

探究微观世界的新方法

——X射线傅里叶变换鬼成像*

谈志杰 喻虹[†] 韩申生^{††}

(中国科学院上海光学精密机械研究所 量子光学重点实验室 上海 201800)

2017-01-26收到

[†] email: yuhong@siom.ac.cn

^{††} email: sshan@mail.shenc.ac.cn

DOI: 10.7693/wl20170506

自1914年Max Laue发现X射线晶体衍射后，X射线晶体学已经成为人类探索微观世界的强大工具，如生物分子结构和纳米材料研究等^[1-3]。然而，很多重要分子材料的结构信息，如膜蛋白，仍然难以得到，因为这些材料很难生长为较大尺寸的晶体。此外，随着纳米科学和生物学的快速发展，人们更加迫切地希望在自然状态下来获取样品的内部结构信息，而不是通过结晶的方法。1999年，苗建伟等提出相干衍射成像(CDI)方法^[4-6]来进行非晶态物体的X射线显微成像，该方法利用相干X射线照射样品并且在远场(夫琅禾费衍射区)记录衍射图像，从而实现非晶态样品的傅里叶变换成像。但是，在传统的X射线相干衍射成像中，受限于探测器的动态范围，样品的低频信息丢失^[7, 8]。更重要的是，由于相干衍射成像方法对X射线源高相干性和高亮度的要求，在实际应用中，往往只有同步辐射或X射线自由电子激光^[9]提供的X射线才能满足成像要求。

鬼成像是一种基于光场涨落的量子或者经典关联特性，通过测量参考光场与目标探测光场之间的强度关联(二阶关联)函数，从而非局域地获取目标图像信息的新型成像技术。所谓非局域，可以通俗地理解为不用“盯”着物体，就能得到物体的像。鬼成像最初是利用具有纠缠特性的光子对完成的，所以早期人们认为只有具有量子纠缠特性才能实现鬼成像，这是一种量子效应^[10]。随后，人们发现量子纠缠不是实现鬼成像的必要条件，基于经典光场的强度(即光强)时空涨落和关联同样可以实现鬼成像^[11, 12]。很快，对经典热光源实现关联成像也给出了理论解释。此后，人们对鬼成像的实现光源有了比较一致的认识，认

为量子纠缠光源和经典的热光源都可以用来实现鬼成像。近年来，随着鬼成像技术的快速发展，为X射线高分辨成像提供了新思路。在无需透镜的情况下，可以利用非相干赝热X射线，在菲涅尔区获得与相干衍射成像相同的傅里叶变换图^[13]，即X射线傅里叶变换鬼成像(FGI)。FGI对X射线源的空间相干性要求不高，可以使用实验室X射线源，具有广阔的应用前景。

在傅里叶变换鬼成像中，非相干光经过分束器分光后，一束光经过样品后其强度被点探测器记录，称为探测臂；另一束光直接到达CCD面阵探测器，称为参考臂。通过计算探测臂光场涨落 ΔI_t 与参考臂光场涨落 ΔI_r 的二阶关联函数，可以得到样品的傅里叶变化衍射图。早在2004年，我们课题组就从理论上论证了该方法的可行性^[14]。然而，在实验技术上仍然存在以下问题：(1)X射线相干时间非常短，远远低于探测器的响应时间，现有探测器无法记录下相干时间内的X射线光场涨落，只能记录一段时间内的平均光强；(2)在可见光波段，探测臂与参考臂的关联分束易于实现，但在X射线波段，由于其较强的穿透性，难以实现类似可见光的关联分光。

为了克服以上困难，我们设计了一种赝热X射线虚拟分光实验方案，成功地实现了X射线傅里叶变换鬼成像^[15]，如图1所示。该实验在上海光源BL13W1光束线进行，实验中的准单色X射线光通量是 6.75×10^{12} 光子/秒，能量在12.1 keV(即X射线波长为0.1 nm)。

