

# X 射线荧光全息术中记录全息图的角度范围对原子像的影响\*

谢红兰<sup>1)</sup> 陈建文 高鸿奕 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,通过记录样品的荧光全息图并利用计算机重构,能够得到晶体内部原子的三维排列信息,这对于材料科学将有着非凡的意义.理论上,在一个 X 射线荧光全息实验中,实验者必须在  $4\pi$  立体角范围内高角度分辨率地探测荧光的强度,才能得到高空间分辨率的三维的原子像.但在实际的 X 射线荧光全息实验中,因为实验的装置安排限制,不允许探测到整个球面上的荧光强度振幅.因为取样范围的不完全而引起的全息信息的损失将直接导致重构的原子像失真.本文通过数值模拟在不同角度范围和取样步长情况下铁单晶的 X 射线荧光全息图并对其进行数字重构,研究了记录全息图的角度范围及取样步长对重构得到的原子像的影响.方位角范围的不完全导致原子像在  $x$  和  $y$  方向上被拉长,而且导致原子像的亮度不均匀.而极角范围的不完全则导致了原子像在  $z$  方向上被拉长.至于步长的影响,则是可以忽略的,如果步长不是太大的话.

**关键词** X 射线荧光全息术 同步辐射 晶体结构 傅立叶变换

## 1 引言

我们感知周围事物一个最重要的信息就是它们在三维空间的结构分布.不仅宏观物体,微观物体也是如此.运用衍射方法,大部分物质的结构信息能被获知.然而,衍射方法的最大问题就是不能直接从实验数据获得物质的相位信息,不能应用于所有的样品.1948年,Gabor<sup>[1]</sup>首次提出了全息术的思想.全息成像是一个相干过程,能完全重现物体的波前,从而得到物体的三维结构信息.物质的原子或分子的三维排列的结构信息是物理学、材料学、化学、生物学的基础.科学家们一直致力于研究提高全息成像的分辨率,试图在原子水平上去观察样品内部的三维结构分布.而全息成像的分辨率受两个因素制约:一是波长;二是光源和探测器的大小.要获得更高的分辨率,要求光源的波长更短,光源和探测器的尺寸更小.对于第 1 个制约因素,采用高能电磁辐射就可以获得短波长光源,如使用硬 X 射线、 $\gamma$  射线或电子束来制作全息图.对于第 2 个制

约因素,要产生尺寸为几百个埃大小的光源或探测器,在现代技术条件下,还是相当困难的.

为克服这些限制,在原子水平上看到物质的内部结构,Szöke<sup>[2]</sup>在 1986 年提出了内源全息术的概念.他建议把样品内部的原子作为光源,这样全息术的成像分辨率就能达到原子的尺度,并只受限于原子的尺度和激发光源的波长.样品内部的原子受到来自外部的硬 X 射线源激发后,发出荧光.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,从而获得荧光原子周围的邻近原子的全息图,利用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,这种全息成像方法因为把样品内部的荧光原子看作光源,所以被称为内源全息术.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,也称逆全息术,而内源全息术则称为正全息术.因为分辨率能达到原子水平,最近的几年里,X 射线荧光全息术已成为一大研究热点,国外的几

\* 国家自然科学基金(60278030)资助

1) E-mail: honglanxie@163.com

个研究小组在这一领域已取得相当的进展<sup>[3-9]</sup>, 而我国在这一领域尚属空白.

理论上, 在一个 X 射线荧光全息实验中, 实验者必须在  $4\pi$  立体角范围内高角度分辨率地探测荧光的强度, 才能得到高空间分辨率的三维的原子像. 但在实际的 X 射线荧光全息实验中, 因为实验的装置安排限制(如图 1 所示), 不允许探测到整个球面上的荧光强度振幅. 因为取样范围的不完全而引起的全息信息的损失将直接导致重构的原子像失真. 本文中, 我们通过数值模拟在不同角度范围和取样步长情况下铁单晶的 X 射线荧光全息图并对其进行数字重构, 研究了记录全息图的角度范围及取样步长对重构得到的原子像的影响. 此外, 因为对一张全息图的理想采样的时间长达几十个小时, 因此研究角度范围的欠采样问题, 对缩短全息图的拍摄时间也是很必要的.

