arXiv:2303.18166v2 [physics.optics] 3 Apr 2023

使用自由电子激光器产生的极紫外辐射进行三维相干衍射快照成像

DANNY FAINOZZI,[1,5,*] MATTEO IPPOLITI,[1,5] FULVIO BILLE',[1] DARIO DE ANGELIS,[1] LAURA FOGLIA,[1] CLAUDIO MASCIOVECCHIO,[1] RICCARDO MINCIGRUCCI,[1] MATTEO PANCALDI,[1] EMANUELE PEDERSOLI,[1] CHRISTIAN M. GÜNTHER,[3] BASTIAN PFAU,[2] MICHAEL SCHNEIDER,[2] CLEMENSVON KORFF SCHMISING,[2] STEFAN EISEBITT,[2,4] GEORGE KOUROUSIAS,[1] FILIPPO BENCIVENGA,[1] 以及 FLAVIO CAPOTONDI[1]

[1]*Elettra-Sincrotrone Trieste，SS 14 km 163,5，AREA Science Park，34149*，的里雅斯特，意大利[2]*Max-Born*非线性光学与超快光谱学研究所，*Max-Born-Straße2A，12489* 柏林，德国[3]柏林工业大学，电子显微镜中心（*ZELMI*），*Straße des 17. Juni 135，10623* 柏林[4]柏林工业大学，光学与原子物理研究所，*Straße des 17. Juni 135，10623* 柏林[5]作者对本项工作作出了同等贡献。**danny.fainozzi@elettra.eu*

摘要： 在从材料科学到临床诊断等众多领域中，以亚微米分辨率获得单个物体的三维表征至关重要。通常，这通过断层成像实现，即结合从不同方向拍摄的同一物体的多幅二维图像。然而，这种串行成像方法使得自由电子激光器成像实验无法进行单次采集。在本实验中，我们报道了一种利用极紫外辐射进行三维成像的新方法。在该方法中，两个极紫外脉冲从不同侧面同时照射一个孤立的三维物体，生成彼此独立的相干衍射图样，并通过相位恢复获得两个不同的二维视图。随后，利用光线追迹算法，根据这些视图获得三维重建。这种极紫外立体成像方法类似于双目视觉的自然过程，可提供亚微米空间分辨率和单次成像能力。此外，还可以方便地实现超快时间分辨率和光谱学，并且有望进一步扩展至X射线波长。

1. 引言

材料的三维结构通常与其性质和功能相关。在亚-μm 长度尺度上理解这种关系，对许多应用至关重要，例如，控制微机电系统的摩擦学性质 [1]，或研究限制可充电电池寿命的腐蚀与渗流电化学过程 [2,3]。要实现如此高的分辨率，需要短波长探针。其中，极紫外（EUV）和X射线光子可调谐至特定的吸收边，从而赋予化学选择性，并提高对局部环境的敏感度 [4–6],；它们已用于获取亚微米分辨率的图像，例如：非周期性磁畴 [7,8],、人工纳米结构 [9,10] 和生物样品 [11,12]。此外，极紫外/X射线自由电子激光（FEL）光源的高亮度使单次曝光方法成为可能 [13,14],，这种方法正逐渐成为探测无法承受高辐射剂量的样品 [15–17]以及研究不可逆动力学过程 [18,19]的重要工具。基于

近乎相同靶标的依次替换 [20,21] 和复杂的后处理 [22]，可实现基于FEL的三维成像。另一种方法是，Geilhufe等人 [23] 提出将傅里叶变换X射线全息术的单帧信息与波前传播数值计算相结合，以调整不同深度处的焦点，从而获取有价值的三维图像。然而，此前尚未有关于单次曝光与三维成像相结合的报道，尽管正如本稿所示，这种方法在FEL上具有潜在可行性。本文采用的单次曝光获取三维信息的策略，是同时确定同一物体的多个二维（2D）视图，并从不同观察角对样品进行时间同步照明 [24,25]。Schmidt等人 [26], 从理论上提出了同时采集X射线图像的方案，而Duarte等人 [27] 则利用极紫外台式光源首次报告了这方面的实验结果。本研究中的三维可视化算法根据两个不同视角的极紫外相干衍射成像（CDI）视图计算视差图，从而重建物体的三维点云。为获得准确的视差图，该方法要求两个视图之间的夹角较小，因此其适用范围受限于存在遮挡区域的复杂物体。此外，重建算法仅基于几何投影，因而无法呈现所研究样品的任何物理性质。本文扩展了Duarte等人 [27]的工作，展示了在FEL光源上实现单次曝光三维成像。具体而言，我们使用一种特殊的分束-重合装置，从不同方向照明样品，并开发了一种纳入样品物理信息、而非仅依赖几何投影的重建算法。这使两个视图之间可以具有更大的夹角，从而更准确地确定三维结构。该算法具有较强的鲁棒性，即使物体仅接受一次FEL曝光，也能重建不同的三维结构。这一成果为时域三维成像研究铺平了道路，例如研究化学反应或生物过程中发生的结构变化、相变或自旋纹理动力学。

2. 实验

实验在位于意大利的里雅斯特 FERMI 自由电子激光装置的 DiProI 束线上进行 [28,29], ，采用的系统此前曾用于基于自由电子激光的瞬态光栅实验，并已在其他文献中作了详细介绍 [30,31]。该装置能够产生两个自由电子激光脉冲，并在样品处将它们重新合并，同时精确设定交叉角（$\theta = 40°$）并确保时间重合。每束交叉的 FEL 光束在样品处的光斑尺寸约为 60× 120 μm^2 半峰全宽（FWHM）；FEL 波长为 20.8 纳米，脉冲持续时间为 50 fs（FWHM），样品处的典型强度约为每发 1.1 μJ，偏振为圆偏振。我们使用了不同类型的三维结构作为样品，例如图1b）所示的五重螺旋结构。样品经过定向，使其表面与两束 FEL 光束中的一束垂直。每个样品附近均放置了方向适当的全息针孔和一个延伸的 HERALDO 参考物 [32,33]。两个 CCD 探测器分别沿两束 FEL 光束的轴线放置，距样品 100 mm。下文将这两个 CCD 称为 CCD 40° 和 CCD 0°；后者位于与样品表面垂直的 FEL 光束轴线上。有关装置及样品组成的更多细节，见补充材料（SM）。

3. 结果

图1a）和1c）展示了经后处理校正（见补充材料第2节）后的衍射图样示例，分别由电荷耦合器件 0° 和电荷耦合器件 40° 采集，样品如图1b）所示。对于每一对同时采集的衍射图样，我们利用参考针孔（图1d）和1e））以及HERALDO线（图1f）和1g））提取两个全息投影。这些全息视图随后通过相干衍射成像重建

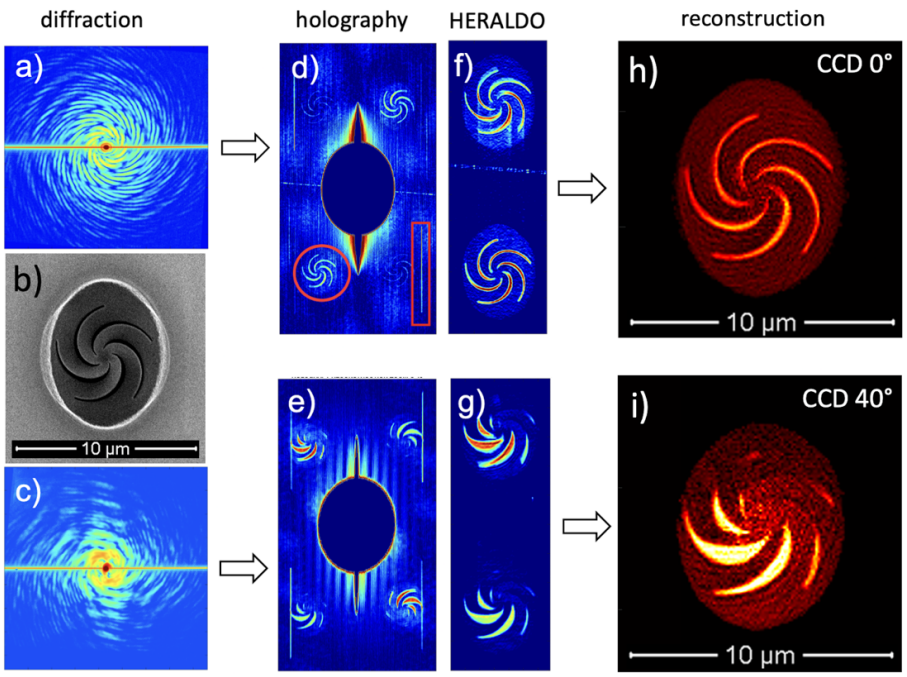


图1。面板a)和c)分别展示了在0°和40°观察角下采集的面板b)中样品的衍射图样；面板b)中的图像由扫描电子显微镜（SEM）拍摄。面板d)和e)展示了样品的全息重建（位于红色圆圈内），同时也展现了支撑区域的形状（红色圆圈加红色矩形）。面板f)和g)展示了HERALDO重建，该重建用作迭代相位恢复算法的初始猜测，并由此得到面板h)和i)中的CDI重建图像。

算法 [34,35]进一步优化。在这一过程中，我们将全息图作为相位恢复代码的输入，并据此定义支撑区域；在衍射相位的相干衍射成像重建过程中，支撑区域用于确定未知物体的空间位置。通过相干衍射成像重建获得的二维图像如图1h）和1i）所示，分别对应样品表面的正视图和倾斜视图。为了确定样品透射率的绝对值，在相干衍射成像重建过程中，每次迭代都会根据样品通光孔径的平均值对二维图像重新归一化（图1h）和1i）中的较亮区域），即光子不会被样品吸收的区域。正入射视图清晰地分辨出螺旋结构的五重几何结构，而倾斜视图则显示出几乎完全敞开的结构（入射光子未与样品相互作用，见图像左下部分）以及被遮挡的区域（图像右上部分）；由于观察角较大，沿观察方向，构成物体的薄片与下方基底重叠。在图2a）所示的三维重建算法中，使用了两个二维CDI视图所包含的信息。这些信息主要是EUV透射率（I/I_0）和相位（ϕ），如图2b）所示，所示样品见补充材料图S1b）。在重建过程中，沿两个视图所定义方向的一组体素，其数值 I/I_0 和 ϕ 必须与实验数据相符。根据这种匹配选取最终解，具体通过比较实验视图的 I/I_0 和 ϕ 与三维重建样品计算得出的对应数值来评估匹配程度。该评估采用光线追踪方法，该方法假定预先已知样品厚度和成分，最近已用于从二维X射线开始进行三维立体重建

