

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Рентгеновская голография

В.В. Лидер

Представлен обзор голографических методов, использующих рентгеновское излучение. Рассматриваются их отличительные особенности и возможности. Подробно описан метод флуоресцентной голографии, позволяющий получать объёмные изображения локальной структуры упорядоченных объектов с атомарным разрешением. На конкретных примерах показано, что рентгеновская голография является уникальным неразрушающим методом структурной характеристики широкого класса объектов.

Ключевые слова: голография, рентгеновские лучи, когерентность, флуоресценция, атомарное разрешение

PACS numbers: 41.50. + h, 42.40. – i, 61.05. – a, 87.59. – e

DOI: 10.3367/UFNr.0185.201504d.0393

Содержание

1. Введение (393).
 2. Принципы рентгеновской голографии (394).
 3. Рентгеновская голография с внешним источником излучения (395).
3.1. Осевая голография. 3.2. Внеосевая голография. 3.3. Голография Фурье.
 4. Рентгеновская голография с внутренним источником излучения и детектором (флуоресцентная голография) (400).
4.1. Мультиэнергетическая флуоресцентная голография.
4.2. Другие методы флуоресцентной голографии. 4.3. Использование флуоресцентной рентгеновской голографии.
 5. Заключение (410).
- Список литературы (411).

1. Введение

Голография — это отрасль науки и техники, предметом изучения которой являются процессы записи и последующего воспроизведения информации об объекте, содержащейся в физически реализуемых или математически описываемых волновых полях, с использованием законов дифракции и интерференции волн и в которой решаются технические задачи использования этой информации.

Идея голографического метода была сформулирована в 1948 г. английским физиком Д. Габором [1]. Габор в то же время ввёл термин *голограмма* (*hologram* — от греч. *holo* (полный) и *gram* (сообщение, запись)).

Основные принципы голографии были сформулированы в 1950-х – начале 1960-х годов. Например, Роджерс

[2] внёс важный вклад в голографию, получив первую фазовую голограмму и развив теорию; в 1963 г. Ван дер Лут показал [3], что фазовая информация может быть закодирована в интерференционных полосах дифракционной картины.

Первые голографические эксперименты проводились с использованием источников видимого света. К сожалению, подходящий источник специального когерентного света, необходимый для демонстрации всех возможностей голографии, в то время отсутствовал, и в течение многих лет только скромные результаты подтверждали эту идею. В 1963 г. Лейт и Упатниекс [4] использовали в голографии лазер, и последовавшие за этим результаты, полученные Строуком и Лейтом с их сотрудниками [5–7], привели к огромному ускорению развития голографии.

Рентгеновские лучи (РЛ) дают возможность получения более высокого разрешения, по сравнению с таковым для видимого света, благодаря их более короткой длине волны. Рентгеновская голография была предложена Баецом [8] в 1952 г., через несколько лет после изобретения голографии Габором. Лейт, Строук, Уинтроп и др. [9–13] заложили теоретические основы рентгеновской голографии высокого разрешения. Значительных успехов не было достигнуто, до тех пор пока Аоки и Кикута [14], Рейтер и Мар [15] не записали и не реконструировали рентгеновские голограммы с разрешением в несколько микрометров.

Однако прогресс был медленным, потому что ещё не существовало достаточно ярких источников рентгеновского излучения, обеспечивающих формирование пучка с достаточно высокой когерентностью, необходимой для наблюдения голограммы с хорошим разрешением. Ситуация резко изменилась с появлением рентгеновских источников высокой яркости на накопителях синхротронного излучения (СИ) и первых рентгеновских лазеров на свободных электронах (ЛСЭ). Стало очевидным, что синхротронные источники могут обеспечить необходимую когерентность пучка [16] и короткоимпульсные

В.В. Лидер. Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН, Ленинский просп. 59, 119333 Москва, Российская Федерация
Тел. (499) 135-61-50
E-mail: lider@ns.crys.ras.ru; vallider@yandex.ru

Статья поступила 26 ноября 2014 г.,
после доработки 23 февраля 2015 г.

лазеры оправдывают надежды на их применение в ближайшем будущем [17].

Методы структурного анализа, использующие РЛ, например рентгеновская дифрактометрия, нашли широкое применение для изучения структуры кристаллов. Тем не менее определение расположения атомов, сделанное с помощью этих методов, не является однозначным. Поэтому возникла необходимость в технике прямого трёхмерного (3D) атомного изображения, которая поможет определить кристаллическую структуру исследуемого объекта.

Хотя появление рентгеновской голографии атомарного разрешения ожидалось, её экспериментальная реализация стала возможной только после опубликования работы Соке [18], в которой теоретически было доказано, что флуоресцентные РЛ и фотоэлектроны ионизированных атомов исследуемого кристалла, являющихся источниками излучения, могут сформировать голограмму с атомарным разрешением.

Для формирования первых голограмм использовались электроны [19–21]. Однако электроны не являются идеальным средством для голографической визуализации из-за их сильного взаимодействия с веществом и больших фазовых сдвигов при рассеянии. Эти факторы приводят к искажению голограммы. Между тем для рентгеновского излучения эффекты сдвига фаз и многократного рассеяния пренебрежимо малы. Кроме того, преимущество РЛ состоит в том, что они обладают более высокой проникающей способностью. Поэтому использование РЛ для экспериментальной реализации флуоресцентной голографии предпочтительнее использования электронов.

Хотя основная идея метода была высказана в 1986 г., а результаты численного моделирования флуоресцентной голограммы опубликованы [22] в 1991 г., его экспериментальная реализация с помощью РЛ была осуществлена только 10 лет спустя [23].

Таким образом, рентгеновские голографические методы, по-видимому, можно разделить на два класса: методы на основе идеи Габора, использующие внешние источник излучения и детектор, и методы, использующие внутренний источник излучения (детектор). Существует несколько обзоров [24–30], посвящённых второму классу методов, и только один (!) обзор [31] посвящён первому. В большинстве указанных обзоров содержится подробное описание основных черт рентгеновской голографии и физических процессов, участвующих в формировании голограммы. Часть обзоров описывает методы и успехи, достигнутые с их помощью за определённые периоды [24–26], другая их часть, появившаяся в печати сравнительно недавно [28–30], основное внимание уделяет подробному анализу определяющих теоретических и экспериментальных достижений, оставляя в стороне менее, по мнению авторов, значимые.

Целью данного обзора является описание особенностей всех известных методов рентгеновской голографии.

2. Принципы рентгеновской голографии

Основная идея метода Габора может быть проиллюстрирована на примере использования видимого света. Принцип применим к излучениям других энергий, в нашем случае — к рентгеновскому (рентгеновским обычно называют электромагнитное излучение с дли-

ной волны в диапазоне от 10 нм до 10^{-3} нм, что соответствует энергии фотонов от 100 эВ до 1 МэВ; общепринятого чёткого разграничения с ультрафиолетовым излучением в мягкой области и гамма-излучением в жёсткой области не существует).

Для того чтобы быть пригодным для голографии, рентгеновское излучение должно быть монохроматическим с относительно высокой степенью когерентности, что позволяет двум волнам — опорной и объектной (т.е. рассеянной объектом исследования) — интерферировать конструктивно или деструктивно [32]. Так называемая продольная (временная) когерентность может характеризоваться эффективной конечной длиной волнового цуга. Два перекрывающихся цуга формируют картину интерференционных полос или просто некогерентного фона, в зависимости от степени их перекрытия и постоянства их фаз. Как правило, детектор должен быть размещён на расстоянии d от образца размером a , так чтобы выполнялось условие Фраунгофера

$$a^2 \ll d\lambda, \quad (1)$$

где λ — длина волны излучения.

Голография состоит из двух шагов.

Шаг первый: регистрация голограммы. Запись интерференционной картины, возникающей при смещении опорной волны с волной, рассеянной объектом. При встрече опорной и объектной волн в пространстве образуется система стоячих волн с максимумами, соответствующими зонам, в которых интерферирующие волны находятся в одной фазе, и с минимумами — в противофазе. Изображение на голограмме имеет некоторое сходство с объектом, но дифракционные эффекты могут сделать его значительно сложнее.

Из двух измеряемых картин интенсивности (с объектом и без него) можно вычислить контраст голограммы [31, 33–36]:

$$\begin{aligned} I(\mathbf{r}) &= |A(\mathbf{r}) + R(\mathbf{r})|^2 - |A(\mathbf{r})|^2 = \\ &= |R(\mathbf{r})|^2 + A(\mathbf{r}) R^*(\mathbf{r}) + A^*(\mathbf{r}) R(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (2)$$

где $A(\mathbf{r})$ и $R(\mathbf{r})$ — комплексные амплитуды объектной и опорной волн соответственно, $\mathbf{r}$ — вектор, определяющий точку в плоскости детектора, символ $*$ обозначает комплексное сопряжение. Запись интенсивности голограммы содержит информацию об объекте (слагаемое $A(\mathbf{r}) R^*(\mathbf{r})$), а также о виртуальном двойнике его изображения (комплексно сопряжённое слагаемое $A^*(\mathbf{r}) R(\mathbf{r})$); члены $|R(\mathbf{r})|^2$ и $|A(\mathbf{r})|^2$ описывают интенсивности опорной и объектной волн соответственно.

Шаг второй: реконструкция изображения. С помощью интерференционных членов $A(\mathbf{r}) R^*(\mathbf{r})$, $A^*(\mathbf{r}) R(\mathbf{r})$ изображение объекта может быть восстановлено, например, с использованием преобразования Кирхгофа – Гельмгольца [36–39]

$$K(\mathbf{r}) = \int_S I(\xi) \exp\left(\frac{2\pi i \xi \mathbf{r}}{\lambda \xi}\right) dS \quad (3)$$

и фурье-анализа [40, 41].

В (3) интегрирование проводится по поверхности S экрана с координатами $\xi = (X, Y, L)$, где L — расстояние от источника до центра экрана (плоскости детектора).

Функция $K(\mathbf{r})$ значительно структурирована и отлична от нуля только в области пространства, занимаемого объектом. 3D-изображение может быть построено из одной 2D-голограммы по реконструкции волнового фронта $K(\mathbf{r})$ для нескольких плоскостей, находящихся в непосредственной близости от объекта на различных расстояниях от источника.

Из-за наличия в (2) двух интерференционных членов реконструкция приводит к появлению реального и виртуального изображений объекта [37], фиксируемых в трёх измерениях.

Можно выделить следующие преимущества голографии [42]:

1) голография меньше страдает от потери разрешения, чем другие рентгеновские методы;

2) обеспечивает большую глубину резкости, таким образом, позволяет получить в одной экспозиции такую информацию, которая требует нескольких экспозиций в других методах;

3) устраняет необходимость в оптических устройствах, которые трудно изготовить для применения в рентгеновском диапазоне длин волн.

Восстановление изображения объекта даёт возможность увидеть его во всех подробностях, включая объёмные очертания, эффекты параллакса и глубины резкости. Кроме того, двухступенчатый характер голографии открывает необыкновенную возможность апостериорной (после окончания эксперимента) обработки информации, содержащейся в рассеянной волне. Под этим подразумевается возможность проведения фильтрации и спектрального отбора, исправления aberrации и устранения артефактов изображения и, наконец, изменения точки наблюдения. Возможности, предоставляемые этой новой техникой физического эксперимента, трудно полностью оценить [43].

3. Рентгеновская голография с внешним источником излучения

3.1. Осевая голография

В первоначальной габоровской схеме использовался единственный пучок света, причём свет, который проходил вне объекта исследования, служил опорной волной. При освещении объекта плоской когерентной волной голограмма представляет собой контрастные концентрические круги (рис. 1). Радиус r_n n -го кольца выражается как $r_n = (2nd\lambda)^{1/2}$, где d — расстояние между объектом и плоскостью голограммы.

Разрешение δ ограничивается числовой апертурой NA: $\delta \geq \lambda/2 \text{ NA}$ [35, 44]. Величина NA определяется максимальным углом, при котором интерференционные полосы на голограмме регистрируются с хорошей видностью. Условия, при которых размер источника излучения s и размер "зерна" детектора приводят к размытию интерференционных колец, определяют пространственное разрешение осевой голограммы [8, 14]:

$$\delta = \left\{ \left(\frac{0,61\sigma}{M} \right)^2 + \left[\frac{1,22s(M-1)}{M} \right]^2 \right\}^{1/2}. \quad (4)$$

Здесь σ — разрешающая способность детектора, M — увеличение, определяемое отношением расстояний источник–детектор и источник–объект. Из (4) следует,

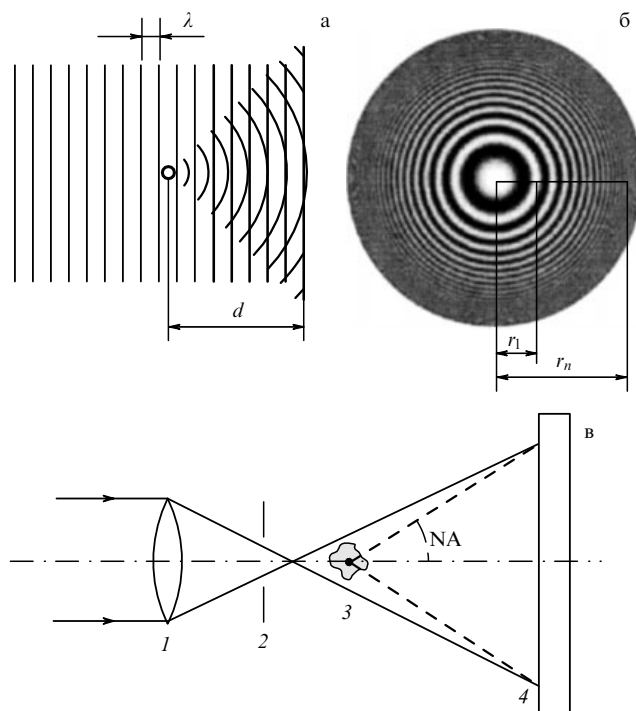


Рис. 1. Схема осевой голографии (а) и голограмма (б), полученная при освещении объекта исследования плоской волной. (в) Схема осевой голографии при освещении объекта исследования сферической волной: 1 — фокусирующая оптика, 2 — диафрагма, 3 — объект исследования, 4 — детектор, NA — числовая апертура.

что в предельных случаях плоской опорной волны ($M = 1$) и сферической опорной волны ($M \gg 1$) разрешение определяется только разрешающей способностью детектора ($\delta = 0,61\sigma$) или только размером источника ($\delta \approx 1,22s$) соответственно.

Использование сферической волны в качестве опорной имеет несколько преимуществ. Во-первых, из-за увеличения интерференционной картины разрешение детектора сводится к отношению σ/M , что важно для преодоления ограничения разрешения, определяемого, например, размером пикселя CCD-детектора (CCD — Charge-Coupled Device — прибор с зарядовой связью), часто используемого в осевой цифровой голографии. Во-вторых, при расположении фокуса рентгеновского пучка в непосредственной близости от исследуемого образца можно добиться повышения интенсивности объектного пучка до уровня, сопоставимого с интенсивностью опорного пучка, увеличив тем самым контрастность голограммы [44].

В диапазоне мягкого рентгеновского излучения сферическая волна может быть создана фокусировкой первичного рентгеновского пучка с помощью сферических многослойных зеркал [45], зонной пластинки Френеля [46–50] или фильтрации излучения посредством диафрагмы малого радиуса [51–53]. Эксперименты показали возможность достижения разрешения не хуже 1 мкм, которое в основном ограничено малой числовой апертурой.

На рисунке 2 показаны результаты исследования высушенной диатомовой кремниевой водоросли при использовании излучения с энергией 250 эВ [49]. Здесь удалось достичь пространственного разрешения 326 ± 90 нм. Использование в качестве детектора РЛ фоторезиста и

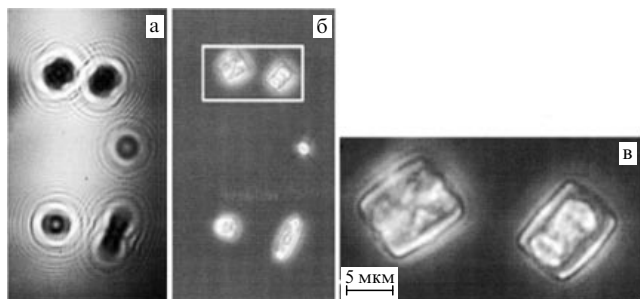


Рис. 2. (а) Голограмма высушенной диатомовой водоросли *N. perminuta*, полученная при использовании РЛ с энергией 250 эВ, сфокусированных зонной пластинкой. (б) Реконструкция голограммы, представленной на рис. а. (в) Увеличенное изображение фрагмента, выделенного прямоугольным контуром на рис. б.