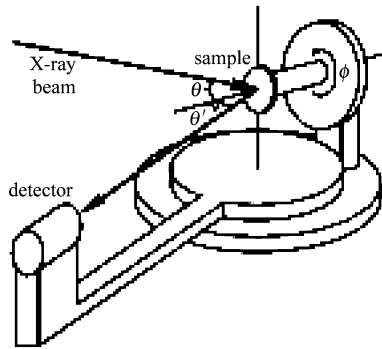


图 1 Experimental setup for measuring X-ray fluorescence holograms.

## 2 原理

考虑样品中的一个原子, 原子位置视作原点. 该原子受到来自外部的强度为  $I_0$  的硬 X 射线源(波数为  $k = 2\pi/\lambda$ ) 的激发, 向各个方向发射出荧光, 荧光以球面波的形式传播. 直接到达探测器的荧光与经周围原子散射的荧光相干涉, 在  $\mathbf{k}$  方向, 距离样品  $R$  处的干涉场强度为<sup>[10]</sup>

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

其中  $a_j = (1/r_j) F_j(\Theta_{r_j}^k) P(\Theta_{r_j}^k) \exp[i(r_j k - \mathbf{r}_j \cdot \mathbf{k})]$  是被单个散射原子散射的波幅,  $F_j(\Theta_{r_j}^k)$  是散射因子,  $P(\Theta_{r_j}^k)$  是汤姆逊偏振因子. 归一化后的全息图

的强度为

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

如果散射原子的数目不是很多的话, 第二项可以忽略不计, 则(2)式简化为

$$\chi(\mathbf{k}) = \sum_j \chi_j = \sum_j 2\text{Re}(a_j). \quad (3)$$

根据 Helmholtz-Kirchhoff 理论<sup>[11]</sup>, 内源全息图的数字重构能够表示为<sup>[12]</sup>

$$U(\mathbf{r}) = \iint \chi(\mathbf{k}) e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} d\sigma_k, \quad (4)$$

其中  $d\sigma_k$  为全息图球面的表面元. 又,  $\mathbf{k} = k(\sin\theta \cos\phi, \sin\theta \sin\phi, \cos\theta)$ ,  $\mathbf{r} = (x, y, z)$ ,  $\phi$  是样品的方位角,  $\theta$  是样品的极角, 则(4)式可写为

$$U(x, y, z) = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \chi(\phi, \theta) e^{-ik(x \sin\theta \cos\phi + y \sin\theta \sin\phi + z \cos\theta)} \sin\theta d\theta d\phi, \quad (5)$$

很明显, (4)和(5)式是二维傅立叶变换的形式.

## 3 计算结果及分析讨论

理想地, 在一个 X 射线荧光全息实验中, 人们必须测量到整个球面上的全息信号, 才可能得到晶体内部三维的原子排列信息. 就是说, 方位角  $\phi$  的范围必须取为  $0^\circ-360^\circ$ , 极角  $\theta$  的范围必须取为  $0^\circ-180^\circ$ . 但在实际的实验中, X 荧光全息实验装置不可能允许探测到整个球面上的全息信号. 所以角度范围对原子像的分辨率的影响是很有必要考虑的. 根据 X 射线荧光全息术的成像原理, 我们选一个铁单晶为计算模型, 数值模拟了该晶体在不同方位角范围和极角范围记录到的全息图, 并对其进行数值重构. 铁单晶是一个体心立方的晶体, 晶格常数为  $a = 2.90 \text{ \AA}$ . 实际上, 在受激发的晶体内部, 有无数的荧光原子, 但如果每个荧光原子的周围环境是相同的话, 样品中每个(由发光原子和近邻原子组成的)局域结构产生的干涉花样都相同. 我们在计算中就可以假设只有一个荧光原子, 而全息信号就是成亿个全同局域结构的干涉花样的非相干叠加. 选取铁单晶晶格模型中, 在体心位置的那个原子作为荧光原子, 其位置视作原点, 而其它八个原子作为散射原子. 入射 X 射线源的波矢  $k$  为  $8.0 \text{ \AA}^{-1}$ . 根据  $\lambda = 2\pi/k = 12.4/E$ , 可以得到入射光源的能量  $E$  为  $15.8 \text{ keV}$ , 波长  $\lambda$  为  $0.8 \text{ \AA}$ .

