

X射线毛细管及其应用*

徐向东 洪义麟 付绍军 张允武

(中国科学技术大学国家同步辐射实验室,合肥 230029)

摘要 介绍了 X 射线毛细管光学元件的原理、特征和类型及其在蛋白质晶体学、微束衍射、微束光谱等方面应用新进展。

关键词 X 射线波导管, X 射线衍射, 全反射, 毛细管

X-RAY CAPILLARY OPTICS AND APPLICATIONS

Xu Xiangdong Hong Yilin Fu Shaojun Zhang Yunwu

(National Synchrotron Radiation Laboratory of USTC, Hefei 230029)

Abstract The basic principle, characteristics and classification of X-ray capillary optics and its application in the study of protein crystallography, micro-diffraction, micro-tomography and micro-spectroscopy are reviewed.

Key words X-ray guide tube, X-ray diffraction, total reflection, capillary

1 引言

直径小于几十个微米的高强度 X 射线微束,对蛋白质晶体学、材料科学研究和其他应用非常有用,如非常小的大分子晶体衍射、有关合金晶界邻近原子排列、直径只有几个微米的聚合物纤维表面和内部结构差异等,这就促使人们研究如何产生相应的 X 射线微束。通常用于 X 射线天文望远镜和同步辐射光束线中的基于全反射的掠入射反射镜,其主要的限制是极小的角接收孔径、体积大和造价昂贵;基于菲涅耳衍射的波带片和基于布拉格衍射的晶体或多层膜光学元件,虽然没有角接收孔径的限制,但仅对一狭窄波段有用;而基于全反射的毛细管光学元件在用于产生 X 射线微束时正好可以弥补以上不足,实现广角、宽带传输,而且造价低廉,因而引起人们的极大兴趣。目前德国 DORIS,美国 CHSS,APS,欧洲 ESRF,日本 Spring-8 等同步辐射装置都有用 X 射线毛细管光学元件的光束线。我国只有北京师范大学

低能核物理研究所^[1]开展聚合毛细管光学元件的研制工作。

本文简要介绍 X 射线毛细管光学元件的原理、特征和类型以及一些应用实例。还有许多有意义的工作本文没有涉及,感兴趣的读者可查阅有关文献。

2 基本原理

X 射线毛细管是以全反射为基础,这一原理^[2]早在本世纪 20 年代末就被建立。但与普通的掠入射反射镜不同的是,空心玻璃毛细管起波导作用,X 射线在其中进行多次反射而不象其他掠入射反射镜系统中只有一到两次反射,如图 1 所示。

X 射线全反射的临界角^[1]取决于反射材料的密度(ρ)和使用的 X 射线波长(λ),对于低原子序数材料,临界角 $\theta_c = 1.64 \times 10^{-3} \sqrt{\rho}$, θ_c

* 1998-05-26 收到初稿,1998-07-23 修回

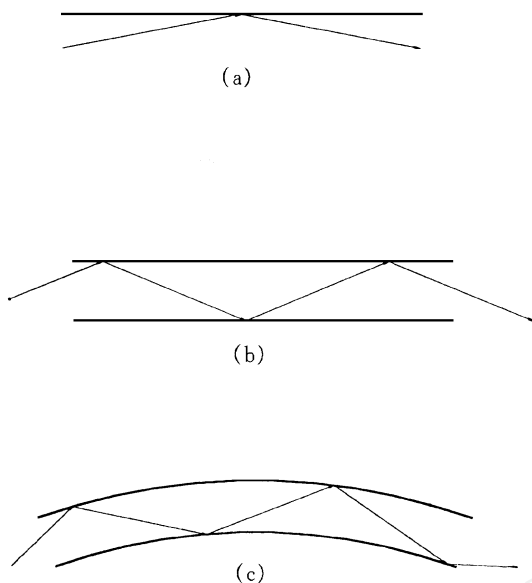


图1 X射线毛细管光学原理示意图

的单位是 rad, ρ 的单位是 \AA , μ 的单位是 g/cm^3 .