сканирующего атомного силового микроскопа для последующего считывания данных позволило улучшить разрешение до 40–60 нм [54–57].

Применение зонных пластинок Френеля может дать большое практическое преимущество при исследованиях с помощью ЛСЭ, так как позволяет использовать всю ширину пучка ЛСЭ и, таким образом, открывает путь для одноимпульсной осевой цифровой голографии с излучением фемтосекундной длительности. Однако осуществление этого преимущества осложняется появлением трёх основных недостатков. Во-первых, юстировка оптических элементов является более сложной по сравнению с юстировкой диафрагмы. Во-вторых, зонная пластинка может быть повреждена, если не разрушена, импульсом ЛСЭ. И третий недостаток: возникают более высокие требования к когерентным свойствам источника излучения, потому что зонная пластинка собирает большую часть пучка по сравнению с частью, собираемой диафрагмой [48, 49].

Зонные пластинки Френеля с успехом применяются также для фокусировки жёсткого рентгеновского излучения. Например, использование рентгеновского ондуляторного излучения и зонной пластинки высокого разрешения позволило авторам работы [58] получить фокус размером около 0,1–0,3 мкм в интервале длин волн 0,45–1,5 Å. В работе [59] сообщается о возможности формирования расходящегося рентгеновского пучка с длиной волны 1,127 Å при размере виртуального источника 200 нм с помощью двух "скрещённых" плоских волноводов.

Благодаря простоте настройки и регистрации голограммы осевая голография широко используется в различных приложениях, например для исследования биологических объектов [48, 49, 52–55] и магнитных структур [60]. Основным ограничением осевой голографии является так называемый эффект двойного изображения. Этот эффект возникает следующим образом [57].

Если предположить, что восстановление изображения осуществляется с использованием первоначальной опорной волны, то интенсивность восстанавливаемого изображения делится поровну между порядками +1 и –1 дифракции таким образом, что образуются два изображения: первое — виртуальное — в положении образца и второе — реальное — с другой стороны голограммы (рис. 3а). В плоскости реального изображения расходящийся пучок от виртуального изображения интерферирует с недифрагированным пучком (пучком нулевого

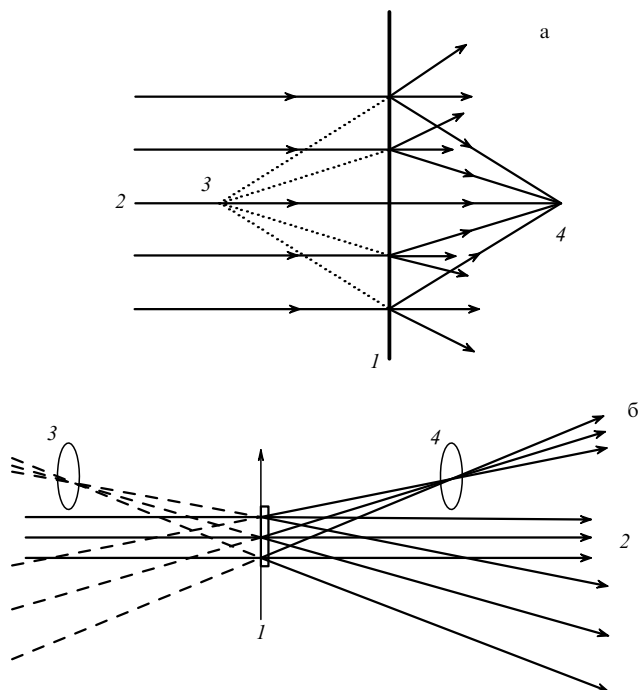


Рис. 3. Схемы образования двойного изображения в случаях осевой (а) и внеосевой (б) голографии: 1 — голограмма, 2 — когерентный пучок реконструкции, 3 — мнимое (виртуальное) изображение, 4 — реальное изображение.

порядка). В результате образуется вторая голограмма на двойном расстоянии от объекта, которая накладывается на реальное изображение. Сигнал, обусловленный второй голограммой, содержит информацию, искажающую реальное изображение. Это искажение может быть небольшим только в случае соблюдения условия дальнего поля (см. формулу (1)). В противном случае элиминация виртуального изображения ("близнеца") может быть осуществлена с помощью итерационной процедуры [33, 38, 44, 59, 61–64], которая в основном сводится к распространению поля вперёд и назад между экраном и плоскостью объекта до тех пор, пока не исчезнут все артефакты в связи с двойным изображением. Однако даже в этом случае, по мнению Габора [65], разделение никогда не будет полным, так как в поле когерентного освещения каждая точка создаёт за собой кильватерное возмущение, которое простирается на большие расстояния.

3.2. Внеосевая голография

В конфигурации осевой голографии три составные части восстановленного изображения — нулевой порядок дифракции и два сопряжённых изображения, виртуальное и реальное, — накладываются друг на друга и они не могут наблюдаться по отдельности. Во внеосевой геометрии, предложенной Лейтом и Упатниксом [4], эти части изображения распространяются по разным направлениям и они могут наблюдаться по отдельности (рис. 3б).

Во внеосевой голографии один из двух пучков "работает" в качестве опорной волны, а другой освещает образец под углом $\Delta\theta$ (рис. 4а). Размер образца a для этого метода должен быть меньше длины поперечной когерентности и удовлетворять условию $a < d\Delta\theta$ [66].

Внеосевая голография решает проблему перекрытия изображений, но требует наличия дополнительного

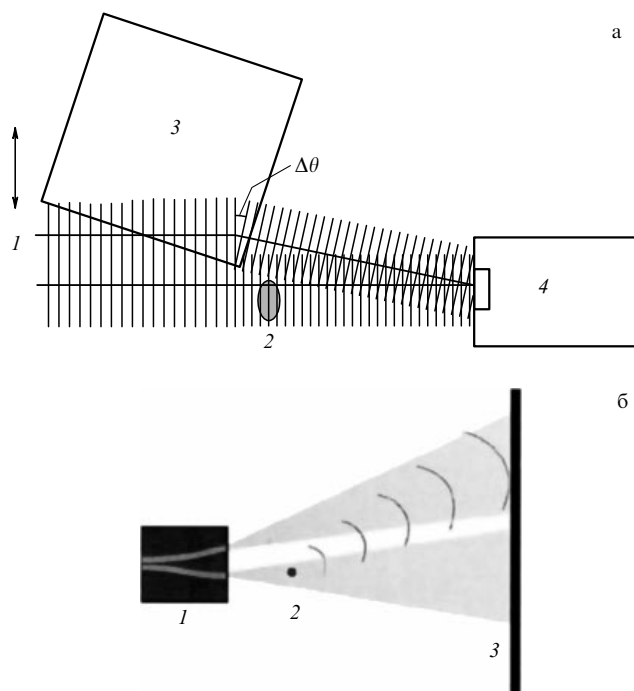


Рис. 4. Экспериментальные схемы внеосевой голографии. (а) Схема эксперимента с использованием призмы в качестве сплиттера [66]: 1 — первичный пучок, 2 — образец, 3 — сканирующая призма, 4 — детектор. (б) Схема эксперимента с использованием волновода [70]: 1 — волновод, 2 — образец, 3 — детектор.

оптического элемента (зеркала или призмы [67]) и широкого когерентного пучка, что может встретить трудности при работе с излучением рентгеновского диапазона. Тем не менее внеосевая голография впервые была продемонстрирована в жёстком рентгеновском диапазоне с применением призмы-сплиттера (делителя пучка) [66].

Комплексные амплитуды в плоскости детектора определялись методом сканирования интерференционных полос, часто используемым в рентгеновской интерферометрии [68, 69]. При расстоянии между интерференционными полосами $\Delta r \approx 2,6$ мкм ($\Delta r = \lambda/\Delta\theta$) удалось получить изображения фазовых объектов размером около 6 мкм.

В [70] для получения рентгеновских внеосевых голограмм были использованы два взаимно когерентных конических пучка, испускаемых парой рентгеновских канальных волноводов (рис. 4б). Увеличенная внеосевая голограмма позволяет осуществить быструю и точную реконструкцию. В представленной схеме длину волноводов можно регулировать для того, чтобы полностью блокировать фоновое излучение даже при высоких энергиях рентгеновских квантов. Пространственное разрешение здесь ограничивается размерами поперечного сечения направляющей волновода. Для изогнутых волноводов расстояние между двумя пучками может быть сопоставимым с поперечной длиной когерентности первичного пучка.

3.3. Голография Фурье

Голография Фурье является разновидностью внеосевой голографии, в которой источник опорной волны (опорный предмет) располагается в плоскости самого объекта, перпендикулярной направлению первичного пучка и параллельной плоскости регистрации (рис. 5а). При

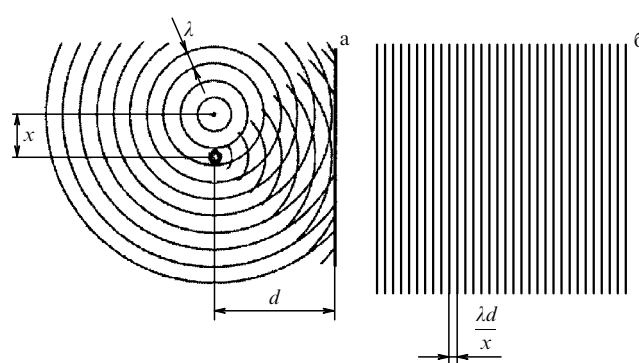


Рис. 5. Схема фурье-голографии (а) и вид голограммы (б).

этом связь между амплитудно-фазовыми соотношениями объектной волны в плоскости голограммы и плоскости объекта математически представляется в виде преобразования Фурье. Следовательно, объект может быть численно реконструирован с применением обратного преобразования Фурье квадрата модуля интенсивности интерференционной картины, зарегистрированной детектором. Этот простой метод реконструкции позволяет проводить быстрое восстановление изображения объекта с помощью оцифрованной голограммы.

Чтобы обеспечить фазовый синхронизм, для освещения образца и опорного предмета (ОП) используется один общий источник. Объект и ОП должны быть освещены так, чтобы длина поперечной когерентности превышала расстояние между ними. В наиболее общем случае реализации фурье-голографии опорная волна берёт своё начало из отверстия с малым диаметром, проделанного в непрозрачной для РЛ металлической фольге (маске), находящегося в непосредственной близости от объекта [71–74]. Если при этом расстояние d между источником и плоскостью регистрации гораздо больше, чем расстояние x между ОП и объектом, то интерференционная картина состоит из линейных полос с равномерным шагом $\lambda d/x$, как показано на рис. 5б.

Основным преимуществом рассматриваемого метода над другими методами рентгеновской микроскопии являются большое расстояние между интерференционными полосами на голограмме и, следовательно, низкие требования к пространственному разрешению детектора. Так как геометрия метода допускает регистрацию данных при больших углах рассеяния, разрешение, как правило, ограничено пространственной протяжённостью ОП.

На рисунке 6а представлена голограмма диатомовой кремниевой водоросли [74]. Использовалась маска с ОП диаметром 450 нм, находящимся на расстоянии 65 мкм от объектного окна диаметром 33,5 мкм. Энергия первичного пучка равнялась 150 эВ. Реконструкция голограммы (рис. 6б) получена с разрешением 450 ± 30 нм, что соответствует размеру ОП. Чётко виден скелет структуры диатомовой водоросли.

В работах [75–77] была развита рентгеновская фурье-голография сканирующего типа для мягкого и жёсткого рентгеновских диапазонов. Голографическая маска, содержащая ОП 4 (рис. 7), объектное окно малого размера 5, и держатель объекта 6 разделены, но находятся в контакте друг с другом. В этой конфигурации исследуе-

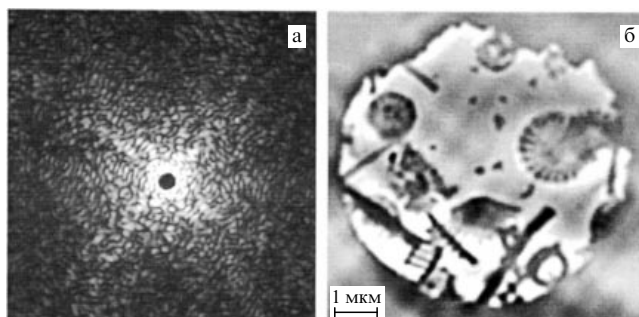


Рис. 6. Голограмма диатомовой кремниевой водоросли (а) и её реконструкция (б) [74].

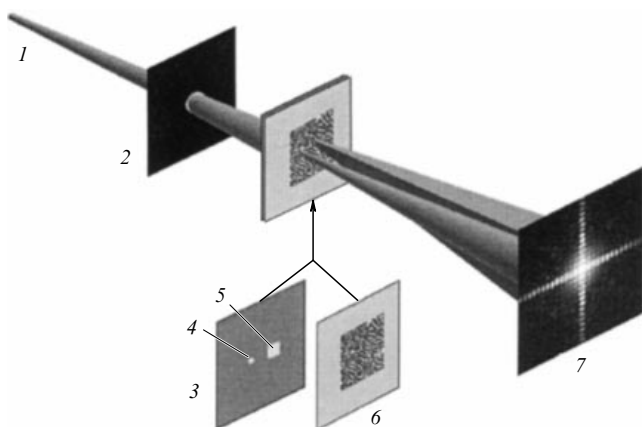


Рис. 7. Схема сканирующей фурье-голографии: 1 — первичный рентгеновский пучок, 2 — диафрагма, 3 — маска, содержащая ОП 4 и предметное окно 5, 6 — объект исследования, 7 — детектор [77].

мая область образца изменяется перемещением относительно маски. Таким образом, в процессе эксперимента поле зрения может быть увеличено.

Недостатком малого ("булавочного") отверстия, генерирующего опорную волну, является конкуренция пространственного разрешения с контрастностью реконструкции, поскольку контрастность изображения определяется потоком рентгеновских квантов в опорном пучке. Контраст голограммы зависит от относительных амплитуд интерферирующих волновых полей и достигает максимального значения, когда эти амплитуды равны. С уменьшением диаметра ОП предел разрешения будет убывать линейно, тогда как интенсивность опорного сигнала и в конечном итоге контраст изображения будут убывать квадратично. Условия эксперимента с высоким разрешением, таким образом, обычно являются компромиссом между желаемым разрешением и требуемой величиной опорного сигнала.

В литературе описано несколько способов повышения интенсивности опорной волны.

1. *Увеличение количества ОП.* В этом случае вокруг образца размещается нечётное число ОП [78–83]. Это увеличивает количество восстановленных изображений, и, соответственно, отношение сигнал/шум возрастает благодаря усреднению изображений. Тем не менее слишком большое число ОП может привести к перекрытию изображений; поэтому их максимальное число, по мнению авторов работы [79], практически ограничено пятью.

Как показано на рис. 8а, в эксперименте [78] голографическая маска содержит латинскую букву F, играющую

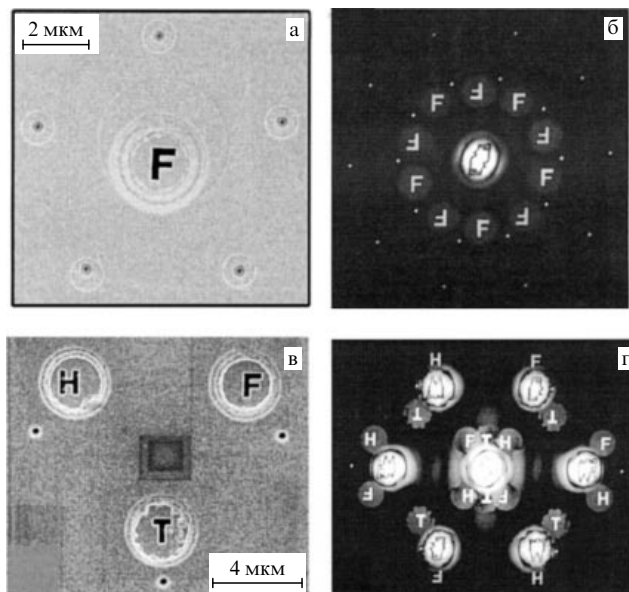


Рис. 8. Маска (а, в) и реконструированные голографические изображения (б, г) для объекта (буква F) с пятью ОП, расположенными вокруг него [78] (а, б), и нескольких объектов (H, F, T) с собственными ОП [85] (в, г).