荧光图像 [36–38]。有关二维和三维重建算法及其相互关系的更多信息，请参阅补充材料。

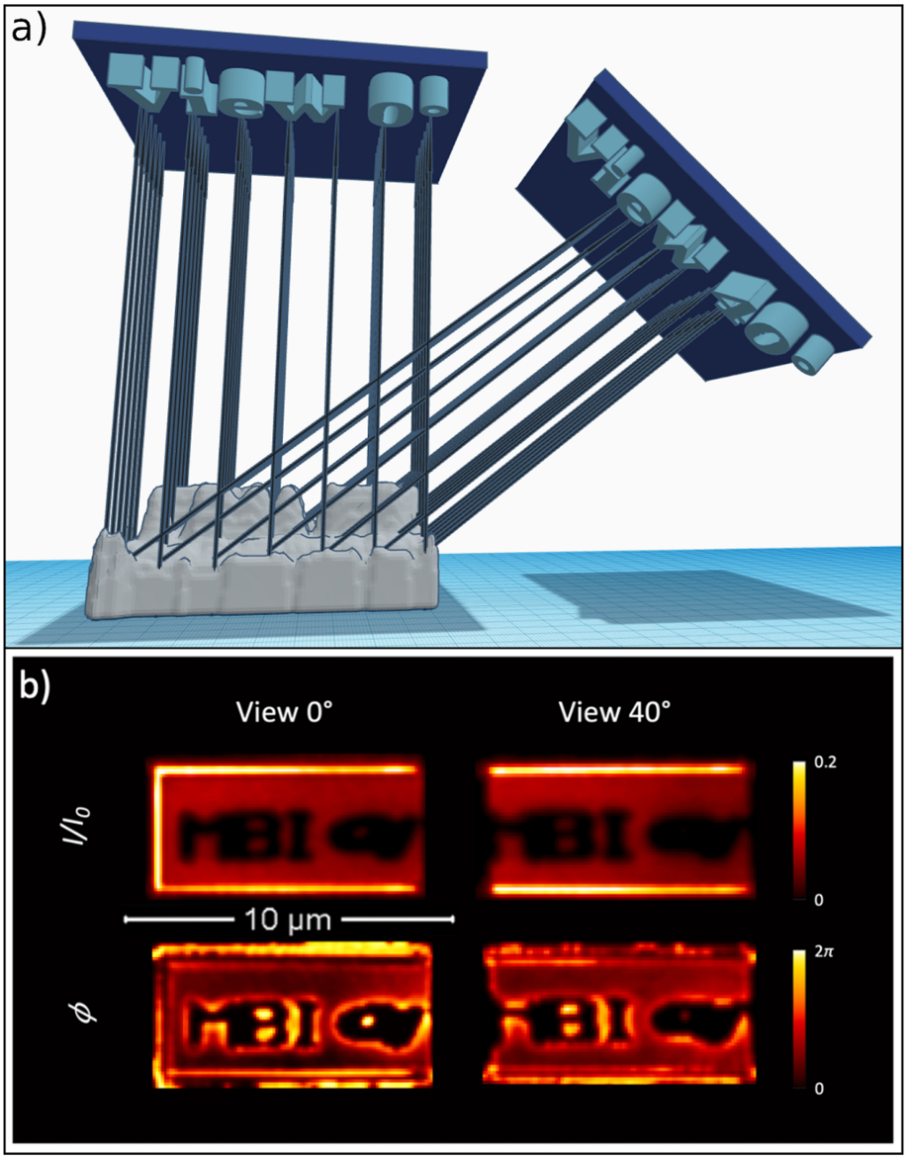


图2。面板a）为光线追踪重建算法的三维渲染。面板b）显示了根据三维重建样品计算得到的两个相干衍射成像视图的 I/I_0 和 ϕ 图。

图3展示了图1b)所示五重螺旋结构的三维重建示例。这些重建结果使用不同数据集获得；这些数据集通过对样品进行不同次数的自由电子激光脉冲曝光采集而成，曝光次数从单次曝光到750次不等。其他三维重建对象，包括图2b)所示的样品，见补充材料。在所有情况下，全息引导的CDI与我们的三维光线追踪投影算法相结合，都能够恢复出样品的逼真立体投影解。正如下面将定量讨论的那样，减少曝光次数并不会使图像质量显著下降

of 曝光，突出了立体投影重建程序在计算方面的稳健性。

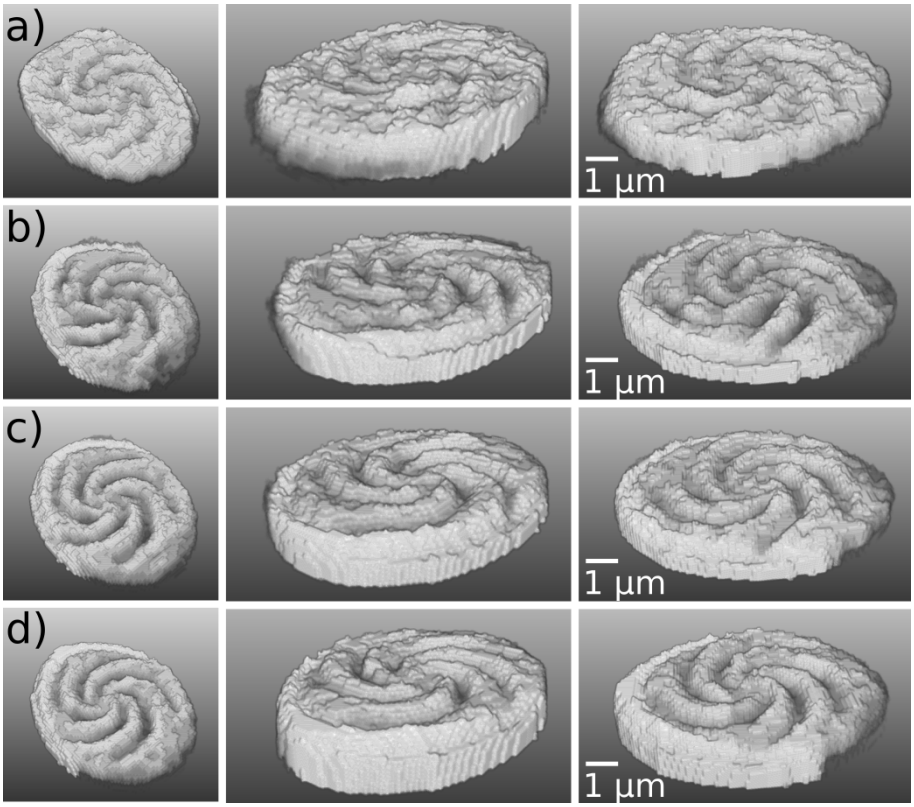


图3. 图1b)所示样品的三维重建结果，分别由单次曝光（面板a)）、对两次不同的单次曝光取平均（面板b)）、25次曝光（面板c)）以及对30个不同数据集进行平均获得，其中每个数据集均包含25次曝光（面板d)）。

4. 讨论

为了定量估计横向分辨率（L_{res}），我们在相干衍射成像代码的1060次迭代中计算了相位恢复传递函数（PRTF）。图4a)展示了图1b)所示五重螺旋结构的PRFT对比。在该分析中，我们考虑了图3所示不同曝光条件下的重建结果，即：(i)单次曝光；(ii)对两幅图像进行平均，其中每幅图像均对应一次单次采集；(iii)25次曝光采集；以及(iv)对30幅图像进行平均，其中每幅图像均对应25次曝光采集。对于探测器记录的交换动量 |q| 的整个范围，PRFT值均明显高于Chapman等人 [14] 建议的1/e阈值（关于 |q|范围的详细信息见补充材料）。我们将此归因于：与Chapman所研究的较低对称性物体相比，我们的圆对称物体产生的衍射图样对探测器平面的覆盖更加均匀，因此有更多像素能够准确恢复相位。因此，我们将分辨率定义的阈值设为PRFT $= 0.7$，这一数值大致对应于图4a)中所报告曲线的高|q| 渐近值；在如此高的|q| 范围内，该渐近值很可能受到信噪比的限制。不同样品显示出不同的渐近值，详见补充材料。对于由对应于不同

曝光次数。这表明，从多次曝光到单次曝光模式，实际分辨率并未显著降低。根据前述经验性 PRTF = 0.7 阈值，多次曝光平均图像的横向分辨率约为 90 ± 10 纳米，而单次曝光图像的横向分辨率约为 190 ± 20 纳米。

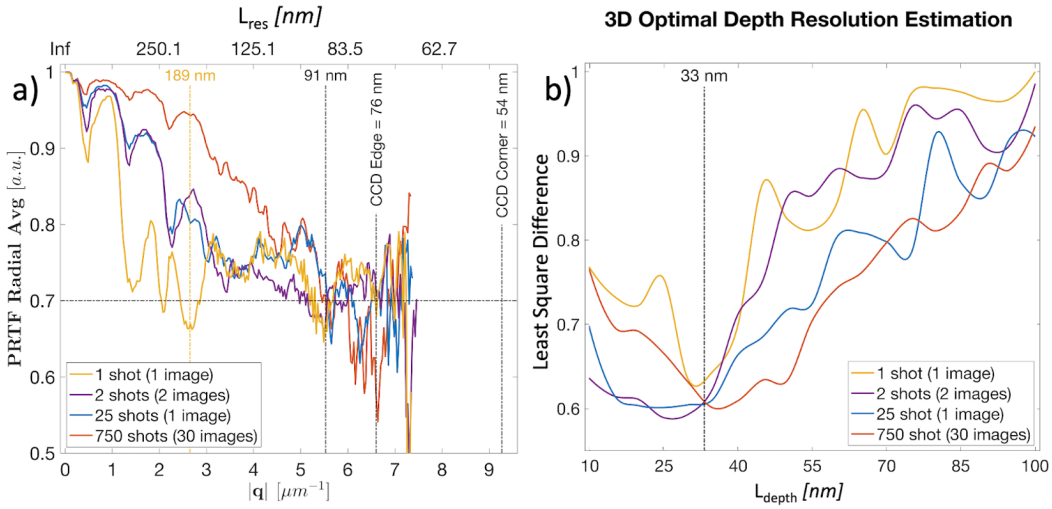


图4。面板a)显示图3所示重建结果的径向平均 PRTF。黄色、紫色、蓝色和红色曲线分别表示基于单次曝光、2次单次曝光的平均结果、单次25次曝光以及30组不同的25次曝光的平均结果所得的重建结果。面板b)显示面板a)中相同重建结果的最小二乘归一化总和随 Δz 的变化。竖线表示沿 z坐标（样品深度）方向估算的最佳分辨率。

通过改变 z 坐标（样品深度）方向上的采样步长（从 Δz = 10nm 到 100 nm），并生成一组相应的解，评估了图3所示三维重建样品沿 z 坐标方向的深度分辨率（L_{depth}）。随后，按照补充材料第 5 节所述，使用结构相似性指数（SSIM） [39], 对这些解进行评估。SSIM 分析筛选出与输入二维视图最相似的输出解，判断依据是模拟与重建的 I/I_0 和 ϕ图之间的最小二乘差异。我们将 z 轴上的分辨率定义为使 Δz 对应的最小二乘差异达到最小的取值；这意味着两个相干衍射成像重建视图（振幅和相位）均未向射线追踪立体成像代码提供额外信息。图4b）展示了 SSIM 分析为图3所示的四组三维重建结果选出的似然重建，其最小二乘差异随 Δz 的变化情况；这四组结果对应不同的自由电子激光脉冲数。SSIM 分析显示，L_{depth} = 33 ± 5 nm 的取值相近，且几乎不受脉冲数影响。这表明，基于材料属性（吸收长度、层厚度）先验知识的三维射线追踪算法，对曝光次数减少导致的信噪比自然下降不太敏感。这一观察结果与近期的数值模拟一致：即使输入厚度图中含有空间均匀的白噪声 [38]，三维重建过程仍能恢复正确的地形。

5. 结论

我们将一种非共线EUV分束-重组装置（结构紧凑、概念简单且易于复现）与一种同时基于相干衍射成像相位恢复和射线追踪算法的数据处理协议相结合，通过实验展示了该方法能够利用一次极紫外光闪光（波长为 20.8 nm），在中等能量通量下确定物体的三维结构，分辨率约为 100 nm。这使我们能够在远低于大多数材料典型损伤阈值的条件下进行实验。尽管本试验中使用的结构是专门制作的，但就结构细节尺寸（数十至数百纳米）和整体尺寸（数微米）而言，它们很能代表潜在的样品，例如磁性纳米结构或生物样品，这表明该方法可直接用于研究此类样品。该方法可有效用于时间分辨实验；在动态过程不可重复的情况下，高效率至关重要，甚至是必需的。在该装置中引入光脉冲（用于泵浦-探测实验）十分简单，因为这种做法已常规用于极紫外瞬态光栅实验 [30, 31]。相关实验已在最高约 100 eV 的光子能量下开展，结果表明该系统兼容光谱学方法：通过扫描极紫外波长，使其跨越材料的特定共振 [40], ，从而实现元素选择性三维成像。利用最先进的多层膜涂层 [41]，在技术上可以将光子能量扩展至更高范围，包括水窗（300–500 eV）乃至 3d过渡金属的 L边（600–1000 eV）。透射式X射线衍射光学元件 [42, 43] 的制造技术不断进步，使我们能够设想基于这类光学元件的分束-重合系统，从而使该方法甚至适用于硬X射线。X射线衍射光学元件或可同时操控多个自由电子激光脉冲副本，使其以两个以上不同角度入射样品 [24, 25, 44]。这种复用方法可大幅改善三维重建；当前版本的重建假设已先验知晓样品组成（组成材料和密度），且沿光子传播方向不存在间隙。在许多实际情况下，这些假设是合理的。不过，多视角成像可以克服对这些假设的依赖。例如，对于纯吸收样品，如果组成不确定，仅凭有限数量的视角很难判断光是穿过较短的高吸收材料路径，还是较长的低吸收材料路径。由于相干衍射成像重建能够同时得到相位和振幅，因此可利用复散射商即重建相位与重建振幅自然对数之比来确定局部材料含量 [45]。对样品组成的不确定性，也可能解释了本研究中实际三维样品与重建模型之间观察到的微小差异，因为重建时假设了特定的密度和组成。本文提出的射线追踪方法是重建三维样品的一种有前景的方法：在本实验涉及的最少（两个）观测角度下，它已展现出稳健性和灵活性，并且能够实现较大的视角角分离。该系统可直接用于时域研究，也可扩展以纳入极紫外光谱学；通过增加视角还可进一步改进，例如采用多个在时间和空间上重合的光束，或者在不要求单次曝光时旋转样品。

6. 文后部分

经费资助。 经费资助部分的内容将完全根据提交至 Prism 的详细信息生成。作者可以在稿件中添加占位文本以估算篇幅，但稿件中添加到此部分的任何文本都会在出版制作期间被替换，并显示官方资助方名称及提供的任何资助编号。如需提供有关资助方的更多详细信息，可将其添加到致谢中，即使这会与经费资助部分的信息重复。请参阅下方的致谢示例。对于预印本投稿，请在稿件中注明资助方名称和资助编号。

致谢。 作者感谢 FERMI 团队提供的宝贵支撑，并感谢 Hamed Merdji 及其团队就基于视差图的立体成像开展富有成果的讨论。

利益冲突披露。 作者声明不存在利益冲突。

数据可用性。 本文所述结果的相关数据目前尚未公开，但可在提出合理请求后向作者获取。

补充材　料文档。 支持性内容请参见补充材料 1。　　容。

参考文献

1. Z. Rymuza，“控制MEMS表面的摩擦学和机械性能。第1部分：关键评述”，微系统技术**5**，173–180（1999）。2. B.-F. Cui、X.-P. Han和W.-B. Hu，“无枝晶锌负极的微纳结构设计及其在水系锌基可充电电池中的应用”，Small Struct. **2**，2000128（2021）。3. D. A. Shapiro、Y.-S. Yu、T. Tyliszczak、J. Cabana、R. Celestre、W. Chao、K. Kaznatcheev、A. D. Kilcoyne、F. Maia、S. Marchesini、Y. S. Meng、T. Warwick、L. L. Yang和H. A. Padmore，“利用软X射线显微术以纳米分辨率绘制化学成分图”，《自然·光子学》**8**，765–769（2014）。4. H. Jiang、R. Xu、C.-C. Chen、W. Yang、J. Fan、X. Tao、C. Song、Y. Kohmura、T. Xiao、Y. Wang、Y. Fei、T. Ishikawa、W. L. Mao和J. Miao，“以纳米级分辨率对地幔橄榄石中的熔融铁进行三维相干X射线衍射成像”，《物理评论快报》**110**，205501（2013）。5. A. Tripathi、J. Mohanty、S. H. Dietze、O. G. Shpyrko、E. Shipton、E. E. Fullerton、S. S. Kim和I. McNulty，“二向色相干衍射成像”，《美国国家科学院院刊》**108**，13393–13398（2011）。6. M. Kördel、A. Dehlinger、C. Seim、U. Vogt、E. Fogelqvist、J. A. Sellberg、H. Stiel和H. M. Hertz，“实验室水窗X射线显微术”，Optica **7**，658–674（2020）。7. F. Büttner、C. Moutafis、A. Bisig、P. Wohlhüter、C. M. Günther、J. Mohanty、J. Geilhufe、M. Schneider、C. v. K. Schmising、S. Schaffert、B. Pfau、M. Hantschmann、M. Riemeier、M. Emmel、S. Finizio、G. Jakob、M. Weigand、J. Rhensius、j. H. Franken、R. Lavrijsen、H. J. M. Swagten、H. Stoll、S. Eisebitt和M. Kläui，“适用于动态成像的低钉扎、高各向异性材料纳米结构中的磁态”，《物理评论B》**87**，134422（2013）。8. C. von Korff Schmising、B. Pfau、M. Schneider、C. Günther、M. Giovannella、J. Perron、B. Vodungbo、L. Müller、F. Capotondi、E. Pedersoli、N. Mahne、J. Lüning和S. Eisebitt，“对空间局域光激发后的超快退磁动力学进行成像”，《物理评论快报》**112**，217203（2014）。9. I. K. Robinson、I. A. Vartanyants、G. Williams、M. Pfeifer和J. Pitney，“利用相干X射线衍射重建金纳米晶体的形状”，《物理评论快报》**87**，195505（2001）。10. Y. Gao、R. Harder、S. H. Southworth、J. R. Guest、X. Huang、Z. Yan、L. E. Ocola、Y. Yifat、N. Sule、P. J. Ho、M. Pelton、N. F. Scherer和L. Young，“为相干X射线衍射成像对微粒进行三维光学捕获和定向”，《美国国家科学院院刊》**116**，4018–4024（2019）。11. Y. Nishino、Y. Takahashi、N. Imamoto、T. Ishikawa和K. Maeshima，“利用相干X射线衍射对人类染色体进行三维可视化”，《物理评论快报》**102**，018101（2009）。12. D. Shapiro、P. Thibault、T. Beetz、V. Elser、M. Howells、C. Jacobsen、J. Kirz、E. Lima、H. Miao、A. M. Neiman和D. Sayre，“利用软X射线衍射显微术进行生物成像”，《美国国家科学院院刊》**102**，15343–15346（2005）。13. R. Neutze、R. Wouts、D. Van Der Spoel、E. Weckert和J. Hajdu，“飞秒X射线脉冲用于生物分子成像的潜力”，《自然》**406**，752–757（2000）。14. H. N. Chapman、A. Barty、M. J. Bogan、S. Boutet、M. Frank、S. P. Hau-Riege、S. Marchesini、B. W. Woods、S. Bajt、W. H. Benner、R. A. London、E. Plönjes、M. Kuhlmann、R. Treusch、S. Düsterer、T. Tschentscher、J. R. Schneider、E. Spiller、T. Möller、C. Bostedt、T. Hoener、D. A. Shapiro、K. O. Hodgson、D. Van Der Spoel、F. Burmeister、M. Bergh、C. Caleman、G. Huldt、M. M. Seibert、F. R. N. C. Maia、R. W. Lee、A. Szöke、N. Timneanu和J. Hajdu，“利用软X射线自由电子激光进行飞秒衍射成像”，Nat. Phys. **2**，839–843（2006）。15. S. Marchesini、H. Chapman、S. Hau-Riege、R. London、A. Szoke、H. He、M. Howells、H. Padmore、R. Rosen、J. Spence和U. Weierstall，“相干X射线衍射成像：应用与局限”，Opt. Express **11**，2344 2353 2003–（）。16. J. Bielecki、F. R. Maia和A. P. Mancuso，“高重复频率X射线自由电子激光光源时代单颗粒X射线成像的展望”，Struct. Dyn. **7**，040901（2020）。17. Z. Sun、J. Fan、H. Li和H. Jiang，“X射线激光器单颗粒成像的现状”，Appl. Sci. **8**，132（2018）。18. A. Barty、S. Boutet、M. J. Bogan、S. Hau-Riege、S. Marchesini、K. Sokolowski-Tinten、N. Stojanovic、R. Tobey、H. Ehrke、A. Cavalleri、S. Düsterer、M. Frank、S. Bajt、B. W. Woods、M. M. Seibert、J. Hajdu、R. Treusch和H. N. Chapman，“纳米尺度动力学的超快单次曝光衍射成像”，《自然·光子学》**2**，415–419（2008）。19. M. M. Seibert、T. Ekeberg、F. R. Maia、M. Svenda、J. Andreasson、O. Jönsson、D. Odić、B. Iwan、A. Rocker、D. Westphal、M. Hantke、D. P. DePonte、A. Barty、J. Schulz、L. Gumprecht、N. Coppola、A. Aquila、M. Liang、T. A. White、A. Martin、C. Caleman、S. Stern、C. Abergel、V. Seltzer、J. M. Claverie、C. Bostedt、J. D. Bozek、D. Boutet、A. A. Miahnahri、M. Messerschmidt、J. Krzywinski、G. Williams、K. O. Hodgson、M. J. Bogan、C. Y.

