

УДК 539.26, 524.1-624

## МЕТОДЫ РЕНТГЕНОВСКОЙ КОГЕРЕНТНОЙ ДИФРАКЦИОННОЙ ВИЗУАЛИЗАЦИИ

© 2021 г. П. А. Просеков<sup>1,\*</sup>, В. Л. Носик<sup>1,3</sup>, А. Е. Благоев<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН, Москва, Россия

<sup>2</sup> Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, Россия

<sup>3</sup> Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, Москва, Россия

\*E-mail: [prosekov@crys.ras.ru](mailto:prosekov@crys.ras.ru)

Поступила в редакцию 10.06.2021 г.

После доработки 10.06.2021 г.

Принята к публикации 02.07.2021 г.

Обзор посвящен описанию методов когерентной рентгеновской дифракционной визуализации, или когерентного дифракционного имиджинга пространственной структуры некристаллических объектов и нанокристаллов (наноструктур). Особое внимание уделено методам когерентного дифракционного имиджинга в режиме сканирования протяженного объекта (птайкографии), визуализации на основе когерентного рассеяния поверхностью и с применением подходов корреляционной спектроскопии, особенностям визуализации при использовании излучения рентгеновских лазеров на свободных электронах. Проведен анализ публикаций, отражающий современное состояние методов когерентного дифракционного имиджинга и области их применения.

DOI: 10.31857/S002347612106028X

### ОГЛАВЛЕНИЕ

Введение

1. Методы рентгеновской когерентной дифракционной визуализации

1.1. Когерентность, спекл-структура, КДИ

1.2. Восстановление структуры по данным КДИ, итерационные алгоритмы восстановления фазы

2. Птайкография

3. Рентгеновская когерентная визуализация поверхности

4. Рентгеновская фотонная корреляционная спектроскопия и спекл-спектроскопия

5. Рентгеновский кросс-корреляционный анализ

6. Особенности визуализации при использовании излучения РЛСЭ

Заключение

### ВВЕДЕНИЕ

Рентгеновская кристаллография сыграла важную роль во многих областях науки и технологии, определив направление развития методов изучения 3D-структуры веществ и материалов на атомном и наномасштабном уровнях [1, 2].

Исторически важную роль в развитии указанных выше методов сыграли подходы традиционной кристаллографии на основе рентгеноструктурного анализа (РСА). Применение РСА к кристаллам белков привело к огромным успехам в изучении структуры и механизмов функционирования биологических макромолекул и их ансамблей, что послужило основой для научно-технологических прорывов в структурной биологии и биотехнологиях, а также в различных областях генетики и медицины при создании новых лекарств.

В Советском Союзе огромный вклад в разработку метода РСА и развитие кристаллографии в целом внес академик Б.К. Вайнштейн, долгие годы возглавлявший Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова АН СССР. В его лаборатории работы по кристаллографии биомacroмолекул начались еще в 50-х годах XX века [3–5], причем впервые получены кристаллы ряда важнейших белков и изучена их атомная структура [6].

Однако именно кристаллическая структура накладывает существенные ограничения на подготовку и выбор исследуемого объекта [7, 8], поскольку многие образцы, представляющие интерес для современного материаловедения и физики наносистем, химии и биологии, плохо кристаллизуются (например, не растворимые в воде протеины оболочки клетки). Конечно, основная

причина для распространения “кристаллизационного” подхода была связана с недостаточной интенсивностью источников рентгеновского излучения, что осложняло изучение структуры и процессов в некристаллических и слабо упорядоченных образцах.

В 1980 г. Дэвид Сэйр предложил адаптировать методы кристаллографии для изучения неперодических объектов с целью создания нового подхода к визуализации с высоким пространственным разрешением на основе дифракции когерентного рентгеновского излучения [9]. История повторилась: в 1934 г. была получена первая дифрактограмма белкового кристалла [10], но первые структуры глобулярных белков были расшифрованы значительно позже – в 1958 г. [11]; о первом наблюдении дифракции рентгеновских лучей от изолированного объекта сообщалось в 1987 г. [12], но только в 1999 г. изображение было восстановлено по рентгеновским данным [13].

В последние десятилетия активно развиваются методы, основанные на использовании когерентности электромагнитного излучения рентгеновского диапазона – когерентной рентгеновской дифракционной визуализации, или когерентного дифракционного имиджинга (КДИ). Они обеспечивают амплитудо- и фазоконтрастную визуализацию исследуемого объекта и нацелены на определение 3D-структуры некристаллических образцов и нанокристаллов (наноструктур) с разрешением, теоретически ограниченным лишь дифракционным пределом [14]. К указанным образцам относятся, например, различные биообъекты [15], включая биологические клетки, вирусы и нанокристаллиты трудно кристаллизуемых макромолекул и их комплексов. Развитие методов КДИ позволяет существенно расширить круг исследуемых объектов и, соответственно, решаемых научных задач [16], в том числе в таких приоритетных в России [17] областях, как биотехнологии, медицина и генетика, создание новых функциональных материалов (конструкционных, композитных и других), гибридных и природоподобных технических систем (датчиков, биосенсоров и других устройств). Особую роль в развитии методов КДИ сыграют установки класса “мегасайенс” – источники синхротронного излучения (СИ) четвертого поколения и рентгеновские лазеры на свободных электронах (РЛСЭ) [18]. Помимо строительства новых был запущен ряд программ модернизации действующих источников СИ (“КИСИ-Курчатов”, ESRF–EBS [19, 20], PETRA IV [21, 22], APS [23] и другие), а на уже работающих – создание новых специализированных станций, ориентированных на эксперименты по визуализации микро- и нанообъектов методами КДИ (NanoMAX на источнике MAX IV в Швеции, ID16A/B и ID10 на источнике ESRF во Франции). Уже сегодня большинство источников

СИ обладает почти 100%-ной поперечной когерентностью, а модернизация мегаустановок нацелена главным образом на дальнейшее уменьшение эмиттанса источников ниже 1 нм, повышение яркости и проведение экспериментов с пико- и фемтосекундным временным разрешением.

В Российской Федерации развитие методов КДИ и анализа когерентных изображений наноструктур становится одной из приоритетных задач в связи с планируемым строительством ряда мегаустановок, включая источник “СИЛА” [24] (комбинация источника СИ четвертого поколения и лазера на свободных электронах).

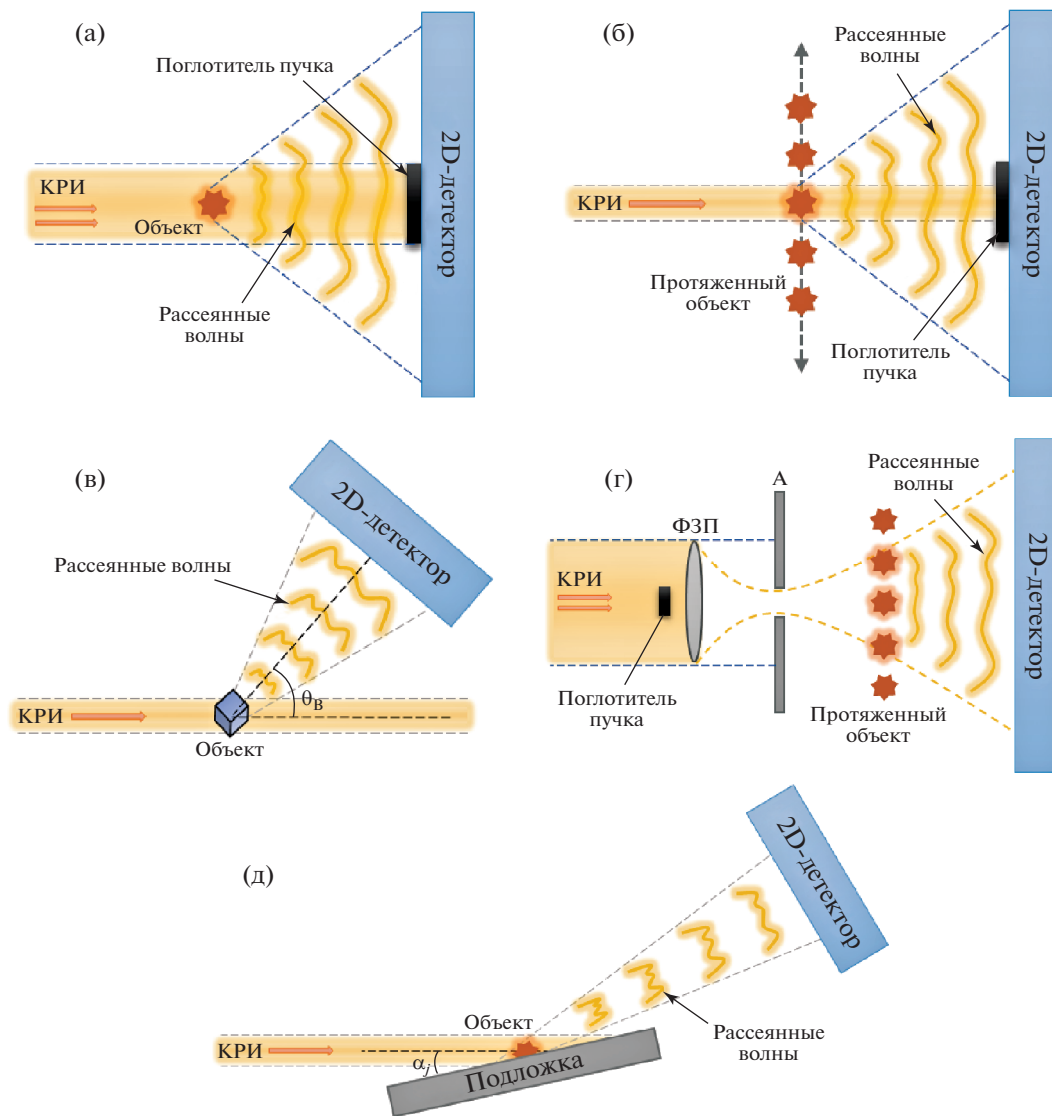
В настоящем обзоре предпринята попытка ознакомить читателя с современными методами КДИ и когерентного рассеяния, включая КДИ в режиме сканирования протяженного объекта (птайкография) на основе когерентного рассеяния поверхностью, с использованием подходов корреляционной спектроскопии и излучения РЛСЭ. В связи с разнообразием методов и подходов, их постоянным развитием и востребованностью 100%-ный охват литературы по данной тематике не представляется возможным. Так, в настоящей работе не рассматриваются методы голографии и фазового контраста, обзор современного состояния которых можно найти в [25, 26].

## 1. МЕТОДЫ РЕНТГЕНОВСКОЙ КОГЕРЕНТНОЙ ДИФРАКЦИОННОЙ ВИЗУАЛИЗАЦИИ

Основные виды КДИ можно условно разделить на пять принципиальных схем, представленных на рис. 1.

КДИ в приближении плоской волны (рис. 1а) – схема, впервые представленная в [9]. Плоская волна когерентного рентгеновского излучения падает на образец, который полностью освещается, а двумерную дифракционную картину регистрируют в дальней зоне (дифракция Фраунгофера). С экспериментальной точки зрения к важным особенностям данной геометрии относятся: сравнительно низкая чувствительность к вибрациям и малым смещениям образца; возможность реализации однократных экспериментов при кратковременном, например импульсном, взаимодействии излучения с исследуемым объектом, в том числе когда вследствие взаимодействия структура объекта деградирует (повреждается) или разрушается.