роль объекта. Пять окружающих её отверстий обеспечивают множественность источников опорной волны. Взаимная корреляция между отверстием и образцом даёт два изображения: действительное и его комплексно-сопряжённое, мнимое (рис. 8б). В работах [80–82] также использовалось пять ОП.

Однако возможны более сложные конфигурации ОП. Например, в работе [84] объект был окружён двенадцатью отверстиями (с диаметром 2,5 мкм каждое), расположенными группами по три на четырёх окружностях с радиусами 170, 294, 382 и 512 мкм.

В работах [85–87] показано, что несколько объектов и опорных волн способны расширить эффективное поле зрения метода. Примечательно, что отдельные объекты могут быть отображены одновременно (рис. 8в, г) без ущерба для пространственного разрешения. Поскольку каждому объекту "придаётся" собственный ОП, появляется возможность увеличить видность (контрастность) интерференционной картины. Геометрия эксперимента применима для получения сверхбыстрого изображения, что особенно актуально в случае экспериментов на ЛСЭ.

2. *Геометрия ОП.* Подоров [88] впервые предложил использовать щель в виде прямого угла, которая определяет поле зрения и служит голографическим источником опорной волны. Этот метод был обобщён авторами работы [89] в рамках голографии с использованием расширенного реперного автокорреляционного линейного дифференциального оператора (Holography with Extended Reference by Autocorrelation Linear Differential Operation — HERALDO). HERALDO является внеосевым голографическим методом, в котором опорная волна формируется резкой границей или краем, и позволяет использовать ОП большого размера при сохранении хорошего разрешения. В принципе высокое разрешение здесь больше не ограничено размером ОП, а скорее зависит от качества и резкости его составляющих.

Проблема повышения контрастности голограммы в этом случае значительно облегчена, так как поток, формируемый протяжённым ОП, может быть гораздо больше потока, создаваемого отверстием малого размера. Кроме того, производство протяжённых объектов оказывается менее требовательным к их изготовлению, а прорези могут быть сделаны с шириной, меньшей, чем диаметр отверстия [90].

Экспериментально показано [91, 92], что рассматриваемый метод обеспечивает высокое пространственное разрешение, а также возможность получения голограммы с наноразмерным разрешением при однократном воздействии на образец фемтосекундного импульса [93].

Рисунок 9 призван продемонстрировать преимущество формы прямого угла ОП по сравнению с круглым отверстием на примере объекта, напоминающего квадратный кусок сыра.

Метод фурье-голографии был расширен с помощью специально разработанного шаблона ОП под названием "равномерно избыточный массив", который значительно увеличивает интенсивность сигнала по сравнению с таковой от одного источника опорного пучка, не жертвуя при этом разрешением. Важно отметить, что выигрыш в потоке фотонов по отношению к потоку в случае одного отверстия даётся числом активных элементов шаблона, равным 162 в экспериментах авторов работы [94].

3. *Использование зонной пластинки Френеля.* Для увеличения мощности опорной волны авторы работы [95]

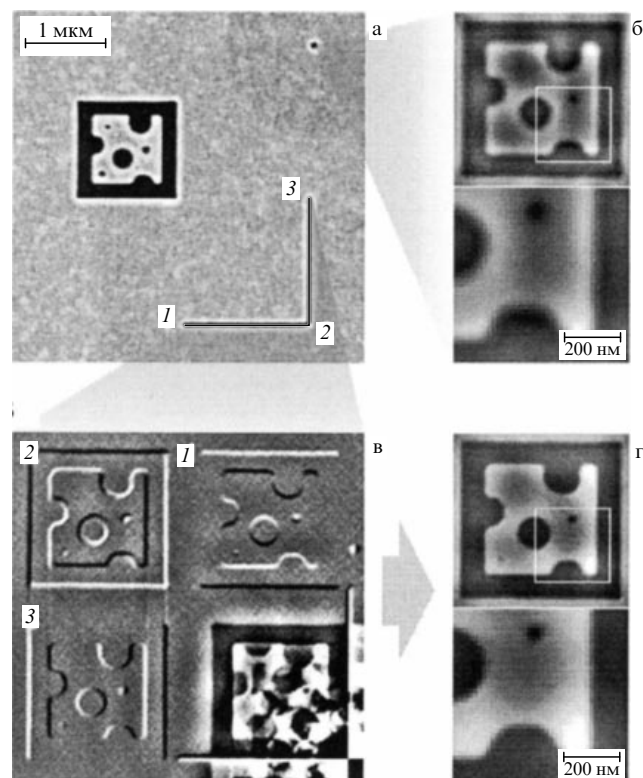


Рис. 9. Реконструкция образца "сыр". (а) Общий вид маски. (б) Реконструкция фурье-голограммы при использовании в качестве ОП круглого отверстия и увеличенное изображение нижнего правого участка образца. (в) Три рельефных изображения образца, полученных с использованием ОП в форме прямого угла. (г) Реконструкция голограммы, изображённой на рис. в, методом HERALDO и увеличенное изображение нижнего правого участка образца, выделенного белым квадратным контуром [92].

предложили использовать зонную пластинку Френеля. При этом первый дифракционный порядок зонной пластинки 2 (рис. 10а) используется для создания сферической опорной волны, а недифрагированный первичный пучок (нулевой порядок) непосредственно освещает объект 4 [96–100]. Задача диафрагмы 3, которая расположена около маски с объектом, — отсечь высокие дифракционные порядки, создаваемые зонной пластинкой. Благодаря высокой интенсивности опорной волны этот метод позволяет преодолеть ограничения объектов по размеру при сохранении наноразмерного разрешения. Тогда пространственное разрешение ограничивается размером фокусного пятна, формируемого зонной пластинкой. Поток рентгеновских квантов в фокусе, т.е. интенсивность, которая определяет контраст реконструкции изображения, пропорционален диаметру зонной пластинки, тогда как размер фокусного пятна определяется шириной её внешней зоны. Диаметр можно легко регулировать, изменяя количество зон таким образом, чтобы в идеале интенсивность в фокусе приблизилась к интенсивности излучения, прошедшего через объект [100].

4. *Использование микрочастиц.* В работе [101] был предложен следующий эксперимент: на пути интенсивного рентгеновского пучка 1 (рис. 10б), генерируемого ЛСЭ, размещаются одна биомолекула 2 (объект) вместе с небольшой наноразмерной частицей золота 3, которая используется в качестве источника опорной волны 4. Для обеспечения высокой интенсивности опорной волны следует выбирать материал с высоким атомным номером Z , поскольку его рассеивающая способность пропорциональна Z^2 .

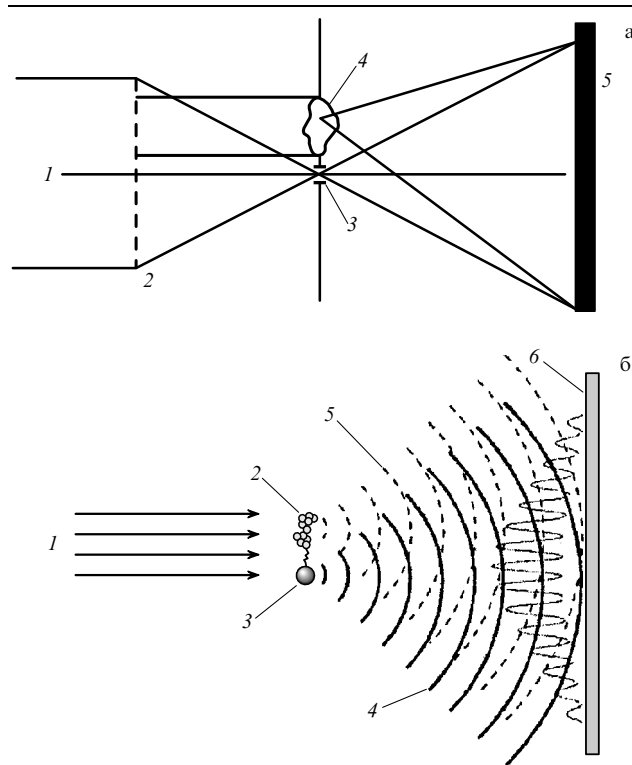


Рис. 10. Схемы фурье-голографии с использованием зонной пластинки Френеля (а) и микрочастиц [101] (б) для создания опорной волны. 1 — первичный пучок. На рисунке а: 2 — зонная пластинка, 3 — диафрагма, 4 — объект, 5 — детектор. На рисунке б: 2 — биомолекула (объект), 3 — наноразмерная частица золота, служащая источником опорной волны 4, 5 — объектная волна, 6 — детектор.

Авторами работы [102] проведены экспериментальные испытания аэрогеля (кремнезёма) как кандидата на роль эталонного точечного источника опорной волны. Отмечается, что, хотя аэрогель в качестве ОП работает хорошо, следует принять во внимание, что его рассеивающая способность мала из-за низкой плотности используемого вещества. Необходимо, чтобы рассеивающая способность микрочастицы, играющей роль источника опорной волны, была по крайней мере не ниже рассеивающей способности материала исследуемого образца.

В работе [103] сообщалось об эксперименте по голографической визуализации диатомовой раковины с пространственным разрешением 140 нм, подтверждающем возможность реализации идеи, изложенной в работе [101]. В качестве источника опорной волны в эксперименте служила небольшая золотая сфера.

Недавно фурье-голография была объединена с итеративными методами восстановления фазы для "доведения" разрешения до дифракционного предела [79]. В комбинированном подходе регистрируется рентгеновская голограмма с высоким разрешением и голографическое изображение, полученное с помощью преобразования Фурье, затем используется в качестве отправной точки для итеративного уточнения фазы [61, 62, 104, 105]. Рентгеновская фурье-голография полностью совместима с итеративным поиском фазы при условии, что голограмма записывается с достаточно высоким разрешением. Неясности в итеративном процессе сводятся к мельчайшим деталям с разрешением в области ниже разрешения голографического изображения. В конечном счёте разрешение лимитируется не размером ОП, а максимальной величиной импульсного момента рентгеновского кванта или длиной волны излучения.

Таким образом, быстрая детерминированная реконструкция и возможность достижения высокого разрешения делают голографию Фурье привлекательным методом визуализации.

Развитию голографии в рентгеновском диапазоне длин волн в основном способствуют возможность формирования высококогерентных интенсивных рентгеновских пучков на современных синхротронах третьего поколения [106] и прогресс нанопроизводства. В частности, благодаря поляризационным особенностям СИ голография Фурье была успешно применена для визуализации магнитных наноструктур. Чувствительность к намагнитченности, которая основана на эффекте рентгеновского магнитного кругового дихроизма на $L_{2,3}$ -краях поглощения, была использована для изучения слоистых систем с перпендикулярной магнитной анизотропией, таких как Co/Pt [71, 73, 82], Co/Pd [73, 81, 83, 107–110], и многослойных плёнок Co/Pt–Co/Ni–Co/Pt [111]. Разница в контрасте изображения голограмм, записанных при левой и правой круговой поляризациях излучения, даёт чисто магнитную информацию, не включающую в себя немагнитные вклады, обусловленные, например, вариациями толщины образца.

Новый подход к преодолению трудностей, связанных с радиационным повреждением биологических объектов, основан на использовании ультракоротких импульсов ЛСЭ [112]. Элегантная идея состоит в измерении дифракционной картины серии биологических образцов (например, вирусов или молекул) при однократном освещении каждого из них фемтосекундным импульсом. В

работе [113] продемонстрировано изображение, полученное при освещении объекта одиночным импульсом, а также показана возможность проведения экспериментов с временным разрешением. В качестве ключевого шага к получению "молекулярного фильма" авторы работы [84] предложили подход, основанный на разделении первичного пучка на два пучка, распространяющихся по раздельным оптическим каналам, — этот подход позволяет записать два полностью независимых изображения с переменным фемтосекундным временем задержки. Концепция преодолевает ограничения времени считывания с помощью двумерных детекторов, так как две последующие рентгеновские голограммы образца могут быть получены при одной экспозиции и, тем не менее, они могут быть однозначно разделены при реконструкции двух независимых изображений.

В работах [114, 115] демонстрируется новый подход к определению 3D-структуры наноразмерных кристаллических материалов с использованием рентгеновской голографии фурье-преобразования в геометрии Брэгга.

Нестабильность алгоритмов инверсии при наличии неоднородных полей деформации в случае использования фурье-голографии в геометрии Лауэ ограничивает метод несколькими чётко определёнными системами, по крайней мере, в настоящее время. Голография в брэгговской геометрии, по мнению авторов работы [115], является привлекательной альтернативой прежним подходам благодаря её способности обеспечить прямую, надёжную и быструю 3D-реконструкцию плотности и полей деформации нанокристаллов.

4. Рентгеновская голография с внутренним источником излучения и детектором (флуоресцентная голография)

Наиболее перспективным направлением дальнейшего развития рентгеноструктурного анализа представляются работы по рентгеновской флуоресцентной голографии (РФГ), привлёкшие внимание многих исследователей как новое экспериментальное средство для отображения трёхмерной локальной атомной структуры кристаллов.

Различают прямой и инверсный способы экспериментального осуществления РФГ, которые схематично изображены на рис. 11 [116, 117]. В прямом методе [22–24, 118, 119] флуоресцентная дифракционная картина 5 (рис. 11а) формируется в результате интерференции между волной, эмитируемой точечным источником (атомом) 3, и волнами, однократно рассеянными соседними атомами 2. Этот метод также называют "голографией с внутренним источником". В прямом способе голограмма может быть записана при перемещении детектора в большом телесном угле [120, 121].

Инверсный способ [122] основывается на принципе оптической обратимости, согласно которому источник первичного излучения и детектор в прямом способе меняются местами. Одна часть падающего на объект рентгеновского пучка 1 (рис. 11б), которая вообще не взаимодействует с любым из его атомов, служит опорным пучком. Другая часть, которая рассеяна соседними атомами 2, окружающими выбранный атом-детектор 3, является объектным пучком. Интерференция этих пучков даёт пространственно изменяющееся электромагнитное поле, что приводит к генерации флуоресценции 4 ато-

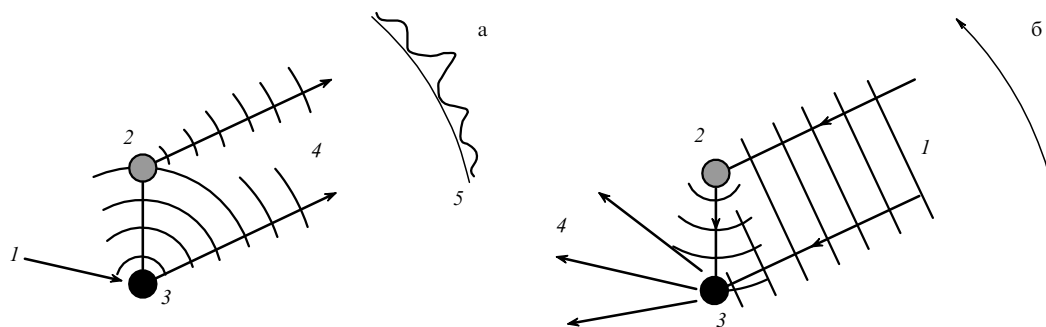


Рис. 11. Схемы прямого (а) и инверсного (б) способов получения флуоресцентной голограммы: 1 — первичный пучок, 2 — атом окружения, 3 — флуоресцирующий атом, 4 — флуоресцентное излучение, 5 — голограмма.

мом-детектором с интенсивностью, пропорциональной квадрату амплитуды этого поля. Так как падающий рентгеновский пучок является идеально сколлимированным или покрывает лишь малую угловую область, для получения голограммы волновой вектор падающего пучка должен просканировать всё обратное пространство. Записанная интенсивность флуоресценции при этом эквивалентна голограмме.

Схемы голографии Габора не достигают атомного разрешения. Одна из причин (по крайней мере, в случае РЛ) состоит в том, что интерференционная картина записывается только в относительно небольшом телесном угле, т.е. с небольшой числовой апертурой. Так как в РФГ интерференционная картина регистрируется в телесном угле, который может достигать 4π , обеспечивается разрешение порядка длины волны [123]. Подчеркнём ещё раз, что в прямом способе флуоресцирующий атом играет роль источника излучения, а в инверсном — детектора.