为了解决真实X射线相干时间非常短的问题，我们使用了赝热X射线源^[16]，即通过生成相干时间可控的X射线散斑场来模仿非相干热X射线源的空间涨落特性。实验中赝热X射线源是将

* 国家自然科学基金(批准号: 11627811, 11105205)资助项目

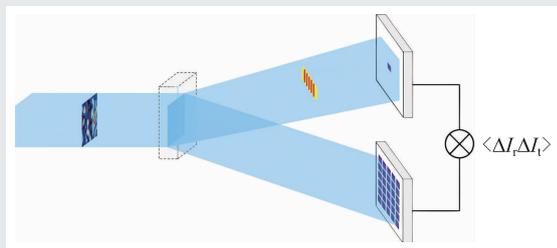


图1 X射线傅里叶变换鬼成像示意图。采用虚拟分光方案, 准单色赝热X射线被虚拟分为两路: 一路经过五缝样品, 采用点探测器记录光场的强度涨落 $\Delta I_t(x_t)$, 构成探测臂; 另一路无样品, 采用面阵探测器直接记录光场的强度涨落 $\Delta I_r(x_r)$, 构成参考臂。通过计算两臂光场的强度关联得到样品的傅里叶变换图

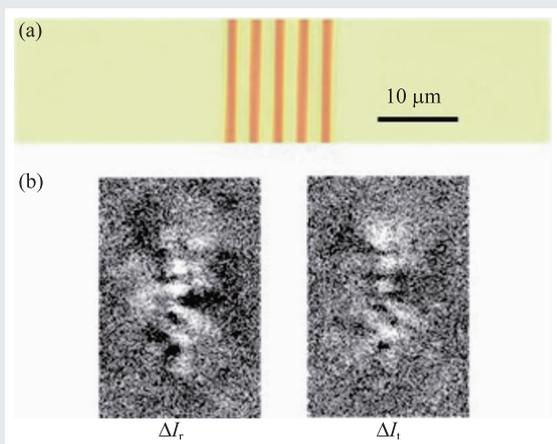


图2 实验样品以及一对参考光场和探测光场强度涨落分布实例

单色X射线束依次经过一个狭缝阵列和一个可移动的多孔金属膜产生的。狭缝阵列的狭缝尺寸小于等于X射线的横向相干尺寸, 因此, 透过每一个狭缝的X射线子光束可视为空间相干的, 从而提高X射线散斑场的对比度。多孔金属膜安装在一个计算机控制的平移装置上, 紧贴在狭缝阵列后方放置。金属膜上随机分布着大量直径小于1 μm的微孔, 对于波长0.1 nm的X射线, 在有微孔与无微孔的地方存在 π 相位差。多孔金属膜的大小远大于整个单色X射线束截面, 因此, 当多孔金属膜垂直于光路横向移动时, X射线将辐照金属膜的不同部位, 从而产生不同的X射线散斑分布, 形成动态X射线散斑场, 即赝热X射线源。

为了解决X射线波段关联分光的问题, 我们

设计了虚拟分光的方案。我们注意到, 傅里叶变换鬼成像系统中, 要求光源到参考臂探测器的距离与光源到探测臂探测器的距离相等^[14]。因此, 对于可控的赝热X射线源, 可以仅用一个固定的面阵探测器, 通过在相干时间内将样品移进和移出光束来实现参考臂和探测臂光强分布的分离探测。

在实验中, 我们所使用的样品是在 Si_3N_4 衬底上的5条厚度为2.2 μm的金缝, 缝间隔为3 μm, 缝宽为1 μm, 如图2(a)所示。样品到CCD的距离仅为33 cm, 对于波长0.1 nm的X射线, 并不满足远场衍射条件。一对参考光场强度涨落分布 ΔI_r 和探测光场强度涨落分布 ΔI_t 实例如图2(b)所示, 实验中获取每幅X射线散斑图的曝光时间为3 s。