### 3.1 方位角范围的影响

首先考虑记录全息图的方位角的范围对重构的原子像的分辨率的影响. 图 2(a) 显示了一个模拟的全息图在  $kx-ky$  平面上的投影, 其方位角范围为  $0^\circ \leq \phi \leq 120^\circ$ , 极角范围为  $35^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$ , 步长为  $1^\circ \times 1^\circ$ . 从图上可知, 方位角  $\phi$  对应的是同心圆的完整形成, 而极角  $\theta$  对应的是这些同心圆的半径. 归一化的全息图信号强度为  $10^{-3}$ . 全息信号强度如此微弱是因为原子对 X 射线的散射因子非常小. 根据上面的全息图, 在平行 (001) 晶面,  $z = 1.45 \text{ \AA}$  平面上的原子像通过数值程序被重构, 显示在图 2(b) 中. 因为方位角的不完全, 可以看到图 2(b) 上的原子像沿着  $x$  和  $y$  方向被拉长. 而且, 4 个铁原子的亮度是不一致的, 这也是因为方位角角度范围不完全的缘故. 因为是单能量记录全息图, 所以在图 2(b) 上还可以看到明显的孪生像现象. 原本在晶体内部原子的位置都是中心对称的, 而每个原子的孪生像都和与它中心对称的那个原子的真像重叠, 所以在完整角度范围记录下, 重构的原子像是看不到孪生像的. 但因为这里的方位角和极角的角度范围都不完

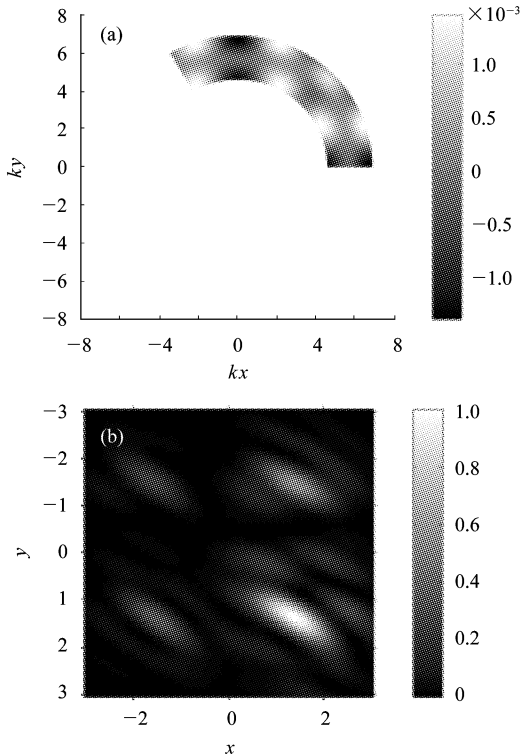


图 2(a) The simulated hologram of  $0^\circ \leq \phi \leq 120^\circ$  and  $35^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$  on  $1^\circ \times 1^\circ$  grids.

(b) Its holographic reconstruction of Fe atoms in the plane parallel to the (001) crystallographic plane at  $z = 1.45 \text{ \AA}$ .

全, 所以可以看到孪生像. 图 3(a) 的全息图的长还是为  $1^\circ$ . 方位角取为完整的  $360^\circ$ , 可以看到全息图是一个完整的圆环. 图 3(b) 是从这个全息图上记录范围为方位角  $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$  和极角  $35^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$ , 步重构的  $z = 1.45 \text{ \AA}$  平面上的原子像. 从该图可以看到, 因为记录全息图的方位角范围的完整, 重构的原子像在 (001) 平面上呈现的是一个完整的圆点, 在  $x$  和  $y$  方向没有出现被拉长的现象. 而且, 每个原子的亮度都是均匀的.