При рассмотрении закономерностей РФГ предполагалось наличие только одного флуоресцирующего атома, действующего как когерентный источник волн или как детектор разности длины пути. В действительности существует много флуоресцирующих атомных положений, но если каждый эмиттер имеет идентичное окружение, то этот факт не представляет проблемы, так как реконструированное атомное изображение является суперпозицией отдельных изображений.

Из рисунка 11 видно, что первичный рентгеновский пучок освещает как флуоресцирующий атом, так и атомы его окружения. Это означает, что в принципе можно осуществить оба описанных способа получения голограммы. Однако экспериментальные схемы этих способов существенно различаются [124]. В прямом методе изменяются углы φ и θ_2 (рис. 12), а положение первичного пучка фиксировано ($\theta_1 = \text{const}$). В инверсном способе переменными являются углы φ и θ_1 , при этом положение энергодисперсионного детектора 3 в процессе эксперимента остаётся неизменным. Тем не менее "сырая" экспериментальная голограмма является преимущественно смешанной голограммой, состоящей из голограмм, генерируемых как в прямом, так и в инверсном режимах, и поэтому она даёт ненадёжные атомные изображения.

Чисто инверсная голограмма может быть получена при расположении детектора на азимутальной оси образца, т.е. при $\theta_2 = 0$ [125], поскольку тогда при вращении образца вокруг оси φ разность хода между опорной и объектной волнами не меняется, оставляя "прямую"

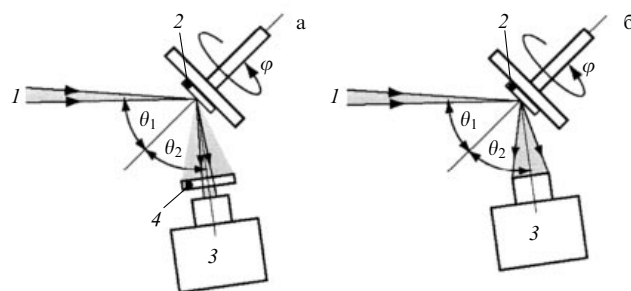


Рис. 12. Экспериментальные схемы прямого (а) и инверсного (б) способов получения РФГ: 1 — первичный пучок, 2 — объект исследования, 3 — детектор, 4 — узкая щель перед детектором, θ_1 — угол падения первичного пучка, θ_2 — угол отражения, φ — угол поворота вокруг азимутальной оси.

компоненту неизменной. К сожалению, такую идеальную геометрию трудно осуществить на практике: голографический сигнал не может быть корректно измерен при вращении вокруг оси φ из-за перекрытия первичного пучка детектором. В другом методе [126] получения чисто инверсной голограммы детектор и образец вращаются синхронно. Однако осуществление такого вращения требует значительного усложнения экспериментального оборудования. Чисто прямая голограмма может быть получена, если первичный пучок параллелен оси φ , т.е. $\theta_1 = 0$ [121]. Но и в этом случае теряется часть информации из-за перекрытия первичного пучка детектором.

Авторы [126] предложили метод исключения "прямой" компоненты из инверсной голограммы. Они показали, что "прямая" компонента может быть получена усреднением экспериментальных данных по углу θ_1 . Однако форма этой компоненты оказалась далека от ожидаемой синусоиды, а процедура элиминации компоненты может привести к ошибкам в изображении атомной структуры. Тегзе и др. описали экспериментальный метод определения "нормальной" компоненты [127]. Однако даже небольшая неточность в юстировке экспериментального оборудования в предложенном методе может привести к значительным ошибкам в её определении. Авторы работы [128] предложили практический метод выделения нормальной составляющей из данных, полученных в инверсном режиме, с помощью преобразования Фурье для расчётной голограммы модельного кластера ZnTe. Чёткие атомные изображения были реконструированы на адекватных позициях модельного кластера с помощью функции маски.

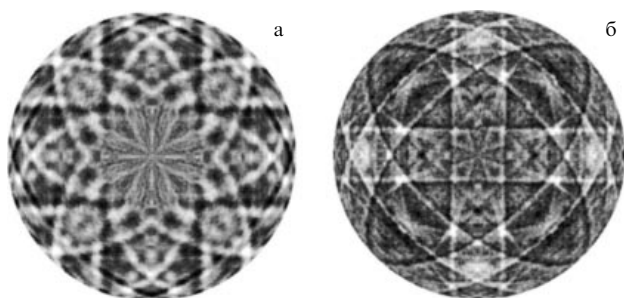


Рис. 13. Линии Косселя (а) и СРВ (б) на голограммах монокристалла Au, полученных прямым методом с использованием спектральной линии AuL_{α} и инверсным методом с использованием первичного излучения $MoK_{\alpha 1}$ лабораторного источника соответственно [124].

В силу теоремы оптической взаимности две схемы РФГ, описанные выше, во многих случаях являются эквивалентными. Действительно, все эксперименты проводятся на кристаллах, поскольку для РФГ требуются объекты с ротационным дальним порядком и трансляционным ближним порядком. Из всех легкодоступных твердотельных объектов только кристаллы удовлетворяют этому требованию. Причём для обеих геометрий РФГ, прямой и инверсной, требования к когерентности излучения практически несущественны (пространственная когерентность должна быть порядка межатомных расстояний).

При исследовании кристаллических образцов на голограммах, полученных прямым или инверсным способами, появляются особенности, которые интерпретируются как линии Косселя [129] или стоячие рентгеновские волны (СРВ) [130] соответственно.

Линии Косселя формируются тогда, когда точечный источник излучения расположен в кристалле: они образуются при брэгговском рассеянии расходящихся РЛ на различных кристаллографических плоскостях решётки.

В случае СРВ источник и детектор меняются местами по отношению к их расположению в методе Косселя (здесь также справедлива, как отмечено в работах [131, 132], теорема взаимности!): атомы подвергаются воздействию изменяющегося волнового поля в кристалле, когда падающий пучок претерпевает брэгговское отражение. В результате при исследовании кристаллов с дальним порядком применение прямого (инверсного) способа, как правило, приводит к появлению на голограмме линий Косселя (СРВ) (рис. 13).

4.1. Мультиэнергетическая флуоресцентная голография

Однако основное различие прямого и инверсного способов РФГ состоит в том, что энергия первичного пучка в прямом способе ограничивается энергией возбуждения флуоресцентного излучения. В инверсном способе может быть использована любая энергия, превышающая энергию края поглощения выбранной характеристической серии, что, как станет ясно из нижеизложенного, является существенным преимуществом [133].

В реконструированных атомных изображениях центросимметричного кристалла обнаруживается артефакт (известный как проблема двойного изображения), который может привести к погашению изображения конкретного атома [134]. Для того чтобы решить эту проблему,

была предложена мультиэнергетическая РФГ [122]. В инверсном (прямом) способе изображения, восстановленные из голограмм, полученных при разных энергиях первичного (флуоресцентного) излучения с помощью алгоритма многократной энергии Бартон [135], суммируются. При суммировании фазы аддитивно участвуют в восстановлении реального атомного изображения и хаотично — при восстановлении мнимого изображения. Таким образом, в процессе реконструкции можно выявить реальное изображение атома, в то время как его "близнец" из-за усреднения фаз исчезнет. Для надёжного устранения последнего, как правило, требуется регистрация 5–10 голограмм. Это условие выполнимо, например, при использовании СИ. Инверсный способ даёт возможность получения набора данных, соответствующих разным энергиям первичного пучка [136–139]. Напротив, с помощью прямого способа могут быть записаны только голограммы с использованием всего лишь двух-трёх спектральных линий характеристической серии излучающего атома (например, L_{α} , L_{β} и L_{γ} [124]), и, следовательно, восстановленные изображения могут страдать от неизбежных последствий перекрытия реального и виртуального изображений объекта, а также от нежелательных aberrаций и артефактов.

4.1.1. Экспериментальное оборудование. Основная трудность, присущая РФГ, заключается в том, что голографический сигнал примерно на три порядка слабее сигнала фоновой изотропной флуоресценции. Поэтому эксперимент требует очень чистого флуоресцентного сигнала и детектора с максимально возможной скоростью счёта. Однако такой детектор обладает плохим энергетическим разрешением, и кроме флуоресцентного излучения вклад в голографическую картину дают другие упруго и неупруго рассеянные РЛ, возникающие при брэгговской дифракции, диффузном и комптоновском рассеяниях. Поэтому голографические измерения требуют оснащения экспериментальной установки энергодисперсионным модулем. В качестве такого модуля могут быть использованы энергодисперсионный детектор, например лавинный фотодиод (Avalanche Photodiode — APD) [140] либо кремниевый дрейфовый детектор (Silicon Drift Detector — SDD) [141], или устанавливаемый перед детектором кристалл-анализатор [142] (рис. 14а). Основным недостатком первого способа является ограниченный динамический диапазон существующих энергодисперсионных детекторов, в то время как в последнем случае используется только малый телесный приёмный угол.

Одним из самых простых способов увеличения приёмной апертуры может быть применение сагиттально фокусирующего изогнутого графитового кристалл-анализатора [25, 127, 143, 144]. Однако оказалось, что предпочтительнее использовать цилиндрический фокусирующий анализатор, изготовленный из кристаллического LiF [116, 145] или пиролитического графита [146–148]. Такой анализатор показан на рис. 14б [148]. Четыре изогнутых кристалла графита образуют полый цилиндр, фокусирующий на детекторе флуоресцентные РЛ. В центре анализатора установлена свинцовая заглушка прямого пучка. Более сложный тороидальный графитовый анализатор, применённый в [137, 149], обеспечивает большой приёмный угол, но он может использоваться только при одном определённом значении энергии.

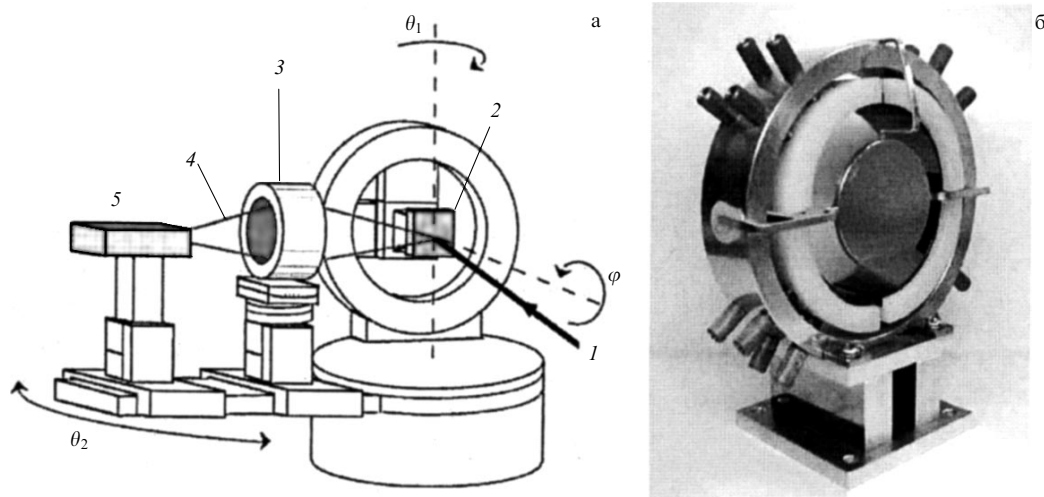


Рис. 14. (а) Установка для проведения экспериментов по флуоресцентной голографии [145]: 1 — первичный пучок, 2 — образец, установленный на многокружном гониометре, 3 — цилиндрический анализатор, 4 — сфокусированное флуоресцентное излучение, 5 — лавинный фотодиод. (б) Внешний вид четырёхсекционного цилиндрического графитового анализатора [148].

Для увеличения плотности потока рентгеновских квантов, падающих на объект, возможно использование фокусирующего графитового монохроматора [122, 124, 150, 151] или поликапиллярной оптики [152].

4.1.2. Реконструкция изображения объекта. Большинство сложностей в голографии возникает из-за низкого уровня отношения сигнала к шуму. Поэтому в процессе восстановления все неголографические составляющие сигнала должны быть удалены. В первую очередь это относится к линиям Косселя (СРВ). Следовательно, условием для получения хороших изображений является удаление вклада в голографическую интенсивность атомов, не расположенных в непосредственной близости от эмиттера (детектора). Решение этой проблемы, которое было дано [22] в 1991 г., основано на том, что различные распределения пространственной частоты интенсивности рассеянного излучения находятся на разных расстояниях от атома-излучателя. Очевидно, что высокочастотные компоненты приходят из атомов, которые находятся далеко от источника, а низкочастотные — из атомов, расположенных близко к источнику. Поэтому, применяя фильтр низких частот, можно выбрать предельную разграничительную поверхность вокруг атома — источника флуоресценции.

Низкочастотная фильтрация ограничивает диапазон видимости атомов в восстановленном изображении и подавляет высокочастотный шум [153]. Применимость этого метода впервые была продемонстрирована с помощью численного моделирования [22], а затем и экспериментально [123, 127, 139, 154–158].

Метод РФГ требует, чтобы экспериментальные данные записывались в широком угловом и энергетическом диапазонах. Если часть данных оказывается повреждённой или отсутствует из-за экспериментальных факторов, то процедура реконструкции даст недостоверные результаты во всём реальном пространстве, которые могут привести к появлению сильных артефактов или ухудшению пространственного разрешения. Данная проблема характерна для всех методов фурье-преобразований. Для того чтобы избежать этой проблемы, телесный угол сбора голографических данных должен быть расширен

до полной сферы, что требует дополнительной априорной информации о структуре образца [127] и может быть реализовано только для систем с очень высокой симметрией.

В силу различных обстоятельств (особенностей экспериментальной установки, формы и размера исследуемого объекта) далеко не всегда можно осуществить сканирование объекта в 4π -пространстве. Как правило, голограмма "описывает" только часть полной сферы (рис. 15а). Однако для расширения экспериментальных данных на полную сферу может быть использована вытекающая из кристаллической структуры образца симметрия, связанная с резкими сингулярностями распределения интенсивности на голограмме, соответствующими линиям Косселя [127] или СРВ [136, 159].

Обычно [116, 127, 139, 159] обработка экспериментальных данных включает в себя вычитание фона из нормированных колебаний интенсивности на голограммах, расширение области сбора данных голограммы до полной сферы (рис. 15б), фильтрацию низких частот (рис. 15в) и, наконец, реконструкцию изображений, соответствующих разным энергиям первичного пучка, по методу Гельмгольца – Кирхгофа с использованием преобразования Бартона [135].

Как показано в работе [127], получение изображения с разрешением, близким к дифракционному пределу, возможно. Но даже в этом случае восстановленное волновое поле следует рассматривать как искажённое изображение распределения плотности рассеивателей. Несмотря на преимущества прямого восстановления изображения, принятого в качестве простого преобразования Фурье, большинство задач требует получения изображения расположения атомов в кристалле с разрешением, которого можно достичь только с помощью итеративных алгоритмов. Авторы работы [160] показали, что итеративные методы деконволюции могут быть полезными для визуализации атомной структуры, значительно улучшая качество изображений, причём метод максимального правдоподобия является наиболее перспективным.

Осциллирующая пульсация интенсивности вокруг атомных изображений, связанная с погрешностями фурье-преобразования в алгоритме Бартона, часто

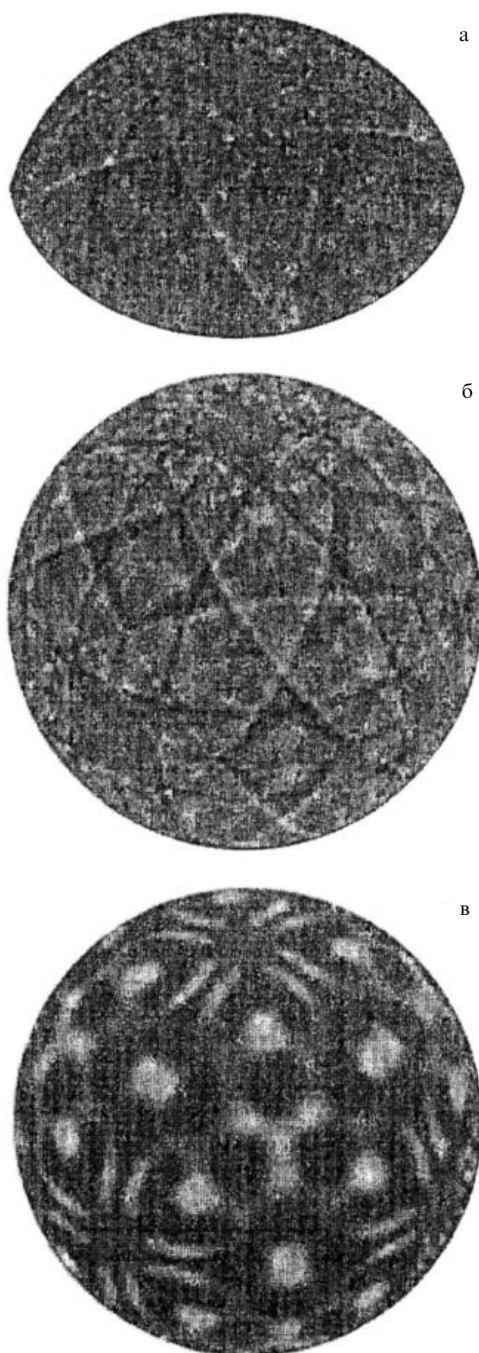


Рис. 15. Голограмма кристалла Au на различных последовательных стадиях обработки. (а) "Сырая" голограмма. (б) Голограмма, расширенная на телесный угол 4π . (в) Голограмма после низкочастотной фильтрации [116].