为了提高采样效率, 我们采用了一种利用图像稀疏性约束重建傅里叶变换衍射图的重构算法^[17]。图3(a)是利用284对X射线FGI数据重构得到的样品傅里叶变换图, 采样总时间为76分钟。图3(a)的横截面曲线由图3(b)中红线表示, 图3(b)红线的峰间距为11.1 μm, 与理论计算的样品傅里叶变换峰间距相符。图3(b)中的蓝色曲线表示样本的傅里叶变换数值模拟结果, 该曲线与实验结果相符。因此, 通过X射线FGI方法, 我们在菲涅尔区获得了样品的傅里叶变换衍射图, 而在传统的X射线CDI方法中, 样品的傅里叶变换图需要在远场(夫琅禾费区)才能得到。通过计算探测光场涨落分布 $\Delta I_t(x_t)$ 的自关联函数, 我们还可以得到样品透射函数模方的傅里叶变换衍射图^[18], 实验结果如图3(c)和3(d)所示, 结果同样与蓝色曲线表示的数值模拟结果相符。因此, 在我们的X射线FGI实验中, 样品的振幅和相位信息可以实现分离探测, 即分别来自于探测臂光强涨落的自关联函数以及探测臂光强涨落和参考臂光强涨落之间的互关联函数。

在傅里叶变换鬼成像中, 我们使用两步相位恢复法重建样品的实空间分布^[19]。首先, 通过图3(c)的傅里叶变换图重建样品的振幅分布, 然后, 利用样品的振幅分布作为先验信息, 结合图3(a)中的傅里叶变换图重建样品透射率函数的相位部分。实验样品的实空间振幅分布和相位分布

重建结果如图4所示。重建结果的空间分辨率为 $0.297\ \mu\text{m}$ ，重建得到的样品间距为 $2.97\ \mu\text{m}$ ，与真实样品的实空间特性几乎完全一致。

该工作最近发表在 *Phys. Rev. Lett.* 上^[15]，首次成功实验演示了X射线波段的傅里叶变换鬼成像，通过测量光场的涨落及其二阶关联获得了复振幅样品的傅里叶变换衍射谱，并很好地重建出样品的振幅和相位等实空间信息。成像样品无需结晶，其成像分辨率仅受限于X射线波长，理论上这一成像方法可实现原子级分辨的非晶态样品显微。并且，它不要求光源的高空间相干性，采用非相干X射线源就可以实现细胞组织以及功能材料内部结构高分辨率观测。

此外，X射线傅里叶变换鬼成像的衍射图样是通过关联计算得到的，可以避免传统X射线衍射成像带来的低频信息缺失，样品的振幅和相位信息可以分别探测，有利于解决X射线衍射成像领域中长期存在的相位问题。并且，在X射线波段实现傅里叶变换鬼成像，也为原则上不可能获得高亮度相干源的费米子(如中子、电子等)衍射成像提供了可能的技术思路和研究方向。

参考文献

- [1] Shi Y. *Cell*, 2014, 159:995
- [2] Fleury B, Cortes-Huerto R, Taché O *et al.* *Nano Lett.*, 2015, 15:9
- [3] Kosynkin D V, Higginbotham A L, Sinitskii A *et al.* *Nature*, 2009, 458:872
- [4] Chapman H N. *Nat. Phys.*, 2006, 2:839
- [5] Miao J, Charalambous P, Kirz J *et al.* *Nature*, 1999, 400:342
- [6] Pfeifer M A, Williams G J, Vartanyants I A *et al.* *Nature*, 2006, 442:63
- [7] Rodenburg J M, Hurst A C, Cullis A G *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2007, 98:3
- [8] Thibault P, Dierolf M, Menzel A *et al.* *Science*, 2008, 321:5887
- [9] Chapman H N. *Nature*, 2011, 470:73
- [10] Pittman T B, Shih Y H, Strekalov D V *et al.* *Phys. Rev. A*, 1995, 52:5
- [11] Bennink R S, Bentley S J, Boyd R W. *Phys. Rev. Lett.*, 2002, 89:11
- [12] Bennink R S, Bentley S J, Boyd R W *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2004, 92:3
- [13] Zhang M, Wei Q, Shen X *et al.* *Phys. Rev. A*, 2007, 75:2
- [14] Cheng J, Han S. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, 92:92
- [15] Yu H, Lu R H, Han S *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117:11
- [16] Ferri F, Magatti D, Gatti A *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2005, 5893:3
- [17] Wang H, Han S. *Europhys. Lett.*, 2012, 98:2
- [18] Zhang M, Wei Q, Shen X *et al.* *Phys. Lett. A*, 2007, 366:6
- [19] Ying G, Wei Q, Shen X *et al.* *Opt. Commun.*, 2008, 281:20