Рентгеновская птайкография представлена на рис. 1б. В этом случае линейные размеры исследуемого образца превышают поперечные размеры падающего рентгеновского пучка. Рентгеновский пучок, падающий на образец, как правило, формируют с использованием апертуры или фо-



**Рис. 1.** Принципиальные схемы КДИ: а – приближение плоской волны, б – рентгеновская птайкография, в – геометрия Брэгга, г – приближение Френеля, д – геометрия ПВО. КРИ – когерентное рентгеновское излучение;  $\theta_B$  – угол Брэгга; ФЗП – зонная пластинка Френеля; А – апертура;  $\alpha_i$  – критический угол зеркального отражения подложки. На рис. 1б облучаемые области (“звездочки”) изображены неперекрывающимися для наглядности [14].

кусирующей когерентной оптики, к которой относятся составные преломляющие линзы [27], планарные составные преломляющие линзы [28], френелевские зонные пластинки [29–31] и система зеркал Киркпатрика–Баеза [32]. В эксперименте по птайкографии проводят сканирование по двумерной сетке протяженного объекта с одновременной регистрацией серии дифракционных картин от частично перекрываемых областей исследуемого образца.

КДИ в геометрии Брэгга (рис. 1в) – схема, аналогичная рис. 1а, но дифракционную картину регистрируют в окрестности брэгговского отражения в случае кристаллического объекта (нанораз-

мерные структуры, нанокристаллы и другие объекты).

КДИ в приближении Френеля (рис. 1г): образец устанавливают перед или за фокальной плоскостью зонной пластинки Френеля, после чего двумерную дифракционную картину регистрируют в ближней зоне (дифракция Френеля).

КДИ в геометрии полного внешнего отражения (ПВО) (рис. 1д): образец размещают на поверхности подложки, которую устанавливают в геометрии скользящего падения вблизи условий ПВО; двумерную дифракционную картину регистрируют в дальней зоне в окрестности зеркально отраженного пучка.

Методы КДИ в плосковолновом приближении и геометрии Брэгга, а также птайкография и их комбинации активно развиваются и востребованы в исследованиях различных микро- и наноструктур, а также биологических объектов с использованием СИ и РЛСЭ. В ряде работ представлены результаты визуализации методами КДИ таких биообъектов, как клетки, органеллы, бактерии [33–38] и некоторые вирусы [39, 40]. КДИ позволяет определить плотность вещества, по которой можно установить расположение различных фаз в объеме материала.

Кроме того, методы КДИ позволяют проводить химическое [41], элементное [42] и магнитное [43] нанокартинирование сложноорганизованных (неоднородных, слоистых и композитных) материалов. Резонансное поглощение рентгеновского излучения при специфической для данного вещества энергии фотонов обеспечивает так называемый химический контраст, в том числе за счет регистрации выхода флуоресцентного излучения и применения рентгеновской электронной спектроскопии для химического анализа. Использование поляризованного излучения позволяет зарегистрировать магнитный контраст, давая информацию о распределении магнитных моментов и ориентации молекул внутри образца. К числу исследуемых объектов относятся аморфные и неупорядоченные структуры, включая стекла, полимеры, а также квантовые точки, наностержни и другие наноструктуры [44–46]. Ряд работ посвящен исследованиям распределения деформаций и напряжений в объеме нанокристаллов [47, 48], а также визуализации их формы [49].

Отличительной особенностью подхода КДИ в приближении Френеля является использование падающей волны с заданной кривизной волнового фронта. В [50, 51] было показано, что при использовании падающей на образец волны с известной, конечной кривизной существует единственное решение задачи восстановления структуры исследуемого объекта. В [52] представлены результаты восстановления структуры непериодического золотого образца с разрешением 24 нм методом КДИ в приближении Френеля с использованием зонной пластинки, размер внешней зоны которой составлял 50 нм. В [53] аналогичным образом было восстановлено изображение стандартного образца с разрешением 20 нм.

### 1.1. Когерентность, спекл-структура КДИ

Когерентность пучка рентгеновского излучения можно улучшить двумя способами: уменьшением размеров источника и увеличением расстояния от источника до точки наблюдения. Несмотря на неуклонное уменьшение эмиттанса источника, размер электронного сгустка невоз-

можно сделать точечным, так как использование пучков с малым зарядом приведет к потере мощности излучения, а поперечный размер пучков с большим зарядом сложно уменьшать из-за кулоновского отталкивания. Поэтому на практике используют излучение в дальней зоне, а его когерентную часть выделяют с помощью системы щелей (апертур). Такой подход обеспечивает пространственную фильтрацию некогерентных мод, хотя и уменьшает поток рентгеновских квантов на образце.

Количественно когерентные свойства рентгеновского пучка обычно характеризуют длинами временной (или продольной) и пространственной (поперечной) когерентности. Длина продольной когерентности  $L_l$  определяется как расстояние, на котором фазы двух гармоник с длинами волн  $\lambda$  и  $\lambda + \Delta\lambda$  различаются на величину  $\pi$ :

$$L_l = \frac{\lambda^2}{2\Delta\lambda}, \quad (1)$$

причем ее можно связать и с величиной спектральной полосы  $\Delta\lambda/\lambda$  импульсного излучения.

Пространственная (поперечная) когерентность определяется по интерференционной картине при дифракции на системе двух щелей. Для современных источников СИ и РЛСЭ размер области когерентности практически совпадает с поперечными размерами самого пучка и растет с уменьшением размера источника  $S$  и увеличением расстояния от него до точки наблюдения  $R$ :

$$L_t = \frac{\lambda R}{2S}. \quad (2)$$

Для источников СИ поколения 3+ и выше, а также РЛСЭ отношение области полной пространственной когерентности ко всему сечению пучка на образце (т.е. после всех трансформаций в рентгенооптической системе) составляет 96–99%, что и позволяет называть их полностью когерентными источниками.

При регистрации дифракционной картины детектор устанавливают в дальнюю зону дифракции Фраунгофера, где  $\epsilon = d^2/\lambda D \ll 1$ ,  $\lambda$  – длина волны,  $d$  – поперечный размер объекта. В результате многократного рассеяния импульсов рентгеновского излучения на образце на дифракционной картине образуются локальные интерференционные максимумы, или спеклы (крапинки, пятнышки). Из ансамбля спеклов формируется спекл-структура – усредненная интерференционная картина распределения интенсивности когерентного излучения, дифрагированного (рассеянного) исследуемым объектом.

Отметим, что обычно выделяют в отдельную группу подходы на основе корреляционной спектроскопии, в которых проводится анализ спекл-структуры картин когерентного рассеяния слабо

упорядоченными и неупорядоченными системами, визуализации при когерентном рассеянии поверхностью и другие методики. Общим подходом к реконструкции структуры объекта является использование итерационных алгоритмов восстановления фазы.

В обратном пространстве размер спекла, полученного от объекта (или его структурной части), с поперечным размером  $d$  задается выражением  $\Delta q = 2\pi/d$ , где  $q$  – волновой вектор. Минимальное расстояние между спеклами при проекции на плоскость детектора определяется следующим образом:

$$\Delta x = \frac{\Delta q}{k} D = \frac{\lambda D}{d}. \quad (3)$$

Согласно теореме Котельникова (в зарубежной литературе известна как теорема Найквиста–Шеннона) для однозначного восстановления исходного непрерывного сигнала ограниченного спектра по его дискретным отсчетам размер пикселя  $p$  должен быть как минимум в 2 раза меньше, чем расстояние между спеклами:

$$p \leq \frac{\lambda D}{2d}. \quad (4)$$

Если объект занимает область размером  $N \times N$  пикселей на двумерной сетке, то количество известных параметров в обратном пространстве будет в 2 раза меньше, поскольку регистрируется лишь интенсивность. Поэтому необходимо рассматривать область изображения, содержащую в несколько раз большее количество информации для так называемой дискретизации [54–56]. Дискретизация, равная двум, является минимальным условием для успешной реконструкции объекта.

Для восстанавливаемого объекта также проводится дискретизация прямого пространства. С учетом дискретизации и (3) максимальное пространственное разрешение объекта (минимальный размер участка объекта) связано с апертурой детектора  $Np$ , где  $N$  – линейное число пикселей детектора:

$$\Delta d = \frac{\lambda D}{Np}. \quad (5)$$

Типичные расстояния между образцом и детектором обычно не превышают десятков метров, величина  $p$  составляет 50–100 мкм, а  $N \sim 500$ –1000.

### 1.2. Восстановление структуры по данным КДИ, итерационные алгоритмы восстановления фазы

В некотором смысле дифракционная картина при КДИ представляет собой 2D-проекцию фурье-образа реальной структуры (электронной плотности) исследуемого образца на поверхность детектора. Однако восстановление структуры об-

разца путем обратного преобразования Фурье дифракционной картины является нетривиальной задачей не только из-за ограниченного размера детектора. Поскольку каждый пиксель детектора регистрирует интенсивность (т.е. квадрат амплитуды волнового поля), а не амплитуду и фазу, кажется, что вся фазовая информация теряется. Однако это не совсем так в случае анализа информации по всему набору пикселей.

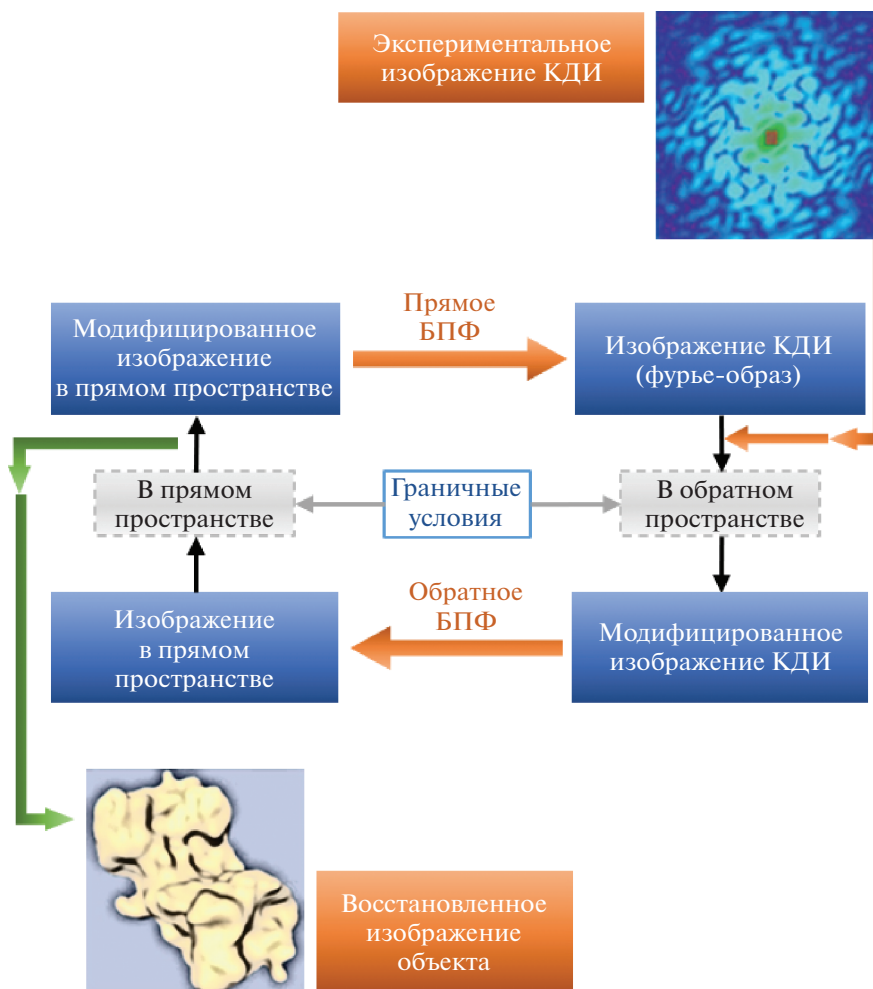
Решение данной “фазовой проблемы” как в волновой оптике, так и в рентгеновской кристаллооптике [57] возможно при выполнении следующих условий: при регистрации дифракционной картины условие дискретизации превышает значение в соответствии с теоремой Котельникова; в отсутствие шумов размер регистрируемого массива точек дифракционной картины должен быть больше или равен размеру массива точек восстанавливаемой реальной структуры. Тогда с некоторыми математическими допущениями можно утверждать, что достаточная для реконструкции фазовая информация в зашифрованном виде содержится в зарегистрированном изображении и может быть получена с применением специальных вычислительных алгоритмов – итерационных алгоритмов восстановления фаз.