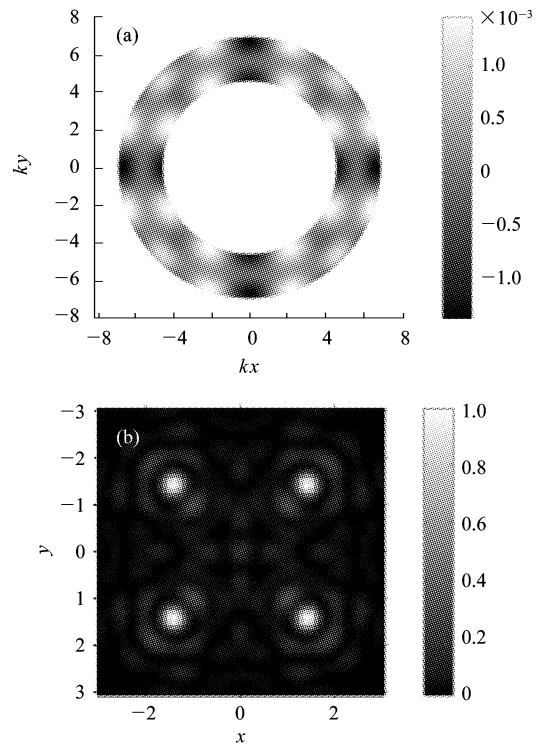


图 3(a) The simulated hologram of  $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$  and  $35^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$  on  $1^\circ \times 1^\circ$  grids.

(b) Its holographic reconstruction of Fe atoms in the plane parallel to the (001) crystallographic plane at  $z = 1.45 \text{ \AA}$ .

### 3.2 极角范围的影响

上一节讨论了记录全息图的方位角范围对重构的原子像的分辨率的影响, 这一节来考虑极角范围的影响. 图 4(a) 是一个模拟的全息图, 其方位角范围为  $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$ , 极角范围为  $35^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$ , 步长都为  $1^\circ$ . 图 4(b) 是由 (a) 中的全息图重构得到平行于 (010) 晶面, 在  $y = 1.45 \text{ \AA}$  平面上的原子像. 可以很明显地看到, 由于极角范围的严重不完全导致原子像在沿着  $z$  方向上的结构信息严重缺失. 将记录全息图的极角范围扩大到  $0^\circ \leq \theta \leq 180^\circ$ , 步长为  $1^\circ$ ,

方位角范围仍为  $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$ , 其所得的全息图显示在图 5(a) 中. 可以看到完整的  $4\pi$  立体角范围内记录的全息图投影在  $kx-ky$  平面上是一个圆面. 由这个全息图重构得到的 (010) 晶面上的原子像显示在图 5(b) 中. 与图 4(b) 比较可知, 原子像在  $z$  方向上没有出现被拉长的现象, 这是因为记录全息图的极角范围是完整的. 所以, 从这两幅图像可知, 极角范围的不完全会导致原子像在  $z$  方向上被拉长.

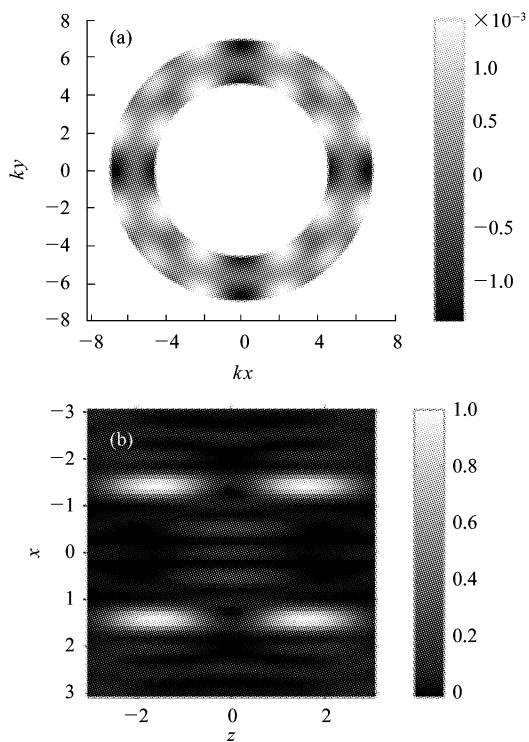


图 4 (a) The simulated hologram of  $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$  and  $35^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$  on  $1^\circ \times 1^\circ$  grids.