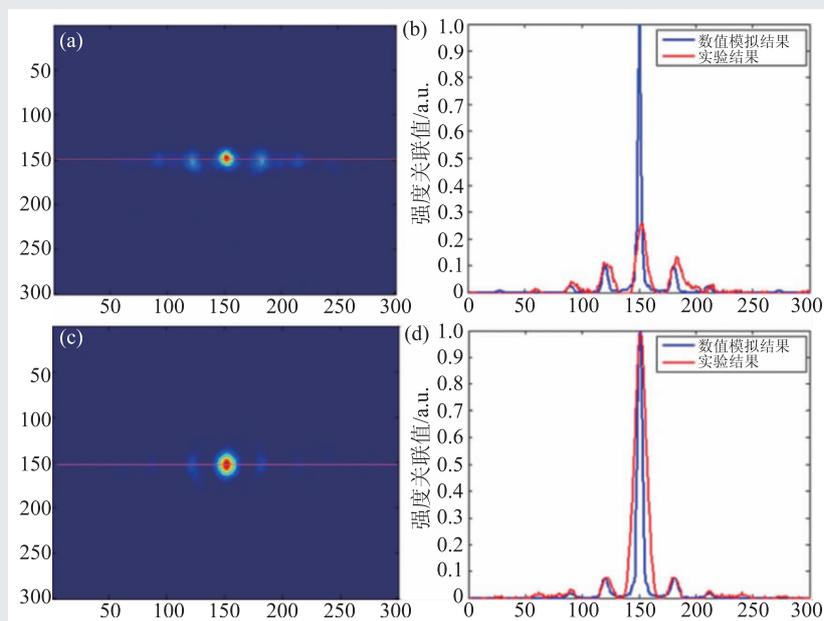


图3 实验样品的傅里叶变换图 (a)X射线FGI得到的样品透射函数的傅里叶变换图；(c)X射线FGI得到的样品透射函数模方的傅里叶变换图；(b)和(d)中的红色曲线分别对应(a)和(c)中红线标记的截面曲线，(b)和(d)中的蓝色曲线分别是相应的数值模拟结果

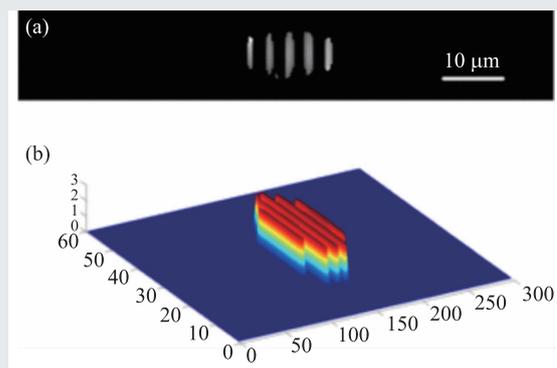


图4 X射线FGI的实验样品实空间分布重建结果。(a)和(b)分别为重建后得到的样品振幅及相位分布，重建图像的像素大小为 $0.297\ \mu\text{m}$