Отметим, что в теории пространственное разрешение методов КДИ ограничено главным образом длиной волны излучения и составляет доли нанометра в рентгеновском диапазоне. Однако на практике пространственное разрешение лимитируется множеством факторов, начиная от яркости и когерентности используемого источника излучения до специфических особенностей схемы КДИ. Для современных источников СИ третьего и четвертого поколений и РЛСЭ разрешение методов КДИ лежит в интервале  $\sim 1$ –10 нм, ставя КДИ по этому параметру между электронной и рентгеновской микроскопией.

Итерационный алгоритм восстановления фазы представляет собой циклическую процедуру на основе быстрого преобразования Фурье дифракционной спекл-структуры, зарегистрированной детектором с модификацией (для решения “фазовой проблемы”) данных на определенных шагах цикла [56, 58–62].

Сегодня в качестве эффективных алгоритмов восстановления фазы используются: алгоритм Файнапа – алгоритм коррекции ошибок, гибридный алгоритм ввода–вывода [59, 60], развивающий подход Герхберга, впервые примененный для решения обратной задачи в электронной микроскопии [58].

Общей чертой всех алгоритмов восстановления фазы являются итерационные переходы между прямым и обратным пространством, осуществляемые посредством быстрого преобразования Фурье



**Рис. 2.** Блок-схема, иллюстрирующая процедуру реконструкции изображения исследуемого объекта по данным КДИ с использованием итерационного алгоритма восстановления фазы (БФП – быстрое фурье-преобразование) [14].

по так называемому циклу Файнапа [56], включающему в себя следующие шаги (рис. 2):

1) присваивание случайной фазы (начальное предположение на основе априорной модели) модулю амплитуды дифракционной картины (полученной из эксперимента) и выполнение обратного быстрого преобразования Фурье;

2) наложение граничных условий (например, приближенное ограничение размера объекта, который можно оценить, основываясь на передискретизации) на полученное изображение в прямом пространстве и выполнение прямого быстрого преобразования Фурье;

3) замена амплитуды напряженности поля рентгеновского излучения полученного фурье-образа (в обратном пространстве) на амплитуду из эксперимента и выполнение обратного быстрого преобразования Фурье;

4) повторение шагов 2, 3 (одна итерация) до требуемого уровня сходимости результата.

Сходимость оценивается по величине ошибки, определяемой как разница между вычисленной и экспериментально измеренной амплитудами фурье-образа исследуемого объекта. Обычно фаза может быть восстановлена после  $\sim 10^2$ – $10^3$  итераций.

Существует множество вариантов итерационных методов (обзор [62]). Наиболее широко применяется управляемый гибридный алгоритм ввода–вывода [63].

## 2. ПТАЙКОГРАФИЯ

Одним из наиболее значимых ограничений методов КДИ (как в приближении плоской волны, так и в геометрии Брэгга) является возможность визуализации лишь сравнительно малых объектов, что связано с длиной пространственной когерентности излучения (и размерами пучка). Модификация метода КДИ на основе пространственного сканирования протяженных объ-

ектов, известная как птайкография, или метод сканирующего КДИ (рис. 1б), позволяет снять указанное ограничение и открывает возможность восстановления структуры объекта с нанометровым пространственным разрешением [64, 65].

Птайкография берет свое начало в пионерской работе [66], в которой была представлена техника восстановления фазовой информации о кристаллическом объекте, сканируемом конечным по размерам когерентным электронным пучком. В [67–69] данная методика была развита для исследования неупорядоченных объектов, совмещена с использованием итерационных алгоритмов восстановления фазы [70, 71] и продемонстрирована для рентгеновского излучения [72]. Результаты успешной фазовой и амплитудной реконструкции исследуемых объектов, в частности тестовой золотой зонной пластинки с разрешением в десятки нанометров, были представлены в [73, 74]. Возможность визуализации структуры объектов с размерами, превышающими поперечные размеры когерентного пучка, делает данный метод весьма востребованным для изучения конденсированных сред [75–77] и биологических систем [78, 79].

Метод заключается в сканировании образца при смещении области его засветки когерентным сфокусированным или ограниченным апертурой пучком, обеспечении перекрытия засвеченных областей и одновременной регистрации массива дифракционных картин. Совокупность дифракционных картин от различных, но частично перекрывающихся областей дает возможность последовательно реконструировать 2D- или 3D-изображение структуры исследуемого объекта с применением итерационных алгоритмов.

Использование при сканировании сфокусированного пучка дает возможность получить помимо структурного контраста дополнительный химический контраст (за счет рентгеновской флуоресценции) с высокой элементной чувствительностью.

Птайкография обычно реализуется как двумерный метод, позволяющий получать фазовые изображения, формирующиеся из-за разницы проекций длины оптического пути в образце. Для этого требуется, чтобы образец был оптически тонким. Тогда волновой фронт, проходящий через образец, может быть точно смоделирован путем перемножения функции распределения падающего освещения и функции передачи образца. Предельная толщина образца при использовании этого приближения была теоретически определена в [73, 80], а затем уточнена с помощью численных расчетов, в результате которых было получено следующее соотношение [81]:

$$T \leq \frac{5.2\Delta r^2}{\lambda}, \quad (6)$$

где  $T$  – толщина образца,  $\Delta r$  – разрешение изображения, а  $\lambda$  – длина волны освещения. Соответствующее число Френеля не менее 0.2.

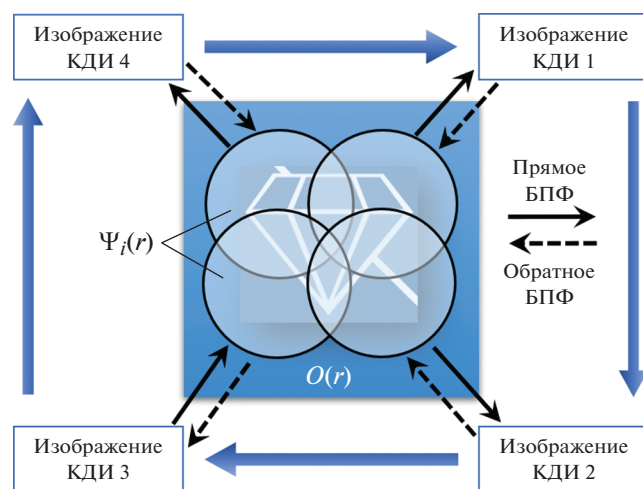
В отличие от стандартных алгоритмов реконструкции изображений (алгоритма коррекции ошибок, гибридного алгоритма ввода–вывода и других) в методе птайкографии обрабатывается сразу несколько дифракционных картин от перекрывающихся областей образца. Достаточное перекрытие картин позволяет решить фазовую проблему и реконструировать изображение структуры образца. При реконструкции используют функции пробы (функция проекции падающего пучка излучения на плоскость исследуемого объекта)  $P(r)$  и объектную функцию  $O(r)$ , характеризующую исследуемый образец [64, 65]. Тогда при наличии относительного смещения  $r_i$  между образцом и функцией пробы результирующее волновое поле за образцом (регистрируемое в дальней зоне)  $\Psi_i(r)$  равно

$$\Psi_i(r) = P(r)O(r - r_i). \quad (7)$$

Итерационный алгоритм птайкографии для восстановления изображений состоит в последовательном уточнении объектной функции  $O(r)$  путем выполнения прямых и обратных быстрых преобразований Фурье с переходом к каждой новой пробе с учетом информации о предыдущей (рис. 3). Кроме этого, был разработан расширенный итерационный алгоритм птайкографии, в котором помимо объектной функции  $O(r)$  проводятся уточнение и функции пробы  $P(r)$ , которая может быть изначально неизвестна.

Птайкографический подход может эффективно применяться в комбинации с другими методами визуализации. Например, в так называемом методе 3D-птайкографии для получения 3D-изображений с высоким пространственным разрешением дополнительно используются томографические образы. В простых случаях птайко-томографии (рис. 4а) 3D-изображение получают путем поворота образца на  $180^\circ$  с малым шагом, и для каждой угловой позиции снимается птайкографическая проекция. После того как для каждого угла все проекции визуализации восстановлены с использованием итерационных алгоритмов птайкографии, их обрабатывают с использованием стандартных томографических программ, например алгоритма обратных проекций [82]. В результате формируется 3D-изображение исследуемого объекта.

В более сложных ситуациях, когда толщина образца превышает предел мультипликативного приближения [83], применяют метод многослойной птайкографии. В многослойной модели толстый образец рассматривают как набор тонких



**Рис. 3.** Схема итерационного алгоритма восстановления фазы. Серыми стрелками обозначены последовательные переходы между изображениями КДИ с обновлением информации об объекте. Черными стрелками обозначены прямое (сплошная) и обратное (штрихованная) быстрое фурье-преобразование (БФП) [64].

срезом, для каждого из которых можно использовать мультипликативное приближение (рис. 4б). Экспериментальный процесс сканирования представлен на рис. 4в. Волновое поле в плоскости детектора может быть рассчитано с помощью блок-схемы вычислений (рис. 4г).

Для восстановления изображения рассчитанное волновое поле на выходе сначала пересматривают с корректировкой фаз и заменой интенсивностей, а затем порядок блок-схемы расчета меняют на противоположный (обратный). Каждый из тонких срезов может быть реконструирован с использованием стандартных алгоритмов [85] для одинарного среза [86].

Если принять во внимание дополнительные преимущества многослойной птайкографии и птайкотомографии, то выгодна их комбинация, использующая трехмерную информацию из многослойной птайкографии для уменьшения количества угловых измерений (и времени сканирования). В то же время при применении такого комбинированного метода многослойной птайкотомографии [84] увеличивается предельная толщина образца и сохраняется высокое разрешение.

### 3. РЕНТГЕНОВСКАЯ КОГЕРЕНТНАЯ ВИЗУАЛИЗАЦИЯ ПОВЕРХНОСТИ

Метод когерентной визуализации рассеяния поверхностью является модификацией метода когерентного рассеяния и позволяет изучать 3D-структуру поверхностей, границ раздела, упоря-

доченных и слабо упорядоченных объектов на поверхности и в объеме вещества.