(b) Its holographic reconstruction of Fe atoms in the plane parallel to the (010) crystallographic plane at  $y = 1.45 \text{ \AA}$ .

### 3.3 取角步长的影响

讨论了记录全息图的方位角和极角范围的不完全对原子像的分辨率的影响之后, 我们还讨论了取角步长的影响. 分两种步长,  $1^\circ$  和  $5^\circ$  进行比较. 图 6(a) 是  $4\pi$  立体角范围内记录的全息图, 方位角和极角的步长都取为  $5^\circ$ , 其重构的 (010) 晶面上的原子像显示在图 6(b) 中. 比较图 6(b) 和图 5(b), 可知在相同的方位角和极角的范围内, 两种步长  $1^\circ$  和  $5^\circ$  记录的全息图所重构的原子像非常相近, 在空间分辨率上没有显著的变化. 因此, 在实际实验中记录全息图的时候, 可以取大于  $1^\circ$  但不要超过  $5^\circ$  的取角步长来记录全息图, 这样就可以大大缩短记录全息

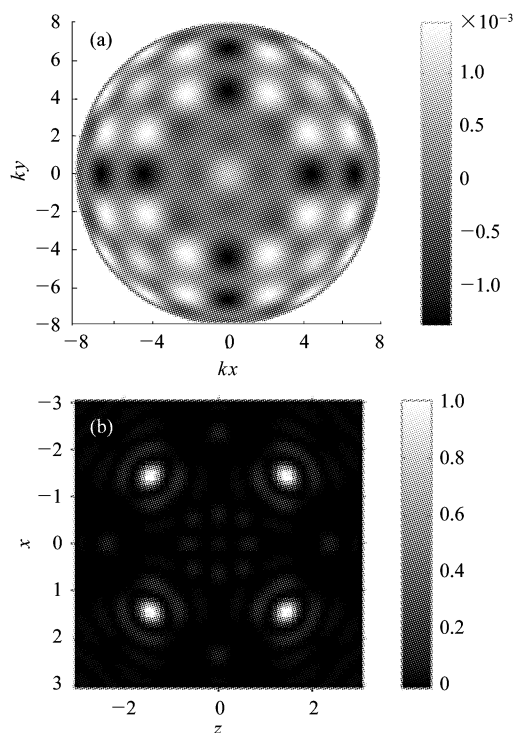


图 5 (a) The simulated hologram of  $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$  and  $35^\circ \leq \theta \leq 150^\circ$  on  $1^\circ \times 1^\circ$  grids.

(b) Its holographic reconstruction of Fe atoms in the plane parallel to the (010) crystallographic plane at  $y = 1.45 \text{ \AA}$ .

图的时间. 比如, 在  $4\pi$  立体角范围内采样, 采样步长为  $1^\circ$ , 则采样数目为 64800 个, 每次采样时间为 5s, 则总的采样时间为 90h, 如果为了增加统计性, 每次采样重复 3 次, 则总的采样时间为 270h, 需要十天左右的时间才能拍摄完成一张全息图. 这样不仅对光源的稳定性要求极高, 而且时间拉得太长, 很难保证实验过程中不出什么差错. 如果方位角和极角的采样步长都取为  $5^\circ$ , 则采样数目为 2592 个, 每个采样时间为 5s, 则记录一幅全息图的时间为 3.6h, 即使每次采样重复 3 次, 所需时间也只需 10h. 如果用计数率很高的雪崩光电二极管探测, 每次采样的时间仅为 1s, 则记录一幅荧光全息图的时间只需个把小时.

