆环的外环直径 D_1, D_2, D_3, D_4, D_5 ;在距离焦点 100 cm 处及向后等间隔 $S_6 = S_7 = 10 \text{ cm}$ 处,分别测量聚焦圆环的内外环直径,得到近场聚焦圆环的外环直径 D_6, D_7, D_8 。

由于发散角只有几毫弧度,比较小,因此可以得到发散角 θ 的计算公式为

$$\tan(\theta/2) \approx \sin(\theta/2) \approx \theta/2 = \frac{\Delta}{S_1}, \quad (9)$$

进而得到发散角 $\theta = (D_1 - D_2) / S_1$ 。因此,可以根据测量点的数据得到不同位置处光斑的尺寸曲线,然后对其进行拟合处理,将拟合曲线的斜率作为发散角的值。得到的拟合曲线如图 7 所示。

由图 7 可知,椭球镜聚焦光斑外环的发散角约为 1.75 mrad,即 $\varphi_1 = 0.935 = 0.95 \text{ NA}$,可与直径为 $100 \mu\text{m}$ 、最外环线宽 $\Delta_r = 70 \text{ nm}$ 的波带片匹配。

3.3 TXM 成像测试

基于研制的椭球镜,在上海光源 BL13W 线站搭建了 TXM 实验系统,如图 8 所示。在图 8 中,1 为椭球镜,2 为针孔,3 为样品台,4 为波带片。全场纳米显微系统全长约 1 m,椭球镜安装在距光源 33 m 处。安装在聚焦镜前方的光束挡光器和后方的针孔用来遮挡直通光和杂散光,样品放在三维可调节、可旋转的高精度

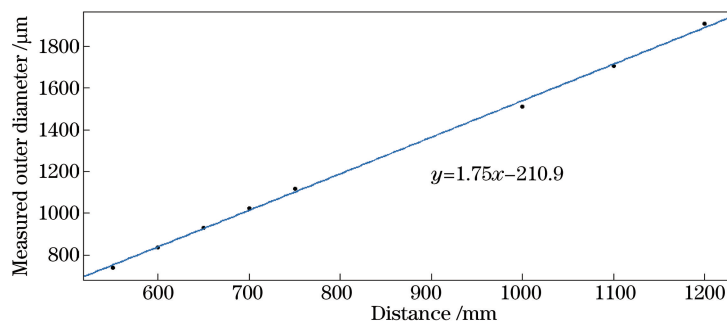


图 7 外环发散角的拟合曲线

Fig. 7 Fitted curve of divergence angle of outside ring

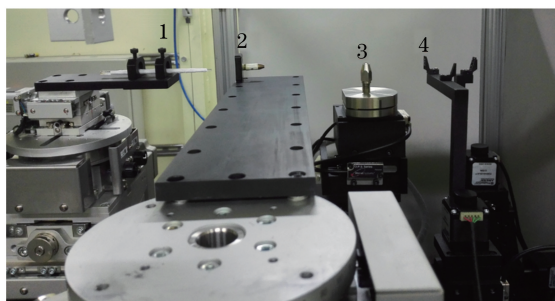


图 8 TXM 成像实验装置图

Fig. 8 Picture of experimental setup

的样品台上。探测器放置在距波带片约 60 cm 处。

在椭球镜前端约 3 cm 处放置了直径为 200 μm 的光束挡光器,用来遮挡直通光,从而提高系统的信噪比。同时在椭球镜的后端大约 12 cm 处放置直径为 70 μm 的针孔,其作用是用来遮挡杂散光。样品放在四维可调的高精度旋转样品台上;菲涅耳波带片购于瑞士保罗·谢勒研究所^[20-22],其具体参数如表 2 所示。波带片放置在样品台后方三维可调的台面上。

表 2 波带片参数

Table 2 Parameters of zone plate

Fresnel zone plate	Diameter / μm	Outermost zone width / nm	Zone material	Structure height / nm	Focal length / mm
Objective lens	100	70	Electroplated gold	1050	56.92

探测器为 10 \times 透镜耦合,单像素尺寸为 6.5 μm \times 6.5 μm ,探测器放置于距波带片后方 600 mm 处,整个系统的放大倍数为 110 倍,每个像素尺寸为 59 nm \times 59 nm。能量为 9 keV,最小结构为 500 nm 星型靶,曝光时间为 200 s。图 9 为 TXM 成像图。在视场中可以清晰地分辨出相邻的两条靶射线,说明基于自行研制的椭球镜实现了 X 射线纳米成像。

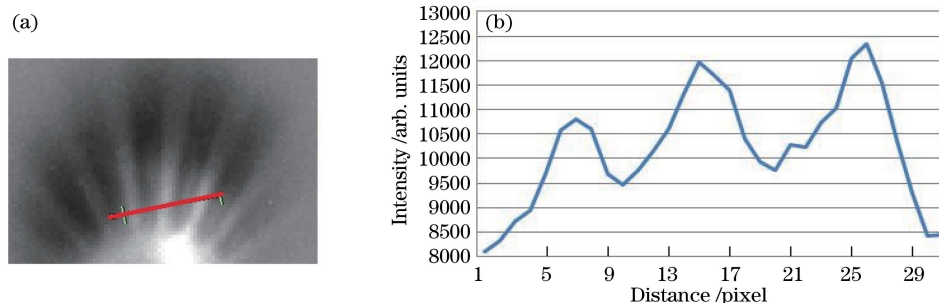


图 9 TXM 成像结果。(a)整体成像图;(b)在 500 nm 分辨率附近的靶射线强度分布

Fig. 9 Imaging results of TXM. (a) Overall imaging picture; (b) intensity profile of target radial near resolution ratio of 500 nm

4 结 论

针对 TXM 成像用最外环带宽为 70 nm 的波带片,设计并成功拉制了与之匹配的单毛细管椭球镜。光学检测结果表明,该椭球镜具有较高的质量,面形误差达到了 $15 \mu\text{rad}$; X 射线检测到聚焦光斑尺寸为 $40 \mu\text{m}$,最大发射角为 1.75 mrad ,工作距离为 160.9 mm,满足了设计指标的要求。基于该椭球镜在上海光源成像线站成功搭建了 TXM 成像系统,并实现了纳米成像,表明研制的椭球镜可满足纳米成像的需求。

虽然基于自行研制的椭球聚焦镜初步实现了 TXM 成像,但是从 X 射线远场检测的结果可以发现,聚焦圆环的均匀性并不太理想,聚焦光斑较大,这是因为研制的椭球镜的面形误差较大。在接下来的工作中,将继续改进椭球镜的拉制工艺与检测方法,以减小椭球镜的面形误差,希望基于研制的椭球镜可以实现 20 nm 分辨率的 TXM 成像。

参 考 文 献

- [1] Cronin J S, Chen-Wiegart Y K, Wang J, *et al.* Three-dimensional reconstruction and analysis of an entire solid oxide fuel cell by full-field transmission X-ray microscopy[J]. *Journal of Power Sources*, 2013, 233: 174-179.
- [2] Liu Y, Andrews J C, Wang J, *et al.* Phase retrieval using polychromatic illumination for transmission X-ray microscopy[J]. *Optics Express*, 2011, 19(2): 540-545.
- [3] Li Wenjie. Study on the application of 3D image processing and analysis for nano-CT[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2011: 20-21.
李文杰. 纳米 CT 三维图像处理分析方法及其应用的研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2011: 20-21.
- [4] Wang S, Wang D, Wu Q, *et al.* 3D imaging of a rice pollen grain using transmission X-ray microscopy[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2015, 22(4): 1091-1095.
- [5] Chen T Y, Chen Y T, Wang C L, *et al.* Full-field microimaging with 8 keV X-rays achieves a spatial resolutions better than 20 nm[J]. *Optics Express*, 2011, 19(21): 19919-19924.
- [6] Chen-Wiegart Y K, Liu Z, Faber K T, *et al.* 3D analysis of a $\text{LiCoO}_2\text{-Li}(\text{Ni}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{Co}_{1/3})\text{O}_2$ Li-ion battery positive electrode using X-ray nano-tomography[J]. *Electrochemistry Communications*, 2013, 28: 127-130.
- [7] Bilderback D H, Thiel D J, Pahl R, *et al.* X-ray applications with glass-capillary optics[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 1994, 1(1): 37-42.
- [8] Kumakhov M A. Channeling of photons and new X-ray optics[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 1990, 48(1): 283-286.
- [9] Xiao Q F, Poturaev S V. Polycapillary-based X-ray optics[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 1994, 347(1/2/3): 376-383.
- [10] Lim J, Kim H, Park S Y. Hard X-ray nanotomography beamline 7C XNI at PLS-II[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2014, 21(4): 827-831.
- [11] Jefimovs K, Vila-Comamala J, Stampanoni M, *et al.* Beam-shaping condenser lenses for full-field transmission X-ray microscopy[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2008, 15(1): 106-108.
- [12] Huang R, Bilderback D H. Single-bounce monicapillaries for focusing synchrotron radiation: modeling, measurements and theoretical limits[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2006, 13(1): 74-84.
- [13] Lin X Y, Li Y D, Sun T X, *et al.* Simulation of X-ray transmission through an ellipsoidal capillary[J]. *Chinese Physics B*, 2010, 19(7): 070205.
- [14] Jin Tianping, Li Wenjie, Chen Jie, *et al.* The design and test of ellipsoidal glass capillaries as condensers for X-ray microscope[J]. *Nuclear Techniques*, 2008, 31(9): 671-675.
金田萍, 李文杰, 陈洁, 等. X 射线成像椭球聚焦镜的设计与检测[J]. *核技术*, 2008, 31(9): 671-675.
- [15] Zeng X, Duerwer F, Feser M, *et al.* Ellipsoidal and parabolic glass capillaries as condensers for X-ray microscopes[J]. *Applied Optics*, 2008, 47(13): 2376-2381.
- [16] Feng B, Deng B, Ren Y, *et al.* Full-field X-ray nano-imaging system designed and constructed at SSRF[J]. *Chinese Optics Letters*, 2016, 14(9): 093401.
- [17] Wang Feixiang, Deng Biao, Wang Yudan, *et al.* The synchrotron radiation X-ray stereo imaging based on capillary beam split[J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(8): 0834004.
王飞翔, 邓彪, 王玉丹, 等. 基于毛细管分光的同步辐射 X 射线立体成像[J]. *光学学报*, 2016, 36(8): 0834004.
- [18] Xiao Tiqiao, Xie Honglan, Deng Biao, *et al.* Progress of X-ray imaging methodology and its applications at Shanghai

- synchrotron radiation facility[J]. *Acta Optica Sinica*, 2014, 34(1): 0100001.
- 肖体乔, 谢红兰, 邓彪, 等. 上海光源 X 射线成像及其应用研究进展[J]. *光学学报*, 2014, 34(1): 0100001.
- [19] Teng Yuepeng, Sun Tianxi, Liu Zhiguo, *et al.* New type monocapillary X-ray optical device[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, 30(2): 542-545.
- 滕玥鹏, 孙天希, 刘志国, 等. 一种新型单毛细管 X 光学器件[J]. *光学学报*, 2010, 30(2): 542-545.
- [20] Gorelick S, Vila-Comamala J, Guzenko V A, *et al.* High-efficiency Fresnel zone plates for hard X-rays by 100 keV e-beam lithography and electroplating[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2011, 18(3): 442-446.
- [21] Mokso R, Quaroni L, Marone F, *et al.* X-ray mosaic nanotomography of large microorganisms [J]. *Journal of Structural Biology*, 2012, 177(2): 233-238.
- [22] Stampanoni M, Mokso R, Marone F, *et al.* Phase-contrast tomography at the nanoscale using hard X-rays [J]. *Physical Review B*, 2010, 81(14): 140105.