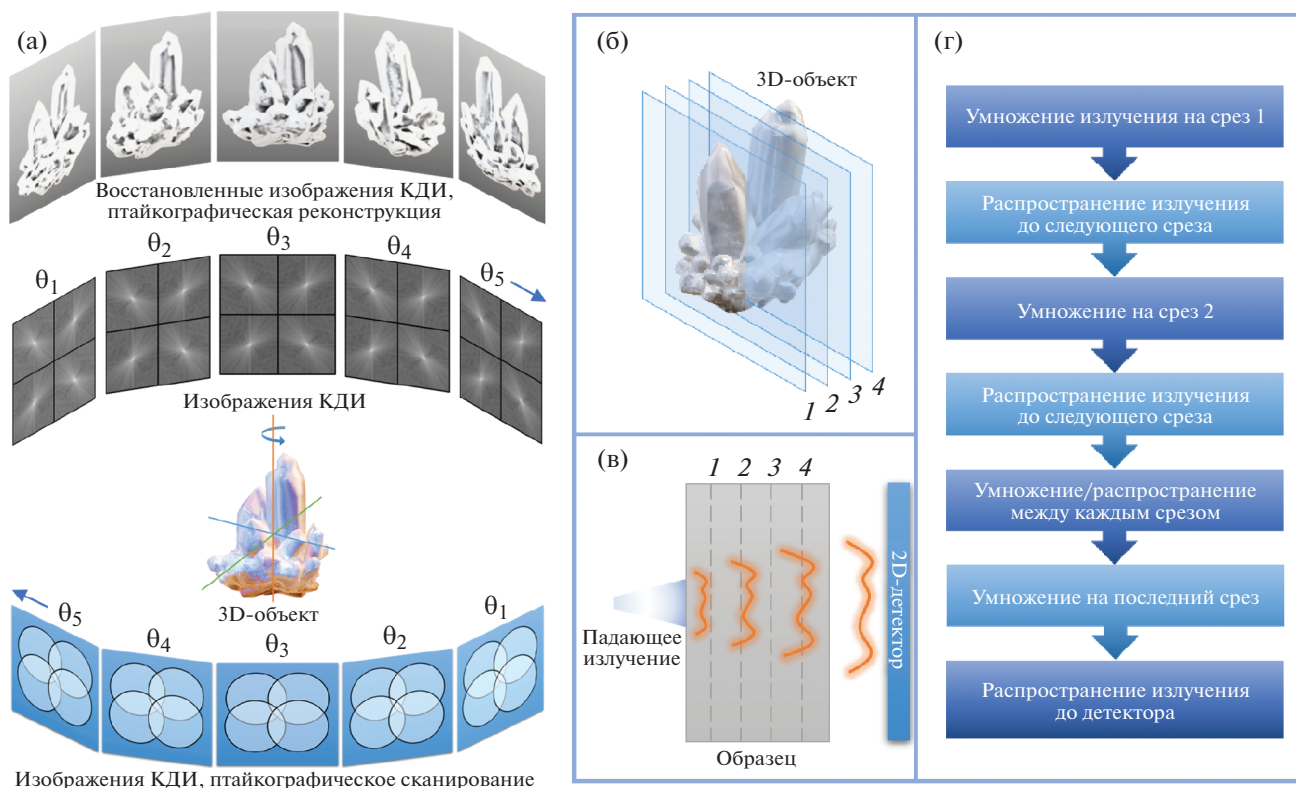
Данный метод был впервые предложен в 2012 г. [87]. Ранее [88, 89] рассматривали схожие подходы, однако без возможности реконструкции 3D-структуры. Эксперименты, представленные в [87], проводились на источнике СИ третьего поколения APS (Advanced Photon Source). Из-за недостатка когерентного излучения, а также невозможности размещения детектора на необходимом от образца расстоянии разрешение восстановленной структуры исследуемого объекта в одном из направлений составило более 500 нм. Предполагается, что использование источника СИ четвертого поколения и оптимизация схемы эксперимента по когерентной визуализации рассеяния поверхностью позволят достичь нанометрового пространственного разрешения. Однако уже сейчас для “настоельных” источников, генерирующих излучение в экстремальном ультрафиолетовом диапазоне (ЭУФ), было достигнуто разрешение  $40 \times 80$  нм в плоскости поверхности и субнанометровое по нормали [90]. Таким образом, разрешение рентгеновской ЭУФ-птайкографии оказывается сравнимым с получаемым в растровой электронной микроскопии, причем можно не ограничиваться использованием образцов с проводящими поверхностями.

Метод когерентной визуализации рассеяния поверхностью заключается в регистрации картины рассеяния в геометрии ПВО в окрестности критического угла  $\alpha_i$  (рис. 1д). В скользящей геометрии падения рассеяние поверхностью крайне чувствительно к распределению электронной плотности как в латеральном направлении (вдоль поверхности образца), так и в нормальном [91–93], что обеспечивает возможность получения когерентного рассеяния с высоким соотношением сигнал/шум и быстрым временем записи [87]. Совмещение данного метода с методами птайкографии и фотонной корреляционной спектроскопии позволит сканировать в указанном режиме объекты с размерами, превышающими поперечные размеры падающего рентгеновского пучка, и получать информацию с временным разрешением, характерным для корреляционных методов.

### 4. РЕНТГЕНОВСКАЯ ФОТОННАЯ КОРРЕЛЯЦИОННАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ И СПЕКЛ-СПЕКТРОСКОПИЯ

Рентгеновская фотонная корреляционная спектроскопия (РФКС), или спектроскопия флуктуаций интенсивности [94–96], основана на анализе временной эволюции дифракционной картины при КДИ и спекл-структур. Обычно применяется при изучении слабо упорядоченных и неупорядоченных объектов, таких как коллоид-





**Рис. 4.** Схема 3D-птайкографии: а – принципиальная схема птайкотомографии; б – разделение образца на ряд тонких срезов (слоев), когда толщина образца превышает глубину визуализации однослойной птайкографии; в – схема, иллюстрирующая распространение излучения в образце; г – блок-схема многоэтапной вычислительной модели [84].

ные суспензии [97–99], смеси гомополимеров [100], блок-сополимерные мицеллы и везикулы [101, 102], наночастицы в переохлажденных жидкостях [103] и антиферромагнетики [104]. Стандартная схема РФКС-эксперимента совпадает со схемой на рис. 1а. Также РФКС активно используется при исследовании динамики (броуновского движения) металлических наночастиц в растворах, волн зарядовой плотности, критических флуктуаций при фазовых переходах порядок–беспорядок в аморфных сплавах, конформационной динамике полимеров при стекловании [105–110].

РФКС позволяет изучать структурную динамику внутри образца по флуктуациям интенсивности регистрируемой спекл-структуры, а также наблюдать низкочастотные динамические процессы и визуализировать флуктуации плотности на расстояниях несколько нанометров [111].

В РФКС-экспериментах информация извлекается из данных о флуктуациях интенсивности с использованием нормализованной автокорреляционной функции интенсивности второго порядка  $g_2(q, t)$ :

$$g_2(q, t) = \frac{\langle I(q, t')I(q, t + t') \rangle}{\langle I(q, t') \rangle^2}, \quad (8)$$

где  $I(q, t)$  – интенсивность рассеяния, соответствующая вектору рассеяния  $q$  в момент времени  $t$ , а скобки обозначают усреднение по ансамблю (по времени измерения). Усреднение проводится по всем значениям интенсивности, по пикселям спекл-структуры картины рассеяния и времени следующим образом: предполагается, что  $K$  последовательных спекл-картин с частотой кадров  $f_r$  регистрирует двумерный детектор с  $N$  пикселями, которые соответствуют вектору рассеяния  $q$ . Тогда  $g_2(q, t)$  равна

$$g_2(q, t = k'\Delta t) = \frac{1}{N(K - k')} \sum_{n=1}^N \sum_{k=1}^{K-k'} S_{n,k} S_{n,k+k'} \quad (9)$$

$$= \left( \frac{1}{N(K - k')} \sum_{n=1}^N \sum_{k=1}^{K-k'} S_{n,k} \right) \left( \frac{1}{Nk'} \sum_{n=1}^N \sum_{k=K-k'+1}^K S_{n,k} \right),$$

где  $\Delta t = 1/f_r$ , а  $S_{n,k}$  – интенсивность рассеяния в  $n$ -м пикселе  $k$ -го изображения после вычитания усредненного темного шума детектора. В случае частично когерентного излучения функция  $g_2(q, t)$  связана с нормализованной автокорреляционной функцией первого порядка  $g_1(q, t)$  соотношением Зигерта [112]:

$$g_2(q, t) = 1 + \beta |g_1(q, t)|^2, \quad (10)$$

где  $\beta$  – степень когерентности, величина которой варьируется от нуля до единицы.

В результате анализа автокорреляционной функции метод РФКС позволяет определить временные характеристики броуновского движения системы и релаксации атомов/молекул в образце, т.е. определить коэффициенты (константы) свободной диффузии  $D_0$ , среднеквадратичного смещения частиц и скорости релаксации.

РФКС эффективно применяется в исследованиях, связанных с явлениями старения и замедленного осаждения частиц в различных коллоидных системах, формировании перколяционных наборов частиц [113]. Временная эволюция (старение) может быть оценена с помощью автокорреляционной функции количественно с использованием “срезов равного возраста”, полученных из двумерных автокорреляционных функций. В отличие от случая простого броуновского движения, когда корреляционные функции можно представить в виде простых экспоненциально убывающих функций, в данном случае необходимо использовать приближение Колрауша–Уильямса–Ватта:

$$g^{(2)}(t) = \beta \exp\left(-\left(\frac{t}{\tau}\right)^\gamma\right) + 1, \quad (11)$$

где  $\tau$  – время релаксации (скорость релаксации  $\Gamma = 1/\tau$ ) и  $\gamma$  – показатель экспоненты.

В качестве альтернативы РФКС был разработан метод рентгеновской спекл-спектроскопии, или спекл-спектроскопии видимости, на основе количественного анализа контраста интерференционных максимумов спекл-картины и видимости спеклов  $v(q, t)$ . Метод рентгеновской спекл-спектроскопии видимости позволяет получить доступ к той же информации, что и РФКС, но на временах меньше, чем период смены кадров в детекторе [114–118]. Этот метод особо востребован в случае РЛСЭ и открывает возможности для регистрации сверхбыстрой динамики на атомарном уровне посредством анализа видимости спекл-картин, полученных с использованием пары фемтосекундных рентгеновских импульсов (накачка–зонд) с относительной временной задержкой (от фемтосекунд до наносекунд), определяющей “время экспозиции” [119–125].

Величина  $v(q, t)$  для заданной спекл-картины определяется формулой

$$v(q, t) = \frac{\langle S^2(q, t) \rangle - \langle S(q, t) \rangle^2}{\langle S(q, t) \rangle^2}, \quad (12)$$

где  $S(q, t)$  – интенсивность рассеяния, определенная за время экспозиции  $T(S(q, t) = \int_0^T I(q, t) dt)$ .

Таким же образом, как в РФКС, усреднение в (12) по ансамблю представляет собой усреднение по пикселям и времени: полагаем время экспозиции последовательных изображений равным  $T$ , тогда  $v(q, t)$  спекл-структуры вычисляется как

$$v(q, t) = \frac{\frac{1}{NK-1} \sum_{n=1}^N \sum_{k=1}^K \left( S_{n,k} - \frac{1}{NK} \sum_{n=1}^N \sum_{k=1}^K S_{n,k} \right)^2}{\left( \frac{1}{NK} \sum_{n=1}^N \sum_{k=1}^K S_{n,k} \right)^2}. \quad (13)$$

Можно показать, что  $v(q, t)$  связано с  $g_1(q, t)$  соотношением

$$v(q, t) = 2\beta/T \int_0^T (1-t/T) |f(q, t)|^2 dt. \quad (14)$$

## 5. РЕНТГЕНОВСКИЙ КРОСС-КОРРЕЛЯЦИОННЫЙ АНАЛИЗ

Рентгеновский кросс-корреляционный анализ (РККА) – метод на основе анализа спекл-структуры с помощью КДИ, позволяющий исследовать структуру отдельных частиц и неупорядоченных и частично упорядоченных систем, таких как сплавы или коллоидные стекла. В стандартной схеме РККА-эксперимента (рис. 1а) проводится поиск корреляций интенсивности рассеянных полей в обратном пространстве  $I(\mathbf{q}, t)$  для двух выбранных векторов рассеяния  $\mathbf{q}$  в разные моменты времени  $t_1, t_2$ :

$$C(\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, t_1, t_2) \sim I(\mathbf{q}_1, t_1) I(\mathbf{q}_2, t_1), \quad (15)$$

где  $C(\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, t_1, t_2)$  – кросс-корреляционная функция интенсивности.