影响毛细管性能的因素很多,除了毛细管本身的因素如毛细管的形状、长度、出入口端的内径、材料(常用硅酸硼玻璃或铅玻璃)、反射面的表面粗糙度外,进入毛细管的 X 射线光源的尺寸、发散度、距离、能量或能量分布等均可以影响毛细管的性能.所以,仅通过实验结果的解释是很难定量分析每一个因素的重要性.

为了深刻了解上述各种参数的相对重要性,近几年来,一些研究者^[3]已提出了很多的计算模式进行追迹(ray tracing).通过这方面的工作,人们对此类光学元件有了更为真实的理解,可以简化一些确定特殊用途的理想毛细管参数的过程.另外,追迹现已成为预测实际毛细管物性的重要组成部分.

3 基本特征

3.1 一般特点

我们知道,反射镜、波带片等成像光学元件其焦斑只不过是光源的像,光源的波动和不稳定性将相应地在焦斑上有所反映.另外,热梯度导致的反射镜几何尺度的微小变化也能引起焦距

和焦斑的波动.而 X 射线毛细管光学元件并不是点与点一一对应的成像系统,属于非成像光学元件^[4](non - imaging optics, NIO),其主要特点如下:

(1) 焦斑大小仅取决于毛细管内径,光源的波动和不稳定性将不影响焦斑位置或大小.由于外形柱对称,热梯度也不会影响焦斑位置.因此,当光学系统仅用于聚焦光束时,非成像光学元件优于成像光学元件.

(2) 可实现广角(达 30°)与宽带(0.5—100keV,甚至几 MkeV)传输,这种方法可进行有效的偏转,而射线的反射空间则比普通掠入射系统小得多.

(3) 聚束的尺度不象波带片那样依靠于 X 射线的相干性.

(4) 因临界角取决于 X 射线光子能量(E^{-1}),可作为滤波器使用.

(5) 不像制备反射镜、波带片等光学元件那样需要精密昂贵的设备和较多的机时,且宽度相对较大,所以造价很低.

3.2 特征参数

X 射线毛细管的性能通常由出射束斑尺寸、强度增益、发散度等特征参数表征^[2,5].

(1) 束斑尺寸 (beam size) S . 束斑尺寸是针对聚焦毛细管而言,它用下式表示:

$$S = 2r + 2f_c,$$

式中 S 是束斑的尺寸, r 是单个通道出口端半径, f_c 是焦斑和出口端之间的距离, θ_c 是临界角,实验上常通过直边 (straight edge) 扫描法测定.对产生平行束的毛细管而言,相应的表征参数是光强的均一化程度.

(2) 强度增益 (gain in intensity) G . 它用下式表示:

$$G = T(A_{in}/A_{out})$$

式中 T 是毛细管的传输效率, A_{in}/A_{out} 是毛细管入口和出口处横截面的比值.传输效率由实验测定,即首先测出毛细管出口端的 X 射线通量,然后移走毛细管,并在光路中放入一根与毛细管入口端内径相同的直管,测量它的 X 射线通量,这两者的比值即为毛细管的传输效率.在

测量过程中,应保持光源和探测器之间距离的一致性,以消除空气吸收效应的影响。

(3) 捕获度 (degree of capture) . 它用下式表示:

$$= R^2 \sin^2 c / 4 r,$$

式中 R 是弯曲毛细管的曲率半径, c 是毛细管发生全反射的临界角, r 是毛细管内壁半径。

≥ 1 时, 整个截面都传输 X 射线; < 1 时, 仅部分截面传输 X 射线; $\ll 1$ 时, X 射线传输几乎为零。

(4) 发散度 (divergence) . 这里的发散度是指出射 X 射线的全角展度 (the full angular spread) . 它可通过测量毛细管出射束两个不同位置的光束尺寸, 或用 Ge (111) 晶体分析仪测量 Ge (111) 的布拉格衍射强度的角分布来确定, 由于 Ge (111) 布拉格衍射的摇摆曲线的半高宽 (FWHM) 大大小于测量的发散角, 测量的布拉格衍射强度的角分布就代表了透过毛细管的 X 射线束的一维发散角。