усиливается в реконструкции и имеет интенсивность, сопоставимую с таковой для реальных изображений. Следовательно, для восстановления локальной структуры в неизвестных образцах при использовании мультиэнергетической РФГ, по-видимому, необходима разработка нового алгоритма реконструкции [161].

Как показано в [162, 163], использование вместо обычно применяемого алгоритма Бартона метода матрицы рассеяния совместно с методом максимальной энтропии даёт возможность реконструировать локальную атомную структуру более точно. Первоначально

этот метод был разработан для фотоэлектронной голографии, но он также является полезным и для РФГ.

Однако восстановленное изображение может содержать артефакты [164]. Это связано с большими длинами когерентности и свободного пробега РЛ. Поэтому в алгоритм максимальной энтропии была включена трансляционная симметрия кристалла. Такое включение эффективно и применимо на практике, так как имеется много способов измерить трансляционный вектор. Однако трансляционный алгоритм не может быть применён в случае, когда локальная трансляционная симметрия вокруг эмиттера нарушена, например, при локальных деформациях, вызванных примесями или адсорбентами. Но даже при этих недостатках ожидается, что алгоритм максимальной энтропии с включённой трансляционной симметрией станет мощным инструментом для определения положения атомов вокруг конкретных атомных позиций [164, 165].

4.1.3. Факторы, влияющие на реконструкцию изображения.

Энергия первичного пучка. Установлено [166], что пространственное разрешение атомного изображения увеличивается с возрастанием энергии падающего пучка и чем шире диапазон изменения его энергии, тем менее значительны aberrации и артефакты. Так что если голограмма записывается с высокой энергией первичного пучка и используется широкий спектр нескольких энергий в телесном угле 4π , то атомные изображения могут быть восстановлены из голограмм с высоким пространственным разрешением.

Поглощение и форма образца. Как уже отмечалось, в процессе восстановления изображения все неголографические составляющие сигнала должны быть удалены. Наибольший вклад в нежелательный сигнал даёт модуляция интенсивности, вызванная сочетанием двух факторов: поглощения и формы образца [24]. Самый простой способ контроля над поглощением — использовать образец с плоской поверхностью. При этом угловая зависимость вариации интенсивности определяется аналитически и легко вычисляется. Потеря информации при скользкой геометрии падения первичного пучка может быть компенсирована при учёте симметрии линий Коселя (CPV).

Эффекты экстинкции. При использовании монохроматического первичного пучка картина поглощения РЛ может быть "смазана" вследствие эффектов экстинкции, возникающих в результате многократного рассеяния в кристалле. Углублённый анализ этого эффекта представлен в работе [167]. Показано, что вызванные экстинкцией артефакты могут помешать правильному отображению атомных позиций на голографических реконструкциях также при исследовании несовершенных кристаллов [168].

Эффект поляризации. В работе [169] показано, что поляризация первичного излучения влияет (как положительно, так и отрицательно) на качество реконструкции изображения. СИ является наиболее практичным источником излучения в инверсном способе РФГ благодаря своим энергетической управляемости, высокой яркости и высокой спектральной разрешающей способности. Но СИ является линейно поляризованным, и с этим необходимо считаться. Например, горизонтально поляризованное СИ подавляет голографические и реконструированные интенсивности изображения для атомов, распо-

ложенных в горизонтальной плоскости излучателя, усиливая при этом интенсивность для атомов в вертикальной плоскости [170].

Эффект ближнего поля. В большинстве ранних работ по РФГ использовалось приближение, которое предполагает, что размер электронного облака намного меньше, чем кривизна падающего на объект сферического волнового фронта и, таким образом, является справедливым только для точечного источника. Но это приближение некорректно, когда рассеивающий атом расположен вблизи атома-излучателя. Интенсивность изображения в реальном пространстве, как правило, восстанавливается с помощью известного алгоритма Бартонна, в котором реальная плотность электронного заряда не соответствует действительности.

Кроме простейшего приближения рассеяния плоской волны можно использовать подходы, учитывающие кривизну волнового фронта. Адамс с коллегами опубликовали работу, посвящённую этой проблеме [171]. Можно выделить три характерных расстояния (параметры длины): длина волны излучения, межатомное расстояние и размер электронного облака. Соотношение между ними определяет величину ошибки, вызванной пренебрежением кривизной волнового фронта. Однако в расчётах Адамса размер электронного облака не был учтён должным образом [172].

Бай [173] вывел формулу для расчёта коэффициента атомного рассеяния для сферических волн и использовал её при рассмотрении влияния эффекта ближнего поля на флуоресцентную голографию. С увеличением энергии рентгеновского излучения эффект ближнего поля из-за изгиба волнового фронта возрастает. Это вызывает фазовые сдвиги, связанные с размером электронного облака. Учитывая эффект ближнего поля, авторы работы [172] рассчитали голограмму сферического кластера NiO, содержащего более 33000 атомов, и выяснили, что её главной "особенностью" является согласие с экспериментально полученной голограммой.

4.2. Другие методы флуоресцентной голографии

4.2.1. Метод двух энергий. Хотя мультэнергетическая РФГ является хорошим методом для подавления эффекта двойного изображения, для получения чётких атомных изображений, как отмечалось, необходима запись нескольких (5–10) голограмм, что требует длительного времени измерения. В качестве альтернативы Нишино и др. [174] предложили метод двух энергий, который позволяет удалить ложное изображение с помощью двух голограмм, записанных при использовании особым образом подобранных энергий рентгеновского первичного пучка, "разнесённых" на несколько сотен электронвольт. Алгоритм реконструкции предполагает, что при восстановлении фаза сопряжённого изображения обязательно сохраняется постоянной. Таким образом, результатом вычитания двух реконструкций будет удаление ложного изображения.

Авторы работы [175] модифицировали предложенный алгоритм. Теоретическое моделирование показало, что новый алгоритм действует эффективнее, чем алгоритм Бартонна. Кроме того, вполне возможно, что с применением алгоритма для двух энергий большинство экспериментов, проводимых в настоящее время на накопителях СИ, может быть выполнено на лабораторном оборудовании [124, 150], так как источник с перестраива-

емой энергией излучения становится необязательным и измерение может проводиться с использованием характеристических рентгеновских линий. Это открывает путь к широкому применению РФГ в ближайшем будущем.

4.2.2. Комплексная рентгеновская голография. Несмотря на то что метод РФГ в любом из двух режимов является мощным методом для исследования локальной атомной структуры вокруг данного атома, он всё ещё лишён ключевого признака "идеального" зонда: техника может быть способной идентифицировать опорный (выбранный) атом, но не обладает способностью идентифицировать соседние атомы. Использование различий в рассеивающей способности атомов возможно только при сильном различии атомных номеров химических элементов, как это было показано в случае атомов кислорода и никеля в кристалле NiO [139].

В 2002 г. для прямой визуализации атомов предварительно выбранного типа на основе теоретического моделирования была предложена резонансная РФГ [176], которая позволяет восстановить атомное изображение элемента с использованием дифференциальных голограмм вблизи края поглощения. Этот новый вариант РФГ является уникальным способом определения химического окружения опорного атома и представляет собой важное усовершенствование мультэнергетической РФГ, позволяющее проводить прямое определение "сорта" окружающих атомов на восстановленных изображениях даже для сложных случаев, например в ситуации, когда атомные номера химических элементов близки между собой.

В резонансной РФГ выбираются три энергии, E_1 , E_2 , E_3 , которые находятся в пределах небольшой области энергий около края поглощения E_{abs} атома окружения, $E_1 < E_{\text{abs}}$, $E_2 = E_{\text{abs}}$ и $E_3 > E_{\text{abs}}$. Большое изменение фактора рассеяния вследствие резонансного эффекта наблюдается, однако, только в диапазоне около 200 эВ в области края поглощения. Учитывая, что применимый здесь алгоритм мультэнергетической РФГ эффективен при наличии большого количества голограмм, записанных в диапазоне, превышающем 4 кэВ, предложенный метод не свободен от действия эффекта двойного изображения. В работах [177–179] для решения этой проблемы была предложена и разработана так называемая комплексная РФГ.

Комплексная РФГ в сочетании с резонансным рассеянием РЛ позволяют восстановить окружение атома выбранного химического элемента в реальном пространстве и решить проблему двойного изображения. Например [177], для реконструкции положения атомов Y вокруг атома X энергия первичного пучка может быть выбрана вблизи края поглощения YK. Использование края поглощения Y_{L_I} или $Y_{L_{II}}$ и регистрация $Y_{L_{\alpha}}$ -флуоресценции даёт возможность реконструировать положения атомов Y вокруг атома X. Следовательно, выбирая определённые края поглощения, можно установить конфигурации различных видов атомных пар даже в многокомпонентных системах. Это делает возможным исследование локальных атомных структур более сложных материалов, таких как высокотемпературные сверхпроводники или магнитные материалы.

4.2.3. Рентгеновская абсорбционная голография. Этот метод является разновидностью инверсного способа, в

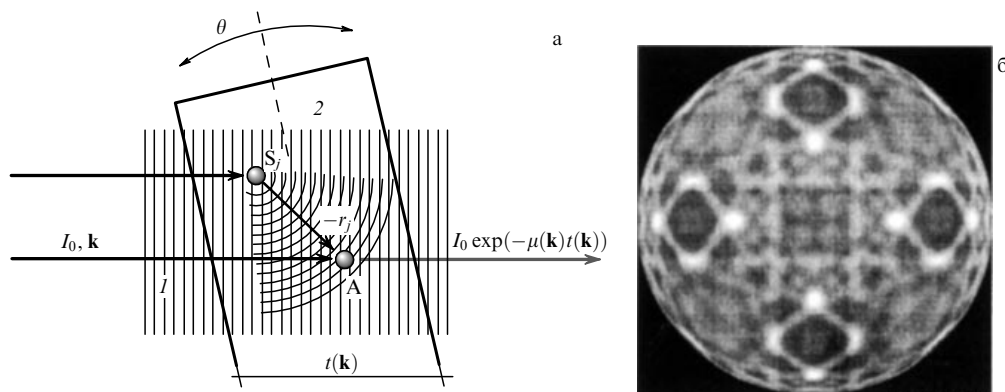


Рис. 16. (а) Схема рентгеновской абсорбционной голографии: 1 — плоская монохроматическая волна, 2 — образец, А — атом-детектор, S_j — атом окружения (см. текст). (б) Абсорбционная голограмма тонкого кристалла CoO , энергия первичного излучения 13 кэВ [180].

котором индикатором амплитуды локальных волновых полей служит не флуоресцентное излучение, а поглощение волновых полей в образце.

Интенсивность излучения $I(\mathbf{k})$, прошедшего через тонкую кристаллическую пластинку 2 (рис. 16а) толщиной t_0 , освещённую монохроматическим излучением I интенсивностью I_0 , имеет вид [180]

$$I(\mathbf{k}) \approx I_0 \exp(-\mu_0 t(\mathbf{k})) (1 - \mu_0 t(\mathbf{k}) \chi(\mathbf{k})), \quad (5)$$

где $\chi(\mathbf{k})$ — нормированная голографическая интенсивность, $t(\mathbf{k}) = t_0 \cos \theta$, θ — угол падения, $\mathbf{k}$ — вектор дифракции. Как видно из уравнения (5), голографический сигнал отрицателен и его отношение к общему измеряемому сигналу увеличивается в $\mu_0 t(\mathbf{k})$ раз по сравнению с аналогичным отношением в случае инверсной РФГ. Голография рентгеновского поглощения имеет значительные преимущества над последней [180]:

1) соотношение сигнал–фон может быть увеличено более чем на порядок подбором энергии РЛ и/или толщины образца. Таким образом, можно преодолеть один из основных недостатков рентгеновских голограмм атомарного разрешения — слабое рассеяние жёсткого рентгеновского излучения;

2) величина измеряемого сигнала достаточна для проведения экспериментов не только при использовании мощного СИ, но и на лабораторном оборудовании, оснащённом стандартной рентгеновской трубкой;

3) элементная селективность может быть достигнута выбором энергии первичного пучка выше значения энергии соответствующего края поглощения. Тем не менее рентгеновская голография поглощения может также предоставить полезную информацию о структуре образца, который не содержит химического элемента с краем поглощения в жёстком рентгеновском диапазоне;

4) нет необходимости в энергетической дискриминации детектируемых РЛ, что существенно упрощает схему экспериментальной установки и сбор данных.

4.2.4. Метод анизотропии рентгеновского поглощения. В работе [181] предложен рентгеновский голографический подход для визуализации в реальном пространстве атомной структуры вокруг поглощающих атомов в кристаллах, использующий полихроматический рентгеновский пучок для записи картины анизотропии поглощения.

Увеличение спектральной расходимости $\Delta\lambda$ снижает величину продольной когерентности $l_c = \lambda^2 / \Delta\lambda$ и, следо-

вательно, делает метод "близоруким". С практической точки зрения это означает, что с помощью широкополосного спектра ($\lambda/5 < \Delta\lambda < \lambda/2$) можно определить направления связей опорного атома с ближайшими соседями, так как вклад рассеяния от одного атома локализуется вдоль соответствующего межатомного направления. Особенность метода заключается в очень малой продольной длине когерентности "белого" рентгеновского пучка (порядка 1 Å), что означает: интерференционные эффекты заметны только вблизи направления рассеяния, т.е. вдоль межатомных направлений.

Закономерности направленной тонкой структуры поглощения рентгеновского полихроматического излучения имеют простую интерпретацию в реальном пространстве. Для "белого" рентгеновского излучения вариации волнового поля, вызванные интерференцией падающего пучка с волнами, рассеянными на отдельных атомах, при энергетической интеграции уменьшаются по всем направлениям, за исключением прямой компоненты рассеяния, совпадающей с направлением первичного пучка. При изменении ориентации образца различные атомные плоскости попадают в положения, параллельные этому направлению, что приводит к изменению поглощения РЛ. Таким образом, в случае кристалла можно наблюдать проекции плотно упакованных атомных плоскостей.

Отмеченные особенности метода снимают проблему голографического двойного изображения, упрощают процесс реконструкции изображения (нет необходимости в низкочастотной фильтрации) и делают возможным изучение систем с низкой симметрией. Кроме того, "белый" пучок минимизирует так называемые эффекты экстинкции, которые делают анализ данных в голографических методах громоздким [167]. Отсутствие эффектов экстинкции для полихроматического излучения экспериментально продемонстрировано в работе [182].

Метод анизотропии рентгеновского поглощения даёт усреднённую атомную структуру вокруг поглощающего атома внутри образца. Таким образом, анизотропия поглощения может быть записана только для образцов с симметрией вращения, т.е. для совершенных и несовершенных монокристаллов, многослойных структур или образцов, содержащих границы раздела. Однако часто встречаются образцы (например, состоящие из атомов одного элемента) с неэквивалентным окружением опорного атома. В таком случае изображение объекта является линейной суперпозицией картин, сформированных

неэквивалентными структурами. Метод может применяться в тех случаях, когда использование заряженных частиц не представляется возможным, например при наложении на образец внешнего электрического или магнитного поля.