Идея РККА, или флуктуационного рассеяния, была первоначально предложена Камом в 1977 г. как средство определения структуры отдельных макромолекул в растворе [126] при помощи оптического излучения видимого спектра. Мгновенное распределение частиц фиксируется, если рассеяние идентичными неориентированными частицами регистрируется за время меньше, чем время, необходимое для их переориентации. Анализ угловых вариаций интенсивности на двумерном детекторе с использованием кросс-корреляционной функции, дополненный анализом вариаций в радиальном направлении (аналогично методу малоуглового рентгеновского рассеяния), позволяет восстановить информацию о структуре частиц. В дальнейшем подход был развит Кларком для изучения локального порядка в конденсированных фазах для 2D-систем (монослой частиц размером  $\sim 230$  нм) [127] и пространственной корреляции частиц в 3D-системах (в коллоидной жидкости) [128].

Развитие источников рентгеновского излучения и СИ позволило применить кросс-корреляционный подход в экспериментах по рассеянию когерентных рентгеновских лучей. Одна из первых работ по РККА показала возможность наблюдения в плотно упакованных коллоидных стеклах скрытой симметрии [129], связанной с локальной структурой аморфного образца. Описание теории и алгоритмов компьютерного моделирования в методе РККА представлено в [130–133].

В исследованиях методом РККА можно выделить два основных направления: изучение структурных особенностей слабо упорядоченных систем и определение структуры одиночных частиц.

В неупорядоченных системах РККА применяется для исследования локального порядка и структуры ансамблей идентичных частиц в коллоидных 2D- и 3D-системах (в том числе под давлением [134]), корреляций в тонких коллоидных пленках в геометрии малоуглового рентгеновского рассеяния [135], количественного определения упорядочения и связей в жидких кристаллах [136], для изучения структуры нанокристаллических сверхрешеток [137], выявления структурных неоднородностей в полимерах [138], изучения локального порядка и симметрии в магнитных доменах [139].

При исследовании одиночных частиц метод РККА был адаптирован для получения такой структурной информации, как сингония, размер и форма частиц, и активно применяется на современных источниках СИ и РЛСЭ. РЛСЭ с ультракороткими (фемтосекундными) рентгеновскими импульсами высокой яркости позволяет получить мгновенные “снимки” случайно ориентированных частиц.

В первом подходе кросс-корреляционная функция используется в качестве ограничения в итерационном алгоритме восстановления фаз. С использованием такого подхода в [140] на РЛСЭ LCLS (Linac Coherent Light Source) была определена структура одиночных полистирольных димеров и в [141] – на источнике СИ SLS (Swiss Light Source) структура двумерных наночастиц золота. Второй подход основан на непосредственной подгонке (аппроксимации) модели реальной структуры с учетом кросс-корреляционной функции в соответствии с полученными в эксперименте картинами рассеяния.

Отметим, что РККА позволяет проводить времяразрешающие измерения, что важно для понимания процессов формирования структуры, кристаллизации и механизмов фазовых переходов. Вид кросс-корреляционной функции может быть выбран в зависимости от цели и определяемых в эксперименте параметров. Например, при исследовании локального порядка в статических коллоидных дисперсиях эта функция определяется

через угловые корреляции интенсивности в полярных координатах с постоянным значением модуля волнового вектора  $\mathbf{q}$  ( $|\mathbf{q}_1| = |\mathbf{q}_2| = q$ ):

$$C(q, \Delta\varphi) = \frac{\langle I(q, \varphi)I(q, \varphi + \Delta\varphi) \rangle_{\varphi} - \langle I(q, \varphi) \rangle_{\varphi}^2}{\langle I(q, \varphi) \rangle_{\varphi}^2}. \quad (16)$$

Вектор рассеяния  $\mathbf{q}$  лежит в плоскости, перпендикулярной падающему пучку,  $\Delta\varphi$  – угловая разность между двумя векторами рассеяния  $\mathbf{q}_1$  и  $\mathbf{q}_2$  и принимает значения в диапазоне от нуля до  $2\pi$  (рис. 5а). Оператор  $\langle \dots \rangle_{\varphi}$  обозначает усреднение по углу  $\varphi$  вдоль кольца радиусом  $q$ .

Разложение корреляционной функции  $C(q, \Delta\varphi)$  в ряд Фурье по  $\Delta\varphi$  позволяет детально изучить локальный ориентационный порядок образца исходя из свойств функции

$$C(q, \Delta\varphi) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} C_l(q) \exp(il\Delta\varphi), \quad (17)$$

где коэффициенты Фурье равны

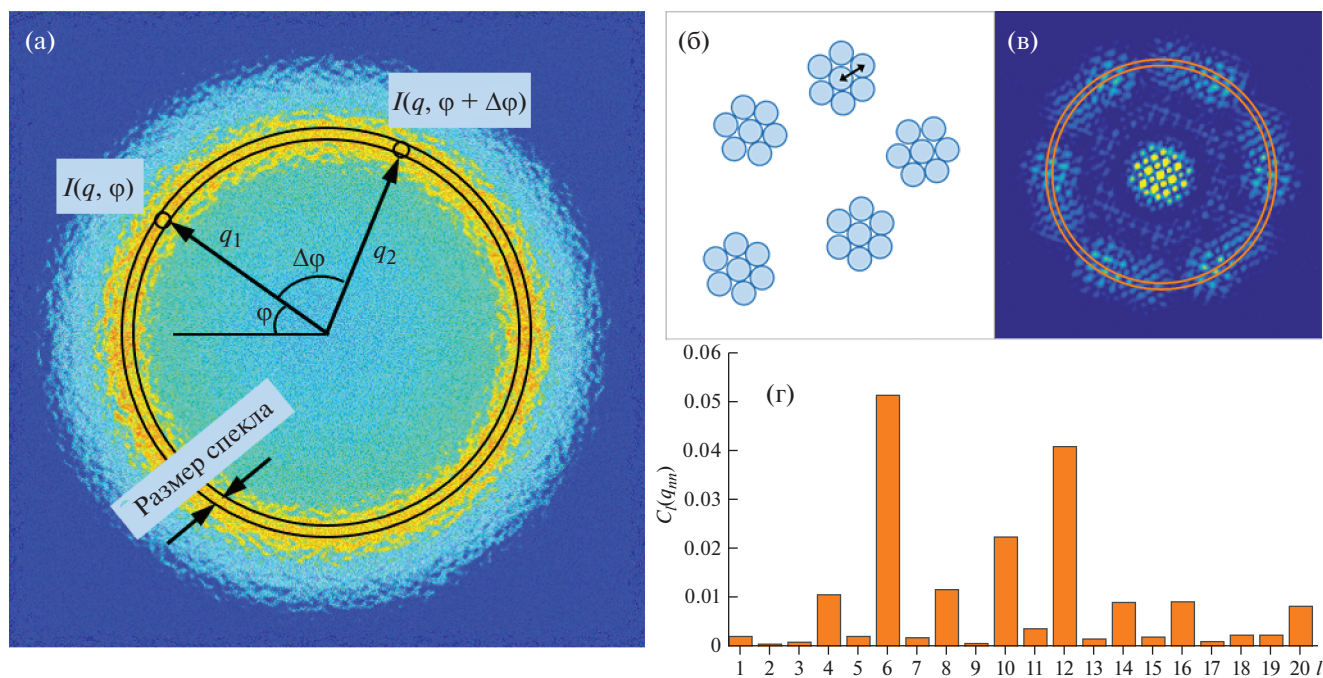
$$C_l(q) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} C(q, \Delta\varphi) \exp(-il\Delta\varphi) d\Delta\varphi. \quad (18)$$

Связь между фурье-коэффициентами  $C_l(q)$  и структурным ориентационным порядком можно проиллюстрировать на примере двумерной системы. Пусть система содержит пять произвольно ориентированных гексагональных кластеров сферических частиц (рис. 5б). Рассчитанная картина рассеяния представлена на рис. 5в. Фурье-коэффициенты  $C_l(q)$  корреляционной функции  $C(q, \Delta\varphi)$ , полученные из расчетной картины рассеяния, представлены как функция  $l$ -компонент на рис. 5г. Видно, что преобладают фурье-коэффициенты с  $l = 6, 12$ , отражающие гексагональную симметрию структуры системы.

## 6. ОСОБЕННОСТИ ВИЗУАЛИЗАЦИИ ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ ИЗЛУЧЕНИЯ РЛСЭ

Повышенная яркость [143] и временная структура с характерными импульсами длительностью 100 фс – особенности РЛСЭ, позволяющие поновому взглянуть на возможности рентгеновских экспериментов с временным разрешением. Благодаря РЛСЭ видим переход к образцам новых типов – наночастицам и отдельным биомолекулам [144, 145], в частности, в подходах серийной кристаллографии [146]. Появился также новый термин – мегагерцовая рентгеновская дифракция [147, 148] и визуализация [149]. Для такого типа образцов нет необходимости в кристаллизации [150], которая была неизбежной при использовании СИ [151].

Однако при использовании импульсного рентгеновского излучения возникают новые про-



**Рис. 5.** Определение параметров кросс-корреляционной функции  $C(q, \Delta\varphi)$  (а). РККА на модельной системе из пяти произвольно ориентированных гексагональных кластеров сферических частиц (б), расстояние между частицами  $r_{mn}$  показано стрелкой. Расчет когерентного рассеяния данной структуры (в). Фурье-коэффициенты  $C_l(q_{mn})$  как функция  $l$ -компонент, рассчитанные для величины  $q_{mn} = 2\pi/r_{mn}$  [142] (г).

блемы, к которым прежде всего относятся: контроль искажений волнового фронта [152, 153], который может существенно влиять на процесс взаимодействия интенсивного излучения с веществом [154]; разрушение образцов и негативное влияние на рентгеновскую оптику [155, 156] под действием излучения РЛСЭ.

В связи с повышенными требованиями к радиационной стойкости оптики все чаще вместо кремния в рентгеновской оптике используют алмазы, например, для изготовления френелевских зонных пластинок [157], а соединения бериллия — для составных преломляющих линз [158]. Отметим, что разрушение образцов с характерным временем 10–50 фс привело к развитию концепции фиксации дифракционной картины “вплоть до момента разрушения” образца [159].

Одним из узких мест рентгеновских экспериментов с временным разрешением являются рентгеновские детекторы [160]. Предельно высокая частота современных многопиксельных 2D-детекторов ограничена значением 5 МГц для постоянно модернизирующегося детектора AGIPD, что отвечает периоду кадров 200 нс. Для того чтобы улучшить временное разрешение, активно развиваются схемы разделения исходного пучка на два при помощи системы кристаллов и совместного использования рентгеновского и оптического лазерного излучений. В первом случае се-

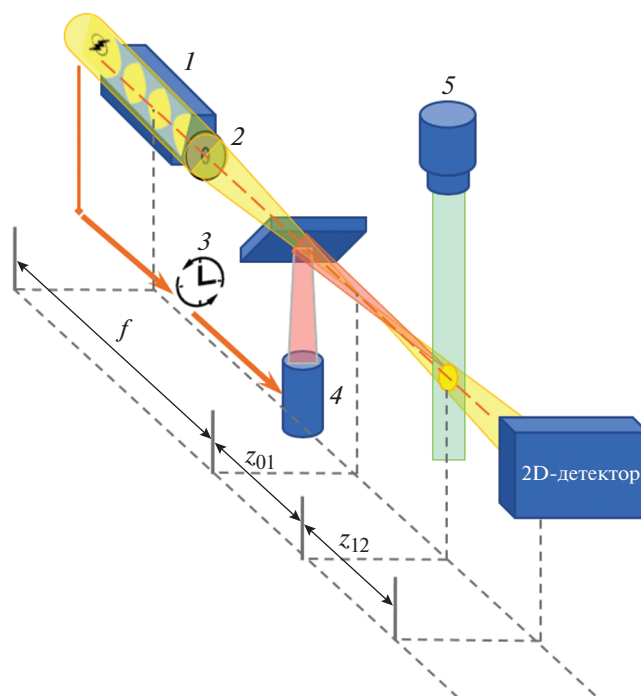
рия последовательных отражений приводит к искажениям волнового фронта, а во втором возникают серьезные проблемы с синхронизацией импульсов рентгеновского и оптического излучений.