4 基本类型

X 射线毛细管光学元件主要分为两大类, 即聚合 X 射线毛细管光学元件和单根 X 射线毛细管光学元件. 前者可以在较短长度下聚集较大的 X 射线束 ($\sim 500\mu\text{m}$), 每一个通道都能有效地将 X 射线折向毛细管的中心线上, 焦斑离出口端距离为 10mm 量级, 不足之处是焦斑相对较大; 后者焦斑相对较小 ($50\text{nm} - 20\mu\text{m}$), 离出口端距离仅为 $100\mu\text{m}$ 量级。

4.1 聚合 X 射线毛细管光学元件

聚合 X 射线毛细管光学元件又称为库马霍夫透镜^[6]或 X 射线透镜, 它是由成千上万根空心玻璃纤维在横截面上呈六方最紧密堆积而成的一束毛细管阵列. 早期的聚合 X 射线毛细管光学元件, 每一个毛细管都通过一系列有支撑孔的薄屏, 薄屏由一系列框架支持且保持准直, 这种元件一般都含有几百至几千根毛细管, 每根毛细管内有几千个直径恒定的通道. 现一般为整体式 (monolithic piece), 其中的毛细管

是熔合在一起放入保护体内, 毛细管的通道内径沿元件长度方向变化. 依其作用又可进一步分为会聚透镜和平行束透镜两类, 如图 2 所示. 会聚透镜能将发散的 X 射线会聚成很小的束斑, 从而得到很高的功率密度; 平行束透镜则能将发散的 X 射线束转为平行光束, 形成较大面积的、强度均匀的高强度 X 射线束。

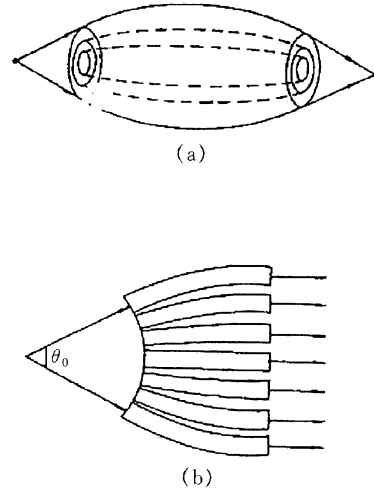


图 2 聚合 X 射线毛细管光学元件示意图

最近, Dabagov^[7]等在聚合 X 射线毛细管光学元件的焦斑上观察到了干涉效应, 即焦斑中央有一特别明显的干涉最大结构. 他们用波动理论对此现象进行了解释, 也就是将紧密堆积的毛细管类比为宏观晶体 (macroscopic crystal), 那么干涉现象就归结为透镜内的 X 射线“衍射”。

4.2 单根 X 射线毛细管光学元件

单根毛细管光学元件的出现远比聚合 X 射线毛细管光学元件早, 如 1948 年, Kregel^[8]就利用单根锥状玻璃毛细管将 X 射线管发出的 X 射线微束化, 用于亚微观尺度生物样品的 X 射线衍射, 但没有获得强度增益, 早期玻璃毛细管的一个显著特点就是非常短, 一般不超过 1cm. 最近几年, 这项技术因 X 射线光源、微细加工和检测技术的改进得到了真正发展, 如最长的单根玻璃毛细管达 1.6m ^[9], 最细的出口直径为 $0.1\mu\text{m}$. 单根 X 射线毛细管光学元件依其形状进一步可分为以下三类^[3] (如图 3 所

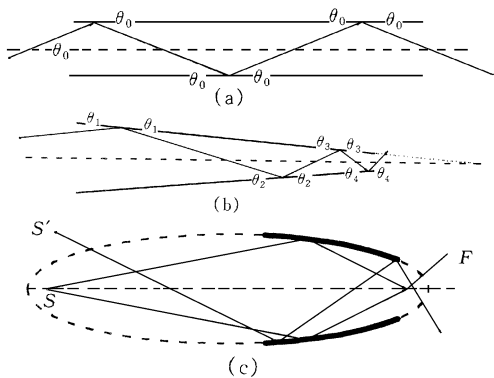


图3 单根 X 射线毛细管光学元件示意图

示):

(1) 直管形毛细管 (straight capillary). X 射线在玻璃内壁反复全反射过程中, 入射角 θ_0 保持恒定.