从上面的讨论可知, 如果一个荧光全息图在一个不完全的  $4\pi$  立体角范围内, 由该全息图重构得到的原子像将会出现结构信息缺损. 所以为了得到完整的结构信息, 全息图必须被记录在  $4\pi$  立体角范围内. 但在实际实验中, 因为装置的安排限制了全息图的记录角度的范围的完整性. 这个问题可以由全息图上的 Kossel 线来解决. Kossel 线是全息图上出现的一些很强的衍射线, 其方向符合布拉格衍

方位角范围仍为  $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$ , 其所得的全息图显示在图 5(a) 中. 可以看到完整的  $4\pi$  立体角范围内记录的全息图投影在  $kx-ky$  平面上是一个圆面. 由这个全息图重构得到的 (010) 晶面上的原子像显示在图 5(b) 中. 与图 4(b) 比较可知, 原子像在  $z$  方向上没有出现被拉长的现象, 这是因为记录全息图的极角范围是完整的. 所以, 从这两幅图像可知, 极角范围的不完全会导致原子像在  $z$  方向上被拉长.

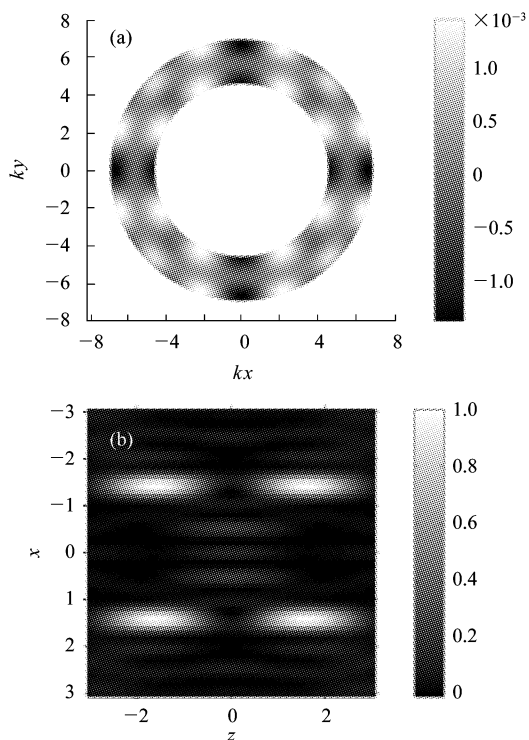


图 4 (a) The simulated hologram of  $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$  and  $35^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$  on  $1^\circ \times 1^\circ$  grids.

(b) Its holographic reconstruction of Fe atoms in the plane parallel to the (010) crystallographic plane at  $y = 1.45 \text{ \AA}$ .

### 3.3 取角步长的影响

讨论了记录全息图的方位角和极角范围的不完全对原子像的分辨率的影响之后, 我们还讨论了取角步长的影响. 分两种步长,  $1^\circ$  和  $5^\circ$  进行比较. 图 6(a) 是  $4\pi$  立体角范围内记录的全息图, 方位角和极角的步长都取为  $5^\circ$ , 其重构的 (010) 晶面上的原子像显示在图 6(b) 中. 比较图 6(b) 和图 5(b), 可知在相同的方位角和极角的范围内, 两种步长  $1^\circ$  和  $5^\circ$  记录的全息图所重构的原子像非常相近, 在空间分辨率上没有显著的变化. 因此, 在实际实验中记录全息图的时候, 可以取大于  $1^\circ$  但不要超过  $5^\circ$  的取角步长来记录全息图, 这样就可以大大缩短记录全息