С началом активной эксплуатации станций Европейского рентгеновского лазера на свободных электронах (ЕРЛСЭ) были предложены новые экспериментальные схемы рентгеновской визуализации, происходит модернизация рентгеновской оптики. Например, экспериментальная станция для визуализации и динамики материалов MID (materials imaging and dynamics) на ЕРЛСЭ [144], введенная в эксплуатацию в конце 2018 г., позволяет обеспечить возможность исследования наноструктурированных материалов, жидкостей, мягких и твердых конденсированных сред. Вместе с инструментом для исследований материи с высокой плотностью энергии HED (high energy density) MID использует излучение от ондулятора SASE-2 с энергией фотонов 5–25 кэВ, обеспечивающего до  $10^{12}$  фот/имп. и до 3000 имп./с. Линия разделения и задержки рентгеновского излучения на основе серии дифракционных отражений для станции MID описана в [161], а в последнее время появились новые идеи по улучшению стабильности и простоты выравнивания этой линии [162, 163].

Визуализация на основе распространения в ближнем поле, в частности голография в ближнем поле и ее реализация с высоким разрешением в геометрии конусного пучка, может обеспечить полномасштабное исследование динамики образца под действием одиночного импульса РЛСЭ [155]. Проблема флуктуирующего волнового фронта решается путем выборки конфигурационного пространства импульсов источника SASE перед фактической фиксацией изображений с последующим анализом главных компонент. В случае MID ЕРЛСЭ [155] эксперимент по голографии в ближнем поле с временным разрешением выполняется с использованием скорректированных по aberrациям нанофокусирующих составных преломляющих линз. Причем дополнительно анализируется динамика микрожидкостной (микрофлюидной) струи, используемой в качестве системы доставки образца (рис. 6). Визуализация в схеме накачка–зонд реализуется с использованием инфракрасного импульсного лазера, излучение которого индуцирует процессы кавитации и взрыва в струе.

Импульсная структура излучения РЛСЭ решает две основные проблемы КДИ на источниках СИ. Во-первых, изображения не размываются из-за движения образца (теоретически предел временного разрешения определяется размером самого импульса 100 фс). Во-вторых, поток когерентного излучения РЛСЭ на много порядков превышает величину в случае одиночного импульса СИ, что снижает требования к размеру частиц и рентгеновской оптике в целом.

Фазочувствительные методы становятся еще более перспективными, поскольку для излучения жесткого рентгеновского диапазона фазовый сдвиг показателя преломления может быть на порядки величины больше, чем изменение коэффициента поглощения. Использование фазового сдвига особенно важно для биоматериалов, основа которых — легкие элементы с малым числом электронов  $Z$ . Однако сегодня из множества доступных методов КДИ лишь некоторые совместимы с одноимпульсной визуализацией на РЛСЭ. Так, птайкография [72] для нанообъектов и ее интерферометрический аналог на мезо- и макроскопическом уровне [164] не могут быть реализованы в полной мере при использовании одиночных импульсов. Несмотря на то что возможности птайкографии были продемонстрированы для статических образцов [165], а обработка изображений может быть до некоторой степени распараллелена [166], на текущем этапе эксперименты ограничиваются демонстрациями возможностей когерентной дифракционной визуализации [13] и анализом структуры небольших биологических частиц, таких как бактерии или вирусы [167, 168]. Например, уже для эукариотических клеток диаметром более 5 мкм в большинстве



**Рис. 6.** Экспериментальная схема инструмента MID ЕРЛСЭ. Излучение РЛСЭ от ондулятора SASE2 коллимируется набором составных преломляющих линз 1 с фокусным расстоянием  $f$ . Фазовая пластинка 2 используется для коррекции aberrаций оптической системы, генератор задержки 3 — для запуска лазера накачки 4 в соответствии с моментом прихода импульса РЛСЭ. Микрожидкостная струя 5 расположена на расстоянии дефокусировки  $z_{01} = 271.3$  мм. Детектор установлен на расстоянии  $z_{12} = 9670$  мм от струи [155].

случаев не удается выполнить требования из-за избыточной определенности спекл-структуры изображения.

Возможности голографии в ближнем поле были продемонстрированы и в случае изображений, полученных при использовании излучения РЛСЭ [169, 170], но проблемы с флуктуациями интенсивности вследствие случайного характера генерации квантов в РЛСЭ (по сути, усиление дробового шума) и, соответственно, с восстановлением фазы еще до конца не решены.

Отметим, что высокая яркость РЛСЭ позволяет реализовать прежде недоступные методы визуализации дифракционной картины с использованием фотоэлектронов [171], нелинейной рентгеновской физики [172], новые методики контроля поляризации излучения [173].

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотренные методы когерентного дифракционного имиджинга были разработаны и активно развиваются в связи с вводом в строй новых источников СИ 3+ и четвертого поколений и

РЛСЭ, которые благодаря своей яркости, малому эмиттансу и временной структуре открывают новые горизонты для рентгеноструктурных исследований и материаловедения. Несмотря на то что по своему пространственному разрешению (~1–10 нм) эти методы пока не могут сравниться с электронно-микроскопическими аналогами с ангстремным разрешением, неразрушающий характер воздействия и исключительная яркость источников позволяют надеяться на активное развитие именно недифракционных рентгеновских методов и расширение круга исследуемых некристаллических объектов.

В заключение отметим некоторые особенности методов КДИ:

– в связи с использованием импульсных источников и применением фазочувствительных методов особое внимание уделяется контролю волнового фронта и его искажений;

– центр тяжести исследований смещается в область некристаллических образцов (наночастицы, различные биообъекты, такие как ДНК, белки и биомолекулы);

– особое значение приобретают эксперименты с временным разрешением, которое в случае РЛСЭ может достичь 10 фс. К сожалению, современные многопиксельные 2D-детекторы не позволяют работать на таких частотах, поэтому активно развиваются методы типа накачка–зондирование;

– новые возможности детекторов для анализа корреляционных функций в различных пикселях и в различные моменты времени позволяют анализировать данные корреляционных функций с учетом пространственной дисперсии (двухвременные корреляции в многопиксельных наборах данных);

– в целях успешной реализации интерференционных и фазочувствительных экспериментов требуются источники излучения с высокой пространственной и временной когерентностью;

– при изучении биологических объектов и образцов современного “неметаллического” материаловедения возрастает роль излучения мягкого рентгеновского диапазона. Акцент смещается в сторону изучения изображений  $K$ -краев поглощения легких атомов (С, N, O), а сам процесс рассеяния происходит без дифракции.

Развитие рентгеновской структурной нанодиагностики в следующем десятилетии будет определяться главным образом переходом к современным установкам класса “мегасайенс”, источником СИ четвертого поколения и РЛСЭ. В Российской Федерации запланировано строительство ряда мегаустановок, включая источник “СИЛА”, и реконструкция источника СИ “КИ-СИ-Курчатов”. В силу сказанного выше формирование и развитие научно-методической базы

для реализации исследований с применением современных методов КДИ становится важной задачей для обеспечения конкурентных возможностей российского научного сообщества в области рентгеноструктурных исследований в ближайшем будущем.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 18-29-15007\_мк, 19-29-12043\_мк) и при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках государственного задания ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ковальчук М.В. // Кристаллография. 2014. Т. 59. № 6. С. 861.  
<https://doi.org/10.7868/S0023476114060150>
2. Ковальчук М.В. // Кристаллография. 2011. Т. 56. № 4. С. 581.
3. Вайнштейн Б.К. Дифракция рентгеновых лучей на цепных молекулах. М.: Изд-во АН СССР, 1963. 371 с.
4. Вайнштейн Б.К. // ЖЭТФ. 1954. Т. 27. С. 44.
5. Вайнштейн Б.К. // УФН. 1966. Т. 88. Вып. 3. С. 527.
6. Куранова И.П. // Кристаллография. 2001. Т. 46. № 4. С. 667.
7. Ковальчук М.В., Попов В.О. // Наука в России. 2013. Т. 195. № 3. С. 4.
8. Куранова И.П., Ковальчук М.В. // Природа. 2014. Т. 1183. № 3. С. 12.
9. Sayre D. Prospects for Long-Wavelength X-Ray Microscopy and Diffraction // Imaging Processes and Coherence in Physics. Lecture Notes in Physics. V. 112 / Ed. Schlenker M. et al. Berlin–Heidelberg: Springer, 1980.  
[https://doi.org/10.1007/3-540-09727-9\\_82](https://doi.org/10.1007/3-540-09727-9_82)
10. Bernal J., Crowfoot D. // Nature. 1934. V. 133. P. 794.  
<https://doi.org/10.1038/133794b0>
11. Bluhm M.M., Bodo G., Dintzis H.M. et al. // Proc. Roy. Soc. A. 1958. V. 246. P. 369.  
<https://doi.org/10.1098/rspa.1958.0145>
12. Yun W.B., Kirz J., Sayre D. // Acta Cryst. A. 1987. V. 43. P. 131.  
<https://doi.org/10.1107/S0108767387099744>
13. Miao J., Charalambous P., Kirz J. et al. // Nature. 1999. V. 400. P. 342.  
<https://doi.org/10.1038/22498>
14. Miao J., Ishikawa T., Robinson I.K. et al. // Science. 2015. V. 348. № 6234. P. 530.  
<https://doi.org/10.1126/science.aaa1394>
15. Mancuso A.P., Yefanov O.M., Vartanyants I.A. // J. Biotechnol. 2010. V. 149. № 4. P. 229.  
<https://doi.org/10.1016/j.jbiotec.2010.01.024>
16. Chapman H.N., Nugent K.A. // Nature Photonics. 2010. V. 4. P. 833.  
<https://doi.org/10.1038/nphoton.2010.240>