Hampton、R. G. Sierra、D. Starodub、I. Andersson、S. Bajt、M. Barthelmess、J. C. H. Spence、P. Fro mme、U. Weierstall、R. Kirian、M. Hunter、R. B. Doak、R. Marchesini、S. P. Hau-Riege、M. Frank、R. L. Shoeman、L. Lomb、S. W. Epp、R. Hartmann、D. Rolles、A. Rudenko、C. Schmidt、L. Foucar、N. Kimmel、P. Holl、B. Rudek、B. Erk、A. Hömke、A. Reich、D. Pietschner、G. Weidenspointner、L. Strüder、G. Hauser、H. Gorke、J. Ullrich、I. Schlichting、S. Herrmann、G. Schaller、F. Schopper、H. Soltau、K. U. Kühnel、R. Andritschke、C. D. Schröter、F. Krasniqi、M. Bott、S. Schorb、D. Rupp、M. Adolph、T. Gorkhover、H. Hirsemann、G. Potdevin、H. Graafsma、B. Nilsson、H. N. Chapman和J. Hajdu，“用X射线激光器拦截并成像单个拟病毒颗粒”，《自然》**470**，78–81（2011）。20. N. Loh、M. J. Bogan、V. Elser、A. Barty、S. Boutet、S. Bajt、J. Hajdu、T. Ekeberg、F. R. Maia、J. Schulz、M. M. Seibert、B. Iwan、N. Timneanu、S. Marchesini、I. Schlichting、R. L. Shoeman、L. Lomb、M. Frank、M. Liang和H. N. Chapman，“隐式断层成像：从随机取向的单次衍射图样中重建三维傅里叶强度”，《物理评论快报》**104**，225501（2010）。21. T. Ekeberg、M. Svenda、C. Abergel、F. R. Maia、V. Seltzer、J.-M. Claverie、M. Hantke、O. Jönsson、C. Nettelblad、G. Van Der Schot、M. Liang、D. P. DePonte、A. Barty、M. M. Seibert、B. Iwan、I. Andersson、N. D. Loh、A. V. Martin、H. N. Chapman、C. Bostedt、J. D. Bozek、k. R. Ferguson、S. W. Krzywinski、J andEpp、D. Rolles、A. Rudenko、R. K. Hartmann、N. Kimmel和J. Hajdu，“利用X射线自由电子激光对巨大拟病毒颗粒进行三维重建”，《物理评论快报》**114**，098102（2015）。22. P. R. Kommera、V. B. Ramakrishnaiah和C. M. Sweeney，“在GPU上加速m-tip并部署至Summit和NERSC-9（基于模拟数据），WBS 2.2.4.05 ExaFEL，里程碑ADSE13-199”，技术报告，洛斯阿拉莫斯国家实验室（LANL），美国新墨西哥州洛斯阿拉莫斯（2021）。23. J. Geilhufe、C. Tieg、B. Pfau、C. Günther、E. Guehrs、S. Schaffert和S. Eisebitt，“从单视角X射线傅里叶变换全息图中提取三维结构的深度信息”，Opt. Express **22**，24959–24969（2014）。24. C. Chang、X. Pan、H. Tao、C. Liu、S. P. Veetil和J. Zhu，“利用大倾角照明进行三维单次扫描叠层成像”，Opt. Express **29**，30878–30891（2021）。25. D. Goldberger、J. Barolak、C. G. Durfee和D. E. Adams，“三维单次扫描叠层成像”，Opt. Express **28**，18887–18898（2020）。26. K. Schmidt、J. Spence、U. Weierstall、R. Kirian、X. Wang、D. Starodub、H. Chapman、M. Howells和R. Doak，“断层飞秒X射线衍射成像”，《物理评论快报》**101**，115507（2008）。27. J. Duarte、R. Cassin、J. Huijts、B. Iwan、F. Fortuna、L. Delbecq、H. Chapman、M. Fajardo、M. Kovacev、W. Boutu和H. Merdji，“计算立体无透镜X射线成像”，《自然·光子学》**13**，449–453（2019）。28. F. Capotondi、E. Pedersoli、N. Mahne、R. Menk、G. Passos、L. Raimondi、C. Svetina、G. Sandrin、M. Zangrando、M. Kiskinova、S. Bajt、M. Barthelmess、H. Fleckenstein、H. N. Chapman、J. Schulz、J. Bach、R. Frömter、S. Schleitzer、L. Müller、C. Gutt和G. Grübel，“特邀论文：利用可变偏振的种子化自由电子激光脉冲进行相干成像：初步结果与研究机遇”，Rev. scientific instruments **84**，051301（2013）。29. E. Allaria、R. Appio、L. Badano、W. Barletta、S. Bassanese、S. Biedron、A. Borga、E. Busetto、D. Castronovo、P. Cinquegrana、S. Cleva、D. Cocco、M. Cornacchia、P. Craievich、I. Cudin、G. D’Auria、M. Dal Forno、m. B. Danailov、R. De Monte、G. De Ninno、P. Delgiusto、A. Demidovich、S. Di Mitri、B. Diviacco、A. Fabris、R. Fabris、W. Fawley、M. Ferianis、E. Ferrari、S. Ferry、L. Froehlich、P. Furlan、G. Gaio、F. Gelmetti、L. Giannessi、M. Giannini、R. Gobessi、R. Ivanov、E. Karantzoulis、M. Lonza、A. Lutman、B. Mahieu、M. Milloch、S. V. Milton、M. Musardo、I. Nikolov、S. Noe、G. Parmigiani、F ang Penco、M. Petronio、L. Pivetta、M. Predonzani、F. Rossi、L. Rumiz、A. Salom、C. Scafuri、C. Serpico、P. Sigalotti、S. Spampinati、C. Spezzani、M. Svandrlik、C. Svetina、S. Tazzari、M. Trovo、R. Umer、A. Vascotto、M. Veronese、R. Visintini、M. Zaccaria、D. Zangrando和M. Zangrando，“来自极紫外Fermi种子化自由电子激光器的高度相干且稳定的脉冲”，《自然·光子学》**6**，699–704（2012）。30. F. Bencivenga、R. Cucini、F. Capotondi、A. Battistoni、R. Mincigrucci、E. Giangrisostomi、A. Gessini、M. Manfredda、I. Nikolov、E. Pedersoli、E. Principi、C. Svetina、P. Parisse、F. Casolari、M. B. Danailov、M. Kiskinova和C. Masciovecchio，“利用极紫外瞬态光栅进行四波混频实验”，《自然》**520**，205–208（2015）。31. R. Mincigrucci、L. Foglia、D. Naumenko、E. Pedersoli、A. Simoncig、R. Cucini、A. Gessini、M. Kiskinova、G. Kurdi、N. Mahne、M. Manfredda、I. P. Nikolov、E. Principi、L. Raimondi、M. Zangrando、C. Masciovecchio、F. Capotondi和F. Bencivenga，“基于自由电子激光的四波混频实验仪器技术的进展”，Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A: Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip. **907**，132–148（2018）。32. M. Guizar-Sicairos和J. R. Fienup，“利用HERALDO从傅里叶强度图样直接重建图像”，Opt. letters **33**，2668–2670（2008）。33. M. Guizar-Sicairos和J. R. Fienup，“利用自相关线性微分运算和扩展参考波进行全息术”，Opt. express **15**，17592–17612（2007）。34. J. R. Fienup，“相位恢复算法：比较”，Appl. optics **21**，2758–2769（1982）。35. F. Capotondi、E. Pedersoli、M. Kiskinova、A. Martin、M. Barthelmess和H. Chap man，“一种结合相干衍射成像与差分角点全息术的无透镜X射线显微术方案”，Opt. express **20**，25152 25160 2012–（）。36. F. Billè、G. Kourousias、E. Luchinat、M. Kiskinova和A. Gianoncelli，“拓扑复杂样品元素分布图中的X射线荧光显微术伪影：分析观测、模拟及图校正方法”，《光谱化学学报B辑》：原子光谱**122**，23–30（2016）。37. G. Kourousias、F. Billè、G. Cautero、J. Bufon、A. Rachevski、S. Schillani、D. Cirrincione、M. Altissimo、R. Menk、

G. Zampa、N. Zampa、I. Rashevskaya、R. Borghes、M. Gandola、A. Picciotto、G. Borghi、F. Ficorella、N. Zorzi、P. Bellutti、G. Bertuccio、A. Vacchi 和 A. Gianoncelli，“X射线荧光形貌学信息：新型硅漂移探测器系统的模拟与数据”，《核仪器与方法物理研究A辑：加速器、光谱仪、探测器及相关设备》**936**，80–81（2019）。38. M. Ippoliti、F. Billè、A. G. Karydas、A. Gianoncelli 和 G. Kourousias，“基于多探测器逆向X射线追迹方法重建软X射线荧光显微术中的三维地形景观”，《科学报告》**12**，20145（2022）。39. Z. Wang、A. C. Bovik、H. R. Sheikh 和 E. P. Simoncelli，“图像质量评价：从误差可见性到结构相似性”，《IEEE图像处理汇刊》**13**，600–612（2004）。40. R. Bohinc、G. Pamfilidis、J. Rehault、P. Radi、C. Milne、J. Szlachetko、F. Bencivenga、F. Capotondi、R. Cucini、L. Foglia、C. CMasciovecchio、R. Mincigrucci、E. Pedersoli、A. Simoncig、N. Mahne、A. Cannizzo、H. M. Frey、A. Ollmann、T. Feurer、A. A. Maznev、K. Nelson 和 G. Knopp，“硅$L_{2,3}$边的非线性XUV-光学瞬态光栅光谱学”，《应用物理快报》**114**，181101（2019）。41. S. Yulin、M. Trost、S. Schwinde 和 S. Schröder，“用于极短波长的阻挡层涂层：面向半导体产业及其他领域的EUV光刻”，《真空研究与实践》**33**，24–29（2021）。42. N. Kujala、M. Makita、J. Liu、A. Zozulya、M. Sprung、C. David 和 J. Grünert，“透射式金刚石光栅作为欧洲X射线自由电子激光器硬X射线单次曝光光谱仪分束器的特性研究”，《同步辐射杂志》**26**，708–713（2019）。43. B. Rösner、F. Koch、F. Döring、J. Bosgra、V. A. Guzenko、E. Kirk、M. Meyer、J. L. Ornelas、R. H. Fink、S. Stanescu、S. Swaraj、R. Belkhou、B. Watts、J. Raabe 和 C. David，“利用原子层沉积制造亚10纳米X射线透镜”，《微电子工程》**191**，91–96（2018）。44. K. Kharitonov、M. Mehrjoo、M. Ruiz-Lopez、B. Keitel、S. Kreis、S.-g. Gang、R. Pan、A. Marras、J. Correa、C. B. Wunderer 和 E. Plönjes，“软X射线自由电子激光上的单次扫描叠层成像”，《科学报告》**12**，14430（2022）。45. W. Eschen、L. Loetgering、V. Schuster、R. Klas、A. Kirsche、L. Berthold、M. Steinert、T. Pertsch、H. Gross、M. Krause、J. Limpert 和 j. Rothhard，“材料特异性高分辨率台式极紫外显微镜”，《光：科学与应用》**11**，117（2022）。

利用自由电子激光产生的极紫外辐射进行三维相干衍射快照成像

补充材料

DANNY FAINOZZI,[1,5,*] MATTEO IPPOLITI,[1,5] FULVIO BILLE',[1] DARIO DE ANGELIS,[1] LAURA FOGLIA,[1] CLAUDIO MASCIOVECCHIO,[1] RICCARDO MINCIGRUCCI,[1] MATTEO PANCALDI,[1] EMANUELE PEDERSOLI,[1] CHRISTIAN M. GÜNTHER,[3] BASTIAN PFAU,[2] MICHAEL SCHNEIDER,[2] CLEMENSVON KORFF SCHMISING,[2] STEFAN EISEBITT,[2,4] GEORGE KOUROUSIAS,[1] FILIPPO BENCIVENGA,[1] 以及 FLAVIO CAPOTONDI[1]

[1]*Elettra-Sincrotrone Trieste，SS 14 km 163,5，AREA Science Park，34149*，的里雅斯特，意大利[2]*Max-Born*非线性光学与超快光谱学研究所，*Max-Born-Straße2A，12489* 柏林，德国[3]柏林工业大学，电子显微镜中心（*ZELMI*），*Straße des 17. Juni 135，10623* 柏林[4]柏林工业大学，光学与原子物理研究所，*Straße des 17. Juni 135，10623* 柏林[5]作者对本研究的贡献相同。
**danny.fainozzi@elettra.eu*

1. 实验装置

补充图 S1a）示意了实验装置：通过波前分束产生两束非共线的自由电子激光脉冲，采用 mini-TIMER 分束、延迟与重合单元，还可精确控制样品处两束自由电子激光脉冲之间的交叉角（ϕ）和相对时间延迟（Δt） [1,2]。在本实验中，$\phi = 40°$ 和$\Delta t = 0$，通过自由电子激光-光学泵浦探测测量独立验证了时间重合（精度优于自由电子激光脉冲的持续时间），所用程序与参考文献 [1,2] 中报告的相同。样品位置处的聚焦由 Kirkpatrik-Baetz 自适应光学系统 [3] 实现；该系统安装在 mini-TIMER 系统上游，并经过调节，使每束独立自由电子激光束在样品处的光斑尺寸约为 $60 \times 120\ \mu m^2$（水平 × 垂直）半峰全宽（FWHM）。两台电荷耦合器件探测器（PI-MTE；像素尺寸为 $13.5 \times 13.5\ \mu m^2$，面积为 2048×2048 像素）沿两束自由电子激光脉冲的轴线放置，与样品的距离约为 100 mm（见图 S1a））。每台电荷耦合器件探测器前方均放置了一个独立的电动挡光器，用于阻挡直射的自由电子激光束；鉴于样品透射率较低，这一操作并非总是必要。自由电子激光输出波长调至 20.8 nm，光源处的典型脉冲持续时间和强度分别约为 50 fs（FWHM）和 $100\ \mu$J，偏振为圆偏振。实验过程中，沿光子传输路径使用固态滤光片，将样品位置处的自由电子激光强度降至约 $1.1\ \mu$J。由于 mini-TIMER 系统中的反射次数不同（见图 S1a），两束自由电子激光脉冲的强度不平衡，即，用于获取 $40°$ 视图的脉冲强度约为 $0.7\ \mu$J，而以正入射角穿过样品的脉冲强度为 $0.4\ \mu$J。相应的每发平均总能量通量约为 15 mJ/cm2，低于样品损伤阈值 [4]。

图 S1b) 显示了实验中使用的一种三维结构的扫描电子显微镜（SEM）图像

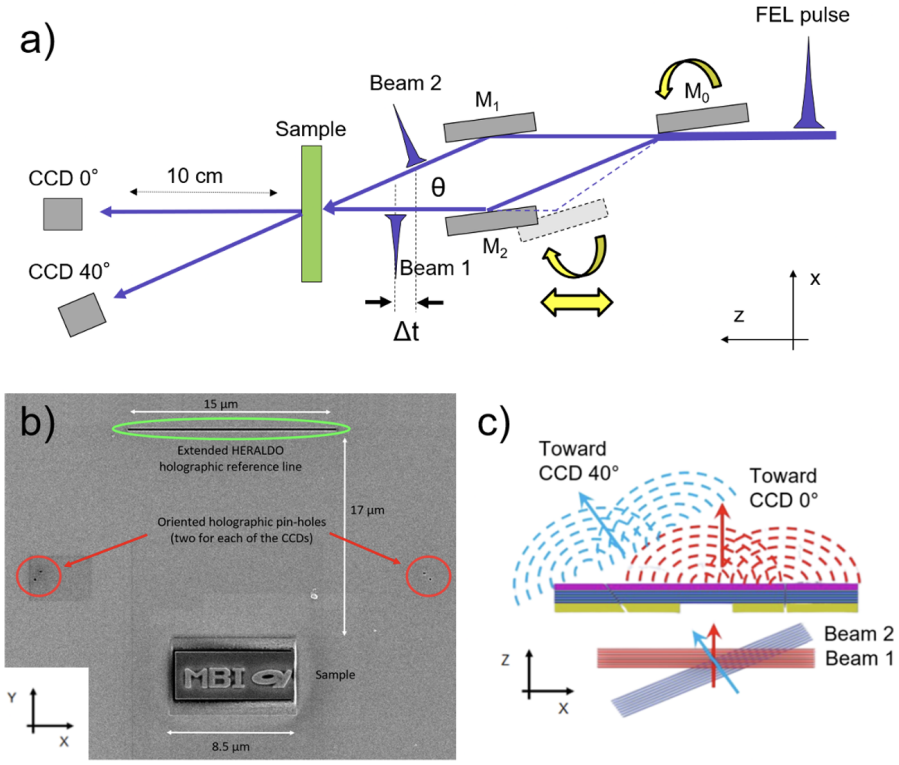


图1。面板a)示意了mini-TIMER装置：M0、M1和M2是用于在给定 θ下分束并重新合并FEL光束（蓝线）的平面镜；粗黄色箭头和虚线元素示意了M0和M2的运动，用于在固定 θ的情况下调节 Δt 。右下角显示了参考系。面板b)是所使用样品之一的照片，绿色椭圆和红色圆形分别表示用于HERALDO全息术的狭缝和用于傅里叶变换全息术的针孔。在全息针孔参考结构的设计中，钻制了一组两个针孔：一个以正入射角钻制，另一个以40。钻制，从而分别与FEL光束1（右侧针孔）和FEL光束2（左侧针孔）平行，如面板c)所示。

。样品由两层多层膜组成，沉积在一片厚度为 30 纳米的氮化硅膜的两侧，随后通过聚焦 Ga+ 离子束（FIB）铣削进行图案化。其中一层的组成是 $[Cr\ (5\ nm)/\ Au\ (50\ nm)]_5$ ，并包含下文所述成像过程所需的光学掩模。第二层是由 $[Al\ (30\ nm)/Ta\ (2\ nm)/\ Co^{0.90}Tb^{0.10}\ (20\ nm)/\ Ta\ (2\ nm)]$ 构成的叠层，以此为基础制备三维物体。为形成凸起的三维结构，首先使用 5 kV 的 FIB加速电压，去除预定视场内的 Cr/Au 层。接着，在 30 kV 下切穿剩余样品叠层，刻出厚度约为 100 纳米的螺旋（参见例如 图 1 b) 和 S3 b)）或斜坡（参见图 S1 b)）图案轮廓。随后，可利用局部或整体接受 30 keV 离子照射所诱发的应变，以可控方式抬升这些结构。抬升幅度由离子剂量控制，图中所示结构的典型值约为 20 $pC/\mu m^2$ [5,6]。此外，图 S1b) 中的“MBI”文字标签和“Elettra”标志等形貌结构，是通过从金属有机前驱体出发进行电子束辅助Pt沉积制备的。这种富碳Pt层的厚度约为

100 纳米。沿两束入射 FEL 光束的方向，在距三维物体约 $15\,\mu$ 米处铣削了两对直径为 90 ± 10 纳米的全息针孔，如图 S1b) 所示。这样，每个针孔产生的参考波只与特定光束方向上的物体波发生干涉。这使两个探测器能够分别采集对应两个不同侧视图的独立全息图。除了用于全息重建的点状参考结构外，还在距三维结构顶部边缘 $17\,\mu$ 米处铣削了一条长 $15\,\mu$ 米、宽 100 ± 10 纳米的延伸线形参考结构，用于进行差分 HERALDO 全息术（见图 S1b) [9,10]）。在逆傅里叶变换过程中，全息参考结构相对于中央三维物体的位置经过选择，以避免全息重建结果与样品自相关发生重叠。在实验腔室内，使用五轴测角仪调整样品表面的朝向，使其与图 S1a) 和 S1c) 中标记为“Beam 1”的 FEL 光束垂直。相应的电荷耦合器件探测器（标记为“CCD $0°$”）采集样品的“正视图”，而第二个 CCD（标记为“CCD $40°$”）则采集倾斜 40 度视角下的衍射图样。

2. 相干衍射成像重建

对于同时采集的每一对衍射图样，我们都减去了相应的背景图像；这些背景图像是在 FEL 光束关闭、积分时间相同的情况下采集的。图像包含探测器暗计数以及实验腔室内残余背景光的信息。衍射图样的傅里叶变换可提供参考针孔与样品之间的互相关（全息方法）；而 HERALDO 方法本质上是在进行傅里叶变换之前，沿扩展参考波的方向引入数值微分滤波器 [7,8]。对原始数据进行全息反演，能够成功获得样品的低分辨率图像；图像足够清晰，可以展示如何从不同侧面获得同一对象的独立视图。这也表明两种衍射图样之间的交叉污染极小。为提高图像质量，我们采用两种同构变换，分别校正人为引入的强度调制（见图 S2 c）） 以及 HERALDO 参考物与用于恢复空间图像的微分滤波算子之间可能存在的角度失准（见图 S2 e））。第一种变换校正由厄瓦尔德球定义的衍射图样立体投影至 CCD芯片平面的失真 [9,10]。ϕ 越大，这种校正幅度也越大。对于 $40°$ 视图，这种校正会使图像在两个方向上大幅拉伸，导致最高 $|q|$处的信号损失。为部分避免这一问题，我们在进行校正前，对衍射图像进行数值零填充，相当于增加 200 个像素。第二种衍射图样变换是绕衍射峰最大值进行旋转，用以校正上述位置失准；若未能恰当校正，这种失准可能导致重建图像出现像差。事实上，我们通过实验观察到（图 S2 c）），样品相对于 x 轴发生了 $\sim 5°$ 的方位旋转（参考系见图 S1）。图 S2 展示了这些校正的有益效果：从原始衍射图样（图 S2a）） 出发，图中给出了对 $40°$ 视图进行厄瓦尔德球投影校正和样品旋转校正的结果（图 S2b））。在图 S2d)–S2f) 中可以清楚看到，空洞内叶瓣的强度均匀性有所提高，HERALDO 重建中的条纹也有所减少；大多数原始数据伪影（见图 S2c) 和 S2d)）都得到了有效校正。图 S3 示意了相干衍射成像相位恢复循环过程。按照上述方法重建的全息图用作对象的初始猜测，并用于定义二值支撑掩模（图 S3a) 和 S3b)）。示意于图 S3c) 的相位恢复算法首先对第 n 次迭代的对象进行傅里叶变换，然后将傅里叶变换的振幅替换为测得的

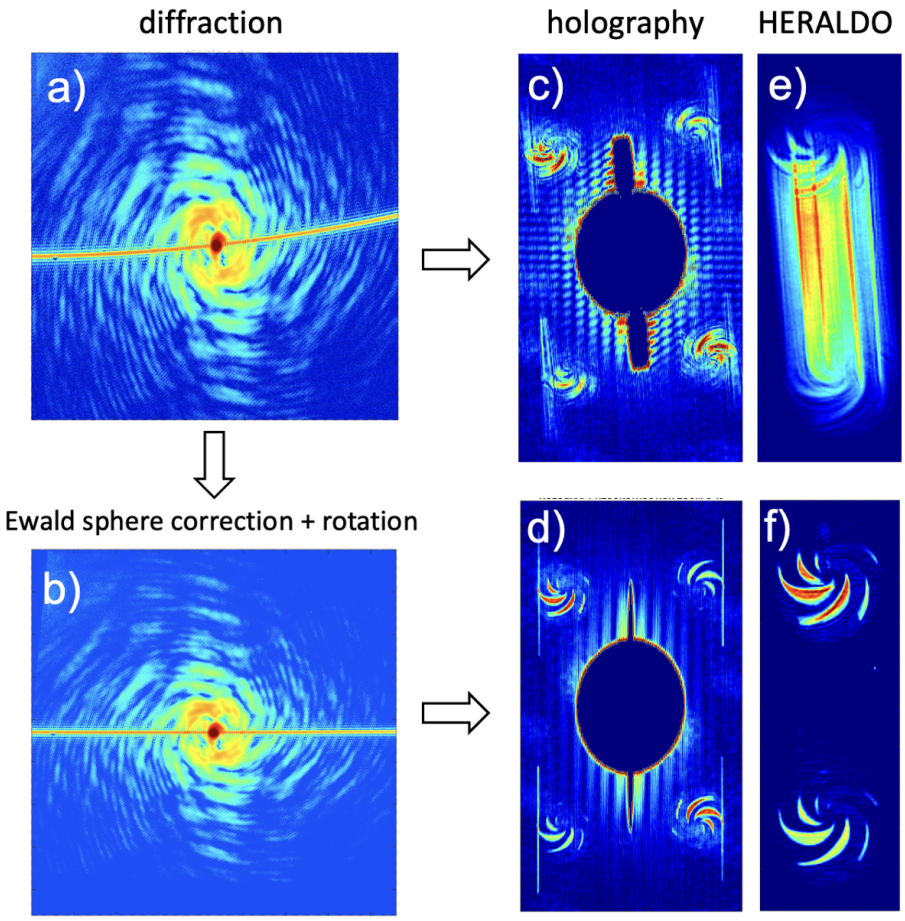


图2。面板a)显示了从MT中图2b)所示的五重螺旋结构采集的40。倾斜视图衍射图样（见图S1a和S1c）。为了去除不需要的像差，在对样品进行相位恢复重建之前，必须通过厄瓦尔德球进行校正。对于我们的数据，还对样品的倾斜进行了进一步校正，如面板b))所示。面板c)、d)、e)和f)展示了经过校正和未经校正的全息反演与HERALDO反演的比较。

衍射图样的平方根。完成这次迭代后，应用逆傅里叶变换返回实空间。最后，根据所采用的算法，使用二值支撑掩模更新（$n+1$）th 对象。在相干衍射成像相位恢复算法中，我们结合使用误差缩减（ER）算法、混合输入输出（HIO）算法和松弛平均交替反射算法（RAAR） [11, 12]。首先使用 ER 算法进行 10 次迭代，随后将 ER、HIO 和 RAAR 各进行 10 次迭代的序列重复 30 次。最后仅使用 ER 算法进行 150 次迭代，总计 1060 次迭代。该迭代次数设定为重建算法达到收敛所需的最低次数。在 ER、HIO 和 RAAR 的迭代序列中，使用重建对象上的高斯滤波器更新支撑区域 5 次。我们的算法使用 MATLAB（版本 R2021a (9.10.0)）编写，每次迭代最多耗时 2 秒，每个视图的所有迭代耗时均不足 35 分钟。

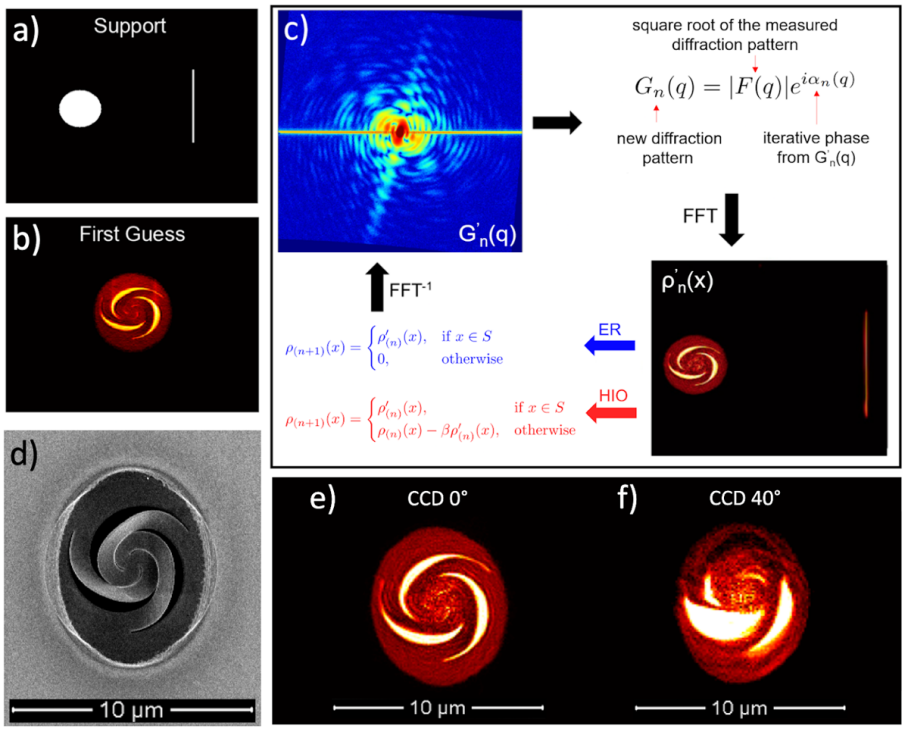


图3。c) 面板展示了重建算法示意图；利用支撑区域 S 和初始猜测，通过迭代重建样品的衍射图样 $G(q)$。在第 N 次迭代中，将衍射图样的振幅设为测量光谱，同时改变相位。根据所选算法的类型，对实空间重建函数 $\rho(x)$施加不同约束。d) 和 e) 面板分别展示了两个电荷耦合器件在 0。和 40。方向上重建得到的样品图像。

3. 三维重建：透射与相位评估

原则上，可利用比尔-朗伯吸收定律 [13]计算从相干衍射成像重建中获得的相对透射图像 I/I_0：

$$I = I_0 e^{-\mu(\lambda)\rho l} \tag{1}$$

其中， I_0 是入射光束的强度，I 是经过样品后的强度， μ 是在给定波长 λ下的衰减系数，ρ 是样品密度， l 是光子在样品中传播的路径长度。在公式 1 中， μ 和 ρ 均取决于沿入射辐射方向的纵向坐标，并考虑了极紫外辐射穿过的不同材料。公式 1 是模拟 I/I_0 图像的核心；在三维样品评估过程中，通过将模拟透射与实验获得的实际 I/I_0 图进行比较，利用这些图像来确定重建对象的保真度。此外，由于我们详细了解第 1 节所述的样品组成，因此可以唯一确定光子路径 l。由此，可以计算与两个视角对应的初始厚度图，以启动样品重建过程。对于部分受研究的样品，其厚度足以使透射实际上受到抑制。发生这种情况时，算法会在公式 2 中将 l 设为使 I/I_0 = 0.001 的值。选择该值是为了确保计算出的最大厚度不会超过样品的预期厚度。

相位图像 ϕ 则从三维样品结构出发，使用公式 2 [14]进行模拟：

$$\phi = \lambda r_e \int_{l_p} dl \rho_e(l) \tag{2}$$

其中 $r_e = 2.818 \times 10^{-15}\,\mathrm{m}$ 是电子经典半径，ρ_e 是电子密度（对于给定样品 $\rho_e = 1.3 \times 10^{30}\,\mathrm{m}^{-3}$）。在评估重建的三维样品时，模拟相位响应的能力是除视角相关的 I/I_0 透射图之外的另一项约束，从而确定最可能的解。

4. 三维重建：选择最优解

三维重建过程的第一步是使用方程 2，从两个不同视图计算厚度图。随后，应用一种近期开发的光线追踪方法 [15]，将这些图结合起来，生成多个同时考虑透射和相位信息的三维测试模型。每个生成的三维模型都必须满足沿视图方向的连续性要求，也就是说，样品内部沿成像方向不能存在空洞或间隙。针对两个视图，评估生成模型的厚度与样品厚度图之间的绝对差值；如果平均绝对差值超过预设阈值（本例中为 20%），则拒绝该解。完成这一基于定性考量的筛选后，为了确定其他生成的三维模型的准确性和保真度，我们采用正向模拟算法，利用方程 1 和 2 重现两个独立视图中透射图 (I/I_0) 和相位图 (ϕ) 的 CDI 重建图像。随后对这四幅合成图像进行评估，为每个可能的三维样品解评分，并确定哪一个最能近似真实的底层结构。我们使用结构相似性指数 (SSIM) [16], 完成这一评估；该感知度量通过为目标图像和参考图像之间的图像质量下降程度评级，量化图像质量。对 I/I_0 和 ϕ 图像完成所有 SSIM 计算后，将其得分相加，并选择总分最高的测试样品作为最有可能的三维重建对象解。所述算法由我们使用 Python（Python软件基金会）自主开发。三维重建算法在实现上的一项局限是其计算需求。尽管代码经过设计，可并行生成和评估所有测试模型样品，且核心函数已通过 Numba 即时编译器 [17], 编译，但算法仍可能需要大量计算，具体取决于输入视图的大小。例如，为了找到正文图 3 中三维物体的解，在配备 8 线程 CPU（i7-6700，3.40 GHz）和 48 GB RAM 的工作站上，每个样品的平均计算时间为 137 分钟。为了证明三维重建算法不受样品空间频率内容影响的稳健性，除了正文中报告的结构外，图 S4a) 和 S4b) 分别展示了图 S1b) 中样品的二维和三维重建结果。CDI 视图是通过对 30 个不同数据集取平均获得的，这些数据集是在物体接受多个自由电子激光脉冲照射时采集的，总曝光次数为 750 次。图 S4c) 和 S4d) 展示了其他三维重建对象，其中给出了 MT 的五重螺旋结构以及图 S3d) 和 S4d) 中可见的三重螺旋结构的结果。在这三个具有代表性的案例中，全息引导的 CDI 与三维光线追踪投影算法相结合，均能够重建出受照射物体的真实结构。如第 5 节所示，减少图像数量或每幅图像的自由电子激光脉冲数量并不会降低图像质量，这表明所开发的立体投影重建程序具有计算稳健性。例如，图 S5a) 和 S5b) 展示了图 S4a) 和 S4b) 对应的结果，但每幅图像仅对应 25 个自由电子激光脉冲。图 S4 和 S5 三维重建图中的比例尺是根据

使用 $L_{\mathrm{depth}} = 33 \pm 5$ 纳米构建的，有助于理解其细节水平与理论估算的约 90 纳米 CDI 深度分辨率相比如何。

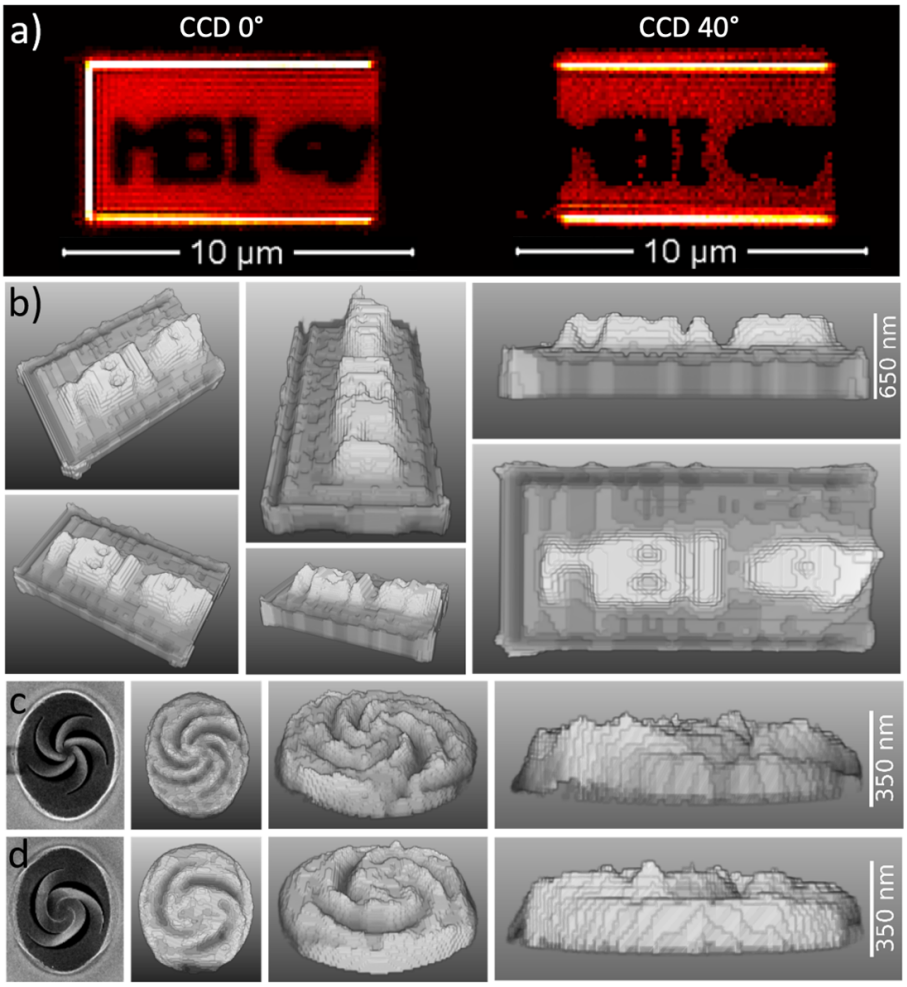


图4。a）通过对每个数据集均由25个自由电子激光脉冲照射样品后记录的30个数据集进行平均，获得的相干衍射成像二维重建。b）使用光线追踪代码获得的相应三维重建。c）和d）左侧SEM图像中所示两个螺旋样品的重建结果。

5. 相位恢复传递函数

根据第 1 节所述的实验散射几何，交换动量的最大值 $|q| = (2/\lambda)\sin(\alpha/2)$，其中 λ 为自由电子激光波长， α 为电荷耦合器件收集角，在探测器边缘的中点处为 $|q|_{\mathrm{max}} = 6$。6 μm^{-1} 对应的理论衍射极限横向分辨率为 $L_{\mathrm{res}} = \lambda/(2 \cdot \sin(\alpha_{\mathrm{max}})) = 76$ 纳米。若考虑传感器芯片对角方向上的电荷耦合器件探测器最大收集角，则可进一步提高这一理论横向分辨率；在这种情况下，增大的接收角为 $|q|_{\mathrm{max}} = 9$。3 μm^{-1} 对应的衍射极限空间分辨率为 $L_{\mathrm{res}} = 54$ 纳米。由于探测器噪声、束线的杂散辐射以及光束并非完全横向相干，相干衍射成像重建的实际分辨率可能较差

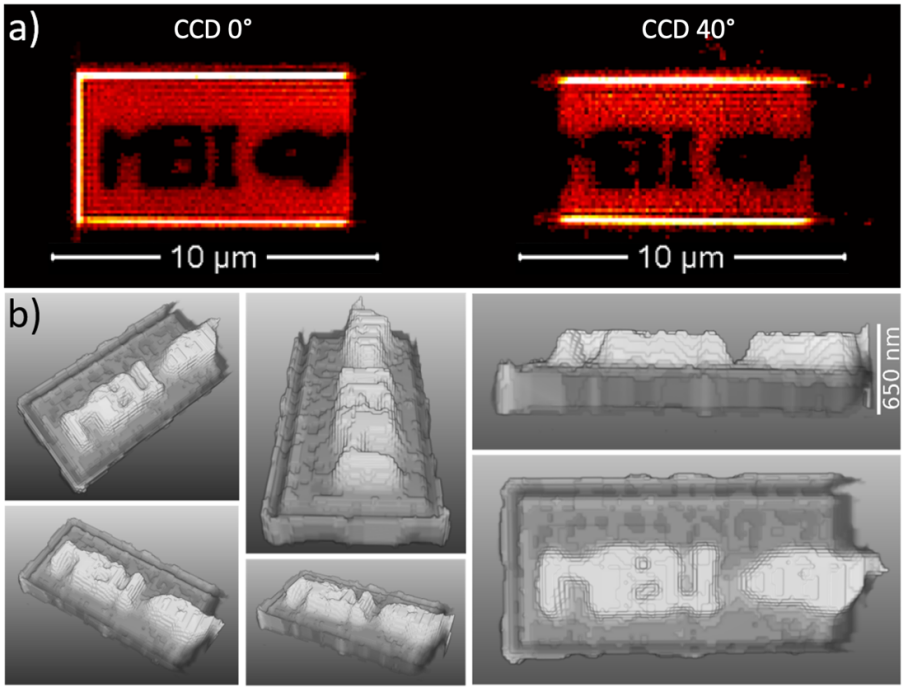


图5。a）使用一次成像获得的相干衍射成像二维重建结果，该成像通过使样品接受25个自由电子激光脉冲照射获得。b）使用光线追踪代码获得的相应三维重建结果。

低于 L_{res}，这一数值由几何考量决定。事实上，如果恢复出的相位不正确，恢复图像的质量可能会下降，其原理类似于透镜中的相位误差会在光学显微镜中造成像差。为考虑这一点，我们参照文献 [18]，使用相位恢复传递函数（PRTF）估算相干衍射成像的分辨率。该函数评估衍射波的信噪比（SNR）与导致恢复算法无法收敛的系统误差的综合影响，其定义如下：

$$\mathrm{PRTF} = \frac{\left\langle \left| \left\langle E_{ij}^{\mathrm{rec}}(k_x, k_y) \right\rangle_j \right| \right\rangle}{\left\langle \left| E_i^{\mathrm{meas}}(k_x, k_y) \right| \right\rangle} \tag{3}$$