(2) 锥形毛细管 (conical capillary). X 射线在其中的传输方式类似于直管型毛细管, 不过将 X 射线束压缩至毛细管出口端直径大小, 每一次反射的入射角 θ_i 较前一次增加 $2\theta_0$ 即 $\theta_i = \theta_0 + (2i - 1)\theta_0$, 只有最后一次反射的入射角小于临界角的 X 射线光子, 才能被毛细管传输.

(3) 椭圆形毛细管 (ellipsoidal capillary). X 射线在其中的传输方式包括两部分: 对位于椭圆焦点 S 上的光子, 通过毛细管内壁的全反射 (只一次) 被聚焦到另一个焦点 F 上, 这与传统的椭圆形 X 射线反射镜相类似; 对于 S 点之外的光子, 元件的行为类似于锥形毛细管, 光子在离开毛细管时经历了多重反射.

5 应用

X 射线毛细管光学元件的最大优点在于能获得用其他方法很难得到的高强度微米、亚微米 X 射线微束, 这为许多实验提供了机遇并得到广泛应用.

5.1 蛋白质晶体学

蛋白质晶体学的特点是所研究的对象即蛋白质晶体尺寸非常小、晶体衍射很弱和稳定性差, 在同步辐射照射下, 典型蛋白质晶体寿命为 2—3min. 常规 X 射线衍射技术要求晶体的最

小尺度为 $100\mu\text{m}$, 显然不能满足大多数应用; 利用现代 X 射线光源和优良的光学元件, 蛋白质晶体尺寸可以减小到 $20\mu\text{m}$. 尽管 X 射线毛细管不是唯一的选择, 但它是目前最有前途的光学元件. Bilderback^[10]等在 CHESS 弯转磁铁光束线上, 利用单根锥状 X 射线毛细管产生直径 $5.6\mu\text{m}$ 的 X 射线微束 ($5-25\text{keV}$), 用它照射 $150\mu\text{m}$ 厚的溶菌酶单晶, 获得分辨率为 0.22nm 的劳厄图, 从所记录的衍射斑点大小确定微束的发散角为 2.6mrad .

5.2 微束衍射

X 射线微束衍射是一个正在发展的很有前途的分析工具. Bilderback^[10]等在 CHESS 上用单根锥状 X 射线毛细管产生直径 360nm 的 X 射线微束, 观察到了 $4\mu\text{m}$ 厚的单晶硅和 50nm 厚的单晶金箔的劳厄图, 前者的衍射斑呈清晰理想的圆形且易于指标化, 因而属理想单晶; 后者的衍射斑呈条纹状, 这说明晶体是由一系列取向稍有差异的镶嵌晶畴组成, 晶畴尺度应小于光斑即 360nm . 另外, 被 X 射线微束照射的金箔体积只有 $5 \times 10^{-3}\mu\text{m}^3$, 这是目前 X 射线衍射方法所研究的最小体积.

5.3 微束层析显微术

计算机断层扫描 (简称 CT) 是一种强有力的非侵入性的诊断技术, 它广泛应用于生物学、医学、材料科学、地质学等领域. 因微束 X 射线层析显微术 (XTM) 能提供高分辨率的三维成像, 引起人们的极大兴趣, 在 DORIS, SSRL 和 NLSL 等同步辐射装置上均装有专门的实验装置. 如何进一步提高 XTM 分辨率是人们非常感兴趣的一个课题. 提高分辨率的传统方法的主要障碍是在减小束斑尺寸的同时光通量也随之降低, 而 X 射线毛细管光学元件具有克服这种缺陷的能力^[11].

5.4 微束光谱分析

X 射线光谱分析是物理、化学、生物、医学、环境科学、地质学、法医学、材料科学等学科及工业生产中的一种重要研究手段. 如何提高 XRF 实验数据的信噪比、样品检测的空间分辨率和降低痕量元素的检测极限等是人们感兴趣

的课题. Skakir^[12]等报道了 Karkadeh 叶子的痕量元素分布; Engstrom^[13]等报道了用 19 μm 锥状毛细管所做的单根头发丝的径向元素分布. Yamamoto^[14]等用直径 5 μm 的毛细管研制出一种衍射和荧光分析于一体的 X 射线微束谱仪,它主要用于超大规模集成电路处理过程中的检测,最大的优点是能同时测量 X 射线衍射和 X 射线荧光,前者可获得局部反应和残余应力信息,后者可得到有关掺杂量的信息.