17. Стратегия научно-технологического развития Российской Федерации. <http://static.kremlin.ru/media/acts/files/0001201612010007.pdf>
18. *Lo Y.H., Zhao L., Gallagher-Jones M. et al.* // Nature Commun. 2018. V. 9. P. 1826. <https://doi.org/10.1038/s41467-018-04259-9>
19. [https://www.esrf.fr/Apache\\_files/Upgrade/ESRF-orange-book.pdf](https://www.esrf.fr/Apache_files/Upgrade/ESRF-orange-book.pdf)
20. <https://www.esrf.fr/files/live/sites/www/files/about/upgrade/documentation/Design%20Report-reduced-jan19.pdf>
21. *Schroer C.G., Agapov I., Brefeld W. et al.* // J. Synchr. Rad. 2018. V. 25. № 5. P. 1277. <https://doi.org/10.1107/S1600577518008858>
22. <https://bib-pubdb1.desy.de/record/426140/files/DE-SY-PETRAIV-Conceptual-Design-Report.pdf>
23. <https://www.aps.anl.gov/APS-Upgrade/Documents>
24. *Благов А.Е.* // В мире науки. 2020. № 1–2. <https://sciam.ru/articles/details/nazad-v-budushhee>
25. *Лудер В.В., Ковальчук М.В.* // Кристаллография. 2013. Т. 58. С. 764. <https://doi.org/10.7868/S0023476113050068>
26. *Лудер В.В.* // Успехи физ. наук. 2015. Т. 185. С. 393. <https://doi.org/10.3367/UFNr.0185.201504d.0393>
27. *Kohn V.G., Folomeshkin M.S.* // J. Synchr. Rad. 2021. V. 28. № 2. P. 419.
28. *Aristov V.V., Grigoriev M.V., Kuznetsov S.M. et al.* // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 77. P. 4058. <https://doi.org/10.1063/1.1332401>
29. *Waldman G.S.* // J. Opt. Soc. Am. 1966. V. 56. P. 215. <https://doi.org/10.1364/JOSA.56.000215>
30. Рентгеновская оптика и микроскопия / Ред. Шмаль Г., Рудольф Д. М.: Мир, 1987. 464 с.
31. *Horman H., Chau H.M.* // Appl. Opt. 1967. V. 6. № 2. P. 317. <https://doi.org/10.1364/AO.6.000317>
32. *Ice G.E., Budai J.D., Pang J.W.L.* // Science. 2011. V. 334. P. 1234. <https://doi.org/10.1126/science.1202366>
33. *Jiang H., Song Ch., Chen Ch. et al.* // Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 2010. V. 107. P. 11234. <https://doi.org/10.1073/pnas.1000156107>
34. *Miao J.W., Hodgson K.O., Ishikawa T. et al.* // Proc. Natl. Acad. Sci. Am. 2003. V. 100. № 1. P. 110. <https://doi.org/10.1073/pnas.232691299>
35. *Nishino Y., Takahashi Y., Imamoto N. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2009. V. 102. № 018101. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.018101>
36. *Shapiro D., Thibault P., Beetz T. et al.* // Proc. Natl. Acad. Sci. USA. 2005. V. 102. P. 15343. <https://doi.org/10.1073/pnas.0503305102>
37. *Marvin Seibert M., Boutet S., Svenda M. et al.* // J. Phys. B. 2010. V. 43. № 194015. <https://doi.org/10.1088/0953-4075/43/19/194015>
38. *Giewekemeyer K., Thibault P., Kalbfleisch S. et al.* // Proc. Natl. Acad. Sci. USA. 2010. V. 107. P. 529. <https://doi.org/10.1073/pnas.0905846107>
39. *Song C., Jiang H., Mancuso A. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2008. V. 101. № 158101. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.158101>
40. *Seibert M., Ekeberg T., Maia F. et al.* // Nature. 2011. V. 470. P. 78. <https://doi.org/10.1038/nature09748>
41. *Shapiro D., Yu Y.S., Tylliszczak T. et al.* // Nature Photon. 2014. V. 8. P. 765. <https://doi.org/10.1038/nphoton.2014.207>
42. *Song C., Bergstrom R., Ramunno-Johnson D. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2008. V. 100. № 2. P. 025504. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.025504>
43. *Tripathi A., Mohanty J., Dietze S.H. et al.* // Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 2011. V. 108. P. 13393. <https://doi.org/10.1073/pnas.1104304108>
44. *Newton M., Leake S., Harder R. et al.* // Nature Mater. 2010. V. 9. P. 120. <https://doi.org/10.1038/nmat2607>
45. *Chapman H., Barty A., Bogan M. et al.* // Nature Phys. 2006. V. 2. P. 839. <https://doi.org/10.1038/nphys461>
46. *Thibault P., Dierolf M., Menzel A. et al.* // Science. 2008. V. 321. P. 379. <https://doi.org/10.1126/science.1158573>
47. *Pfeifer M., Williams G., Vartanyants I. et al.* // Nature. 2006. V. 442. P. 63. <https://doi.org/10.1038/nature04867>
48. *Robinson I., Harder R.* // Nature Mater. 2009. V. 8. P. 291. <https://doi.org/10.1038/nmat2400>
49. *Robinson I.K., Vartanyants I.A., Williams G.J. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 87. P. 195505. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.87.195505>
50. *Nugent K.A., Peele A.G., Quiney H.M. et al.* // Acta Cryst. A. 2005. V. 61. P. 373. <https://doi.org/10.1107/S010876730501055X>
51. *Pitts T.A., Greenleaf J.F.* // IEEE Trans. Ultrason Ferroelectr. Freq. Control. 2003. V. 50. P. 1035. <https://doi.org/10.1109/tuffc.2003.1226547>
52. *Williams G.J., Quiney H.M., Dhal B.B. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 97. № 2. P. 025506. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.025506>
53. *Abbey B., Nugent K., Williams G. et al.* // Nature Phys. 2008. V. 4. P. 394.
54. *Bates R.H.T.* // Optik. 1982. V. 61. P. 247.
55. *Bates R.H.T.* // Computer Vision, Graphics, and Image Processing. 1984. V. 25. № 2. P. 205. [https://doi.org/10.1016/0734-189X\(84\)90103-8](https://doi.org/10.1016/0734-189X(84)90103-8)
56. *Бейтс Р., Мак-Доннелл М.* Восстановление и реконструкция изображений. М.: Мир, 1989. 336 с.
57. *Millane R.P.* // J. Opt. Soc. Am. A. 1996. V. 13. P. 725. <https://doi.org/10.1364/JOSAA.13.000725>
58. *Gerchberg R.W., Saxton O.* // Optik. 1972. V. 35. P. 237.
59. *Fienup J.R.* // Opt. Lett. 1978. V. 3. P. 27. <https://doi.org/10.1364/OL.3.000027>
60. *Fienup J.R.* // Appl. Opt. 1982. V. 21. P. 2758. <https://doi.org/10.1364/AO.21.002758>
61. *Elser V.* // J. Opt. Soc. Am. A. 2003. V. 20. P. 40. <https://doi.org/10.1364/JOSAA.20.000040>
62. *Marchesini S.* // Rev. Sci. Instrum. 2007. V. 78. № 1. P. 049901. <https://doi.org/10.1063/1.2403783>

63. *Chen C.-C., Miao J., Wang C.W. et al.* // Phys. Rev. B. 2007. V. 76. № 6. P. 064113.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.76.064113>
64. *Dierolf M., Bunk O., Kynde S. et al.* // Europhys. News. 2008. V. 39. № 1. P. 22.  
<https://doi.org/10.1051/eprn:2008003>
65. *Pfiffer F.* // Nature Photon. 2018. V. 12. P. 9.  
<https://doi.org/10.1038/s41566-017-0072-5>
66. *Hoppe W.* // Acta Cryst. A. 1969. V. 25. P. 495.  
<https://doi.org/10.1107/S0567739469001045>
67. *Rodenburg J.M., Bates R.H.T.* // Philos. Trans. R. Soc. A. 1992. V. 339. P. 521.
68. *Nellist P.D., McCallum B.C., Rodenburg J.M.* // Nature. 1995. V. 374. P. 630.  
<https://doi.org/10.1038/374630a0>
69. *Chapman H.N.* // Ultramicroscopy. 1996. V. 66. P. 153.  
[https://doi.org/10.1016/S0304-3991\(96\)00084-8](https://doi.org/10.1016/S0304-3991(96)00084-8)
70. *Faulkner H.M.L., Rodenburg J.M.* // Phys. Rev. 2004. V. 93. № 2. P. 023903.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.93.023903>
71. *Rodenburg J.M., Faulkner H.M.L.* // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 85. P. 4795.  
<https://doi.org/10.1063/1.1823034>
72. *Rodenburg J.M., Hurst A.C., Cullis A.G. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2007. V. 98. № 3. P. 034801.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.034801>
73. *Thibault P., Dierolf M., Menzel A. et al.* // Science. 2008. V. 321 (5887). P. 379.  
<https://doi.org/10.1063/1.3332591>
74. *Schropp A., Boye P., Feldkamp J.M. et al.* // Appl. Phys. Lett. 2010. V. 96. № 9. P. 091102.  
<https://doi.org/10.1063/1.3332591>
75. *Godard P., Carbone G., Allain M. et al.* // Nature Comm. 2011. V. 2. P. 568.  
<https://doi.org/10.1038/ncomms1569>
76. *Takahashi Y., Zetsu N., Nishino Y. et al.* // Nano Lett. 2010. V. 10. P. 1922.  
<https://doi.org/10.1021/nl100891n>
77. *Holler M., Guizar-Sicairos M., Tsai E. et al.* // Nature. 2017. V. 543. P. 402.  
<https://doi.org/10.1038/nature21698>
78. *Giewekemeyer K., Pierre Thibault P., Kalbfleisch S. et al.* // Proc. Natl. Acad. Sci. USA. 2010. V. 107. P. 529.  
<https://doi.org/10.1073/pnas.0905846107>
79. *Dierolf M., Menzel A., Thibault P. et al.* // Nature. 2010. V. 467. P. 436.  
<https://doi.org/10.1038/nature09419>
80. *Rodenburg J.M.* // Adv. Imag. Elect. Phys. 2008. V. 150. P. 87.  
[https://doi.org/10.1016/S1076-5670\(07\)00003-1](https://doi.org/10.1016/S1076-5670(07)00003-1)
81. *Tsai E.H.R., Usov I., Diaz A. et al.* // Opt. Express. 2016. V. 24. P. 29089.  
<https://doi.org/10.1364/OE.24.029089>
82. *Kak A.C., Slaney M.* Algorithms for Reconstruction with Nondiffracting Sources in Principles of Computerized Tomographic Imaging. Ch. 3 / Ed. Kak A.C. IEEE, 1989.
83. *Cowley J.M., Moodie A.F.* // Acta. Cryst. A. 1957. V. 10. P. 609.  
<https://doi.org/10.1107/S0365110X57002194>
84. *Li P., Maiden A.* // Sci Rep. 2018. V. 8. P. 2049.  
<https://doi.org/10.1038/s41598-018-20530-x>
85. *Maiden A.M., Rodenburg J.M.* // Ultramicroscopy. 2009. V. 109. P. 1256.  
<https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2009.05.012>
86. *Maiden A.M., Humphry M.J., Rodenburg J.M.* // J. Opt. Soc. Am. A. 2012. V. 29. P. 1606.  
<https://doi.org/10.1364/JOSAA.29.001606>
87. *Sun T., Jiang Z., Strzalka J. et al.* // Nature Photon. 2012. V. 6. P. 586.  
<https://doi.org/10.1038/nphoton.2012.178>
88. *Marathe S., Kim S.S., Kim S.N. et al.* // Opt. Express. 2010. V. 18. P. 7253.  
<https://doi.org/10.1364/OE.18.007253>
89. *Roy S., Parks D., Seu K. et al.* // Nature Photon. 2011. V. 5. P. 243.  
<https://doi.org/10.1038/nphoton.2011.11>
90. *Zhang B., Gardner D.F., Seaberg M. et al.* // Ultramicroscopy. 2015. V. 158. P. 98.  
<https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2015.07.006>
91. *Parratt L.G.* // Phys. Rev. 1954. V. 95. P. 359.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRev.95.359>
92. *Sinha S.K., Sirota E.B., Garoff S. et al.* // Phys. Rev. B. 1988. V. 38. P. 2297.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.38.2297>
93. *Jiang Z., Lee D.R., Narayanan S. et al.* // Phys. Rev. B. 2011. V. 84. № 7. P. 075440.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.075440>
94. *Grübel G., Zontone F.* // J. Alloys Compd. 2004. V. 362. № 1–2. P. 3.  
[https://doi.org/10.1016/S0925-8388\(03\)00555-3](https://doi.org/10.1016/S0925-8388(03)00555-3)
95. *Grübel G., Madsen A., Robert A.* // X-ray Photon Correlation Spectroscopy (XPCS) in Soft Matter Characterization / Ed. Borsali R., Pecora B. Heidelberg: Springer, 2008. P. 954.
96. *Sutton M.* // C. R. Phys. 2008. V. 9. № 5–6. P. 657.  
<https://doi.org/10.1016/j.crhy.2007.04.008>
97. *Dierker S.B., Pindak R., Fleming R.M. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 75. № 3. P. 449.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.75.449>
98. *Thurn-Albrecht T., Steffen W., Patkowski A. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1996. V. 77. № 27. P. 5437.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.77.5437>
99. *Lurio L.B., Lumma D., Sandy A.R. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2000. V. 84. № 4. P. 785.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.84.785>
100. *Lumma D., Borthwick M.A., Falus P. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 86. № 10. P. 2042.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.86.2042>
101. *Mochrie S.G.J., Mayes A.M., Sandy A.R. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 78. № 7. P. 1275.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.78.1275>
102. *Falus P., Borthwick M.A., Mochrie S.G.J.* // Phys. Rev. Lett. 2005. V. 94. № 1. P. 016105.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.016105>
103. *Caronna C., Chushkin Y., Madsen A. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2008. V. 100. № 5. P. 055702.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.055702>
104. *Shpyrko O.G., Isaacs E.D., Logan J.M. et al.* // Nature. 2007. V. 447 (7140). P. 68.  
<https://doi.org/10.1038/nature05776>