Метод анизотропии рентгеновского поглощения требует широкого и плавного рентгеновского спектра. Любой край поглощения, находящийся в энергетическом диапазоне этого спектра, будет давать резкие разрывы и усложнит анализ данных. Другим ограничением метода является слабый сигнал. Тем не менее в последнее время эксперименты с применением СИ демонстрируют интересные приложения метода. С другой стороны, предварительные результаты показывают, что метод также может быть осуществлён с помощью лабораторного оборудования [152].

Первоначально анизотропию рентгеновского поглощения в "белом" пучке можно было измерить только с помощью выхода электронов в качестве вторичного излучения [182]. Однако недавно возможность его записи с использованием характеристического флуоресцентного излучения была продемонстрирована в работе [183].

Переход от монохроматического излучения к полихроматическому сопровождается качественным изменением характера голограммы [181, 184]. Главной её особенностью становится наличие специфической "тени" в направлении распространения первичного излучения (рис. 17). "Теневой эффект" позволяет непосредственно наблюдать изменение сигнала в направлениях, совпадающих с направлениями плотных упаковок атомов и атомными плоскостями [185].

На рисунке 18 показана голографическая картина анизотропии рентгеновского поглощения для кристаллического образца InAs [186]. Наиболее заметными её особенностями являются полосы, соответствующие проекциям атомных плоскостей.

В работе [187] предложен томографический алгоритм для обработки полихроматических рентгеновских флуоресцентных голограмм и 3D-реконструкции структуры. Этот алгоритм, использующий проекционный характер полихроматических рентгеновских флуоресцентных голограмм, основан на измерении амплитуды сигнала в центре полосы, где интерпретация проекций достаточно проста.

4.2.5. Тормозная рентгеновская голография. Природа тормозной РФГ проста: когда внутри одного кристалли-

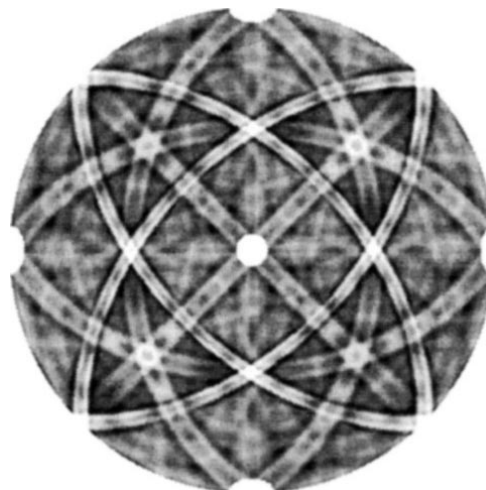


Рис. 18. Голографическая интенсивность анизотропии рентгеновского поглощения для кристалла InAs с ориентацией поверхности (001) [186].

ческого образца возникает тормозное излучение рентгеновских фотонов, картина интенсивности в дальнем поле становится аналогичной голограмме Габора [188]. Опорную волну формируют тормозные РЛ, попадающие непосредственно (без рассеяния) в детектор, а объектную волну — тормозные РЛ, упруго рассеянные атомами объекта на своём пути к детектору. В результате интерференции этих волн в плоскости детектора формируется голографическая картина. Простой фурье-анализ такой картины может быть использован для восстановления изображения атомов, окружающих атом-источник [189].

Для энергетической фильтрации тормозных квантов применялись сбалансированные фильтры Росса. Методика использует комбинацию двух фильтров, изготовленных из материалов с малой разницей атомных номеров. Коэффициенты поглощения РЛ для элементов с близкими атомными номерами зависят от энергии РЛ примерно одинаково, за исключением области вблизи их краёв поглощения. Если толщина фильтра подобрана должным образом, то разница сигналов будет обеспечивать узкую энергетическую полосу пропускания. Измеряется интенсивность пучка, прошедшего сначала через один, а затем через другой фильтр, и вычисляется разница между этими двумя сигналами.

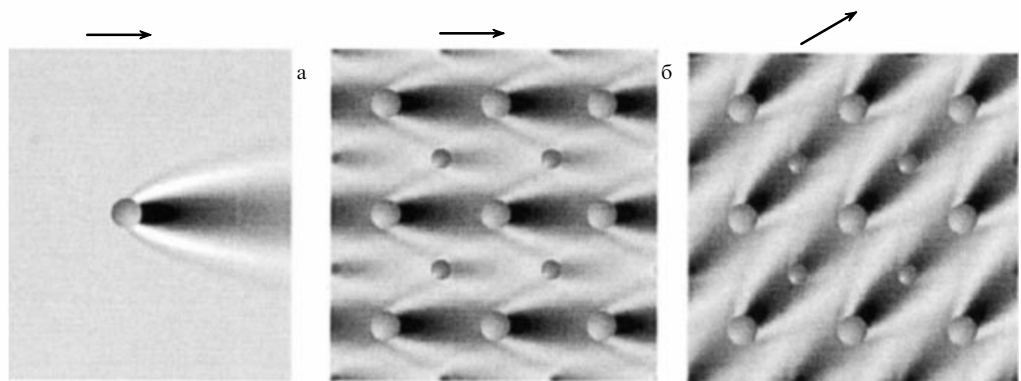


Рис. 17. Пространственная модуляция интенсивности рентгеновского волнового поля при использовании "белого" рентгеновского излучения для одного атома (а) и кристалла (б), (в). Стрелками обозначены направления первичного пучка [185].

Тормозная РФГ является привлекательным методом по трём причинам: 1) материалы с низкими атомными номерами способны произвести коротковолновое рентгеновское излучение, что позволяет достичь более высокого пространственного разрешения, чем в случае их низкоэнергетического характеристического излучения; 2) сечение тормозного излучения достаточно велико для регистрации голограмм с помощью лабораторного оборудования; 3) спектр тормозного излучения непрерывен, и, следовательно, может регистрироваться одновременно несколько голограмм, соответствующих различным энергиям рентгеновских квантов, затем эти голограммы могут быть объединены, как в инверсном способе РФГ, для реконструкции атомной структуры объекта [189]. Численное моделирование продемонстрировало осуществимость тормозной рентгеновской голографии.

Однако имеются практические сложности для экспериментального осуществления метода: а) так как тормозное излучение создают электроны, эксперимент должен проходить в вакууме, образец нуждается в охлаждении (аналогично аноду рентгеновской трубки) и он должен быть проводником; б) даже если удастся обеспечить специальную среду, которая удовлетворяет предыдущему условию, то голограмма будет формироваться атомами всех сортов, содержащимися в образце. Причиной этого является то, что выбор энергии не делает различия между атомами: любой атом может быть источником РЛ с данной энергией. Ввиду этого получение полезной информации для многокомпонентных систем затруднительно [24].

4.2.6. Голографический метод оптической люминесценции. В качестве детекторов в инверсной схеме РФГ используются внутренние электронные оболочки атома. В работе [190] была продемонстрирована возможность использования для исследования кристаллических объектов, обладающих люминесценцией в области видимого света, внешних электронных оболочек. Были получены голограммы от покрытого плёнкой ZnO кристалла сапфира (Al_2O_3) при регистрации оптической люминесценции. Образец облучался рентгеновским пучком с энергией 15 кэВ. Позиции, занимаемые атомами Al и O, были реконструированы методом максимальной энтропии [162, 163]. Обработка рентгеновских флуоресцентных голограмм образцов, содержащих лёгкие элементы, такие как Al или Si, обычно затруднительна из-за их небольших сечений ионизации и поглощения их флуоресцентного излучения воздухом. Полученные результаты показывают, что применение жёсткого рентгеновского излучения для реконструкции положений лёгких элементов в кристалле возможно при использовании голографического метода оптической люминесценции.

4.2.7. Гамма-лучевая голография. Идея использовать "ядерные излучатели" в кристалле в качестве внутренних детекторов высказана авторами работы [153]. Квант от внешнего источника гамма-излучения может быть поглощён ядром в результате резонансного процесса или может быть дополнительно резонансно рассеян. Интерференция этих двух процессов даёт голографические колебания интенсивности, измеренной в зависимости от угла падения гамма-излучения [191]. Благодаря небольшому размеру ядер характер процесса ядерного рассеяния почти идеально подходит для голографических применений.

Гамма-лучевая голография аналогична инверсному способу РФГ. Однако, поскольку гамма-голографический эксперимент основан на эффекте Мёссбауэра, возможно использование только одной длины волны, поэтому вариант мультэнергетичной голографии не представляется осуществимым. Тем не менее резонансное рассеяние способно непосредственно изменять фазу рассеяния отстройкой от резонанса [192], так же как и в случае резонансной РФГ, рассмотренной выше. Такая отстройка может осуществляться с помощью использования эффекта Доплера перемещением образца с определённой скоростью. Поскольку голограммы, записанные вблизи резонанса Мёссбауэра, соответствуют одной и той же длине волны, они могут быть объединены в комплекс голограмм.

Предложено [193] создавать результирующую голограмму из линейной комбинации двух голограмм, записанных симметрично ниже и выше точного условия резонанса. Сумма и разность симметрично записанных голограмм всегда соответствуют голограммам с амплитудой чисто мнимого или чисто реального рассеяния соответственно. Комплексная гамма-лучевая голограмма, демонстрирующая устранение эффекта двойного изображения, получена [193] для эпитаксиальной плёнки $^{57}\text{Fe}/\text{MgO}$, что подтверждает способность метода стать полезным инструментом для магнитной структурной томографии [194].

Рассеяние гамма-лучей значительно отличается от рассеяния электронов и рассеяния РЛ выше края поглощения. В гамма-лучевой голографии могут быть использованы характерные особенности ядерного резонансного рассеяния. Поскольку сечение рассеяния ядерного резонанса на два порядка выше, чем сечение рассеяния рентгеновских лучей, голографические эксперименты, использующие ядерное рассеяние, могут быть выполнены с применением лабораторного оборудования. Большое сечение захвата ядерного резонансного рассеяния может позволить провести исследование очень тонких плёнок или сильно разбавленных твёрдых растворов, обогащённых резонансными изотопами.

Другая примечательная особенность ядерного резонансного рассеяния — это его чувствительность к сверхтонким полям, присутствующим в твёрдых телах, которая даёт возможность различать положения двух одинаковых атомов, имеющих разное (неэквивалентное) окружение, т.е. исследовать структуры с магнитным упорядочением или структуры, содержащие атомы, различающиеся только валентностью [24]. Таким образом, гамма-голография имеет преимущество высокой контрастности и селективности [195]. Тем не менее она ограничена количеством специальных изотопов (мёссбауэровских ядер). Это ограничение может быть частично снято использованием СИ совместно с монохроматорами высокого энергетического разрешения [196, 197].

4.3. Использование флуоресцентной рентгеновской голографии

Использование СИ совместно с детекторами высокого разрешения позволило осуществить измерения с помощью РФГ, обеспечивающие чёткие атомные изображения в большом пространственном диапазоне, вплоть до седьмой координационной сферы [158]. Кроме того, РФГ очень чувствительна к смещению атомов из идеальных позиций, поэтому с её помощью можно получить

количественную информацию о локальных искажениях решётки на разном удалении от опорного атома, анализируя реконструированные атомные изображения. В этом разделе будут разобраны примеры использования РФГ (в основном в её мультэнергетическом варианте) для исследования целого ряда кристаллических структур.

4.3.1. Примеси. Анализ атомной структуры, окружающей примесной атом в монокристалле, является одним из наиболее важных приложений РФГ, которая способна визуализировать 3D-распределения локальных атомных структур в радиусе нескольких нанометров. Это делает использование РФГ весьма перспективным для оценки локальных искажений решётки вокруг атома примеси, тесно связанных с электронными свойствами материалов [198]. Например, в работе [199] для уточнения степени искажения решётки, вызванного добавлением атомов Ga в кристалл InSb, было реконструировано трёхмерное изображение окружения атома Ga. Хотя атомные изображения расположены почти в идеальных позициях кристалла InSb, некоторые различия можно наблюдать только для первых и вторых соседних атомов. Из результатов РФГ можно сделать вывод, что в этом полупроводнике искажения решётки ограничены областью второй координационной сферы.

Во многих работах основное внимание уделяется положению примесного атома в решётке матрицы. Так, установлено, что примесные атомы цинка в кристалле GaAs [156, 158, 200] и атомы меди (0,078 %) в кремниевой стали [137] находятся в положении замещения, а атомы Er в Sc_2O_3 — в межузельном положении [201]. Исследования ферромагнитного полупроводника ZnSnAs_2 [202] и топологического изолятора Bi_2Te_3 [203] с примесью Mn показали, что атомы Mn занимают положения катионов (Zn или Sn в первом соединении и Bi или Te — во втором).

4.3.2. Кристаллические плёнки. Изучение кристаллов с примесью показало [137, 200], что малая концентрация флуоресцирующих атомов не ограничивает применимости РФГ. Большинство электронных устройств изготовлено с использованием техники эпитаксиального роста на монокристаллических подложках. Так как эти образцы плёнок имеют трансляционный порядок, метод РФГ должен быть применим и к ним, несмотря на малый облучаемый объём. Возможность определения локальной атомной структуры тонких плёнок доказана с помощью расчёта рентгеновской голограммы атомов Ge на кремниевой подложке в плёнке Ge, состоящей из трёх атомных слоёв [168]. Экспериментально возможности метода были продемонстрированы при исследовании эпитаксиальных плёнок различного состава и назначения: магнитной FePt [161, 204, 205], полупроводниковой $\text{Si}_{0,8}\text{Ge}_{0,2}$ [117], сверхпроводящей $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [149], материала цифровой оперативной памяти универсального доступа $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ [206].

4.3.3. Смешанные кристаллы. Если образец не является совершенным кристаллом, например в случае изменения его структуры при смешивании с другими элементами, то обычные дифракционные методы не могут определить положения атомов точно, потому что совершенная периодичность атомной структуры нарушена. Большин-

ство функциональных материалов создаётся смешением нескольких химических элементов, поэтому получаемые кристаллы несовершенны. РФГ является идеальным методом для изучения их атомной структуры.

Для того чтобы исследовать искажения решётки в кристалле CdTe, в который в качестве примеси добавляются меньшие тетраэдры ZnTe_4 , в работе [207] были получены изображения атомов, окружающих атом цинка смешанного кристалла $\text{Cd}_{0,96}\text{Zn}_{0,04}\text{Te}$, в широком пространственном диапазоне при использовании рентгеновского флуоресцентного излучения ZnK_α . Показано, что решётка этого смешанного кристалла искажена только в диапазоне первой координационной сферы. Этот результат отличается от полученных ранее при исследовании разбавленных магнитных полупроводников $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ [136, 208–210], $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ [211] или смешанного кристалла $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{Sb}$ [212], в которых искажения решётки распространяются на расстояния, включающие в себя до пяти химических связей.

В работе [213] измерения проводились на тонкой плёнке $\text{Ge}_{0,6}\text{Mn}_{0,4}\text{Te}$ при возбуждении флуоресцентного излучения MnK_α . Результаты показывают, что атомы Ge замещаются атомами Mn в матрице GeTe, анионная гранцентрированная кубическая (ГЦК) подрешётка и позиции Mn стабильны. Восстановленные изображения предполагают нестабильность положений Ge или существование катионных вакансий. Для того чтобы подтвердить этот вывод, необходимо было провести исследование окружения атома Ge. При использовании вторичного излучения GeK_α было обнаружено [214], что $\text{Ge}_{0,6}\text{Mn}_{0,4}\text{Te}$ имеет искажения вокруг атома Ge в диапазоне вплоть до третьего ближайшего соседа. Искажение связано с нестабильностью позиций Ge. Даже если локальная структура вокруг атомов Ge сильно искажена, окружение атомов Mn сохраняет симметрию O_h . Возможно, в этом состоит причина того, что полупроводник $\text{Ge}_{0,6}\text{Mn}_{0,4}\text{Te}$ обладает ферромагнитными свойствами [215].

4.3.4. Квазикристаллы. Поразительная особенность квазикристаллов заключается в том, что их структуру, хотя они и непериодичны в 3D-пространстве, всё же можно характеризовать минимальным набором параметров в шестимерном пространстве, аналогичном реальному 3D-пространству "нормальных" кристаллов. Эта периодическая 6D-структура может быть спроецирована на 3D-пространство для получения идеализированной квазикристаллической структуры [216]. Исходя из этих моделей можно определить не только дальний, но и локальный порядок в различных направлениях. Для получения картины атомного порядка в объёме логично попытаться использовать традиционные рентгенодифракционные методы. Однако в большинстве случаев с их помощью атомная структура квазикристаллов не может быть расшифрована. Использование голографии даёт возможность получить изображение атомов, окружающих, например, атом Mn в квазикристалле $\text{Al}_{0,704}\text{Pd}_{0,21}\text{MnO}_{0,086}$ (рис. 19), как это было сделано в работе [217].

Эксперимент [217] открывает путь к применению голографии атомарного разрешения для изучения конденсированных сред с ориентационным порядком, но при отсутствии периодичности. Кроме того, РФГ является эффективным методом при исследовании кристал-

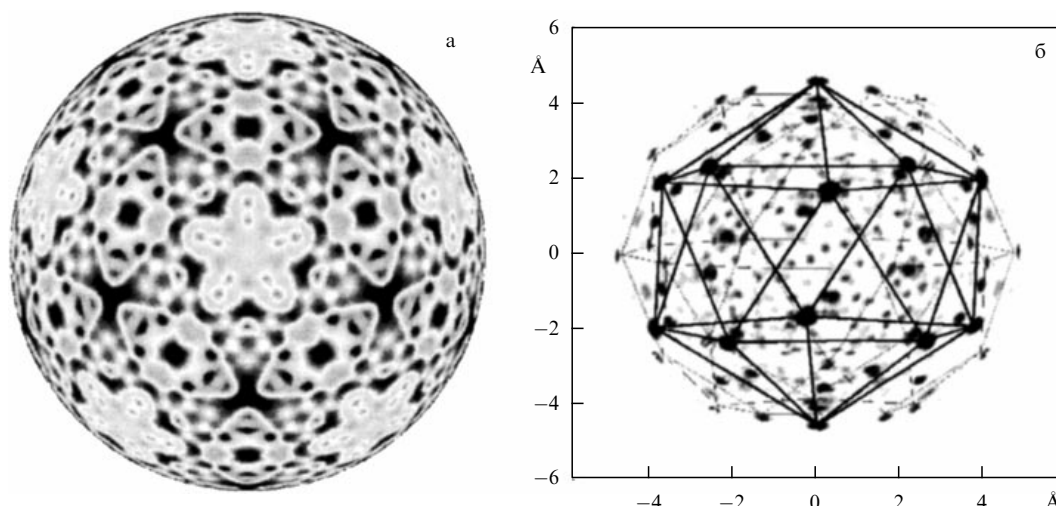


Рис. 19. (а) Полученная при $E = 16$ кэВ после низкочастотной фильтрации голограмма квазикристалла $\text{Al}_{0.704}\text{Pd}_{0.21}\text{MnO}_{0.086}$, демонстрирующая некристаллографическую пятикратную симметрию. (б) Реконструированное в реальном пространстве окружение атомов Mn [217].

лов с высокой степенью мозаичности, которая приводит к локальной вариации ориентации оси симметрии в твёрдых телах. Исходя из этого появляется возможность изучения слабоупорядоченных систем, например белков.

4.3.5. Сплавы с памятью формы. Фазовые переходы. Сплавы Ti–Ni являются наиболее часто используемыми сплавами с памятью формы и имеют фазовый переход, поведение которого зависит от количества примеси третьего элемента — Fe. Фазовый переход первого рода наблюдается только тогда, когда более 6 весовых процентов атомов Fe замещают Ni. Таким образом, кристалл состава $\text{Ti}_{0.50}\text{Ni}_{0.44}\text{Fe}_{0.06}$ является подходящим образцом для исследования структурной модуляции, сопровождающейся образованием сверхрешётки.

Локальная структура вокруг атомов Fe в сплаве $\text{Ti}_{0.50}\text{Ni}_{0.44}\text{Fe}_{0.06}$ и её поведение при фазовом переходе изучены в работах [218, 219] с помощью РФГ. Голограммы были записаны с использованием излучения FeK_α при температуре 225 и 100 K, что соответствует исходной и соразмерной фазам. В то же время атомы, равномерно распределённые в исходной фазе, образуют кластерные структуры с радиусом 8 Å в соразмерной фазе, где движение атомов внутри кластеров "заморожено". Эта информация ценна для объяснения фоновонного смягчения при фазовом переходе [198].

4.3.6. Сегнетоэлектрики. Результаты анализа восстановленных атомных изображений вокруг атомов Nb и Pb в сегнетоэлектрике-релаксоре $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ (PMN) привели к выводу [220] о том, что решётка PMN состоит из двух подрешёток. Первая подрешётка, образованная позиционно стабильными ионами Pb и Nb, представляет собой псевдоромбоэдри, встроенные в объёмноцентрированную элементарную ячейку с ромбоэдрической (возможно, орторомбической) симметрией. Вторая подрешётка состоит из ионов Pb и Nb, колеблющихся около идеальных позиций, соответствующих решётке перовскита. Можно предположить, что колебания ионов Pb и Nb отвечают за характерный широкий релаксационный спектр, наблюдаемый в PMN.

Успешное восстановление авторами работы [220] сложной структуры кристалла $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ подтверждает большие возможности рентгеновской голографии атомарного разрешения.

5. Заключение

По-видимому, можно утверждать, что рентгеновская голография благодаря улучшению пространственного разрешения, уменьшению времени эксперимента и усовершенствованию способов реконструкции изображения исследуемого объекта превращается в рутинный способ 3D-визуализации. Оба метода — с внешним и внутренним источником/детектором — хорошо дополняют друг друга: первый находит применение при исследовании аморфных или неупорядоченных объектов (в частности, биологических); второй даёт возможность определять структуру упорядоченных (кристаллических) объектов с атомарным разрешением.

Поскольку метод с внутренним источником/детектором (метод флуоресцентной голографии) в последнее время привлекает особое внимание исследователей, имеет смысл остановиться на его преимуществах над такими распространёнными методами исследования структуры упорядоченных объектов, как электронная голография и просвечивающая электронная микроскопия, рентгеновская микроскопия, рентгеновская дифракция (включающая в себя метод СРВ), метод рентгеновской спектроскопии поглощения (метод EXAFS — Extended X-ray Absorption Fine Structure), магнитная силовая микроскопия, мёссбауэровская спектроскопия.

1. Как отмечалось выше, электроны не являются идеальным средством визуализации (в особенности голографической) из-за их сильного взаимодействия с веществом и больших фазовых сдвигов при рассеянии, в то время как для рентгеновского излучения эти эффекты пренебрежимо малы. РЛ также имеют более высокую проникающую способность по сравнению с таковой электронов. Кроме того, электронные методы требуют наличия вакуума, а исследуемый объект должен обладать проводниковыми свойствами или быть покрытым

проводящей плёнкой, что сужает класс исследуемых объектов и усложняет эксперимент.

2. Отличительной чертой рентгеновской голографии является простота её экспериментальной реализации. Рентгеновская микроскопия требует наличия прецизионных фокусирующих элементов, в связи с чем необходима тщательная юстировка оптических узлов, что приводит к усложнению эксперимента.

3. Голография, в отличие от дифрактометрии, не требует наличия периодического дальнего порядка, но структуры, окружающие атомы-источники или атомы-детекторы, должны быть эквивалентными (и ориентационно упорядоченными). Это означает, что голография позволяет изучать структуры, которые не обладают совершенной трансляционной симметрией, такие как, например, несовершенные кристаллы, макромолекулы, скрытые (внутренние) атомные слои и деформированные элементарные ячейки.

4. Метод EXAFS широко используется для исследования локальной атомной структуры вокруг конкретного атома. Однако этим методом можно получить только 1D-информацию. Кроме того, полученная этим методом информация, в отличие от предоставляемой голографическим методом, обычно ограничивается атомами второй или третьей координационных сфер.

5. Метод магнитно-силовой микроскопии может быть использован для характеристики магнитной конфигурации объекта. Однако этот метод усредняет результаты от всех слоёв и не позволяет изучить каждый слой гетероструктуры по отдельности. Рентгеновская голография имеет преимущество в чувствительности к трёхмерному профилю намагниченности. Её специфичность — возможность исследования сложных магнитных гетерогенных систем [90].

6. Несмотря на то что сведения по структуре объекта, получаемые с помощью γ -голографии и мёссбауэровской спектроскопии, схожи, области применения этих методов различны: в γ -лучевой голографии схема эксперимента основана на регистрации оже-электронов, что может быть эффективно использовано, например, для изучения сверхтонких плёнок [194].

Следует особо подчеркнуть, что, помимо вышеперечисленных преимуществ, основным преимуществом флуоресцентной рентгеновской голографии является возможность получения объёмного изображения исследуемой структуры.

Дальнейшее развитие методов, использующих внешний источник (методы осевой голографии и фурье-голографии), скорее всего, будет связано с ЛСЭ. Использование ЛСЭ в качестве когерентного источника РЛ привлекло большое внимание исследователей [52, 80, 83, 84, 87, 93, 113, 114, 221].

Появилась возможность регистрировать отдельные моменты (фазы) быстро протекающих динамических процессов, поскольку использование коротких фемтосекундных импульсов позволяет "обогнать" процессы повреждения образца и получить структурную информацию о нём в атомарном масштабе.

Кроме того, может быть осуществлена динамическая визуализация невоспроизводимых сверхбыстрых процессов. Исследование сверхбыстрых фазовых переходов в мезоскопических системах, сверхбыстрых спиновых инверсий магнитных нанодоменов или кардинальной перестройки молекул в биологических средах — вот некото-

рые перспективные темы исследований на ближайшее будущее [93].

Рентгеновская флуоресцентная голография является уникальным методом, который не только пригоден для зондирования локальных структур на средней дальности (несколько нанометров), но и перспективен для многих других структурных характеристик, которые ещё предстоит разработать. Структурная информация, полученная с его помощью, создаёт эффективную связь между рутинными рентгеновскими дифракционными методами определения дальнего порядка в кристалле и методом EXAFS.

Методы восстановления изображений в электронной и рентгеновской голографии атомарного разрешения были разработаны для малых кластеров. Существующие алгоритмы реконструкции голограмм не всегда являются адекватными для кристаллов, поскольку не всегда учитывают среднее поле в кристалле, обусловленное перерасеянием внешнего электромагнитного поля на всех атомах кристалла, а кроме того, не учитывают деформационные поля. В некоторых случаях вклад удалённых атомов в изображение сравним по амплитуде со вкладами от ближайших атомов и он не может быть выделен без дополнительных сведений о структуре исследуемого объекта. Простая фильтрация низких частот, по мнению авторов работ [222, 223], не может применяться в качестве общего метода полной элиминации вклада рассеяния на удалённых атомах в голографический набор данных.

Таким образом, широко используемая реконструкция Бартон по отфильтрованным данным может дать частично искажённую информацию об атомной амплитуде рассеяния. Поэтому желательна разработка новых подходов и новых алгоритмов.

Такие подходы, в отличие от голографической реконструкции, которая является интегральным преобразованием, должны игнорировать данные вблизи брэгговской дифракции. По-видимому, другие процедуры анализа данных (например, с использованием голографического анализа структурных факторов [224] или линейного алгоритма регрессии [225]) могут оказаться более перспективными. Важно отметить, что, в отличие от голографической реконструкции, указанные процедуры анализа могут быть изменены так, чтобы включить в рассмотрение физические эффекты, которые не учитываются в кинематической теории: многократного рассеяния и экстинкции при углах вблизи точного условия Брэгга или возбуждения флуоресценции вдали от него [152].

Таким образом, несмотря на то что физика формирования рентгеновских голограмм предельно ясна, раздел голографии атомарного разрешения всё ещё содержит открытые вопросы. Можно надеяться, что дальнейшие теоретические и экспериментальные исследования будут способствовать корректной однозначной реконструкции упорядоченных структур любой сложности.

Список литературы

1. Gabor D *Nature* **161** 777 (1948)
2. Rogers G L *Proc. R. Soc. Edinburg A* **63** 193 (1952)
3. Van der Lugt A *IEEE Trans. Inf. Theory* **10** 139 (1964)
4. Leith E N, Upatniek J J *Opt. Soc. Am.* **53** 1377 (1963)
5. Stroke G W, Falconer D G *Phys. Lett.* **13** 306 (1964)
6. Stroke G W *Appl. Phys. Lett.* **6** 201 (1965)
7. Leith E N, Upatnieks J, Haines K A *Phys. Rev.* **85** 763 (1952)

8. Baez A V *J. Opt. Soc. Am.* **42** 756 (1952)
9. Leith E N, Upatnieks J, Haines K A *J. Opt. Soc. Am.* **55** 981 (1965)
10. Winthrop J T, Worthington C R *Phys. Lett.* **15** 124 (1965)
11. Winthrop J T, Worthington C R *Phys. Lett.* **21** 413 (1966)
12. Stroke G W et al. *Br. J. Appl. Phys.* **17** 497 (1966)
13. Rogers G L, Palmer J J *J. Microsc.* **89** 125 (1969)
14. Aoki S, Kikuta S *Jpn. J. Appl. Phys.* **13** 1385 (1974)
15. Reuter B, Mahr H J *Phys. E Sci. Instrum.* **9** 746 (1976)
16. Кондратенко А М, Скринский А Н *Оптика и спектроскопия* **42** 338 (1977); Kondratenko A M, Skrisky A N *Opt. Spectrosc.* **42** 189 (1977)
17. Solem J C, Baldwin G C *Science* **218** 229 (1982)
18. Szöke A *AIP Conf. Proc.* **147** 361 (1986)
19. Saldin D K, de Andres P L *Phys. Rev. Lett.* **64** 1270 (1990)
20. Harp G R, Saldin D K, Tonner B P *Phys. Rev. Lett.* **65** 1012 (1990)
21. Len P M et al. *Phys. Rev. B* **59** 5857 (1999)
22. Tegze M, Faigel G *Europhys. Lett.* **16** 41 (1991)
23. Tegze M, Faigel G *Nature* **380** 49 (1996)
24. Faigel G, Tegze M *Rep. Prog. Phys.* **62** 355 (1999)
25. Faigel G, Tegze M G *Struct. Chem.* **14** 15 (2003)
26. Faigel G et al. *X-Ray Spectrom.* **36** 3 (2007)
27. Hayashi K *Adv. Imaging Electron Phys.* **140** 119 (2006)
28. Hayashi K *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **9** 363 (2011)
29. Hayashi K et al. *J. Phys. Condens. Matter* **24** 093201 (2012)
30. Hosokawa S et al. *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **9** 265 (2011)
31. McNulty I *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **347** 170 (1994)
32. Mandel L, Wolf E *Rev. Mod. Phys.* **37** 231 (1965)
33. Stoykova E, Kang H, Park J *Chin. Opt. Lett.* **12** 060013 (2014)
34. Xu W et al. *Appl. Opt.* **41** 5367 (2002)
35. Garcia-Sucerquia J et al. *Appl. Opt.* **45** 836 (2006)
36. Kreuzer H J, Pawlitzeck R A *Europhys. News* **34** (2) 62 (2003)
37. Gabor D *Proc. R. Soc. Lond. A* **197** 454 (1949)
38. Barton J J *Phys. Rev. Lett.* **61** 1356 (1988)
39. Kreuzer H J et al. *Ultramicroscopy* **45** 381 (1992)
40. Guigay J P *Optik* **49** 121 (1977)
41. Duhamel P, Vetterli M *Signal Processing* **19** 259 (1990)
42. Solem J C *J. Opt. Soc. Am. B* **3** 1551 (1986)
43. Сороко Л М *УФН* **90** 3 (1966); Soroko L M *Sov. Phys. Usp.* **9** 643 (1967)
44. Latychevskaia T, Fink H-W *Phys. Rev. Lett.* **98** 233901 (2007)
45. Morlens A-S et al. *Opt. Lett.* **31** 3095 (2006)
46. Watanabe N et al. *Appl. Opt.* **36** 7433 (1997)
47. Watanabe N, Aoki S *J. Synchrotron Radiat.* **5** 1088 (1998)
48. Gorniak T et al. *Opt. Express* **19** 11059 (2011)
49. Heine R et al. *Ultramicroscopy* **111** 1131 (2011)
50. Lim J, Shin H J, Hong Ch K *Jpn. J. Appl. Phys.* **50** 072504 (2011)
51. Rosenhahn A et al. *Ultramicroscopy* **107** 1171 (2007)
52. Rosenhahn A et al. *Opt. Express* **17** 8220 (2009)
53. Barth R et al. *J. Biotechnol.* **149** 238 (2010)
54. Howells M et al. *Science* **238** 514 (1987)
55. Jacobsen C et al. *J. Opt. Soc. Am. A* **7** 1847 (1990)
56. Lindaas S et al. *J. Opt. Soc. Am. A* **13** 1788 (1996)
57. Wachulak P W et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 1811 (2008)
58. Kamijo N et al. *J. Synchrotron Rad.* **9** 182 (2002)
59. De Caro L et al. *Phys. Rev. B* **77** 081408(R) (2008)
60. Eisebitt S et al. *Phys. Rev. B* **68** 104419 (2003)
61. Gerchberg R W, Saxton W O *A Optik* **35** 227 (1972)
62. Fienup J R *Appl. Opt.* **21** 2758 (1982)
63. Rong L et al. *Opt. Lasers Eng.* **51** 553 (2013)
64. Kreuzer H J, Pawlitzeck R P, LEEPS, Version 1.2: a Software Package for the Simulation and Reconstruction of Low Energy Electron Point Source Images and Other Holograms (Halifax, NS: Helix Science Applications, 1993–1998)
65. Gabor D *Proc. IEEE* **60** 655 (1972); "Holography, 1948–1971. Nobel Lecture, December 13, 1971", Preprint Les Pris Nobel en 1971 (Stockholm: The Nobel Foundation, 1972); Габор Д *УФН* **109** 5 (1973)
66. Kohmura Y et al. *J. Appl. Phys.* **96** 1781 (2004)
67. Leith E N, Upatnieks J *J. Opt. Soc. Am.* **54** 1295 (1964)
68. Bonse U et al. *Nucl. Instrum. Meth.* **172** 223 (1980)
69. Лидер В В *УФН* **184** 1217 (2014); Lider V V *Phys. Usp.* **57** 1099 (2014)
70. Fuhse C, Ollinger C, Salditt T *Phys. Rev. Lett.* **97** 254801 (2006)
71. Eisebitt S et al. *Nature* **432** 885 (2004)
72. Eisebitt S et al. *Appl. Phys. Lett.* **84** 3373 (2004)
73. Hellwig O et al. *J. Appl. Phys.* **99** 08H307 (2006)
74. Guehrs E et al. *Opt. Express* **17** 6710 (2009)
75. Stickler D et al. *Appl. Phys. Lett.* **96** 042501 (2010)
76. Tieg C et al. *J. Phys. Conf. Ser.* **211** 012024 (2010)
77. Nomura K et al. *AIP Conf. Proc.* **1365** 277 (2011)
78. Schlotter W F et al. *Appl. Phys. Lett.* **89** 163112 (2006)
79. Stadler L-M et al. *Phys. Rev. Lett.* **100** 245503 (2008)
80. Kim H T et al. *Appl. Phys. Lett.* **98** 121105 (2011)
81. Spezzani C et al. *Phys. Rev. B* **88** 224420 (2013)
82. Streit-Nierobisch S et al. *J. Appl. Phys.* **106** 083909 (2009)
83. Wang T et al. *Phys. Rev. Lett.* **108** 267403 (2012)
84. Günther C M et al. *Nature Photon.* **5** 99 (2011)
85. Schlotter W F et al. *Opt. Lett.* **32** 3110 (2007)
86. Iwamoto H, Yagi N *J. Synchrotron Rad.* **18** 564 (2011)
87. Pfau B et al. *New J. Phys.* **12** 095006 (2010)
88. Podorov S G, Pavlov K M, Paganin D M *Opt. Express* **15** 9954 (2007)
89. Guizar-Sicairos M, Fienup J R *Opt. Express* **15** 17592 (2007)
90. Duckworth T A et al. *Opt. Express* **19** 16223 (2011)
91. Guizar-Sicairos M, Fienup J R *Opt. Lett.* **33** 2668 (2008)
92. Zhu D et al. *Phys. Rev. Lett.* **105** 043901 (2010)
93. Gauthier D et al. *Phys. Rev. Lett.* **105** 093901 (2010)
94. Marchesini S et al. *Nature Photon.* **2** 560 (2008)
95. Кондратенко А М, Скринский А Н *Автометрия* (2) 3 (1977)
96. McNulty I et al. *Science* **256** 1009 (1992)
97. Kirz J et al. *Phys. Scripta* (T31) 12 (1990)
98. Leitenberger W, Snigirev A J *Appl. Phys.* **90** 538 (2001)
99. Malm E B et al. *Opt. Express* **21** 9959 (2013)
100. Geilhufe J et al. *Nature Commun.* **5** 3008 (2014)
101. Shintake T *Phys. Rev. E* **78** 041906 (2008)
102. Howells M R et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **467** 864 (2001)
103. Guehrs E et al. *New J. Phys.* **14** 013022 (2012)
104. Fienup J R *J. Opt. Soc. Am. A* **4** 118 (1987)
105. Miao J et al. *Nature* **400** 342 (1999)
106. Kunz C J *Phys. Condens. Matter* **13** 7499 (2001)
107. Hauet T et al. *Phys. Rev. B* **77** 184421 (2008)
108. Scherz A et al. *Phys. Rev. B* **76** 214410 (2007)
109. Günther C M et al. *Appl. Phys. Lett.* **93** 072505 (2008)
110. Günther C M et al. *Phys. Rev. B* **81** 064411 (2010)
111. Hellwig O et al. *Appl. Phys. Lett.* **98** 172503 (2011)
112. Mancuso A P et al. *New J. Phys.* **12** 035003 (2010)
113. Chapman H N et al. *Nature* **448** 676 (2007)
114. Chamard V et al. *Phys. Rev. Lett.* **104** 165501 (2010)
115. Roy S et al. *Nature Photon.* **5** 243 (2011)
116. Hayashi K, Takahashi Y, Matsubara E *Mater. Trans.* **43** 1464 (2002)
117. Hayashi K et al. *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **14** 459 (2003)
118. Faigel G et al. *Spectrochim. Acta B* **59** 1523 (2004)
119. Bompadre S G, Petersen T W, Sorensen L B *Phys. Rev. Lett.* **83** 2741 (1999)
120. Hayashi K et al. *Jpn. J. Appl. Phys.* **39** 1414 (2000)
121. Hiort T et al. *Phys. Rev. B* **61** R830 (2000)
122. Gog T et al. *Phys. Rev. Lett.* **76** 3132 (1996)
123. Adams B et al. *Phys. Rev. B* **57** 7526 (1998)
124. Takahashi Y, Hayashi K, Matsubara E *Adv. X-Ray Anal.* **47** 110 (2004)
125. Adams B, Nishino Y, Materlik G J *J. Synchrotron Rad.* **7** 274 (2000)
126. Adams B et al. *Phys. Status Solidi B* **215** 757 (1999)
127. Tegze M et al. *Phys. Rev. Lett.* **82** 4847 (1999)
128. Happon N, Hayashi K, Hosokawa S *Jpn. J. Appl. Phys.* **49** 116601 (2010)
129. Лидер В В *Кристаллография* **56** 195 (2011); Lider V V *Crystallogr. Rep.* **56** 169 (2011)
130. Zegenhagen J, Kazimirov A (Eds) *The X-ray Standing Wave Technique: Principles and Applications* (Series on Synchrotron Radiation Techniques, Vol. 7) (Singapore: World Scientific, 2013)
131. Gog T et al. *J. Physique IV* **4** C9-449 (1994)
132. Gog T, Bahr D, Materlik G *Phys. Rev. B* **51** 6761(R) (1995)
133. Len P M et al. *Phys. Rev. B* **55** R3323 (1997)
134. Len P M et al. *Phys. Rev. B* **50** 11275(R) (1994)
135. Barton J J *Phys. Rev. Lett.* **67** 3106 (1991)
136. Hosokawa S, Happon N, Hayashi K *Phys. Rev. B* **80** 134123 (2009)

137. Hayashi K et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **238** 192 (2005)
138. Mimura K et al. *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **9** 273 (2011)
139. Tegze M et al. *Nature* **407** 38 (2000)
140. Baron A Q R *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **352** 665 (1995)
141. Lechner P et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **377** 346 (1996)
142. Sanchez del Rio M et al. *Proc. SPIE* **3448** 246 (1998)
143. Gog T et al. *Synchrotron Radiat. News* **9** 30 (1996)
144. Marchesini S, Belakhovsky M, Freund A K *Proc. SPIE* **3448** 224 (1998)
145. Hayashi K et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **467–468** 1241 (2001)
146. Marchesini S et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **457** 601 (2001)
147. Hosokawa S et al. *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **9** 265 (2011)
148. Takahashi Y, Hayashi K, Matsubara E *Sci. Technol. Adv. Mater.* **4** 409 (2003)
149. Sekioka T et al. *J. Synchrotron Radiat.* **12** 530 (2005)
150. Takahashi Y et al. *J. Mater. Res.* **18** 1471 (2003)
151. Gog T et al. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **92** 123 (1998)
152. Dabrowski K M, Korecki P *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **285** 94 (2012)
153. Tegze M *Phys. Rev. B* **73** 214104 (2006)
154. Takahashi Y, Hayashi K, Matsubara E *Powder Diffract.* **19** 77 (2004)
155. Faigel G, Tegze M, Bortel G *Phys. Rev. B* **70** 106101 (2004)
156. Hayashi K et al. *Anal. Sci.* **14** 987 (1998)
157. Busetto E et al. *Phys. Rev. B* **62** 5273 (2000)
158. Hayashi K et al. *Phys. Rev. B* **63** 041201 (2001)
159. Hu W et al. *J. Cryst. Growth* **311** 982 (2009)
160. Marchesini S, Fadley C S *Phys. Rev. B* **67** 024115 (2003)
161. Takahashi Y et al. *Appl. Phys. Lett.* **87** 234104 (2005)
162. Matsushita T, Agui A, Yoshigoe A *Europhys. Lett.* **65** 207 (2004)
163. Matsushita T, Yoshigoe A, Agui A *Europhys. Lett.* **71** 597 (2005)
164. Matsushita T et al. *Phys. Rev. B* **78** 144111 (2008)
165. Matsushita T et al. *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **9** 153 (2011)
166. Xie H et al. *Opt. Commun.* **229** 123 (2004)
167. Korecki P et al. *Phys. Rev. B* **69** 184103 (2004)
168. Takahashi Y, Hayashi K, Matsubara E *Mater. Trans.* **43** 1475 (2002)
169. Bortolani V, Celli V, Marvin A M *Phys. Rev. B* **67** 024102 (2003)
170. Len P M et al. *Phys. Rev. B* **56** 1529 (1997)
171. Adams B et al. *Phys. Rev. B* **57** 7526 (1998)
172. Tegze M, Faigel G *J. Phys. Condens. Matter* **13** 10613 (2001)
173. Bai J *Phys. Rev. B* **68** 144109 (2003)
174. Nishino Y et al. *Phys. Rev. B* **66** 092105 (2002)
175. Miao-Xin C, Zheng L *Chinese Phys. C* **32** 1016 (2008)
176. Omori S et al. *Phys. Rev. B* **65** 014106 (2001)
177. Takahashi Y, Hayashi K, Matsubara E *Phys. Rev. B* **68** 052103 (2003)
178. Takahashi Y, Hayashi K, Matsubara E *Sci. Technol. Adv. Mater.* **4** 409 (2003)
179. Takahashi Y, Hayashi K, Matsubara E *Phys. Rev. B* **71** 134107 (2005)
180. Kopecky M et al. *Phys. Rev. Lett.* **89** 279602 (2002)
181. Korecki P, Materlik G *Phys. Rev. Lett.* **86** 2333 (2001)
182. Korecki P et al. *Phys. Rev. Lett.* **96** 035502 (2006)
183. Korecki P et al. *J. Synchrotron Radiat.* **18** 851 (2011)
184. Korecki P, Tolkiehn M, Novikov D V *Radiat. Phys. Chem.* **78** S34 (2009)
185. Dabrowski K M et al. *Phys. Rev. B* **87** 064111 (2013)
186. Korecki P, Novikov D V, Tolkiehn M *Phys. Rev. B* **80** 014119 (2009)
187. Korecki P et al. *Phys. Rev. B* **74** 184116 (2006)
188. Miller G A, Sorensen L B *Phys. Rev. B* **56** 2399 (1997)
189. Bompadre S G, Petersen T W, Sorensen L B *Phys. Rev. Lett.* **83** 2741 (1999)
190. Hayashi K et al. *Phys. Rev. B* **76** 014119 (2007)
191. Korecki P, Korecki J, Slyzak T *Phys. Rev. Lett.* **79** 3518 (1997)
192. Korecki P, Korecki J, Karaš W *Phys. Rev. B* **59** 6139 (1999)
193. Korecki P, Materlik G, Korecki J *Phys. Rev. Lett.* **86** 1534 (2001)
194. Korecki P, Korecki J *Hyperfine Interactions* **136–137** 137 (2001)
195. Korecki P et al. *Phys. Rev. Lett.* **92** 205501 (2004)
196. Burkel E *Rep. Prog. Phys.* **63** 171 (2000)
197. Toellner T S *Hyperfine Interactions* **125** 3 (2000)
198. Hayashi K, Happon N, Hosokawa S *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **95** 337 (2014)
199. Hosokawa S et al. *Phys. Rev. B* **87** 094104 (2013)
200. Hayashi K et al. *Adv. X-Ray Anal.* **42** 181 (2000)
201. Anduleit K, Materlik G *Acta Cryst. A* **59** 138 (2003)
202. Hayashi K et al. *Jpn. J. Appl. Phys.* **50** 01BF05 (2011)
203. Hosokawa S et al. *J. Phys. Conf. Ser.* **502** 012024 (2014)
204. Takahashi Y et al. *Scripta Mater.* **48** 975 (2003)
205. Takahashi Y "Study of advanced x-ray fluorescence holography method", PhD Thesis (Sendai, Japan: Tohoku Univ., 2004)
206. Hosokawa S et al. *Appl. Phys. Lett.* **90** 131913 (2007)
207. Happon N et al. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **181** 154 (2010)
208. Hosokawa S et al. *Jpn. J. Appl. Phys.* **44** 1011 (2005)
209. Happon N et al. *Inst. Pure Appl. Phys. Conf. Ser.* **7** 273 (2006)
210. Hosokawa S, Happon N, Hayashi K *J. Magn. Magn. Mater.* **310** 2707 (2007)
211. Happon N, Hayashi K, Hosokawa S *J. Cryst. Growth* **311** 990 (2009)
212. Hosokawa S et al. *J. Cryst. Growth* **311** 978 (2009)
213. Happon N et al. *Jpn. J. Appl. Phys.* **50** 05FC11 (2011)
214. Happon N et al. *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **9** 247 (2011)
215. Happon N et al. *J. Phys. Soc. Jpn.* **83** 113601 (2014)
216. Cahn J W *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* **106** 975 (2001)
217. Marchesini S et al. *Phys. Rev. Lett.* **85** 4723 (2000)
218. Hu W et al. *Phys. Rev. B* **80** 060202 (2009)
219. Hu W et al. *J. Cryst. Growth* **311** 982 (2009)
220. Hu W et al. *Phys. Rev. B* **89** 140103(R) (2014)
221. Martin A V et al. *Nature Commun.* **5** 4661 (2014)
222. Fanchenko S S et al. *Phys. Rev. B* **66** 060104(R) (2002)
223. Fanchenko S S et al. *Phys. Rev. B* **70** 106102 (2004)
224. Marchesini S et al. *Phys. Rev. B* **66** 094111 (2002)
225. Chukhovskii F N, Poliakov A M *Acta Cryst. A* **59** 109 (2003)

X-ray holography

V.V. Lider

A.V. Shubnikov Institute of Crystallography, Russian Academy of Sciences,
 Leninskii prosp. 59, 119333 Moscow, Russian Federation
 Tel. +7 (499) 135 61 50
 E-mail: lider@ns.crys.ras.ru; vallider@yandex.ru

Different X-rays holographic methods are reviewed. Their features and capabilities are discussed. Particular attention is paid to fluorescence holography method, which allows to obtain three-dimensional local structure images of ordered objects with atomic resolution. On concrete examples it is proved that X-ray holography is a unique nondestructive structural characterization method for a wide class of objects.

Keywords: holography, X-rays, coherency, fluorescence, atomic resolution

PACS numbers: **41.50.+h, 42.40.-i, 61.05.-a, 87.59.-e**

DOI: 10.3367/UFNr.0185.201504d.0393

Bibliography — 225 references

Received 26 November 2014, revised 23 February 2015

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **185** (4) 393–413 (2015)

Physics – Uspekhi **58** (4) (2015)