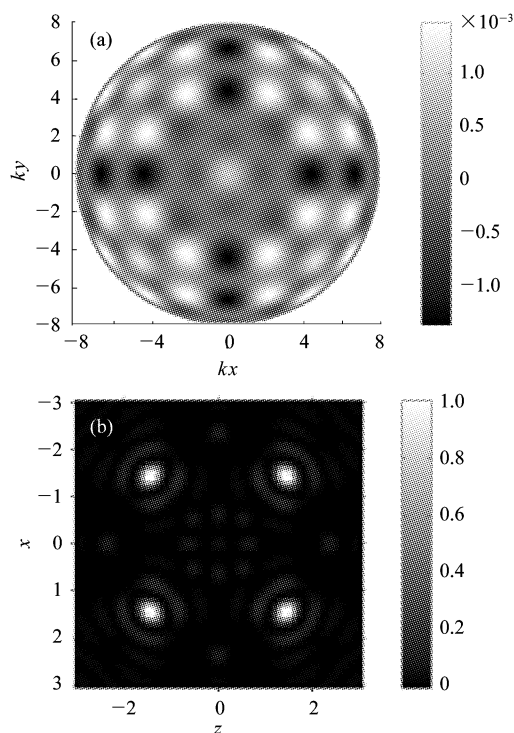


图 5 (a) The simulated hologram of  $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$  and  $35^\circ \leq \theta \leq 150^\circ$  on  $1^\circ \times 1^\circ$  grids.

(b) Its holographic reconstruction of Fe atoms in the plane parallel to the (010) crystallographic plane at  $y = 1.45 \text{ \AA}$ .

图的时间. 比如, 在  $4\pi$  立体角范围内采样, 采样步长为  $1^\circ$ , 则采样数目为 64800 个, 每次采样时间为 5s, 则总的采样时间为 90h, 如果为了增加统计性, 每次采样重复 3 次, 则总的采样时间为 270h, 需要十天左右的时间才能拍摄完成一张全息图. 这样不仅对光源的稳定性要求极高, 而且时间拉得太长, 很难保证实验过程中不出什么差错. 如果方位角和极角的采样步长都取为  $5^\circ$ , 则采样数目为 2592 个, 每个采样时间为 5s, 则记录一幅全息图的时间为 3.6h, 即使每次采样重复 3 次, 所需时间也只需 10h. 如果用计数率很高的雪崩光电二极管探测, 每次采样的时间仅为 1s, 则记录一幅荧光全息图的时间只需个把小时.

从上面的讨论可知, 如果一个荧光全息图在一个不完全的  $4\pi$  立体角范围内, 由该全息图重构得到的原子像将会出现结构信息缺损. 所以为了得到完整的结构信息, 全息图必须被记录在  $4\pi$  立体角范围内. 但在实际实验中, 因为装置的安排限制了全息图的记录角度的范围的完整性. 这个问题可以由全息图上的 Kossel 线来解决. Kossel 线是全息图上出现的一些很强的衍射线, 其方向符合布拉格衍

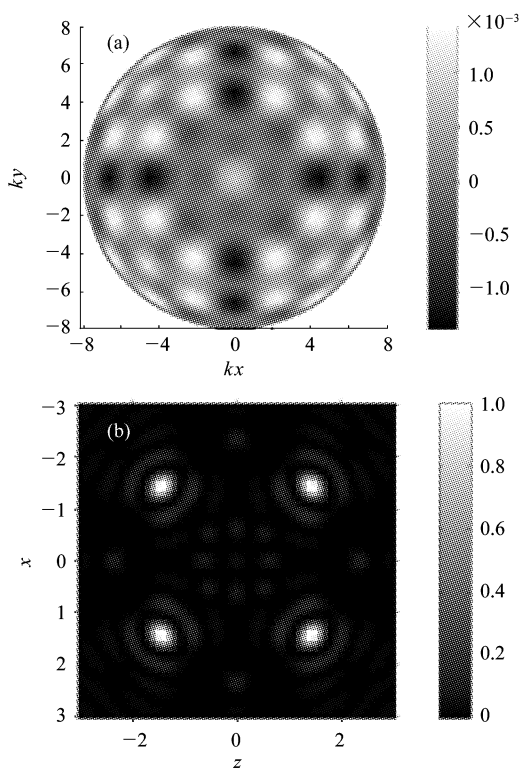


图 6 (a) The simulated hologram of  $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$   
and  $35^\circ \leq \theta \leq 150^\circ$  on  $5^\circ \times 5^\circ$  grids.