其中，E^{meas} 是探测器处测得的电场幅值，对应空间频率（k_x，k_y）；E^{rec} 是第 j^{th} 次迭代重建得到的电场，对应空间频率（k_x，k_y）；而索引 i =（1，2）表示两个立体视图。PRTF 因此将多次连续重建结果的平均值的傅里叶振幅与测得的衍射振幅进行比较，表征在相干衍射成像代码连续迭代过程中，衍射相位被稳定且无歧义地重构的可信度。实际上，当某个傅里叶分量的相位始终能够被重构时，其复数值会同相相加，因此 PRTF 等于 1；而若相位随机，求和结果将趋近于零，PRTF 也随之趋近于零。除正文图4a）中报告的分析外，图S6还展示了对图S1b）所示重建样品按 $|q|$恒定值分壳后计算的 PRTF 平均值比较。由于图S1a）中的薄片样品具有较高的对称性，与三重和五重螺旋结构相比，其衍射图样在 CCD芯片上的分布较不稀疏，因此 PRTF 函数随

$|q|$变化得更快。在这种情况下，根据 [18], ，我们采用典型的 $1/e$ 阈值来确定 PRTF 分析中的横向分辨率。PRTF 函数表明，随着累积拍摄次数减少，分辨率略有下降：从 750 次自由电子激光曝光时的约 110 纳米，降至 25 次自由电子激光脉冲时的约 180 纳米。PRTF 对图像横向分辨率的评估，与相干衍射成像分辨“MBI”文字内部精细特征的能力一致，如图S4a）和图S5a）所示。实际上，将图S1b）中的 SEM 图像与相干衍射成像图像进行比较可见，字母“B”和“I”得到了良好的空间分辨，而相位重构对象中“M”和“B”之间没有观察到不连续性。根据扫描电子显微镜图像，我们估计“B”和“I”之间的最小距离约为 200 纳米，而“M”和“B”相距 100 纳米，这与 PRTF 结果相当吻合。

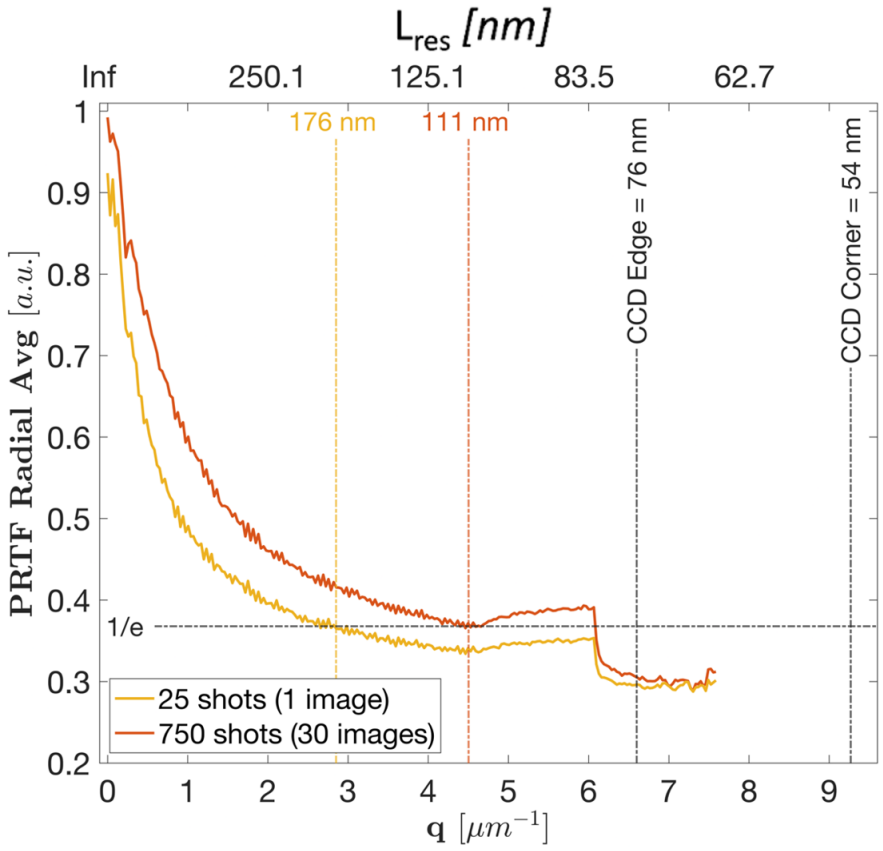


图 6. “MBI+Elettra”样品的 PRTF 径向平均函数随 FEL 照明拍摄次数的变化。黄色和红色曲线分别表示单次 25 次拍摄曝光的 PRTF 函数，以及 30 次不同的 25 次拍摄曝光的平均值。根据经验 PRTF = 1/e level，平均图像的横向分辨率约为 100 纳米，单幅图像约为 180 纳米。

参考文献。

1 F. Bencivenga, R. Cucini, F. Capotondi, A. Battistoni, R. Mincigrucci, E. Giangrisostomi, A. Gessini, M. Manfredda, I. Nikolov, E. Pedersoli, E. Principi, C. Svetina, P. Parisse, F. Casolari, M. B. Danailov, M. Kiskinova, and C. Masciovecchio, “采用极紫外瞬态光栅的四波混频实验”，《自然》**520**, 205–208 (2015)。

2. R. Mincigrucci, L. Foglia, D. Naumenko, E. Pedersoli, A. Simoncig, R. Cucini, A. Gessini, M. Kiskinova, G. Kurdi, N. Mahne, M. Manfredda, I. P. Nikolov, E. Principi, L. Raimondi, M. Zangrando, C. Masciovecchio, F. Capotondi, and F. Bencivenga, “基于自由电子激光的四波混频实验仪器技术进展”, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A: Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip. **907**, 132–148 (2018)。3. L. Raimondi, M. Manfredda, N. Mahne, D. Cocco, F. Capotondi, E. Pedersoli, M. Kiskinova, and M. Zangrando, “FERMI上的Kirkpatrick–Baez主动光学系统：系统性能分析”, J. synchrotron radiation **26**, 1462–1472 (2019)。4. T. Wang, D. Zhu, B. Wu, C. Graves, S. Schaffert, T. Rander, L. Müller, B. Vodungbo, C. Baumier, D. P. Bernstein, B. Bräuer, V. Cros, B. De Jong, R. Delaunay, A. Fognini, R. Kukreja, S. Lee, V. López-Flores, J. Mohanty, B. Pfau, H. Popescu, M. Sacchi, A. B. Sardinha, F. Sirotti, P. Zeitoun, M. Messerschmidt, J. J. Turner, W. F. Schlotter, O. Hellwig, R. Mattana, N. Jaouen, F. Fortuna, Y. Acremann, C. Gutt, H. A. Dürr, E. Beaurepaire, C. Boeglin, S. Eisebitt, G. Grübel, J. Lüning, J. Stöhr, and A. O. Scherz, “利用共振X射线全息术对Co/Pd多层膜中的纳米尺度铁磁有序进行飞秒单次成像”, Phys. review letters **108**, 267403 (2012)。5. J. Li and Z. Liu, “基于聚焦离子束的纳米剪纸：从艺术到光子学”, Nanophotonics **7**, 1637–1650 (2018)。6. S. Chen, J. Chen, X. Zhang, Z.-Y. Li, and J. Li, “剪纸/折纸：以‘折叠’开创先进三维微制造/纳米制造的新领域”, Light. Sci. & Appl. **9**, 75 (2020)。7. M. Guizar-Sicairos and J. R. Fienup, “利用自相关线性微分运算和扩展参考波进行全息术”, Opt. express **15**, 17592–17612 (2007)。8. M. Guizar-Sicairos and J. R. Fienup, “利用HERALDO从傅里叶强度图样直接重建图像”, Opt. letters **33**, 2668–2670 (2008)。9. R. Sandberg, D. Raymondson, A. Paul, K. Raines, J. Miao, M. Murnane, H. Kapteyn, and W. Schlotter, “具有50纳米分辨率的台式软X射线傅里叶变换全息术”, Opt. letters **34**, 1618–1620 (2009)。10. S. Schaffert, B. Pfau, J. Geilhufe, C. M. Günther, M. Schneider, C. von Korff Schmising, and S. Eisebitt, “利用傅里叶变换全息术在21纳米波长下进行高分辨率磁畴成像”, New J. Phys. **15**, 093042 (2013)。11. J. R. Fienup, “相位恢复算法：比较”, Appl. optics **21**, 2758–2769 (1982)。12. D. R. Luke, “用于衍射成像的松弛平均交替反射算法”, Inverse problems **21**, 37 (2004)。13. D. F. Swinehart, “比尔-朗伯定律”, J. chemical education **39**, 333 (1962)。14. G.-H. Chen, J. Zambelli, N. Bevins, Z. Qi, and K. Li, “X射线相位敏感成像方法：基本物理原理与潜在医学应用”, Curr. Med. Imaging **6**, 90–99 (2010)。15. M. Ippoliti, F. Billè, A. G. Karydas, A. Gianoncelli, and G. Kourousias, “通过基于多探测器的逆向X射线追迹方法重建软X射线荧光显微术中的三维地形景观”, Sci. Reports **12**, 20145 (2022)。16. Z. Wang, A. C. Bovik, H. R. Sheikh, and E. P. Simoncelli, “图像质量评价：从误差可见性到结构相似性”, IEEE transactions on image processing **13**, 600–612 (2004)。17. S. K. Lam, A. Pitrou, and S. Seibert, “Numba：基于LLVM的Python即时编译器”, 载于*LLVM*编译器基础设施在高性能计算中的第二届研讨会论文集, (2015), 第1–6页。18. H. N. Chapman, A. Barty, M. J. Bogan, S. Boutet, M. Frank, S. P. Hau-Riege, S. Marchesini, B. W. Woods, S. Bajt, W. H. Benner, R. A. London, E. Plönjes, M. Kuhlmann, R. Treusch, S. Düsterer, T. Tschentscher, J. R. Schneider, E. Spiller, T. Möller, C. Bostedt, T. Hoener, D. A. Shapiro, K. O. Hodgson, D. Van Der Spoel, F. Burmeister, M. Bergh, C. Caleman, G. Huldt, M. M. Seibert, F. R. N. C. Maia, R. W. Lee, A. Szöke, N. Timneanu, and J. Hajdu, “利用软X射线自由电子激光进行飞秒衍射成像”, Nat. Phys. **2**, 839–843 (2006)。