105. Brauer S., Stephenson G.B., Sutton M. et al. // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 74. № 11. P. 2010.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.74.2010>
106. Leitner M., Sepiol B., Stadler L.-M. et al. // Nat. Mater. 2009. V. 8. № 9. P. 717.  
<https://doi.org/10.1038/nmat2506>
107. Dieker S.B., Pindak R., Fleming R.M. et al. // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 75. P. 449.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.75.449>
108. Mochrie S.G.J., Mayes A.M., Sandy A.R. et al. // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 78. P. 1275.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.78.1275>
109. Brauer S., Stephenson G.B., Sutton M. et al. // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 74. P. 2010.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.74.2010>
110. Cai Z.H., Lai B., Yun W.B. et al. // Phys. Rev. Lett. 1994. V. 73. P. 82.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.73.82>
111. Madsen A., Fluerau A., Ruta B. // Synchrotron Light Sources and Free-Electron Lasers / Ed. Jaeschke E. et al. Cham: Springer, 2018. P. 1617.  
[https://doi.org/10.1007/978-3-319-14394-1\\_29](https://doi.org/10.1007/978-3-319-14394-1_29)
112. Berne B.J., Pecora R. Dynamic Light Scattering with Application to Chemistry, Biology, and Physics. Dover Publications, 2000.
113. Fluerau A., Moussaid A., Madsen A. et al. // Phys. Rev. E. 2007. V. 76. P. 0100401(R).  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevE.76.010401>
114. Inoue I., Shinohara Y., Watanabe A. et al. // Opt. Express. 2012. V. 20. P. 26878.  
<https://doi.org/10.1364/OE.20.026878>
115. DeCaro C., Karunaratne V.N., Bera S. et al. // J. Synchr. Rad. 2013. V. 20. P. 332.  
<https://doi.org/10.1107/S0909049512051825>
116. Li L., Kwas'niewski P., Orsi D. et al. // J. Synchr. Rad. 2014. V. 21. P. 1288.  
<https://doi.org/10.1107/S1600577514015847>
117. Verwohlt J., Reiser M., Randolph L. et al. // Phys. Rev. Lett. 2018. V. 120. P. 168001.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.168001>
118. Möller J., Reiser M., Hallmann J. et al. // J. Synchr. Rad. 2019. V. 26. P. 1705.  
<https://doi.org/10.1107/S1600577519006349>
119. Gutt C., Stadler L.-M., Duri A. et al. // Opt. Express. 2009. V. 17. P. 55.  
<https://doi.org/10.1364/OE.17.000055>
120. Stephenson G.B., Robert A., Grübel G. // Nat. Mater. 2009. V. 8. P. 702.  
<https://doi.org/10.1038/nmat2521>
121. Emma P., Akre R., Arthur et al. // Nat. Photon. 2010. V. 4. P. 641.  
<https://doi.org/10.1038/nphoton.2010.176>
122. Altarelli M. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2011. V. 269. P. 2845.  
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2011.04.034>
123. Ishikawa T., Aoyagi H., Asaka T. et al. // Nat. Photon. 2012. V. 6. P. 540.  
<https://doi.org/10.1038/nphoton.2012.141>
124. Kang H.-S., Min C.-K., Heo H. et al. // Nat. Photon. 2017. V. 11. P. 708.  
<https://doi.org/10.1038/s41566-017-0029-8>
125. Milne C., Schietinger T., Aiba M. et al. // Appl. Sci. 2017. V. 7. P. 720.  
<https://doi.org/10.3390/app7070720>
126. Kam Z. // Macromolecules. 1977. V. 10. P. 927.  
<https://doi.org/10.1021/ma60059a009>
127. Clark N.A., Ackerson B.J., Hurd A.J. // Phys. Rev. Lett. 1983. V. 50. P. 1459.
128. Ackerson B.J., Clark N.A. // Chem. Soc. 1983. V. 76. P. 219.
129. Wochner P., Gutt C., Autenrieth T. et al. // Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 2009. V. 106. P. 11511.  
<https://doi.org/10.1073/pnas.0905337106>
130. Altarelli M., Kurta R.P., Vartanyants I.A. // Phys. Rev. B. 2010. V. 82. P. 104207.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.82.104207>
131. Kurta R.P., Altarelli M., Weckert E. et al. // Phys. Rev. B. 2012. V. 85. P. 184204.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.184204>
132. Lehmkuhler F., Grübel G., Gutt C. // J. Appl. Cryst. 2014. V. 47. P. 1315.  
<https://doi.org/10.1107/S1600576714012424>
133. Latychevskaia T., Mancini G.F., Carbone F. // Sci. Rep. 2015. V. 5. P. 16573.  
<https://doi.org/10.1038/srep16573>
134. Schroer M.A., Westermeier F., Lehmkuhler F. et al. // J. Chem. Phys. 2016. V. 144. P. 084903.  
<https://doi.org/10.1063/1.4941563>
135. Schroer M.A., Gutt C., Grübel G. // Phys. Rev. E. 2014. V. 90. P. 012309.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevE.90.012309>
136. Zaluzhnyy I.A., Kurta R.P., Sulyanova E.A. et al. // Soft Matter. 2017. V. 13. P. 3240.  
<https://doi.org/10.1039/C7SM00343A>
137. Zaluzhnyy I., Kurta R.P., André A. et al. // Nano Lett. 2017. V. 17. № 6. P. 3511.  
<https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.7b00584>
138. Kurta R.P., Grodd L., Mikayelyan E. et al. // Phys. Chem. Chem. Phys. 2015. V. 17. P. 7404.  
<https://doi.org/10.1039/C5CP00426H>
139. Seu K.A., Roy S., Su R. et al. // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 98. P. 122505.  
<https://doi.org/10.1063/1.3569952>
140. Starodub D., Aquila A., Bajt S. et al. // Nature Commun. 2012. V. 3. P. 1276.  
<https://doi.org/10.1038/ncomms2288>
141. Pedrini B., Menzel A., Guizar-Sicairos M. et al. // Nature Commun. 2013. V. 4. P. 1647.  
<https://doi.org/10.1038/ncomms2622>
142. Sheyfer D. Structure and Dynamics of Glass-Forming Fluids. Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades an der Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften, Fachbereich Physik der Universität Hamburg (2017).
143. Madsen A., Hallmann J., Ansaldi G. et al. // J. Synchr. Rad. 2021. V. 28. № 2. P. 637.  
<https://doi.org/10.1107/S1600577521001302>
144. Ayer K., Xavier L., Bielecki J. et al. // Optica. 2021. V. 8. P. 15.  
<https://doi.org/10.1364/OPTICA.410851>

145. Mandl T., Östlin C., Dawod I.E. et al. // J. Phys. Chem. Lett. 2020. V. 11. № 15. P. 6077.  
<https://doi.org/10.1021/acs.jpcllett.0c01144>
146. Wiedorn M.O., Oberthür D., Bean R. et al. // Nature Commun. 2018. V. 9. № 1. P. 4025.  
<https://doi.org/10.1038/s41467-018-06156-7>
147. Mukharamova N., Lazarev S., Meijer J.-M. et al. // Sci. Rep. 2020. V. 10. № 1. P. 10780.  
<https://doi.org/10.1038/s41598-020-67214-z>
148. Rupp D., Flückiger L., Adolph M. et al. // Struct. Dyn. 2020. V. 7. № 3. P. 034303.  
<https://doi.org/10.1063/4.0000006>
149. Sobolev E., Zolotarev S., Giewekemeyer K. et al. // Commun. Phys. 2020. V. 3. P. 97.  
<https://doi.org/10.1038/s42005-020-0362-y>
150. Bielecki J., Maia F.R.N.C., Mancuso A.P. et al. // Struct. Dyn. 2020. V. 7. № 4. P. 040901.  
<https://doi.org/10.1063/4.0000024>
151. Möller J., Sprung M., Madsen A. et al. // IUCrJ. 2019. V. 6. № 5. P. 1.  
<https://doi.org/10.1107/S2052252519008273>
152. Kärcher V., Roling S., Samoylova L. et al. // J. Synchr. Rad. 2021. V. 28. № 1. P. 350.  
<https://doi.org/10.1107/S1600577520014563>
153. Seaberg M., Cojocaru R., Berujon S. et al. // J. Synchr. Rad. 2019. V. 26. № 4. P. xl5031.  
<https://doi.org/10.1107/S1600577519005721>
154. Polikarpov M., Bourenkov G., Snigireva I. et al. // Acta Cryst. D. 2019. V. 75. № 11. P. 947.  
<https://doi.org/10.1107/S2059798319011379>
155. Hagemann J., Vassholz M., Hoeppe H. et al. // J. Synchr. Rad. 2021. V. 28. № 1. P. 52.  
<https://doi.org/10.1107/S160057752001557X>
156. Makita M., Seniutinas G., Seaberg M.H. et al. // Optica. 2020. V. 7. № 5. P. 404.  
<https://doi.org/10.1364/OPTICA.390601>
157. David C., Gorelick S., Rutishauser S. et al. // Sci. Rep. 2011. V. 1. P. 57.  
<https://doi.org/10.1038/srep00057>
158. Lengeler B., Schroer C.G., Kuhlmann M. et al. // J. Phys. D. 2005. V. 38. P. A218.  
<https://doi.org/10.1088/0022-3727/38/10A/042>
159. Chapman H.N., Coleman C., Timneanu N. // Philos. Trans. R. Soc. B. 2014. V. 369. P. 20130313.  
<https://doi.org/10.1098/rstb.2013.0313>
160. Allahgholi A., Becker J., Delfs A. et al. // J. Synchr. Rad. 2019. V. 26. № 1. P. 74.  
<https://doi.org/10.1107/S1600577518016077>
161. Lu W., Friedrich B., Noll T. et al. // Rev. Sci. Instrum. 2018. V. 89. P. 063121.  
<https://doi.org/10.1063/1.5027071>
162. Li H., Sun Y., Sutton M. et al. // Opt. Lett. 2020. V. 45. P. 2086.  
<https://doi.org/10.1364/OL.389977>
163. Sun Y., Wang N., Song S. et al. // Opt. Lett. 2019. V. 44. P. 2582.  
<https://doi.org/10.1364/OL.44.002582>
164. Weitkamp T., Diaz A., David C. et al. // Opt. Express. 2005. V. 13. P. 6296.  
<https://doi.org/10.1364/OPEX.13.006296>
165. Sala S., Daurer B. J., Odstrcil M. et al. // J. Appl. Cryst. 2020. V. 53. P. 949.  
<https://doi.org/10.1107/S1600576720006913>
166. Hirose M., Higashino T., Ishiguro N. et al. // Opt. