

X 射线衍射极限纳米聚焦的前沿进展

蒋晖^{1,2}, 李爱国^{1,2*}¹中国科学院上海高等研究院上海同步辐射光源, 上海 201204;²中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201800

摘要 基于同步辐射和自由电子激光装置的 X 射线纳米聚焦技术已经成为开展前沿科学与技术研究的重要利器。鉴于 X 射线波段纳米聚焦材料的折射率都接近于 1, 故 X 射线聚焦元件与传统可见光元件有很大的不同。介绍了同步辐射装置中常用于 X 射线波段的衍射、折射和反射聚焦元件的工作原理, 以及近年来从亚微米向单纳米极限聚焦发展的过程。当 X 射线聚焦趋近于衍射极限时, 其加工、装调和准直带来的波前畸变会严重影响系统最终的聚焦性能, 因此聚焦光的波前检测和波前相干光操控成为了需要着重发展的前沿技术方法。此外, 对目前主流的纳米聚焦光束的波前检测技术和波前操控技术进行了介绍和比较, 也对未来 X 射线衍射极限纳米聚焦元件的发展进行了展望。

关键词 X 射线光学; 同步辐射; 纳米聚焦; 波前检测; 相位补偿

中图分类号 O434

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS202242.1134004

Frontier Development of X-ray Diffraction-Limited Nanofocusing

Jiang Hui^{1,2}, Li Aiguo^{1,2*}

¹ Shanghai Synchrotron Radiation Facility, Shanghai Advanced Research Institute,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China;

² Shanghai Institute of Apply Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract The X-ray nanofocusing techniques based on synchrotron radiation and free-electron laser facilities have become important ways to carry out cutting-edge scientific and technological research. Since the refractive indices of nanofocusing materials in X-ray regime are very close to unity, the X-ray focusing optics are very different from the traditional visible optics. The working principle of diffractive, refractive and reflective focusing optics commonly used in X-ray regime in the synchrotron field, and the development process of sub-micron to nano-scale focusing in recent years are introduced. When an X-ray focusing system approaches the diffraction limit, the wavefront distortion caused by the fabrication, mounting and collimation will seriously affect the final focusing performance of the system. Therefore, the related focused X-ray wavefront detection and manipulation play important roles as cutting-edge technologies and methods. In addition, the current main wavefront detection and manipulation techniques of the nanofocusing beam are introduced and compared, and the future development of X-ray diffraction-limited nanofocusing optics is also prospected.

Key words X-ray optics; synchrotron radiation; nanofocusing; wavefront detection; phase compensation

收稿日期: 2022-02-09; 修回日期: 2022-03-09; 录用日期: 2022-03-28

基金项目: 国家重点研发计划项目(2021YFA1601000)、国家自然科学基金(12175294, 11775295)、上海市自然科学基金(21ZR1471500)、中国科学院青年创新促进会(2018295)

通信作者: *liaiguo@zjlab.org.cn

1 引言

众所周知,当物质小到纳米尺度时,结构限域和界面效应会导致其呈现许多不同于宏观物体或孤立原子的新特性。目前,在信息、能源、材料、环境、生物医药和国防等领域中,纳米科学技术在推进新技术变革方面有着不可取代的战略地位和先导作用。为满足纳米尺度的研究需求,同步辐射和自由电子激光大科学装置上纳米分辨的聚焦和成像技术得到了广泛的重视和发展。

同步辐射和自由电子激光产生的高亮度 X 射线具有能量精准可调、高相干等特点。与电子显微镜不同,这些大装置的 X 射线聚焦系统可以对相对较厚的样品进行探测,并可集成各种成像、衍射和谱学测量技术,进而获得样品广泛的信息。比如:在生命科学领域,原位研究可以推进到细胞乃至个体中,实现在体细胞生理现象的研究;在材料科学领域,研究人员可以对诸如低维和高分子复合材料,进行纳米尺度下相变机制、局域缺陷和微观畴结构等方面的研究;在环境科学领域,X 射线探针可以深入到大气微米颗粒内以研究其内在的化学组分、生物毒性、来源和迁移规律等。虽然目前的 X 射线聚焦技术还受到加工技术的限制,但是其巨大的应用潜力依然不断地推进相关领域蓬勃发展。

基于 X 射线纳米聚焦系统的广泛应用,为获得更高分辨率的样品信息,研究人员不断优化 X 射线聚焦系统以获得足够小的光斑尺寸,在保证高通量密度的基础上可以获取极小区域样品的元素、结构和能谱等重要信息。同步辐射和自由电子激光聚焦系统最终的光斑尺寸一般取决于系统的几何压缩比和光源的尺寸,但是它并不能无限减小,而是存在一个理论的衍射极限,即最小空间分辨率。在衍射极限条件下,恰能分辨两个相邻衍射斑的极大位置。这个衍射极限可表示为 $s = a\lambda/NA$, 其中 NA 是系统的数值孔径,在 X 射线波段其值恒小于 1, λ 是入射光束的波长, a 是系数。对于矩形和圆形聚焦系统,系数 a 分别为 0.50 和 0.61。由于衍射极限正比于波长,因此选择波长尽可能短的人射光束可以在理论上获得更优的空间分辨率。由于常规的光学显微镜光源波长为百纳米量级,故其空间分辨率显著受限,即使结合各种超分辨技术,最高也仅能推进到几十纳米的水平^[1-2]。X 射线波长范围覆盖几十纳米到亚纳米,所以其聚焦系统理论可以获得亚纳米水平甚至更小的空间分辨。然而,受限于目前的加工

技术,在硬 X 射线波段,系统聚焦能力还远远达不到这个尺度。当前最佳的聚焦途径是使用多层膜劳厄透镜(MLL)技术和多层膜 Kirkpatrick-Baez(K-B)镜(MLKB)技术分别以较大的传输效率来聚焦二维光斑,最小可将光斑尺寸推进到 10 nm 以内。

本综述将从硬 X 射线的纳米聚焦元件、在线波前检测技术和相位操控技术三个方面介绍目前 X 射线纳米聚焦领域的发展状况。

2 硬 X 射线纳米聚焦元件

相比传统的可见光和红外等波段使用透镜和正入射反射元件实现光束聚焦,在硬 X 射线波段,由于几乎所有材料的折射率都接近于 1,故常规折射式的聚焦方法很难适用,进而必须发展适用于硬 X 射线波段的光学元件。在过去的几十年中,已经发展了诸多硬 X 射线聚焦元件,主要包括衍射型、折射型和反射型三类元件。衍射型元件有菲涅耳波带片^[3]、多层膜劳厄透镜^[4]等。折射型元件有复合折射透镜^[5]、Kinoform 透镜^[6]等。反射型元件有 K-B 聚焦镜^[7]、椭球聚焦镜^[8]、Wolter 聚焦镜^[9]、超平面聚焦镜^[10]、其他曲面面型的反射聚焦镜^[11-12]、毛细管^[13]、波导^[14]和微结构光学阵列^[15]等。几十年来,这些元件被广泛使用于 X 射线微米到纳米聚焦的各种应用领域中。受限于元件本身的聚焦能力和加工难度,其中仅有几类聚焦元件可以成功获得亚微米乃至纳米尺度的聚焦光斑。图 1 展示了 21 世纪以来硬 X 射线纳米聚焦领域的发展进程。其中,ZP 为菲涅耳波带片,CRL 为复合折射透镜。衍射型和反射型元件呈现出了两条不同的路径,基于多层膜的劳厄透镜和 K-B 聚焦镜系统利用更大的数值孔

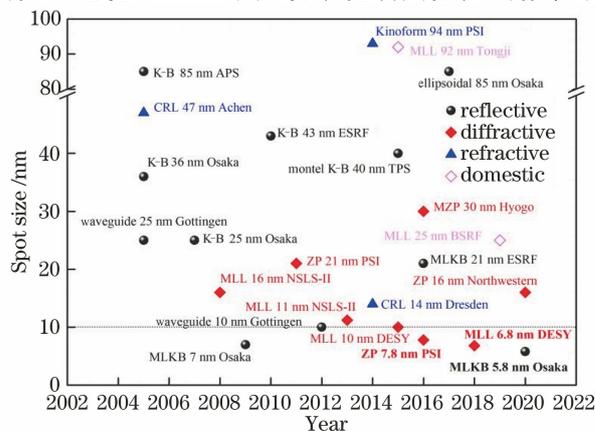


图 1 近 20 年硬 X 射线百纳米以下聚焦的发展历史
Fig. 1 Development history of hard X-ray focusing below 100 nm in the last two decades

径成功地获得了单纳米的聚焦光斑,同时可保持较高的传输效率。

2.1 衍射型元件

2.1.1 菲涅耳波带片

菲涅耳波带片结构如图 2(a)所示,菲涅耳波带片是被广泛应用于 X 射线聚焦和成像系统的衍射光学元件。在不考虑吸收的情况下,菲涅耳波带片的聚焦效率在其达到 π 相移结构高度的情况下达到最大。在满足相移要求的情况下,硬 X 射线区域中波带高度的最佳值是微米尺度的。随着能量的增加,其最优波带高度也在增加。波带片系统的空间分辨率取决于其外环最小波带宽度。因此,当兼顾考虑高衍射效率和高分辨率时,波带片结构需具有尽可能大的高宽比。受限于目前波带片的制备工艺,波带高度往往很难达到理论值,使得硬 X 射线范围内波带片的衍射效率通常仅为百分之几。

常见的波带片制备工艺有电子束光刻(EBL)^[16]、干法刻蚀^[17]和湿法刻蚀^[18]等。电子束光刻是制备菲涅耳波带片较为成功的技术,它光刻图案的精度可以达到几纳米,而波带片外环宽度往往受限于抗蚀剂材料中的电子散射效应。在软 X 射线波段中,目前加工的波带片最外环宽度已经接近 10 nm,并且聚焦光斑尺寸达到 10 nm^[19]。在硬

X 射线波段中,为获得更高的衍射效率,元件的高宽比需要达到 20 以上,加工难度更大,常规技术下往往最外环宽度只能达到 25 nm^[20-21]。2005 年,瑞士 Paul Scherrer 研究所(PSI)的研究团队发展了一对线型波带片,于光子能量 10 keV 下实现了 140 nm 的空间分辨率,衍射效率为 7%^[22]。2010 年,该团队又发展了一种环形双波带片,在基板前后两面利用自对准电子束曝光相同的波带图案,并使用原子层沉积技术镀上 Ir 材料,如图 2(b)所示,从而可以获得 15 nm 的最小外环宽度,于光子能量 6.2 keV 下测试可以获得 7.5%的衍射效率^[23],于光子能量 9 keV 下测试可以获得 9.9%的衍射效率,比原先的衍射效率提高了 2 倍^[24]。在 2011 年的测试中,PSI 的研究人员使用最外波带宽度为 20 nm 的圆菲涅耳波带片聚焦获得半峰全宽为 23 nm 的圆聚焦光斑^[25]。2016 年,他们进一步提升工艺,将厚度为 300 nm 的波带片的最外波带宽度减少到了 7 nm,并在光子能量 9 keV 下测得光斑尺寸为 7.8 nm,衍射效率为 0.52%^[26]。2020 年,美国西北大学的研究团队利用金属辅助化学刻蚀技术结合原子层沉积技术制备出了最外波带宽度为 16 nm,厚度为 1.8 μm 的波带片,其聚焦光斑尺寸接近 16 nm,但衍射效率提高到了 4.7%^[27]。

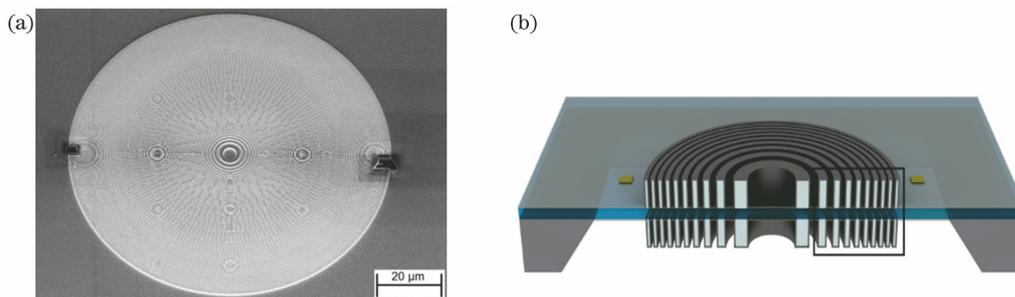


图 2 波带片示意图^[24]。(a)波带片结构;(b)镀 Ir 的双波带片抗蚀剂模板

Fig. 2 Schematic diagram of zone plate^[24]. (a) Structure of zone plate; (b) double zone plate resist template coated with Ir

综上所述,虽然随着工艺的改善,最外环结构宽度不断减小,聚焦光斑尺寸已经突破 10 nm,但是波带片的高宽比依然和理论最优值有很大差距,这严重制约了波带片的传输效率。为进一步改善波带片系统整体的衍射效率,通过机械结构将多个波带片对齐来增加其有效高度成为了目前探索的一种有效方案。美国 APS 光源的科研人员利用高精度的结构一次对齐 5 块波带片,在光子能量 25 keV 下将原本单一波带片仅 2.4%的衍射效率提升到了 19.0%,而聚焦光斑仅从 350 nm 增加到 390 nm^[28]。

目前,国内在菲涅耳波带片制备领域也有了长

足进步。复旦大学陈宜方团队在 2017 年加工出了最外环宽度为 100 nm、高宽比为 16 的波带片和最外环宽度为 50 nm、高宽比为 11 的波带片^[29]。

菲涅耳波带片作为一种相对成熟的二维聚焦元件,在 X 射线波段中已经可以稳定地获得尺寸为 25~30 nm 的聚焦光斑。由于菲涅耳波带片对角度稳定性要求相对较低,运动调节机构相对简单,故其在各种聚焦和成像系统中被广泛应用。然而,值得注意的是,波带片元件的聚焦尺寸和衍射效率几乎是相悖的两个因素,这使得在目前工艺条件下,传统的菲涅耳波带片很难实现更小的光斑尺寸。此外,

实现聚焦光斑尺寸在 20 nm 以下的波带片工艺还需要不断提高元件的光束传输效率。利用不同的波带结构设计获得各类结构光束是未来一段时间内较为可行的路线。

2.1.2 多层膜劳厄透镜

多层膜劳厄透镜是一种特殊的波带片聚焦元件,和传统的波带片一样,其聚焦性能与最外层多层膜膜层厚度有关^[30]。相比波带片,利用薄膜沉积技术加工的劳厄透镜可以很容易地通过微加工方式获得微米级的结构高度,进而使得透镜可以获得接近理论的衍射效率。此外,利用多层膜结构的布拉格反射特性可以显著提高系统的光束传输效率。

劳厄透镜分为线性结构和圆形结构两种。线性结构是使用正交排布的两块透镜分别从两个方向将 X 射线聚焦到同一焦点位置处。透镜由反向沉积在

平面基底上的梯度厚度多层膜拼接组成,通过优先加工精度要求最高的最外层薄膜有效缓解了透镜膜层漂移的问题。这类劳厄透镜存在三种常见类型:平面型结构类似一维波带片,效率极低;倾斜型结构,如图 3(a)所示,部分区域可以满足布拉格反射条件,其中 f 为透镜焦距, Z 为波带高度, θ 为倾斜角, d_N 为第 N 个波带的宽度。楔形结构可以使每个膜层几乎都满足布拉格反射条件,利用多层膜的相干条件可显著提高衍射效率和空间分辨率,如图 3(b)所示。圆形结构的劳厄透镜接近于波带片系统,多层膜结构沉积在圆柱的基底上,可以利用一个劳厄透镜实现二维聚焦。然而,这种结构在多层膜沉积过程中是先沉积内部最厚波带最后再沉积最外环最薄波带的,在长时间沉积后沉积速度变得不稳定,从而很难控制外层波带的厚度精度。

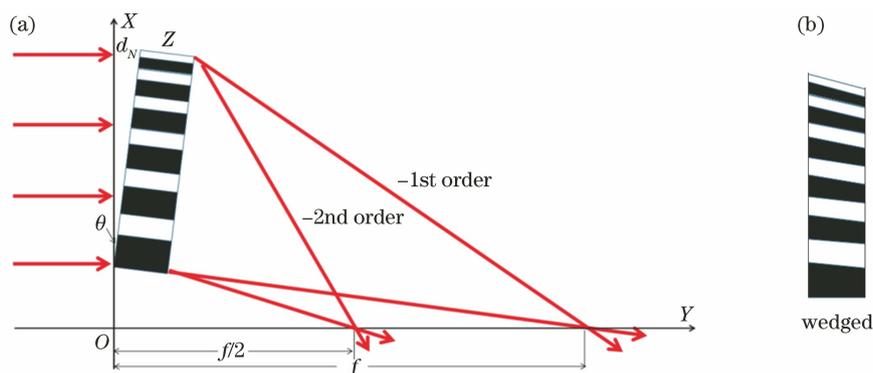


图 3 多层膜劳厄透镜示意图。(a)倾斜式多层膜劳厄透镜聚焦;(b)楔形模式的改进

Fig. 3 Schematic diagram of multilayer Laue lens. (a) Tilted multilayer Laue lens focusing; (b) optimization by wedged module

多层膜劳厄透镜在纳米聚焦方面有着重要的应用。2007 年,美国 NSLS-II 同步辐射光源 Yan 等^[31]利用 Takagi-Taupin 描述的动力学衍射理论计算了线性劳厄透镜的衍射效率并研究了光束的传播特性,证明了理论下这种元件可以获得尺寸小于 1 nm 的聚焦光斑。随后,NSLS-II 光源的研究团队使用多层膜劳厄透镜在 19.5 keV 光子能量下分别在 2008 年和 2011 年实现了光斑尺寸为 16 nm 的一维聚焦光^[32]和光斑尺寸为 25 nm × 40 nm 的二维聚焦光^[33],但二维衍射效率只有 17%。2013 年,他们制作的透镜在 12 keV 光子能量下将 X 射线光斑尺寸聚焦到了 11.2 nm,焦距为 4.2 mm^[34]。2015 年,他们发展了楔形透镜,在 14.6 keV 光子能量下测得了尺寸为 26 nm 的聚焦光斑,衍射效率提高到了 27%^[35]。这种多层膜劳厄透镜聚焦系统随后成功地被装配到了 NSLS-II 光源的硬 X 射线纳米探

针线站上,实现了光斑尺寸小于 20 nm × 20 nm 的二维聚焦实验应用。

多层膜劳厄透镜在欧洲也得到了快速发展。2013 年,德国哥廷根大学的团队利用 K-B 聚焦系统和圆形多层膜劳厄透镜进行两级聚焦,实现了尺寸小于 5 nm 的聚焦光斑,然而其焦距仅有 50 μm^[36]。2015 年,德国 DESY 光源 Morgan 等^[37]加工制作了楔形多层膜劳厄透镜,在 1.2 mm 焦距上将 17 keV 光子能量下的 X 射线光斑尺寸聚焦到了 10 nm 以下。2018 年,Bajt 等^[38]在 16.3 keV 光子能量下实现了尺寸为 8.4 nm × 6.8 nm 的二维聚焦光。同年,德国 Fraunhofer 研究所发展了一种长焦距 (9.5 mm)的劳厄透镜,在 12.7 keV 光子能量下测得了尺寸小于 25 nm 的光斑^[39]。

在国内,科研人员在劳厄透镜的计算和制备领域也进行了诸多研究。同济大学^[40-41]、上海同步辐

射光源^[42]和中国科学院高能物理所^[43]的研究人员利用动力学理论模拟了多层膜劳厄透镜的传输和聚焦特性,并模拟了各种环境因素对聚焦系统的影响。2014年,同济大学和中国科学院高能物理研究所的研究人员在上海同步辐射光源硬 X 射线微聚焦及应用线站,利用厚度为 $7.9 \mu\text{m}$ 的劳厄透镜在一维方向上对光子能量为 18 keV 的 X 射线进行聚焦,得到了尺寸为 221 nm 的光斑^[44]。2015年,他们又制作了最外膜层厚度为 10 nm 的透镜,并在 14 keV 光子能量下得到了尺寸为 92 nm 的聚焦光斑^[45]。在 2019 年的测试中,他们最新制作的劳厄透镜的聚焦性能接近 25 nm 。多层膜劳厄透镜也是建设中的北京高能同步辐射光源纳米探针线站的核心聚焦元件,可使得焦斑的尺寸小于 10 nm ^[46]。

多层膜劳厄透镜作为菲涅耳波带片的一种线性特型,几乎已经克服了波带片传输效率和聚焦光斑尺寸方面存在的缺陷。然而,多层膜劳厄透镜作为一组正交结构,其调节相比波带片要复杂得多。作为衍射极限单纳米聚焦的重要元件,劳厄透镜系统只有毫米级的工作距离一直为应用者所诟病。若要在不改变数值孔径的条件下增加工作距离,则必须增加劳厄透镜的口径尺寸,这就需要进一步改善目前梯度多层膜的沉积工艺精度并提高长时间稳定性。相信随着相关工艺的进一步提升,在不久的将来可以实现高衍射效率的单纳米聚焦系统。

2.2 折射型元件

2.2.1 复合折射透镜

由于大多数材料对 X 射线的折射率(δ)都略小

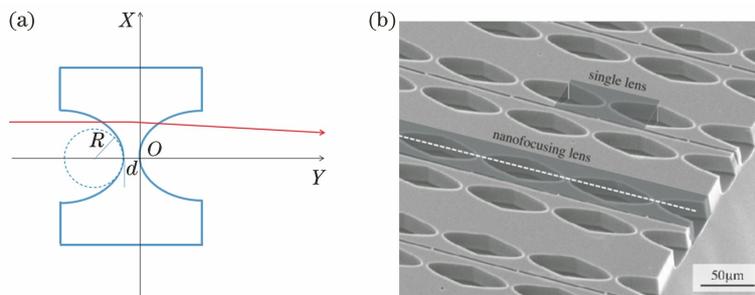


图 4 折射透镜示意图。(a) X 射线束在单个折射透镜中的传播;(b)纳米聚焦抛物型折射透镜的扫描电子显微镜图^[49]

Fig. 4 Schematic diagram of refractive lens. (a) X-ray beam propagation in single refractive lens;

(b) scanning electron microscope image of nanofocusing parabolic refractive X-ray lenses^[49]

2.2.2 Kinoform 透镜

为降低传统折射透镜对 X 射线的吸收,Kinoform 透镜于 2000 年被提出^[52],如图 5(a)所示,它通过去除透镜中厚度满足 2π 整数倍相移的冗余部分,显著降低了透镜系统对于 X 射线的吸收,

于 1,因此单折射 X 射线透镜理论上无法实现聚焦效应。然而,将多个单折射 X 射线透镜排布成线性阵列却可以克服这个问题,实现 X 射线的逐渐聚焦,其整体焦距可表示为 $f = R/[2\delta(M-1)]$,其中 R 是每个透镜间孔隙的半径, M 是透镜数量。折射透镜示意图如图 4 所示,其中 d 是透镜最薄处厚度。1996 年,欧洲 ESRF 光源 Snigirev 等^[5]发展了基于 X 射线折射效应的复合折射透镜聚焦系统。在 高能 X 射线波段,这种元件现在已经被广泛地作为预聚焦元件应用于同步辐射光束线中。

德国亚琛大学 Schroer 等^[47]利用理论模拟证实了孔径可变的复合折射透镜的聚焦尺寸极限可以小于 2 nm 。2003 年,他们加工的抛物型折射透镜在 25 keV 光子能量下获得了尺寸为 210 nm 的聚焦光斑^[48],并在次年进一步缩小焦斑尺寸至 110 nm ^[49]。2005 年,他们利用加工的基于硅材料的抛物型复合折射透镜,采用正交放置的模式对光子能量为 21 keV 的 X 射线进行聚焦,在焦距为 19.4 mm 的情况下获得了尺寸为 $47 \text{ nm} \times 55 \text{ nm}$ 的二维焦斑^[50]。2017 年,德国德累斯顿大学的研究团队发展了基于硅材料的孔径可变的复合折射透镜,在 20 keV 光子能量下实现了尺寸为 $18.4 \text{ nm} \times 14.0 \text{ nm}$ 的聚焦光斑^[51]。

复合折射透镜目前在同步辐射领域已经被广泛作为硬 X 射线波段的预聚焦和微米聚焦元件,同样也是高能 X 射线重要的聚焦元件,其元件加工难度较低而调节简便的优势使得其在未来一段时间依然是同步辐射领域不可替代的元件之一。

在 15.6 keV 光子能量下光束传输效率优于 80% 。使用阵列的 Kinoform 结构具有在光传播方向尺寸过长的特点,于是有些研究者对其结构进行了改进,将透镜的台阶结构折回到同一平面中,从而压缩透镜长度,形成了类似于“蕨类”的波带片结构^[53],如

图 5(b) 所示。显然, Kinoform 透镜可以看作一种特殊的线性波带片结构, 从而兼顾衍射型和折射型

元件的特点。

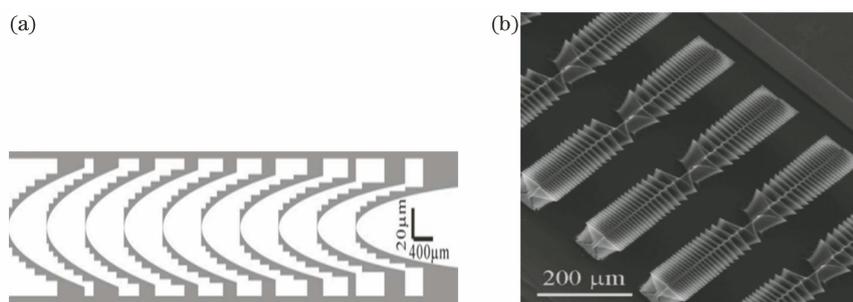


图 5 Kinoform 透镜示意图。(a)孔径渐变的透镜阵列示意图^[54]; (b)“蕨类”形态的折射透镜的扫描电子显微镜照片^[53]

Fig. 5 Schematic diagram of Kinoform lens. (a) Schematic diagram of lens array with graded apertures^[54]; (b) scanning electron microscope image of refractive lens with “fern-like” profile^[53]

2011 年, 英国 Diamond 光源 Alianelli 等^[55]利用单个 Kinoform 透镜在欧洲 ESRF 光源中实现了 X 射线的一维聚焦, 得到了尺寸约 200 nm 的聚焦光斑。2014 年, 瑞士 PSI 的研究人员利用一对正交的 Kinoform 透镜, 在倾斜条件下获得了尺寸为 103 nm × 93 nm 的二维聚焦光斑。透镜系统可以覆盖 5~20 keV 的宽能谱, 并且在 8 keV 光子能量条件下测得了 50% 的衍射效率^[56]。

近年来国内在 Kinoform 透镜领域有着很大的进步。2016 年, Liao 等^[54]设计了基于聚甲基丙烯酸甲酯材料的长 Kinoform 透镜组, 如图 5 所示, 每个单透镜曲率半径逐渐减小, 并在北京同步辐射装置上实测了 8 keV 光子能量下的焦斑尺寸, 其值为 440 nm, 衍射效率为 31%。2018 年, Xu 等^[57]制造了各种硅基和锗基 Kinoform 透镜, 透镜深宽比可高于 70, 并在上海同步辐射光源微聚焦线站进行了测试, 在 12 keV 光子能量下, 焦距为 8 cm, 焦斑尺寸为 870 nm。

总体来看, Kinoform 透镜具有着远优于波带片和传统复合折射透镜的传输效率, 但其相对复杂的台阶结构加工工艺, 尤其是“蕨类”等形态的透镜的纳米加工工艺仍然充满挑战性。考虑到 Kinoform 透镜目前最佳的聚焦光斑尺寸依然在 100 nm 左右, 远没有到达其理论值, 其发展潜力依然巨大。特别是对于高能 X 射线波段 (> 30 keV), Kinoform 透镜拥有广阔的应用前景。

2.3 反射型元件

2.3.1 K-B 镜聚焦系统

K-B 镜聚焦系统是一种经典的掠入射反射式聚焦元件, 也是同步辐射光源中最广为应用的二维微纳聚焦系统。它通过两块聚焦镜正交放置的方式, 显著减小像散, 实现二维 X 射线聚焦^[58]。K-B 镜聚焦系统有两种常见配置, 即标准的前后镜配置和 Montel 型配置, 如图 6 所示。标准型的 K-B 镜系统最早被 Kirkpatrick 和 Baez^[7]在 1948 年应用于 X 射线显微成像之中, X 射线先后在两块镜子上反射,

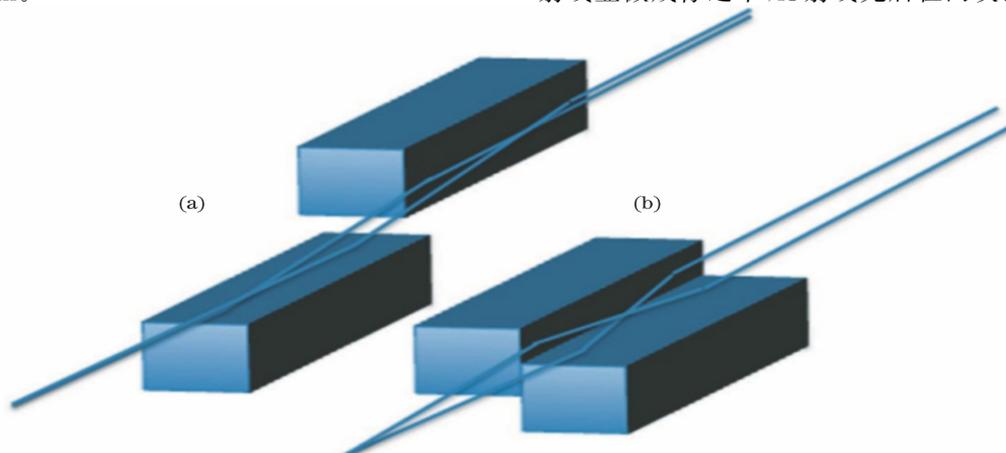


图 6 K-B 镜聚焦原理示意图^[58]。(a)标准型 K-B 镜; (b) Montel 型 K-B 镜

Fig. 6 Schematic diagram of K-B mirror focusing^[58]. (a) K-B mirror with standard mode; (b) K-B mirror with Montel mode

最后到达同一焦点。在这种配置中,往往两块镜子具有独立的调节机构,相对调节比较灵活,但这种前后配置会引起前镜的数值孔径不足和系统的工作距离较小的问题。图 6(b)为 Montel 型 K-B 镜,采用并排放置的两块镜子直接贴合的方式,不同区域的 X 射线各自在两块镜子上实现两次反射,最后到达焦点。这种配置克服了标准型 K-B 镜短工作距离的缺陷,精简了系统的调节机构,并且理论上可以得到更大的光束传输通量^[59],但在实际使用中两块镜子贴合部分的缺陷会造成严重的光束通量损失。

传统的 K-B 聚焦镜是单层镀膜的全反射镜,即在掠入射角小于镀层材料的全反射角 θ_c 范围 ($\theta \leq \theta_c = \sqrt{2\delta}$) 内,可以在低于截止能量下无色差地高反射入射光,但是表面材料较小的全反射角限制了聚焦镜的数值孔径。随后,多层膜技术的引入使得反射光可以在特定厚度且不同折射率的膜层之间干涉,可在更大的掠入射布拉格角和数值孔径(约全反射情况的 3~10 倍)下实现高反射,从而获得尺寸更小的聚焦光斑^[60]。然而,由于多层膜是一种单色元件,故特定多层膜结构的聚焦镜仅可以在多层膜的带宽 ($\Delta\lambda/\lambda \approx 10^{-2}$) 范围内使用。

得益于结构简单、光通量高和工作距离长等优点,K-B 聚焦镜在日本 SPring-8、美国 APS、欧洲 ESRF、中国 SSRF 和中国台湾 TPS 等同步辐射光源的 X 射线微聚焦和纳米聚焦线站上得到了广泛应用。制约 K-B 镜衍射极限聚焦性能的主要因素来自于镜面面形的抛光加工技术。2001 年,欧洲 ESRF 光源制备的多层膜 K-B 聚焦系统,首次实现了亚微米量级的硬 X 射线聚焦^[61]。2003 年,日本大阪大学的科研人员采用弹性发射加工和等离子化学汽化加工两种新的加工方法制备了椭柱面型的 K-B 聚焦镜,并在 15 keV 的能量下,获得了尺寸为 200 nm×200 nm 的二维聚焦光束^[62]。2005 年,美国 APS 光源的研究人员利用差分抛光技术制备的短焦距 K-B 镜聚焦系统获得了尺寸为 85 nm×95 nm 的聚焦光斑^[63]。同年,日本大阪大学的科研人员制作出了峰谷(PV)面形误差为 2 nm 的超高精度 K-B 聚焦镜,于 SPring-8 光源 15 keV 能量下实现了尺寸为 36 nm×48 nm 的二维衍射极限聚焦^[64]。K-B 聚焦镜在实现纳米聚焦过程中受限于衍射极限,若要单独使用多层膜 K-B 镜聚焦系统实现纳米聚焦,结合瑞利判据,即镜面所产生的波前误差小于 $\lambda/4$,其镜面的面形误差需要优于 0.6 nm (PV),该要求超出了目前世界最好的镜面抛光技术

所能实现的范围^[65]。为克服现有工艺的限制,日本大阪大学 Mimura 等^[66-67]将具有较小掠入射角的全反射相位补偿镜和具有大数值孔径的梯度多层膜 K-B 镜结合,在 SPring-8 光源的超长线站 (BL29XUL) 上实现了光斑尺寸为 7 nm 的一维聚焦,并随后获得了尺寸为 7 nm×8 nm 的二维聚焦光斑,达到了衍射极限纳米聚焦。2011 年,欧洲 ESRF 光源的科研人员基于多层膜技术,设计制造了面形可调的 K-B 聚焦镜,在光子能量 17 keV 下实现了尺寸为 59 nm×43 nm 的二维聚焦光束^[68]。2015 年,中国台湾 TPS 光源的研究人员基于 Montel 型 K-B 聚焦镜,在 10 keV 能量下实现了光斑尺寸大约为 40 nm×40 nm 的二维聚焦^[69]。2016 年,欧洲 ESRF 光源的科研人员加工出了两块固定面形的多层膜 K-B 聚焦镜,在 17 keV 和 33.6 keV 光子能量下分别实现了尺寸为 23 nm×37 nm 和 27 nm×21 nm 的二维聚焦光束^[70]。2020 年,大阪大学的研究人员在 SACLA 自由电子激光装置上利用 K-B 镜系统在垂直方向上获得了尺寸为 5.8 nm 的聚焦光斑^[71],这也是自由电子激光装置上第一次获得尺寸小于 10 nm 的光斑。

我国的同步辐射光源在 K-B 镜纳米聚焦方面也奋力向世界先进水平靠近。作为我国大陆地区第一台三代中能光源,上海同步辐射光源的硬 X 射线微聚焦及应用光束线站在 2015 年已经使用机械压弯的 K-B 聚焦镜实现了尺寸小于 2 μm 的二维聚焦^[72]。上海同步辐射光源线站工程中设计了新的硬 X 射线纳米探针线站,计划于 2022 年底建成。根据上海光源的特性,为保证更大的光子通量和更长的工作距离,该纳米探针线站将使用两级聚焦,并选用结合相位补偿技术的多层膜 K-B 聚焦镜方案,期望获得尺寸为 10~30 nm 的二维纳米聚焦光斑,进而满足国内外研究者的科研需要。与此同时,我国的反射镜镜面加工技术近年来也在不断进步,以满足大科学装置反射镜的应用需求。比如:同济大学、中国科学院长春光学精密机械与物理研究所等利用离子束抛光技术加工中小尺度的平面镜,其均方根误差(RMS)斜率误差可以小于 0.2 μrad ;中国科学院光电技术研究所小尺寸椭圆柱面镜的加工精度方面可达到 0.5 μrad 的斜率误差。然而,与国际最先进的工艺水平相比,尤其在聚焦元件的非平面和非球面表面的高精度加工上,目前国内反射镜的抛光技术显然还存在较大差距。

总体而言,基于反射镜的聚焦系统依然占据同

步辐射和自由电子激光领域聚焦元件的一半以上,其较强的集光和传输能力依然极具优势。对于衍射极限纳米聚焦而言,基于反射镜的 K-B 系统是最早接近理论极限的元件,也是最早突破到单纳米的元件,但值得注意的是,反射镜的表面抛光工艺已经接近瓶颈,故进一步改善其聚焦光斑尺寸变得非常困难。然而,相比衍射型和折射型元件,基于反射镜系统的聚焦元件更容易与自适应调节系统结合,这为光斑的波前操控提供了更大便利,使得最终的聚焦光斑尺寸和形态有着更好的可调节性,方便满足不同实验应用需求。

2.3.2 X 射线锥形波导

利用材料的全反射特性实现聚焦的元件还包括毛细管和波导元件。受限于加工工艺,传统毛细管的聚焦光斑尺寸一般只有几十微米,很难直接用作纳米聚焦元件。利用高精度的薄膜沉积技术,X 射线波导的应用被推进到了纳米聚焦领域中。

X 射线锥形波导是一种三明治结构的厚度渐变的薄膜共振腔,其中间层薄膜材料相比两侧薄膜的折射率更高,而吸收更低。当 X 射线以特定掠入射角入射进入薄膜共振腔时,就可以在锥形的波导内实现传输,并在波导的出口处形成聚焦。波导的聚

焦尺寸取决于薄膜结构的几何尺寸和薄膜厚度。研究表明,这种结构的理论衍射极限为 $7 \sim 10 \text{ nm}$ ^[73]。2000 年,荷兰阿姆斯特丹大学的研究人员利用一个锥形平面波导结构在 ESRF 光源下在波导出口处测得了尺寸为 26 nm 的线性聚焦光斑^[74]。2005 年,德国哥廷根大学的研究人员结合 K-B 镜系统和二维波导进行聚焦,在光子能量为 12.5 keV 下于波导出口处测得尺寸为 $25 \text{ nm} \times 47 \text{ nm}$ 的二维聚焦光斑^[75]。随后,他们进一步发展基于 Ge/Mo/C/Mo/Ge 的薄膜二维正交平面波导结构,获得光斑尺寸接近 $10 \text{ nm} \times 10 \text{ nm}$ 的二维聚焦^[76-77]。2015 年,德国哥廷根大学 Chen 等^[78]发展了一种填充空气的硅锥形波导,获得了尺寸为 $16.48 \text{ nm} \times 14.60 \text{ nm}$ 的二维聚焦光斑,出口通量比等效直通光高 8 倍。

X 射线波导元件也是较早获得纳米聚焦的元件之一,但是其工作距离极短的特性导致它不能与其他聚焦元件一样被广泛地使用在同步辐射领域的各个线站中。然而,X 射线波导元件作为一种小型化元件,若可以集成到一些特定的表面或超薄样品的近场能谱检测和成像系统中使用,则有可能凸显出其结构简单和聚焦稳定的优势。波导元件的工作原理示意图如图 7 所示。

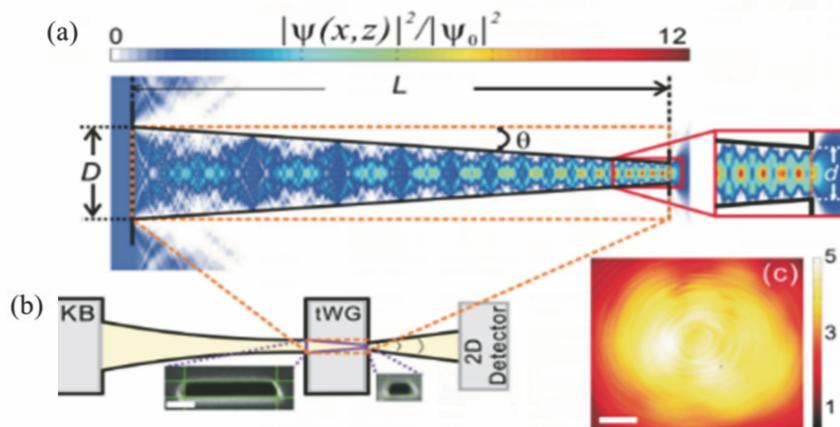


图 7 波导元件的工作原理示意图^[78]。(a)锥形波导中的光束传播;(b)实验布局(波导的入口端位于 K-B 镜的焦平面处);(c)出射光的远场成像

Fig. 7 Schematic diagram of working principle of waveguide^[78]. (a) Beam propagation in tapered waveguide; (b) experimental layout (entrance side of waveguide is located at focal plane of K-B mirror); (c) far-field imaging of exit beam

2.4 小 结

硬 X 射线聚焦元件在过去的 20 年间取得了巨大的进展,从百纳米的聚焦光斑尺寸推进到了 10 nm 以内。纵观众多的聚焦技术,如表 1 所示,作为衍射元件代表的多层膜劳厄透镜和反射元件代表的多层膜 K-B 聚焦镜性能更为突出,在保持较高传

输效率的同时,聚焦光斑尺寸分别已经达到 7 nm 和 6 nm 以下。反射元件严重受限于镜面加工和检测技术,在近 10 年遇到了一定的瓶颈,想要继续推进到更小光斑尺寸存在很大难度。衍射型元件(如多层膜劳厄透镜)是衍射极限聚焦极具潜力的元件,但其衍射效率略低和工作距离短是限制其应用的两

个主要问题,需要在工艺精度和稳定性上进行改善。波导也可以获得 10 nm 左右尺寸的光斑,但是其焦点位于元件出口,这使得元件缺乏有效工作距离,限制了其实际应用。复合折射透镜是目前另一种比较有潜力的元件,因为在高能波段下,反射元件对表面

形貌的要求极高,所以折射型聚焦元件将是高能区域下很难替代的聚焦元件。通过进一步改进工艺,结合 Kinoform 模式的折射透镜可能在未来几年获得显著改善的光斑尺寸和传输效率。目前衍射型和折射型的聚焦元件也是国内发展最快的领域。

表 1 主要的硬 X 射线聚焦元件比较

Table 1 Comparison of main hard X-ray focusing optics

Item	Zone plate	Multilayer Laue lens	Compound refractive lens	Multilayer K-B mirror	Waveguide
Minimal spot size /nm	7.8	6.8	14	5.8	10
Efficiency	Low	Relatively high	Relatively low	High	Relatively high
Mechanism	Simple	Simple	Simple	Relatively complex	Relatively complex
Disadvantage	Low efficiency	Short working distance	Low efficiency in low energy regime	Difficult adjustment, monochromatization	No working distance

3 在线波前检测技术

对于硬 X 射线纳米聚焦光学而言,其聚焦光斑的尺寸特性和实时状态表征是非常重要的。由于纳米光斑的尺寸和稳定性都远小于面探测器的像素尺寸和一般刀口或细丝的粗糙度,故通过常规的探测器直接测量或者刀口扫描都很难甚至无法准确测量纳米光斑的尺寸。这种情况下,利用 X 射线的在线波前检测技术对纳米聚焦系统进行表征成为一种主流。

常见的在线波前检测技术包括细光束法^[79]、哈特曼波前传感器法^[80-81]、扫描相干衍射法^[82]、迭代相位恢复法^[83]、光栅干涉法^[84-85]和近场散斑法^[86-87]等。其中,细光束法和哈特曼波前传感法分辨率较低,并不适应于纳米聚焦光束的检测,而其他几种方法都具备在纳米聚焦检测领域中应用的潜力。这些方法使用的元件、对于光束的要求和方法本身的性能优劣都有很大的不同,本章节将着重讨论和比较

这些在线波前检测技术。

3.1 光栅干涉法

X 射线光栅干涉法是一种基于周期性光栅干涉原理的波前检测技术。当单色平行的 X 射线经过具有 π 或 $\pi/2$ 相移的周期性结构后,其衍射光束会发生干涉,并在分数塔尔博特距离上产生高衬度的塔尔博特自成像^[88],如图 8 所示,此时距离满足 $d_n = np_1^2 / (8\lambda)$,其中 n 为奇数, p_1 是衍射光栅的周期。利用光栅来调制 X 射线的波前,并用二维面探测器记录其自成像干涉条纹图样,通过记录空间不同位置的条纹的畸变和偏移就可以计算局部波前相位的梯度偏差,即波前斜率误差。傅里叶变换是一种常用的快速处理光栅探测数据的处理技术。

在常见的光栅干涉法中,通常在探测器前放置吸收光栅,通过调制上游相位光栅的自成像以形成清晰的莫尔条纹,来增加测试的角度灵敏度。英国 Diamond 光源的研究人员使用这种二维光栅干涉仪表征菲涅耳波带片的波前特性^[89]和光束波前曲

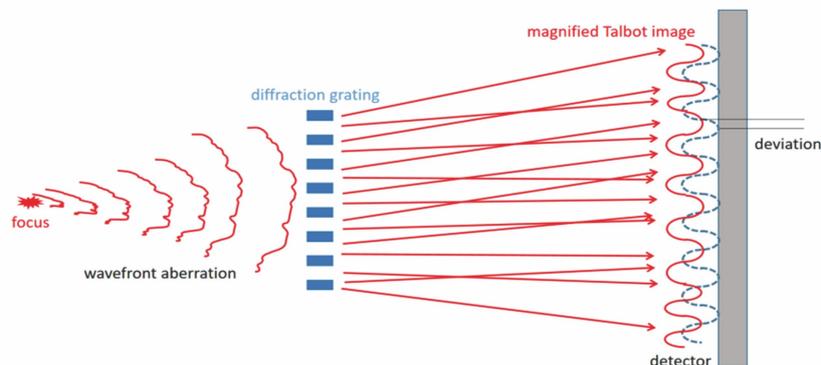


图 8 表征聚焦系统波前特性的单光栅干涉仪获得的放大的塔尔博特自成像

Fig. 8 Magnified Talbot self-imaging obtained by single-grating interferometer characterizing wavefront characteristics of focusing system

率^[90]等。中国科学技术大学的研究团队发展了一种实验室微聚焦光栅干涉仪来测量反射镜面形特性,装置可以同时记录直通光和反射光,其中直通光测试可以进行参数误差计算和球差补偿。这种技术的斜率误差测试精度优于 100 nrad^[91]。

对于聚焦光束而言,由于焦点后的光束具备很大的放大率,故单光栅干涉成为了一种可能。面探测器接收放大后的光栅自成像,可以在不需要产生莫尔条纹的条件下提高空间分辨率。这种技术已经被广泛应用于纳米聚焦光束的波前分析中^[92-93],被证明有大约 $\lambda/13$ 的波前测量精度($\lambda=0.124\text{ nm}$)。对于单光栅干涉技术,其相位光栅可以采用二维光栅,或者在测量不同方向时旋转一维光栅。

3.2 近场散斑法

基于近场散斑衍生的一系列波前检测技术在近年来得到了广泛的关注。2008 年, Cerbino 等^[94]揭示了散射体在 X 射线照射下在近场范围内具有可以形成尺寸和形状固定的散斑的特性。在 X 射线波前存在畸变的情况下,其空间对应位置的近场散斑会发生移动和变形,而检测这种位移和变形可以精确表征波前相位的梯度信息。从测量技术而言,近场散斑技术类似于光栅干涉技术,仅使用散射体替代光栅作为测试中的分析元件。散射体的材料选用常见的砂纸、薄膜等材料,成本远低于昂贵的光栅。对比光栅干涉技术,近场散斑技术运用傅里叶变换来计算偏移量,常使用数字图像相关算法

(DIC)^[95]来匹配测试和参考散斑图的小区域(子集),获取子集之间的偏移,从而计算这个波前局部的相位梯度。散射体的颗粒尺寸^[96]和子集选择决定了算法的精度和分辨率,自适应的子集选择可以兼顾高频信号和低频信号的检测^[97]。

常见的散斑技术包括散斑追迹技术和散斑扫描技术。散斑追迹技术对于聚焦光束而言,主要采用比较近场范围内沿光路方向移动探测器而记录的两张散斑图来计算对应位置的波前相位梯度^[98],非常类似于单光栅干涉仪技术。散斑追迹技术的测量精度正比于探测器的像素尺寸和子集偏移量的计算精度,反比于探测器的位移。目前已有如寻峰算法、迭代算法等多种方法可以将 DIC 精度提高到亚像素量级^[99-100],但探测器的有效像素尺寸仍然是限制散斑追迹测量法获得高精度的主要因素。散斑扫描技术在波前测量方向利用高精度电机对散射体进行扫描,从而获得一系列的散斑图像。对于这一系列散斑图,将它们某特定行的像素提取出来可以拼接出新的散斑图,此时新散斑图的长度为扫描张数和扫描步长的乘积。因此,算法中最小分辨率从由像素尺寸决定变成了由电机扫描步长决定,波前斜率的测量精度得到了显著改善,最高可达纳弧度量级。对于聚焦光束而言,散斑扫描技术分为前束流和后束流两种模式^[101],分别如图 9 (a)、(b)所示。其中, W_i 为入射光波前, W_o 为反射光波前, R_w 为波前曲率半径。

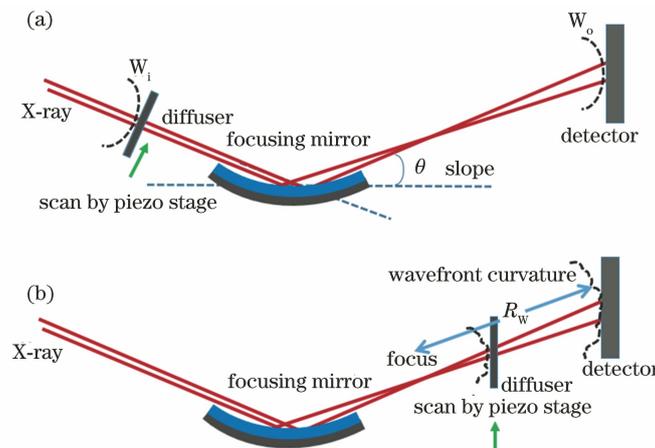


图 9 两种一维散斑扫描测量示意图。(a)前束流模式;(b)后束流模式

Fig. 9 Schematic diagrams of two kinds of one-dimensional speckle scanning measurement.

(a) Upstream mode; (b) downstream mode

前束流模式主要用于测量波前的相位梯度,也就是波前斜率误差,而后束流模式则用于测量波前相位的二次偏导,也就是波前曲率误差。前束流模

式常用于光学元件面形的直接检测。上海同步辐射光源的科研人员利用前束流技术精确测得直通光和反射光的波前斜率误差,作差后获得反射镜面的斜

率误差,并与离线纳米光学测量系统(NOM)的结果具有较好的吻合性^[102]。英国 Diamond 光源的科研人员假设镜面为平面,将探测器检测到的散斑成像计算的偏移量与几何位置关系计算的理论偏差进行比较,通过连续迭代的方法获得光束在镜面上的实际坐标,从而逼近真实的镜面斜率误差^[103]。

对于反射镜系统的校准或自适应调节,通常利用后束流技术^[104-105]。英国 Diamond 光源的研究团队基于后束流的散斑扫描方法,开发了一种 K-B 镜入射角自动校准方案^[106]。利用测得的曲率半径与入射角偏差的关系,可以计算出线性拟合系数,并使之为零以减小入射角误差,其精度优于 100 nrad。本团队也在上海光源运用这种技术优化压电变形镜来优化光斑特性,取得了显著效果^[107],并着重研究了光束和扫描电机的振动对散斑测量精度的影响^[86]。

除了传统的散斑追迹和扫描技术,德国 DESY

光源的研究团队于 2020 年结合散斑追迹技术和层叠扫描技术^[108]来表征多层膜劳厄透镜的波前特性^[109]。相比传统的散斑追迹技术,它可以表征高度发散的光束,且同样不需要 X 射线本身具备高相干性。这种技术在实验中实现了 3.4 nrad 的角度灵敏度和 45 nm 的图像空间分辨率。

除了上述的散斑测量技术,散斑独特的统计特性还被用来与波前误差直接建立联系。日本大阪大学 Inoue 等^[71]提出了一种基于单次曝光的散斑图像的强度自相关计算方法,来进行光学元件校准误差测定,实验装置示意图如图 10(a)所示。将一个铂金薄膜散射体置于焦点附近使得探测平面产生散斑,薄膜中颗粒尺寸需小于系统的衍射极限。如图 10(b)所示,自相关结果可以与 K-B 镜正交误差、入射角误差和相对焦距误差建立定量的联系。这种快速检测技术的角测试精度优于 0.5 μrad ,焦深测量精度优于 1 μm 。

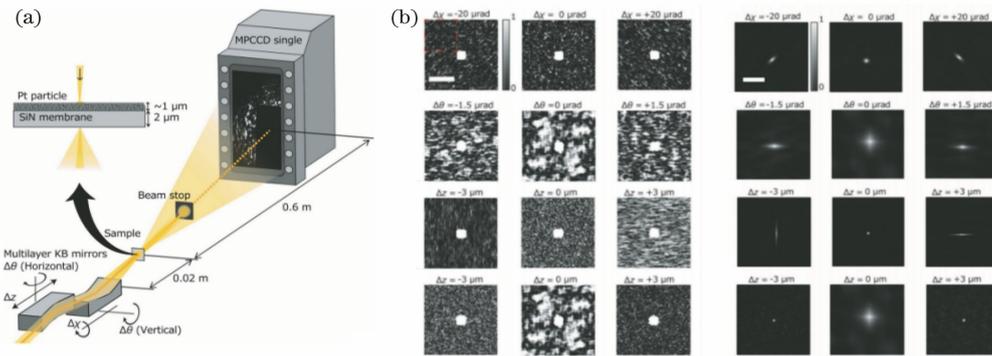


图 10 基于散斑统计信息的实验^[71]。(a)散斑干涉的实验架构;(b)散斑条纹及其自相关函数

Fig. 10 Experiment based on speckle statistics^[71]. (a) Experimental setup of speckle interferometry; (b) Speckle patterns and their autocorrelation functions

3.3 扫描相干衍射法

相干衍射是近年来同步辐射领域广泛使用的一种无光学元件成像技术,其基本实验架构如图 11 所示。它通过远场面探测器采集样品的衍射成像,利用相位重构技术来还原样品的相位分布。由于探测器只能采集强度信息,故为精确还原损失的相位信息,需要采用过采样方法产生冗余的衍射信息。因此,扫描相干衍射得到了发展,它通过对待测样品进行扫描来使得采集的衍射图像包含较多比例的重叠区域信号,通过精确的相位恢复算法^[110]在迭代过程中不断地比较假设的相位与实际测量相位间的误差,进而逼近真实的样品相位结构。这种技术相比其他表征技术有一个很大的优点就是可以同时重构出入射光束和待测样品的波前信息。若设入射光束波前为 $P(\mathbf{r})$,待测样品的复透射方程为 $O(\mathbf{r})$,则出

射波可以表示为 $\phi(\mathbf{r}) = P(\mathbf{r} - \mathbf{s})O(\mathbf{s})$ 。探测器采集的强度信息是出射波经过傅里叶变换后在波矢域分布的模平方。在相位恢复的迭代过程中,入射光束波前和待测样品复透射方程可以通过一个方程组建立关联计算,即

$$O(\mathbf{r}) = \sum \frac{P^*(\mathbf{r} - \mathbf{s})\phi(\mathbf{r})}{\sum |P(\mathbf{r} - \mathbf{s})|^2}, \quad (1)$$

$$P(\mathbf{r}) = \sum \frac{O^*(\mathbf{r} + \mathbf{s})\phi(\mathbf{r} + \mathbf{s})}{\sum |O(\mathbf{r} + \mathbf{s})|^2}, \quad (2)$$

式中: * 为共轭符号; \mathbf{r} 为入射波前的位置坐标; \mathbf{s} 为扫描过程中样品的位置坐标。

由于扫描衍射技术可以还原入射光束波前,故其可以被用来进行光学聚焦系统的表征。在表征过程中,介入一个标准的样品来获得一个较为精确的

$O(\mathbf{r})$, 可以进一步改善波前分布 $P(\mathbf{r})$ 的收敛速度和精度。如图 12 所示, 作为标准样品的分辨率靶和入射波前的复振幅函数可以被精确地重构。近年来扫描相干衍射技术已经被广泛应用于各类光学聚焦

系统的表征中, 如反射聚焦镜^[111]、波带片聚焦系统^[112]、K-B 镜聚焦系统^[113-114]、劳厄透镜纳米聚焦系统^[115]和复合折射透镜系统^[116]等, 其重建精度约为 $\lambda/12.7$ ($\lambda=0.154 \text{ nm}$)^[111]。

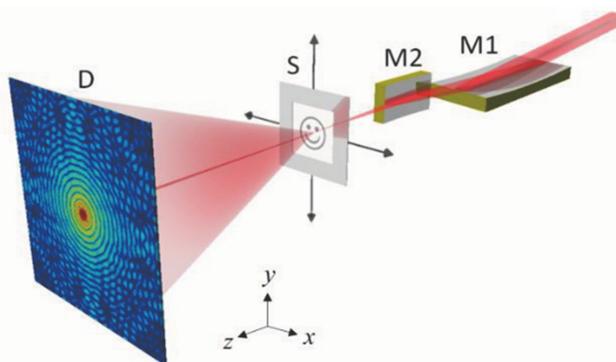


图 11 K-B 镜聚焦光束表征的实验示意图^[113]

Fig. 11 Experimental diagram for characterization of focused beam produced by K-B mirror^[113]

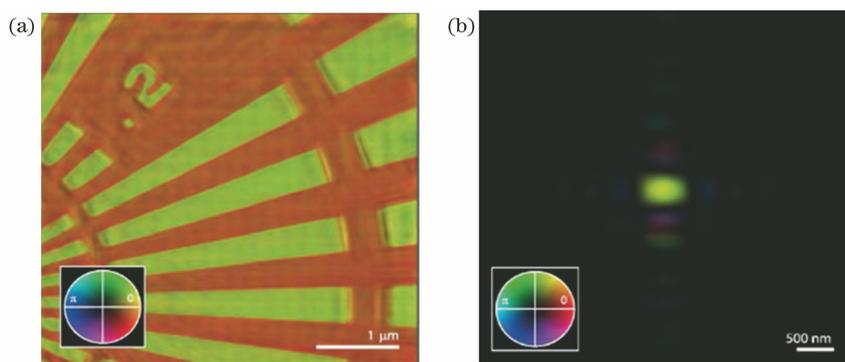


图 12 利用扫描相干衍射技术还原样品和入射波前^[114]。(a) 样品; (b) 入射波前

Fig. 12 Reconstruction of sample and incident wavefront by ptychography^[114]. (a) Sample; (b) incident wavefront

3.4 迭代相位恢复法

迭代相位恢复法与扫描相干衍射法相比, 其强度数据源于焦深附近多个波阵面的强度分布。焦深附近的强度分布测量最为直接的手段是刀口扫描, 然而对于纳米聚焦而言, 其焦深往往只有几微米, 故常规的刀口很难直接用于扫描。考虑到相位恢复方

法中, 光强分布的测量误差直接影响重构波前的精度, 日本大阪大学的研究团队加工了一种特制的微桥式刀口用于扫描^[117], 并且利用探测刀口边缘的暗场衍射光而不是直通光来精确得到各波阵面的强度分布, 使得测量数据具有更大的动态范围。迭代相位恢复法示意图如图 13 所示。

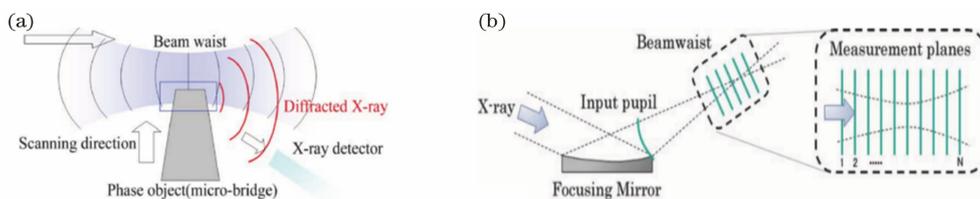


图 13 迭代相位恢复法示意图。(a) 束腰附近的波前和探测器在暗场中记录的衍射 X 射线^[118];

(b) 利用角谱传播遍历焦斑附近的多个波阵面实现相位迭代逼近^[83]

Fig. 13 Schematic diagram of iterative phase retrieval method. (a) Wavefront in vicinity of beam waist and diffracted X-ray recorded by detector in dark field^[118]; (b) phase iterative realized by angular spectrum propagation between multiple wavefronts near focal spot^[83]

对于波前相位的检测,其思路接近于扫描相干衍射技术。初始的相位分布是随机产生的,利用菲涅耳-基尔霍夫积分或者角谱传播等手段将波前从镜面传递到焦平面附近,计算每一个测量位置的波阵面强度分布,利用实测波阵面的强度替换振幅项后再传递给下一个波阵面。通过这种传递,相位可以不断迭代以实现收敛,从而逼近真实的波前分布^[83]。这种检测技术具有优于 0.15λ ($\lambda = 0.08 \text{ nm}$) 的测量精度^[118]。利用相关的技术,日本大阪大学最终实现了纳米聚焦下的波前测量,并通过系统校准和相位补偿,最终获得了尺寸小于 10 nm 的聚焦光斑。

3.5 小 结

在 X 射线的聚焦尺寸达到亚微米甚至纳米尺度后,或者在 X 射线光束传播进入完全相干光模式下,X 射线的焦斑尺寸的测量和光束波前实时表征将与大尺寸光束的情况有很大差异。无论是测量技术本身的适用性,还是设备环境的稳定性和精度都被提出了更高的要求。只有选择适用于相关聚焦元件的测量技术,聚焦元件的工作姿态才能被准确校准和调节,聚焦性能才能得到精确表征,进而才能实现进一步的波前操控和长时间的稳定使用。

表 2 常见在线 X 射线波前检测技术比较

Table 2 Comparison of common on-line X-ray wavefront detection techniques

Item	Grating interferometer	Near-field speckle	Ptychography	Iterative phase retrieval
Coherence	Low	Medium	High	High
Optics	Grating (one-dimensional or two-dimensional)	Sandpaper (two-dimensional)	Sample (two-dimensional)	Mirco-bridge knife
Experimental setup	Complex	Simple	Simple	Simple
Measurement mode	Single or scan	Single or scan	Scan	Scan
Data processing	Fast	Relatively fast	Slow	Relatively slow
Measurement object	Slope or curvature	Slope or curvature	Phase	Phase
Dark field information	Fringe visibility	Cross correlation		
Angular resolution	Relatively high	Relatively high	High	High
Main disadvantage	Complex setup, expensive optics, phase wrapping	Slow data processing for two-dimensional mapping	High coherence, slow data processing	High-precision knife, high coherence, slow data processing

4 相位操控技术

衍射极限条件下的聚焦对光束的波前误差有着严苛的要求。为保持完美的相干 X 射线波前,各种光学元件引起的波前误差需小于光束波长的 $1/14$ (RMS) 或 $1/4$ (PV)。对于这种要求,通过元件本身的加工很难达到,尤其对于衍射极限聚焦而言,需要尽可能增大聚焦系统的数值孔径,而孔径的增加本

本章节主要介绍了 4 种 X 射线纳米聚焦光束在线表征技术,从原理上它们可以分为两类:1) 基于分析元件的波前斜率或曲率测量技术,如光栅干涉技术和近场散斑技术;2) 基于相干衍射光束强度重建波前相位的测量技术,如扫描相干衍射技术和迭代相位恢复技术。表 2 比较了这些测量技术的主要测量条件和性能。基于分析元件的测量技术对光束相干性的要求较低,所以在目前的同步辐射装置甚至实验室 X 射线装置中都可以开展。目前相关技术在国内包括上海同步辐射光源、合肥同步辐射光源等已经成功发展,并在大光斑模式下得到了应用,相信不久后可以在各光源的亚微米和纳米光束线站中得到应用。扫描相干衍射技术近年来是 X 射线领域中广泛应用的热点技术,在国内包括上海同步辐射光源、北京高能同步辐射光源、上海科技大学等都开展了大量的研究工作。随着新一代同步辐射光源和自由电子激光光束相干性的提升,这类基于相干光束强度重构的技术将得到进一步推广。相对基于分析元件的测量技术,相干衍射技术的理论空间分辨率更高,随着近年来计算机计算能力的显著提升,其计算时间较长的劣势也得到了进一步改善,该技术将很快被推进到纳米聚焦光斑的表征应用中。

身就意味着更难实现元件像差的控制。比如,对于反射聚焦镜,波前误差 $\Delta\psi$ 与镜面高度误差 Δh 存在的关系为 $\Delta\psi = 4\pi\Delta h \sin \theta/\lambda$ 。为不破坏光束相干性,大数值孔径聚焦镜的面形高度误差需要控制在 1 nm(PV) 甚至 0.5 nm 以内,这通过非柱曲面直接加工成型或者平面镜加工后再压弯的方法都无法达到,并且在元件的夹持或者装调过程中还会引入更多不可预测的面形误差。在这种情况下,在 X 射线

光路中额外加入相位补偿元件或者主动调节元件对光路直接进行波前补偿成为了一个新的研究热点。总体来说,相关的相位补偿元件可以分为反射镜和折射相位片两种。

4.1 基于反射镜的相位补偿元件

利用具备相位补偿或操控能力的反射镜在光路中对光束波前进行补偿的技术可分为静态补偿和主动操控两种。

静态补偿是指对于已测得的波前误差,在反射镜加工过程中人为预先通过增材(沉积、离子注入)或者减材(溅射、刻蚀)技术制造相反的等效面形误差来实现对最终波前的补偿。比较常见的静态补偿技术是差分镀膜沉积技术。如图 14 所示,日本大阪大学的研究团队利用差分镀膜修正后的聚焦镜使得 RMS 波前误差减少为原来的 25%^[119]。

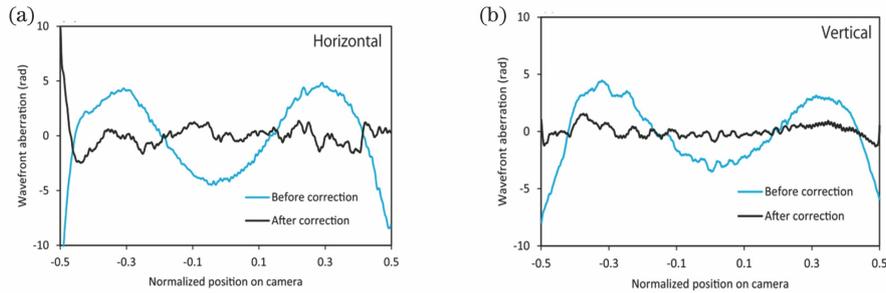


图 14 校正前后 K-B 镜面形的波前像差^[119]。(a)水平聚焦镜;(b)竖直聚焦镜

Fig. 14 Wavefront aberrations of shape of K-B mirror before and after correction^[119].

(a) Horizontal focusing mirror; (b) vertical focusing mirror

然而,现实的同步辐射光束线,尤其对于第四代光源而言,较高的热功率密度会造成白光或粉光条件下束线元件严重热形变。在低温冷却系统共同作用下,随着单色器选择能量的改变,这种形变变得复杂且不稳定^[120]。对于这类情况,静态的补偿技术就出现了局限性。因此,主动或自适应的补偿技术近年来成为了一个新兴的热点。在世界范围内的主流同步辐射光源中,如日本 SPring-8、法国 ESRF、英国 Diamond 和美国 APS 等,主动补偿技术已经被尝试用于实现 1 m^[121]到 50 mm 的不同尺寸反射镜的中低频面形的修正。

X 射线的主动补偿镜有多种形式,包括双晶和单晶等常见模式的压电变形镜^[122]、磁控变形镜^[123],以及温控变形镜^[124]等。同步辐射常用的压电变形镜至少包含三个部分,即反射镜、压电陶瓷

(PZT)和促动器。其中,压电陶瓷和促动器根据设计可以粘贴在反射镜的正面、背面或侧面。如图 15 所示,当压电陶瓷受到厚度方向的电压驱动时会在陶瓷沿镜长方向发生伸缩效应,从而带动其粘贴的镜体发生弯曲产生凹或凸的局部面形特性。其中, t 为镜体厚度, M_y 为压弯力矩。基于梁压弯理论,压电变形镜面形曲率与电压之间的关系为 $R_{\text{mirror}} = h^2 / (\beta d_{31} V)$ ^[125],其中 h 为变形镜厚度, β 为与变形镜材料和结构有关的常数, d_{31} 为沿镜长方向的陶瓷的压电常数, V 为输入电压。由单位电压改变而造成的面形曲率或高度变化称为压电响应函数,它表征了任一促动器对镜体的调节能力。在配备监测绝对距离的传感器后,这种压电变形镜可以实现稳定的亚纳米级别的面形控制精度和千赫兹级别的面形监测与压电促动调节^[126-127]。

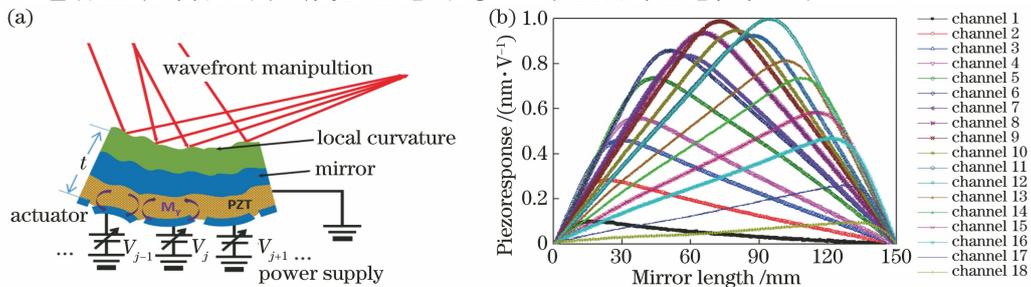


图 15 压电变形聚焦镜的工作原理。(a)压电变形聚焦镜示意图;(b) 18 通道的压电变形镜的压电响应函数

Fig. 15 Working principle of piezoelectric deformable focusing mirror; (a) Schematic diagram of piezoelectric deformable focusing mirror; (b) piezoresponse functions of piezoelectric deformable mirror with 18 channels

欧洲 ESRF 光源最早研制了一种双晶片形式的主动式压电变形镜。使用 6 组促动器将光斑尺寸聚焦到了 $14\ \mu\text{m}$ ^[128]。随着促动器数量的增加,变形镜面形可以被调节成非球面,进而有效补偿低频面形误差。随后,压电变形镜被广泛地应用于各类光束线预聚焦镜元件和实验站的微纳米聚焦系统中。在纳米聚焦领域中,使用主动补偿技术最成功的例子是日本大阪大学通过在一对高精度的多层膜 K-B 纳米聚焦镜前介入一个相位补偿镜来修正垂直聚焦镜的面形误差,实现了理想的亚 $10\ \text{nm}$ 聚焦光斑^[66],如图 16 所示。其主要的思路如图 17(a)所示。考虑到多层膜聚焦镜的掠入射角很大,为实现瑞利判据,所需的镜面面形高度精度超过了目前的镜面加工极限,而介入的相位补偿镜由于是工作在全反射角位置处,故镜面加工的冗余度大大增加。

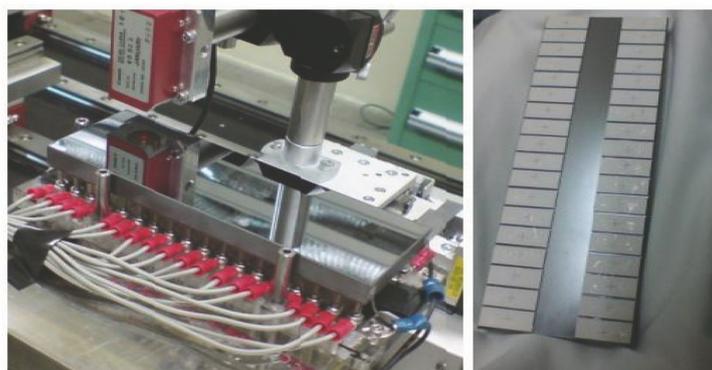


图 16 大阪大学研制的相位补偿镜示意图^[133]

Fig. 16 Schematic diagram of phase compensation mirror developed by Osaka university^[133]

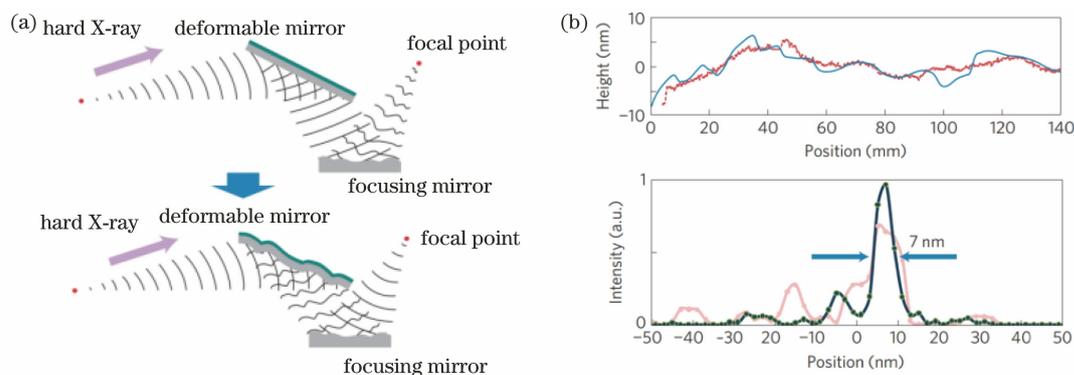


图 17 相位补偿镜对聚焦的影响。(a)利用变形镜获得完美的聚焦;(b)相位补偿前后变形镜镜面的面形(上)和聚焦光斑(下)的比较^[66]

Fig. 17 Effect of phase compensation mirror on focusing. (a) Perfect focusing obtained by deformable mirror; (b) comparison of surface profile of deformable mirror (upper) and focal spot size (lower) before and after phase compensation^[66]

目前在建的上海同步辐射光源硬 X 射线纳米探针线站将采用类似日本大阪大学的多层膜 K-B 反射镜配合自适应压电变形镜的光学方案来实现光斑尺寸接近 $10\ \text{nm}$ 的聚焦^[134],将于 2022 年年底进

通过相位补偿镜这样一个精度略低的反射镜的面形主动调节就可以高精度地补偿下游 K-B 镜的面形误差,从理论上实现波前的无像差化,如图 17(b)所示,最终可获得尺寸为 $7\ \text{nm}$ 的光斑。随后,日本大阪大学的科研人员将压电陶瓷结构直接粘贴到 K-B 聚焦镜上,在 $10\ \text{keV}$ 光子能量下,聚焦镜面形误差 PV 值下降为原来的 $1/20$ ($2\ \text{nm}$ 左右),实测聚焦尺寸为 $110\ \text{nm} \times 65\ \text{nm}$,接近系统的衍射极限^[129]。Matsuyama 等^[130]利用 4 个压电变形镜组成两对 K-B 镜系统,在不改变焦点位置的情况下发展了一种可变数值孔径的近衍射极限聚焦系统,焦斑尺寸变化范围为 $0.1 \sim 1.4\ \mu\text{m}$,进而满足不同实验的需求。为抑制压电致动器的蠕变和接合效应,该团队还将双晶变形聚焦镜结构和机械压弯结合使用,显著提高了聚焦镜的稳定性^[131-132]。

行最终测试。鉴于相关需求,本团队在上海同步辐射光源进行了一系列的技术研究,并制作样机。首先,对压电变形镜进行了散斑扫描测试,发展了一套全局优化的迭代算法,基于测试结果不断调节压电

电压,将反射镜的等效面形误差从均方根 7 nm 优化至好于 1 nm^[135]。同时,使用这种压电变形镜作为聚焦元件,经过 4 次测量和面形修正之后,波前曲率波动得到显著抑制,将变形镜的焦斑尺寸从 43.4 μm 压缩到了 12.9 μm ^[107]。然而,在最近的研究中,在焦距 140 mm 的情况下将焦斑尺寸减小到了 4 μm ,接近理论计算结果。上海同步辐射光源同样发展了有限元仿真技术来验证不同设计的压电变形镜的工作特性^[135-136]。北京高能同步辐射光源的研究人员也在近期从理论上探索了压电变形元件的力学特性^[137]。

磁控变形镜和温控变形镜也在同步辐射领域有着初步的应用。虽然目前还没有它们在亚微米聚焦系统中的使用先例,但是相关技术具备在部分场景替代或补充压电变形技术的能力。磁控变形镜^[123]使用垂直于镜面的修正器来推拉镜面局部的面形,对于每个修正器采用相反方向的弹簧力和磁力共同作用,可以显著改善局部面形修正的精度和稳定性。实验证明,对于不同曲率的反射镜,面形控制和稳定性都可以达到亚纳米水平。温控变形镜目前主要应用于同步辐射暴露在白光或粉光下高热负载环境的大尺度反射镜中。在这种热负载镜子的相应位置放

置加热和制冷元件可以对镜面面形进行实时调节和补偿。美国 SLAC 光源的科研人员发展了一种“电阻可调长度”的镜面面形调节方案,利用可变长度的加热片来适应镜面表面变化的光束尺寸和鼓包分布,可局部实现亚纳米的面形调控精度。离线测试显示,温度补偿前后的高度误差从 12.7 nm 降低到了 1.1 nm^[124]。

4.2 折射相位片

除了反射式的相位补偿元件,还有一种折射式的相位补偿片近年来也受到了广泛关注。相位片基于 X 射线的折射可以校正光束中各种由元件表面误差和变形引起的残余波前误差,主要采用各种现代的增减材技术制备。

德国 DESY 光源的研究团队先利用扫描干涉衍射技术测量复合折射透镜产生的波前误差,再利用超短脉冲激光烧蚀制备二氧化硅材料的相位片,用来校正透镜系统的累积相位误差,如图 18 所示,最终可获得尺寸约为 150 nm 的二维焦斑^[138]。随后,他们陆续制备了各种玻璃、金刚石和聚合物材质的相位片来实现对聚焦元件的球差和其他像差的修正,将聚焦的斯特列尔比,即有无像差条件下峰值光强度之比,从 0.1 提升到了 0.7 以上^[139]。

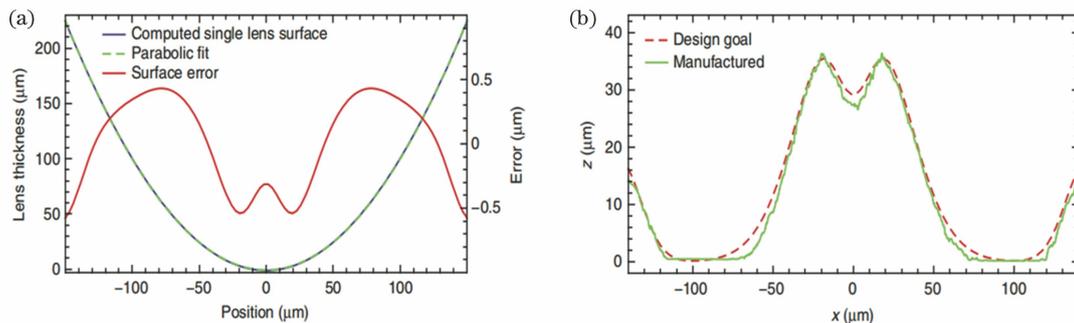


图 18 利用相位片实现铍复合折射透镜的波前修正^[138]。(a)每一个透镜的表面变形;

(b)二氧化硅相位片的表面面形与设计值比较

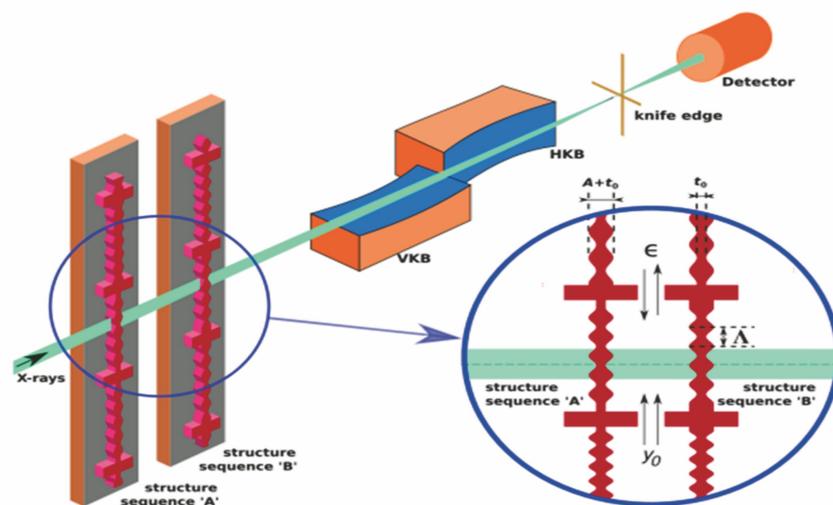
Fig. 18 Wavefront compensation of beryllium compound refractive lens realized by using phase plate^[138].

(a) Deformation of every lens surface; (b) comparison between surface profile and design goal of SiO_2 phase plate

英国 Diamond 光源的研究团队发展了一种自适应的折射相位片,如图 19 所示,其包含两个平面结构,每个结构的厚度都满足正弦函数,且两者结构存在一个偏差。通过调整这个偏差,可以使得经过两个相位片的 X 射线产生 $-\pi \sim \pi$ 的相变。然后,每个结构可以制作成一个正弦周期递增的序列结构,调节两个结构的相对位置可以调节光束的相位和振幅,进而实现可变抛物型的波前误差动态补偿^[140],最终波前误差减小到了 $\lambda/100$ (RMS)水平。

4.3 小 结

聚焦元件的加工缺陷、重力作用、机械夹持和光束带来的热效应不可避免会导致反射镜的镜面发生微小的变形,从而影响纳米聚焦性能。因此,自适应光学技术得到了广泛的重视,该技术可以对光学镜面或波前进行实时在线调试,进而达到优化光子传输和聚焦性能的目的。无论是采用静态的面形精修技术和折射相位片加工,还是采用压电、热变形或磁力促动实现波前的局部主动变形,与超高精密元

图 19 折射相位片的双结构序列示意图^[140]Fig. 19 Schematic diagram of two structure sequences of refractive phase plate^[140]

件加工相比,其实现成本和系统集成难度都显著下降。在目前国内精密加工能力尚达不到国际先进水平的前提下,自适应光学操控技术的全面发展具备非常重要的现实意义。随着第四代同步辐射装置、自由电子激光和未来更新一代同步辐射光源的发展,波前或相干性保持的光学元件将被大量地使用在各个光束线中,而相位操控技术和元件也将蓬勃发展,起到“净化”光束和“定制化”光束特性的作用。

5 总 结

回顾了同步辐射 X 射线纳米聚焦元件 20 多年来的发展历程,并着重讨论了近年来挑战 10 nm 以下衍射极限纳米聚焦的几种重要途径和各元件的应用前景。总体而言,以多层膜劳厄透镜为代表的衍射元件和多层膜 K-B 镜为代表的反射元件展现出了突出的性能,在达到单纳米光斑尺寸的同时,依然保留着较高的传输效率和较大的工作距离。以 Kinoform 为代表的折射型聚焦元件有希望短期内进一步地提升其聚焦性能,在 高能 X 射线领域得到更为广泛的应用。目前纳米聚焦元件的尖端加工工艺主要掌握在如欧洲、日本等国家的少数研究机构手中,虽然我国近年来在多层膜劳厄透镜、Kinoform 透镜、菲涅耳波带片和全反射 K-B 镜等元件加工领域已经取得了一些重要突破,但是与国际前沿相比尚存在一定的差距。

此外,实验环境下光斑的尺寸除了受到元件加工工艺和安装工艺的限制外,光束热效应和环境振动等因素的影响也十分显著,其精确测量和控制非常困难,需要通过 X 射线纳米聚焦元件的在线调试

表征,且需要后续的相位操控校正来实现稳定的极限纳米聚焦。介绍了光栅干涉、近场散斑、扫描相干衍射和迭代相位恢复等纳米聚焦系统下重要的在线波前表征技术,在实际测试中需要结合多种技术的优势综合表征才能较为精确地估计真实焦斑的尺寸和描述传播特性。相位操控校正正是弥补目前聚焦元件加工技术限制和实现主动补偿的重要途径,尤其对于我国目前聚焦元件制备水平与国际前沿尚存差距的现状而言,是一条较为可行的技术路线。

目前,国际纳米衍射极限聚焦突破到了亚 10 nm 尺度的水平。多层膜 K-B 聚焦镜系统作为最早实现单纳米聚焦的元件,目前依然保持了最小光斑尺寸的记录。考虑到未来 10 年同步辐射领域追求 5 nm、3 nm 甚至 1 nm 左右聚焦光斑尺寸的艰巨任务,反射型元件必须克服来自加工工艺和机械系统稳定性方面的困难。特别是,对于机械系统的投角稳定性而言,反射型元件的稳定性要求是折射型元件和衍射型元件的两倍。鉴于目前角度稳定性最高的水平也仅仅是 10~15 nrad,在较大的焦距情况下焦斑很难满足小于 5 nm 的实际应用条件。反射型元件未来的趋势可能是可以更好地结合自适应技术,进而实现可变焦斑尺寸或灵活波前特性的聚焦,且可以在高热功率的光束环境中使用,进而减小辐照损伤。衍射型元件的情况是不同的,尤其对于劳厄透镜而言,其未来的加工工艺的提升潜力是更大的:1)制备更高膜层精度的楔形甚至符合完美聚焦理论的膜层结构;2)加工更大数值孔径的元件。第四代甚至更先进的同步辐射光源具备更长的相干长度,考虑到反射型元件的集光面积受限于镜长和

焦距,而衍射型元件的孔径理论上可以大幅增加,所以劳厄透镜更容易在未来实现更大的数值孔径,以收集更多的相干通量。当然无论是 K-B 镜还是劳厄透镜,其聚焦光斑尺寸还取决于超薄多层膜沉积工艺的提升。多层膜劳厄透镜元件在短期内可以作为突破 5 nm 甚至 3 nm 聚焦的主要技术途径。对于未来近乎全相干的光束线来说,元件加工和装配过程中产生的面形误差导致的波前畸变都会严重损害到最终的聚焦光斑,在这种情况下,可以预见的是相位调控和补偿元件将在未来的光束线中成为实现衍射极限纳米聚焦的必备元件。

参 考 文 献

- [1] Huang B, Wang W Q, Bates M, et al. Three-dimensional super-resolution imaging by stochastic optical reconstruction microscopy [J]. *Science*, 2008, 319(5864): 810-813.
- [2] Klar T A, Jakobs S, Dyba M, et al. Fluorescence microscopy with diffraction resolution barrier broken by stimulated emission [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2000, 97(15): 8206-8210.
- [3] Suzuki Y, Takeuchi A, Takano H, et al. Diffraction-limited microbeam with Fresnel zone plate optics in hard X-ray regions [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2001, 40(3A): 1508-1510.
- [4] Kang H C, Maser J, Stephenson G B, et al. Nanometer linear focusing of hard X rays by a multilayer Laue lens [J]. *Physical Review Letters*, 2006, 96(12): 127401.
- [5] Snigirev A, Kohn V, Snigireva I, et al. A compound refractive lens for focusing high-energy X-rays [J]. *Nature*, 1996, 384(6604): 49-51.
- [6] Yan H F. X-ray nanofocusing by kinoform lenses: a comparative study using different modeling approaches [J]. *Physical Review B*, 2010, 81(7): 075402.
- [7] Kirkpatrick P, Baez A V. Formation of optical images by X-rays [J]. *Journal of the Optical Society of America*, 1948, 38(9): 766-774.
- [8] Yumoto H, Koyama T, Matsuyama S, et al. Ellipsoidal mirror for two-dimensional 100-nm focusing in hard X-ray region [J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 16408.
- [9] Price G J, Brunton A N, Beijersbergen M W, et al. X-ray focusing with Wolter microchannel plate optics [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2002, 490(1/2): 276-289.
- [10] Elliott A. The use of toroidal reflecting surfaces in X-ray diffraction cameras [J]. *Journal of Scientific Instruments*, 1965, 42(5): 312-316.
- [11] Sparks C J, Jr, Ice G E, Wong J, et al. Sagittal focusing of synchrotron x-radiation with curved crystals [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1982, 195(1/2): 73-78.
- [12] Kushnir V I, Kaganer V M, Sovorov E V. X-ray diffraction lenses with spherical focusing [J]. *Acta Crystallographica Section A: Foundations of Crystallography*, 1985, 41(1): 17-25.
- [13] Bilderback D H, Hoffman S A, Thiel D J. Nanometer spatial resolution achieved in hard X-ray imaging and Laue diffraction experiments [J]. *Science*, 1994, 263(5144): 201-203.
- [14] Lagomarsino S, Jark W, di Fonzo S, et al. Submicrometer X-ray beam production by a thin film waveguide [J]. *Journal of Applied Physics*, 1996, 79(8): 4471-4473.
- [15] Michette A G, Pfauntsch S J, Shahin S, et al. Active microstructured X-ray optical arrays [J]. *Proceedings of SPIE*, 2009, 7360: 736007.
- [16] Chen Y T, Lo T N, Chiu C W, et al. Fabrication of high-aspect-ratio Fresnel zone plates by e-beam lithography and electroplating [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2008, 15(2): 170-175.
- [17] Uhlén F, Nilsson D, Rahomäki J, et al. Nanofabrication of tungsten zone plates with integrated platinum central stop for hard X-ray applications [J]. *Microelectronic Engineering*, 2014, 116: 40-43.
- [18] Chang C, Sakdinawat A. Ultra-high aspect ratio high-resolution nanofabrication for hard X-ray diffractive optics [J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 4243.
- [19] Chao W, Fischer P, Tyliczszak T, et al. Real space soft X-ray imaging at 10 nm spatial resolution [J]. *Optics Express*, 2012, 20(9): 9777-9783.
- [20] Feng Y, Feser M, Lyon A, et al. Nanofabrication of high aspect ratio 24 nm X-ray zone plates for X-ray imaging applications [J]. *Journal of Vacuum Science & Technology B*, 2007, 25(6): 2004.
- [21] Vila-Comamala J, Dierolf M, Kewish C M, et al. High spatial resolution STXM at 6.2 keV photon energy [C]. *AIP Conference Proceedings*, 2010, 1221(1): 80-84.
- [22] Nöhammer B, David C, Burghammer M, et al. Coherence-matched microfocusing of hard X rays [J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(16):

- 163104.
- [23] Vila-Comamala J, Gorelick S, Färm E, et al. Ultra-high resolution zone-doubled diffractive X-ray optics for the multi-keV regime [J]. *Optics Express*, 2010, 19(1): 175-184.
- [24] Mohacsi I, Vartiainen I, Guizar-Sicairos M, et al. High resolution double-sided diffractive optics for hard X-ray microscopy [J]. *Optics Express*, 2015, 23(2): 776-786.
- [25] Vila-Comamala J, Diaz A, Guizar-Sicairos M, et al. Characterization of high-resolution diffractive X-ray optics by ptychographic coherent diffractive imaging [J]. *Optics Express*, 2011, 19(22): 21333-21344.
- [26] Mohacsi I, Vartiainen I, Rösner B, et al. Interlaced zone plate optics for hard X-ray imaging in the 10 nm range [J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 43624.
- [27] Li K N, Ali S, Wojcik M, et al. Tunable hard X-ray nanofocusing with Fresnel zone plates fabricated using deep etching [J]. *Optica*, 2020, 7(5): 410-416.
- [28] Gleber S C, Wojcik M, Liu J, et al. Fresnel zone plate stacking in the intermediate field for high efficiency focusing in the hard X-ray regime [J]. *Optics Express*, 2014, 22(23): 28142-28153.
- [29] 陈宜方. X 射线衍射光学部件的制备及其光学性能表征 [J]. *光学精密工程*, 2017, 25(11): 2779-2795.
- Chen Y F. Fabrication of diffractive X-ray optics and their performance characterization [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2017, 25(11): 2779-2795.
- [30] Yan H F, Conley R, Bouet N, et al. Hard X-ray nanofocusing by multilayer Laue lenses [J]. *Journal of Physics D*, 2014, 47(26): 263001.
- [31] Yan H F, Maser J, Macrander A, et al. Takagi-Taupin description of X-ray dynamical diffraction from diffractive optics with large numerical aperture [J]. *Physical Review B*, 2007, 76(11): 115438.
- [32] Kang H C, Yan H F, Winarski R P, et al. Focusing of hard X-rays to 16 nanometers with a multilayer Laue lens [J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(22): 221114.
- [33] Yan H F, Rose V, Shu D M, et al. Two dimensional hard X-ray nanofocusing with crossed multilayer Laue lenses [J]. *Optics Express*, 2011, 19(16): 15069-15076.
- [34] Huang X, Yan H, Nazaretski E, et al. 11 nm hard X-ray focus from a large-aperture multilayer Laue lens [J]. *Scientific Reports*, 2013, 3: 3562.
- [35] Huang X J, Conley R, Bouet N, et al. Achieving hard X-ray nanofocusing using a wedged multilayer Laue lens [J]. *Optics Express*, 2015, 23(10): 12496-12507.
- [36] Döring F, Robisch A L, Eberl C, et al. Sub-5 nm hard X-ray point focusing by a combined Kirkpatrick-Baez mirror and multilayer zone plate [J]. *Optics Express*, 2013, 21(16): 19311-19323.
- [37] Morgan A J, Prasciolu M, Andrejczuk A, et al. High numerical aperture multilayer Laue lenses [J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 9892.
- [38] Bajt S, Prasciolu M, Fleckenstein H, et al. X-ray focusing with efficient high-NA multilayer Laue lenses [J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7(3): 17162.
- [39] Kubec A, Niese S, Rosenthal M, et al. Sub 25 nm focusing with a long working distance using multilayer Laue lenses [J]. *Journal of Instrumentation*, 2018, 13(4): C04011.
- [40] 李浩川, 黄秋实, 朱京涛, 等. 多层膜劳厄透镜对 8 keV X 射线的聚焦性能模拟研究 [J]. *光学学报*, 2011, 31(8): 0834001.
- Li H C, Huang Q S, Zhu J T, et al. Simulation on focusing performance of X-ray multilayer Laue lens for 8 keV X-ray [J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, 31(8): 0834001.
- [41] Huang Q S, Zhu J T, Li H C, et al. Theoretical investigation of higher orders optimized Multilayer Laue Lens for hard X-ray nano-focusing [J]. *Optics Communications*, 2012, 285(24): 5496-5499.
- [42] Jiang H, Wang H, Mao C W, et al. Optimization of a multilayer Laue lens system for a hard X-ray nanoprobe [J]. *Journal of Optics*, 2014, 16(1): 015002.
- [43] Zhou L, Yue S P, Li M, et al. A compound multilayer Laue lens with multiple tilting angles [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2016, 806: 87-91.
- [44] Huang Q S, Li H C, Song Z Q, et al. Hard X-ray one dimensional nano-focusing at the SSRF using a WSi₂/Si multilayer Laue lens [J]. *Chinese Physics C*, 2013, 37(2): 028002.
- [45] Zhu J T, Tu Y C, Li H C, et al. X-ray nanometer focusing at the SSRF based on a multilayer Laue lens [J]. *Chinese Physics C*, 2015, 39(12): 128001.
- [46] 姜晓明, 王九庆, 秦庆, 等. 中国高能同步辐射光源及其验证装置工程 [J]. *中国科学: 物理学 天文学*, 2014, 44(10): 1075-1094.
- Jiang X M, Wang J Q, Qin Q, et al. Chinese high

- energy photon source and the test facility [J]. *Scientia Sinica (Physica, Mechanica & Astronomica)*, 2014, 44(10): 1075-1094.
- [47] Schroer C G, Lengeler B. Focusing hard X rays to nanometer dimensions by adiabatically focusing lenses[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(5): 054802.
- [48] Schroer C G, Kuhlmann M, Hunger U T, et al. Nanofocusing parabolic refractive X-ray lenses[J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 82(9): 1485-1487.
- [49] Schroer C G, Kuhlmann M, Hunger U T, et al. Nanofocusing parabolic refractive X-ray lenses[C]. *AIP Conference Proceedings*, 2004, 705(1): 740-743.
- [50] Schroer C G, Kurapova O, Patommel J, et al. Hard X-ray nanoprobe based on refractive X-ray lenses[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 87(12): 124103.
- [51] Patommel J, Klare S, Hoppe R, et al. Focusing hard X rays beyond the critical angle of total reflection by adiabatically focusing lenses [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 110(10): 101103.
- [52] Aristov V, Grigoriev M, Kuznetsov S, et al. X-ray refractive planar lens with minimized absorption[J]. *Applied Physics Letters*, 2000, 77(24): 4058-4060.
- [53] Snigireva I, Snigirev A, Rau C, et al. Holographic X-ray optical elements: transition between refraction and diffraction [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2001, 467/468: 982-985.
- [54] Liao K L, Liu J, Liang H, et al. Sub-500 nm hard X ray focusing by compound long kinoform lenses [J]. *Applied Optics*, 2016, 55(1): 38-41.
- [55] Alianelli L, Sawhney K J S, Barrett R, et al. High efficiency nano-focusing kinoform optics for synchrotron radiation[J]. *Optics Express*, 2011, 19(12): 11120-11127.
- [56] Karvinen P, Grolimund D, Willmann M, et al. Kinoform diffractive lenses for efficient nanofocusing of hard X-rays[J]. *Optics Express*, 2014, 22(14): 16676-16685.
- [57] Xu J, Liu G, Huang Q, et al. Kinoform and sawtooth X-ray refractive lenses development at SSRF [J]. *Journal of Instrumentation*, 2018, 13(7): C07005.
- [58] Liu W J, Ice G E, Assoufid L, et al. Achromatic nested Kirkpatrick-Baez mirror optics for hard X-ray nanofocusing[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2011, 18(4): 575-579.
- [59] Liu C A, Ice G E, Liu W, et al. Fabrication of nested elliptical KB mirrors using profile coating for synchrotron radiation X-ray focusing [J]. *Applied Surface Science*, 2012, 258(6): 2182-2186.
- [60] Underwood J H, Barbee T W. Layered synthetic microstructures as Bragg diffractors for X rays and extreme ultraviolet: theory and predicted performance[J]. *Applied Optics*, 1981, 20(17): 3027-3034.
- [61] Hignette O, Rostaing G, Cloetens P, et al. Submicron focusing of hard X rays with reflecting surfaces at the ESRF [J]. *Proceedings of SPIE*, 2001, 4499: 105-116.
- [62] Yamauchi K, Yamamura K, Mimura H, et al. Two-dimensional submicron focusing of hard X-rays by two elliptical mirrors fabricated by plasma chemical vaporization machining and elastic emission machining[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2003, 42(11): 7129-7134.
- [63] Liu W J, Ice G E, Tischler J Z, et al. Short focal length Kirkpatrick-Baez mirrors for a hard X-ray nanoprobe [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2005, 76(11): 113701.
- [64] Mimura H, Matsuyama S, Yumoto H, et al. Hard X-ray diffraction-limited nanofocusing with Kirkpatrick-Baez mirrors [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2005, 44(18): L539-L542.
- [65] Yamauchi K, Mimura H, Inagaki K, et al. Figuring with subnanometer-level accuracy by numerically controlled elastic emission machining [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2002, 73(11): 4028-4033.
- [66] Mimura H, Handa S, Kimura T, et al. Breaking the 10 nm barrier in hard-X-ray focusing[J]. *Nature Physics*, 2010, 6(2): 122-125.
- [67] Yamauchi K, Mimura H, Kimura T, et al. Single-nanometer focusing of hard X-rays by Kirkpatrick-Baez mirrors[J]. *Journal of Physics*, 2011, 23(39): 394206.
- [68] Barrett R, Baker R, Cloetens P, et al. Dynamically-figured mirror system for high-energy nanofocusing at the ESRF[J]. *Proceedings of SPIE*, 2011, 8139: 813904.
- [69] Yin G C, Chang S H, Chen B Y, et al. Hard X-ray nanoprobe by Montel KB mirrors at Taiwan Photon Source [J]. *Proceedings of SPIE*, 2015, 9592: 959204.
- [70] Barrett R, Baker R, Cloetens P, et al. Reflective optics for hard X-ray nanofocusing applications at the ESRF[J]. *Synchrotron Radiation News*, 2016, 29(4): 10-15.
- [71] Inoue T, Matsuyama S, Yamada J, et al.

- Generation of an X-ray nanobeam of a free-electron laser using reflective optics with speckle interferometry [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2020, 27(4): 883-889.
- [72] Zhang L L, Yan S, Jiang S, et al. Hard X-ray micro-focusing beamline at SSRF [J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2015, 26(6): 060101.
- [73] Bergemann C, Keymeulen H, van der Veen J F. Focusing X-ray beams to nanometer dimensions[J]. *Physical Review Letters*, 2003, 91(20): 204801.
- [74] Zwanenburg M J, Bongaerts J H H, Peters J F, et al. Focusing of coherent X-rays in a tapered planar waveguide[J]. *Physica B*, 2000, 283(1/2/3): 285-288.
- [75] Jarre A, Fuhse C, Ollinger C, et al. Two-dimensional hard X-ray beam compression by combined focusing and waveguide optics [J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(7): 074801.
- [76] Krüger S P, Giewekemeyer K, Kalbfleisch S, et al. Sub-15 nm beam confinement by two crossed X-ray waveguides [J]. *Optics Express*, 2010, 18(13): 13492-13501.
- [77] Krüger S P, Neubauer H, Bartels M, et al. Sub-10 nm beam confinement by X-ray waveguides: design, fabrication and characterization of optical properties [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2012, 19(2): 227-236.
- [78] Chen H Y, Hoffmann S, Salditt T. X-ray beam compression by tapered waveguides [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 106(19): 194105.
- [79] Hignette O, Freund A K, Chinchio E. Incoherent X-ray mirror surface metrology [J]. *Proceedings of SPIE*, 1997, 3152: 188-199.
- [80] Mercere P, Bucourt S, Cauchon G, et al. X-ray beam metrology and X-ray optic alignment by Hartmann wavefront sensing [J]. *Proceedings of SPIE*, 2005, 5921: 592109.
- [81] Idir M, Mercere P, Modi M H, et al. X-ray active mirror coupled with a Hartmann wavefront sensor [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2010, 616(2/3): 162-171.
- [82] Miao J, Charalambous P, Kirz J, et al. Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens [J]. *Nature*, 1999, 400(6742): 342-344.
- [83] Kimura T, Mimura H, Handa S, et al. Wavefield characterization of nearly diffraction-limited focused hard X-ray beam with size less than 10 nm [J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2010, 81(12): 123704.
- [84] Zanette I, Weitkamp T, Donath T, et al. Two-dimensional X-ray grating interferometer [J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(24): 248102.
- [85] Pfeiffer F, Weitkamp T, Bunk O, et al. Phase retrieval and differential phase-contrast imaging with low-brilliance X-ray sources [J]. *Nature Physics*, 2006, 2(4): 258-261.
- [86] Tian, H Jiang, L Xue, et al. Influence of photon beam and motor vibrations on at-wavelength X-ray speckle scanning metrology [J]. *Frontier in Physics*, 2022, 10: 864985.
- [87] Morgan K S, Paganin D M, Siu K K W. X-ray phase imaging with a paper analyzer [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(12): 124102.
- [88] Cloetens P, Guigay J P, de Martino C, et al. Fractional Talbot imaging of phase gratings with hard X rays [J]. *Optics Letters*, 1997, 22(14): 1059-1061.
- [89] Wang H C, Berujon S, Pape I, et al. X-ray wavefront characterization of a Fresnel zone plate using a two-dimensional grating interferometer [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(6): 827-829.
- [90] Wang H C, Sawhney K, Berujon S, et al. X-ray wavefront characterization using a rotating shearing interferometer technique [J]. *Optics Express*, 2011, 19(17): 16550-16559.
- [91] Zhao S, Yang Y, Shen Y, et al. Optics metrology and at-wavelength wavefront characterization by a microfocus X-ray grating interferometer [J]. *Optics Express*, 2021, 29(14): 22704-22713.
- [92] Matsuyama S, Yokoyama H, Fukui R, et al. Wavefront measurement for a hard-X-ray nanobeam using single-grating interferometry [J]. *Optics Express*, 2012, 20(22): 24977-24986.
- [93] Salditt T, Kalbfleisch S, Osterhoff M, et al. Partially coherent nano-focused X-ray radiation characterized by Talbot interferometry [J]. *Optics Express*, 2011, 19(10): 9656-9675.
- [94] Cerbino R, Peverini L, Potenza M A C, et al. X-ray-scattering information obtained from near-field speckle [J]. *Nature Physics*, 2008, 4(3): 238-243.
- [95] Pan B, Qian K M, Xie H M, et al. Two-dimensional digital image correlation for in-plane displacement and strain measurement: a review [J]. *Measurement Science and Technology*, 2009, 20(6): 062001.
- [96] Tian N X, Jiang H, Li A G, et al. Influence of diffuser grain size on the speckle tracking technique [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2020, 27(1): 146-157.

- [97] Tian N X, Jiang H, Li A G, et al. High-precision speckle-tracking X-ray imaging with adaptive subset size choices [J]. *Scientific Reports*, 2020, 10: 14238.
- [98] Bérújon S, Ziegler E, Cerbino R, et al. Two-dimensional X-ray beam phase sensing[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(15): 158102.
- [99] Chen D J, Chiang F P, Tan Y S, et al. Digital speckle-displacement measurement using a complex spectrum method [J]. *Applied Optics*, 1993, 32 (11): 1839-1849.
- [100] Hung P C, Voloshin A S. In-plane strain measurement by digital image correlation [J]. *Journal of the Brazilian Society of Mechanical Sciences and Engineering*, 2003, 25(3): 215-221.
- [101] Kashyap Y, Wang H C, Sawhney K. Speckle-based at-wavelength metrology of X-ray mirrors with super accuracy [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2016, 87(5): 052001.
- [102] Xue L, Li Z L, Zhou T, et al. Absolute metrology method of the X-ray mirror with speckle scanning technique[J]. *Applied Optics*, 2019, 58(31): 8658-8664.
- [103] Berujon S, Wang H C, Alcock S, et al. At-wavelength metrology of hard X-ray mirror using near field speckle [J]. *Optics Express*, 2014, 22 (6): 6438-6446.
- [104] Wang H C, Kashyap Y, Sutter J, et al. At-wavelength metrology of X-ray adaptive mirrors at Diamond Light Source [J]. *Proceedings of SPIE*, 2015, 9206: 920608.
- [105] Wang H C, Sutter J, Sawhney K. Advanced *in situ* metrology for X-ray beam shaping with super precision[J]. *Optics Express*, 2015, 23(2): 1605-1614.
- [106] Zhou T H, Wang H C, Fox O, et al. Auto-alignment of X-ray focusing mirrors with speckle-based at-wavelength metrology[J]. *Optics Express*, 2018, 26(21): 26961-26970.
- [107] 田纳玺, 蒋晖, 李爱国, 等. 用于同步辐射的硬 X 射线相位补偿镜的研究 [J]. *光学学报*, 2020, 40 (9): 0934001.
Tian N X, Jiang H, Li A G, et al. Study on phase compensation mirror used for hard X-ray synchrotron radiation[J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(9): 0934001.
- [108] Morgan A J, Murray K T, Quiney H M, et al. Speckle-tracking: a software suite for ptychographic X-ray speckle tracking [J]. *Journal of Applied Crystallography*, 2020, 53(6): 1603-1612.
- [109] Morgan A J, Murray K T, Prasciolu M, et al. Ptychographic X-ray speckle tracking with multi-layer Laue lens systems [J]. *Journal of Applied Crystallography*, 2020, 53(4): 927-936.
- [110] Fienup J R. Phase retrieval algorithms: a comparison[J]. *Applied Optics*, 1982, 21 (15): 2758-2769.
- [111] Kewish C M, Thibault P, Dierolf M, et al. Ptychographic characterization of the wavefield in the focus of reflective hard X-ray optics [J]. *Ultramicroscopy*, 2010, 110(4): 325-329.
- [112] Moxham T E J, Parsons A, Zhou T, et al. Hard X-ray ptychography for optics characterization using a partially coherent synchrotron source[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2020, 27(6): 1688-1695.
- [113] Kewish C M, Guizar-Sicairos M, Liu C A, et al. Reconstruction of an astigmatic hard X-ray beam and alignment of K-B mirrors from ptychographic coherent diffraction data[J]. *Optics Express*, 2010, 18(22): 23420-23426.
- [114] Giewekemeyer K, Wilke R N, Osterhoff M, et al. Versatility of a hard X-ray Kirkpatrick-Baez focus characterized by ptychography [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2013, 20(3): 490-497.
- [115] Öztürk H, Yan H, He Y, et al. Multi-slice ptychography with large numerical aperture multilayer Laue lenses [J]. *Optica*, 2018, 5 (5): 601-607.
- [116] Schropp A, Hoppe R, Meier V, et al. Full spatial characterization of a nanofocused X-ray free-electron laser beam by ptychographic imaging [J]. *Scientific Reports*, 2013, 3: 1633.
- [117] Handa S, Kimura T, Mimura H, et al. Extended knife-edge method for characterizing sub-10-nm X-ray beams[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2010, 616(2/3): 246-250.
- [118] Mimura H, Yumoto H, Matsuyama S, et al. Direct determination of the wave field of an X-ray nanobeam[J]. *Physical Review A*, 2008, 77(1): 015812.
- [119] Matsuyama S, Inoue T, Yamada J, et al. Nanofocusing of X-ray free-electron laser using wavefront-corrected multilayer focusing mirrors[J]. *Scientific Reports*, 2018, 8: 17440.
- [120] Rutishauser S, Rack A, Weitkamp T, et al. Heat bump on a monochromator crystal measured with X-ray grating interferometry [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2013, 20(2): 300-305.
- [121] Sutter J P, Chater P A, Signorato R, et al. 1 m long multilayer-coated deformable piezoelectric

- bimorph mirror for adjustable focusing of high-energy X-rays[J]. *Optics Express*, 2019, 27(11): 16121-16142.
- [122] Signorato R. R&D program on multisegmented piezoelectric bimorph mirrors at the ESRF: status report[J]. *Proceedings of SPIE*, 1998, 3447: 20-31.
- [123] Collodelram C, González N, González J, et al. Adaptive optics bender with sub-nanometer correction and stability [C]. *AIP Conference Proceedings*, 2019, 2054(1): 060013.
- [124] Cocco D, Hardin C, Morton D, et al. Adaptive shape control of wavefront-preserving X-ray mirrors with active cooling and heating[J]. *Optics Express*, 2020, 28(13): 19242-19254.
- [125] Susini J, Labergerie D, Zhang L. Compact active/adaptive X-ray mirror: bimorph piezoelectric flexible mirror[J]. *Review of Scientific Instruments*, 1995, 66(2): 2229-2231.
- [126] Nistea I T, Alcock S G, Badami V, et al. Controlling an active bimorph deformable mirror with sub-nanometre resolution[J]. *Proceedings of SPIE*, 2019, 11109: 111090E.
- [127] Alcock S G, Nistea I T, Badami V G, et al. High-speed adaptive optics using bimorph deformable X-ray mirrors [J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2019, 90(2): 021712.
- [128] Susini J, Labergerie D R, Hignette O. R&D program on bimorph mirrors at the ESRF [J]. *Proceedings of SPIE*, 1996, 2856: 130-144.
- [129] Goto T, Nakamori H, Kimura T, et al. Hard X-ray nanofocusing using adaptive focusing optics based on piezoelectric deformable mirrors[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2015, 86(4): 043102.
- [130] Matsuyama S, Nakamori H, Goto T, et al. Nearly diffraction-limited X-ray focusing with variable-numerical-aperture focusing optical system based on four deformable mirrors [J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 24801.
- [131] Goto T, Matsuyama S, Hayashi H, et al. Nearly diffraction-limited hard X-ray line focusing with hybrid adaptive X-ray mirror based on mechanical and piezo-driven deformation[J]. *Optics Express*, 2018, 26(13): 17477-17486.
- [132] Inoue T, Nishioka Y, Matsuyama S, et al. Optimal deformation procedure for hybrid adaptive X-ray mirror based on mechanical and piezo-driven bending system[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2021, 92(12): 123706.
- [133] Kimura T, Handa S, Mimura H, et al. Development of adaptive mirror for wavefront correction of hard X-ray nanobeam[J]. *Proceedings of SPIE*, 2008, 7077: 707709.
- [134] Shu D M, Li A G, Jiang H, et al. Current status of the hard X-ray nanoprobe beamline at the SSRF[J]. *Proceedings of SPIE*, 2017, 10389: 103890J.
- [135] Jiang H, Tian N X, Liang D X, et al. A piezoelectric deformable X-ray mirror for phase compensation based on global optimization [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2019, 26(3): 729-736.
- [136] 李桐, 王楠, 祝万钱, 等. 双压电片反射镜面形精度补偿的仿真分析[J]. *光学学报*, 2022, 42(7): 0734001.
- Li T, Wang N, Zhu W Q, et al. Finite element analysis of the compensation of the surface shape accuracy of the piezoelectric bimorph mirror [J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(7): 0734001.
- [137] Zhang Y, Li M, Tang S Z, et al. Analysis of an X-ray mirror made from piezoelectric bimorph [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2017, 860: 13-18.
- [138] Seiboth F, Schropp A, Scholz M, et al. Perfect X-ray focusing via fitting corrective glasses to aberrated optics [J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 14623.
- [139] Seiboth F, Brückner D, Kahnt M, et al. Hard X-ray wavefront correction via refractive phase plates made by additive and subtractive fabrication techniques[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2020, 27(5): 1121-1130.
- [140] Laundy D, Dhamgaye V, Moxham T, et al. Adaptable refractive correctors for X-ray optics[J]. *Optica*, 2019, 6(12): 1484-1490.