6 现状及展望

X 射线毛细管光学是发展最快的 X 射线光学技术之一. X 射线毛细管与传统的 X 射线管结合可以建成桌面型 (table-top) 微束谱仪或衍射仪,特别适用于空间站使用. X 射线毛细管与同步辐射光源结合可产生更强的 X 射线微束,如欧洲 ESRF 同步辐射装置的 ID13 光束线上的毛细管出口端的光通量为 10^{10} 光子/ $\mu\text{m}^2/\text{s}$ (带宽 2×10^{-4}),这可能是世界上最强的 X 射线微束^[15]. 目前制作的最细单根锥状 X 射线毛细管出口处直径为 0.1 μm ,用它对 5—8keV X 射线产生的微束进行扫描成像实验已获得 50nm 的空间分辨率. 因此,单根锥状 X 射线毛细管是硬 X 射线波段唯一达到纳米分辨率的 X 射线光学元件.

尽管毛细管光学元件在过去近 10 年中有了迅速的发展,但仍存在很多争论和未解决的问题,如毛细管内实际的 X 射线折射和反射等,这主要是由于人们很难对微米量级的毛细管内表面进行直接测量. 追迹研究已为拉制毛

细管提供了理想模式,但目前的技术水平仍达不到很好地控制想要制作的毛细管,如很难制作出参数系统改变的一系列毛细管. 所以,制作技术的发展将是 X 射线毛细管光学的主攻方向之一.

参 考 文 献

- [1] 丁训良、梁炜、颜一鸣,核技术,1996,19(3):164—169
- [2] Thiel D J, Bilderback D H. Nucl. Instr. and Meth. A, 1994,347:384—389
- [3] Vincze L, Janssens K *et al.* X-ray Spectrom., 1995, 24:27—29
- [4] Rinby A. X-ray Spectrom., 1993,22:187—191
- [5] Xiao Q F, Poturaev S V. Nucl. Instr. and Meth. A, 1994,347:376—383
- [6] Kumakhov M, Komanov F F. Phys. Rep., 1990,191:290—350
- [7] Dabagov S B *et al.* J. Synchrotron Rad., 1995,2:132—135
- [8] Kreger D R, in: Bouman J ed. X-ray Crystallography, North-Holland Pub. Co., Amsterdam, 1951,299—367
- [9] Thiel D J, Bilderback D H, Lewis A *et al.* Appl. Opt., 1992,31:987—992
- [10] Bilderback D H, Hoffman S A *et al.* Science, 1994,263:201—203
- [11] Bilderback D H *et al.* J. Synchrotron Rad., 1994,1:37—42
- [12] Shakir N, Larsson S *et al.* Nucl. Instr. and Meth. B, 1990,52:194—198
- [13] Engstrom P, Larsson S *et al.* Nucl. Instr. and Meth. B, 1989,36:222—226
- [14] Yamamoto N, Hosokawa Y. Jpn. J. Appl. Phys., 1988, 27:L2203—2206
- [15] Engstrom P, Rinby A, Vincze L. ESRF Newsletter, 1996,26:30—31

(上接第 245 页)

有感情地说:“你们也都不小了,要注意身体啊!”使我永远难忘的是,1996年6月1日,星期六一大早,家里的电话铃响了,是王老打来的,他说:“好几个同志都对我说,你干得太累了,要劳逸结合,当心身体!请毛剑琴接电话,我要请她照顾好你的生活!”顿时,一股热流通

过我的全身,比我年长 30 岁的王老,竟以这般的真挚和深情,关怀一个后人的健康,这是多么可贵而动人的情怀呵!写到这里,我不禁热泪盈眶.呵,王老,我的良师益友,忘年之交,我们除了加倍努力工作之外,还有什么办法回报您的一片真情,告慰您的在天之灵呢?!