(b) Its holographic reconstruction of Fe atoms in the plane  
parallel to the (010) crystallographic plane at  $y = 1.45 \text{ \AA}$ .

射条件. 这些衍射线在全息图上很清晰, 而且呈现四象限对称性. 因此可以根据这个特性将不完全记录的全息图进行拓展, 可以得到  $4\pi$  立体角范围内的完整的全息图. 因为篇幅有限, 这一点在这里不作具体阐述.

## 4 结论

综上所述, 我们分别讨论了记录全息图的方位角范围、极角范围以及它们的取角步长对重构的原子像的分辨率的影响. 得出的结论是, 方位角范围的不完全导致原子像在  $x$  和  $y$  方向上被拉长, 而且导致原子像的亮度不均匀. 而极角范围的不完全则导致了原子像在  $z$  方向上被拉长. 至于步长的影响, 则是可以忽略的, 如果步长不是太大的话. 因此, 在一个 X 射线荧光全息实验中, 实验者必须在  $4\pi$  立体角范围内高角度分辨率地探测荧光的强度, 才能得到高空间分辨率的三维的原子像. 因为实验安排的限制, 实际上完全  $4\pi$  立体角范围内记录全息图是不可能的, 因此必须利用衍射线的对称性通过计算机程序将全息图拓展到一个完整的球面上才能得到完整的晶体内部的三维的结构信息.

## 参考文献 (References)

- Gabor D. Nature, 1948, **161**:777
- Szöke A. In: Short Wavelength Coherent Radiation: Generation and Applications, edited by Atwood T and Boker J, AIP Conf. Proc. 1986, **147** (AIP, New York):361
- Harp G R, Saldin D K, Tonner B P. Phys. Rev. Lett., 1990, **65**:1012
- Tegze M, Faigel G. Nature, 1996, **380**:49
- Adams B, Novikov D V et al. Phys. Rev., 1998, **B57**:7526
- Tegze M, Faigel G et al. Phys. Rev. Lett., 1999, **82**:4847
- Marchesini S et al. Phys. Rev. Lett., 2000, **85**:4723
- John S. Nature, 2001, **410**:1037
- Kopecky M et al. Phys. Rev. Lett., 2002, **88**:185503
- Faigel G, Tegze M. Rep. Prog. Phys., 1999, **62**:355
- Born M, Wolf E. Principles of Optics, 1959, (London: Pergamon)
- Barton J J. Phys. Rev. Lett., 1988, **61**:1356

## Influence of Angle Range of Recording A Hologram to the Reconstructed Atomic Image in X-Ray Fluorescence Holography \*

XIE Hong-Lan<sup>1)</sup> CHEN Jian-Wen GAO Hong-Yi LI Ru-Xin XU Zhi-Zhan  
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, CAS, Shanghai 201800, China)

**Abstract** X-ray fluorescence holography is a novel method for three-dimensional (3D) imaging of local atomic structure. Theoretically, in an XFH experiment, one has to measure the fluorescence energy on a spherical surface with angular resolution in the degree range to get well-resolved three-dimensional (3D) images of atoms. But in practice, experimental system arrangement of XFH does not allow the measurement of the fluorescent intensity oscillations in the full sphere. The holographic information loss because of the limited sampling range (less than  $4\pi$ ) will directly result in defective reconstructed atomic images. In this work, we investigate the influence of angle range and step of recording an X-ray fluorescence hologram on reconstructed atomic images by numerically simulating X-ray fluorescence holograms of Fe single crystal at different recording angle range and step. The Fe atomic images in the plane parallel to the crystal (001) crystallographic plane reconstructed from these simulated holograms can show this influence. The incomplete range of azimuth angle causes inhomogeneous brightness of the reconstructed atomic images. The incomplete range of polar angle causes the reconstructed atomic positions slightly shifted toward the central site and the increase of background brightness. The influence of the polar angle step on the reconstructed atomic images can be ignored if the step is enough small.

**Key words** X-ray fluorescence holography, synchrotron radiation, crystal structure, Fourier transform

---

\* Supported by NSFC (60278030)

1) E-mail: hongtanxie@163.com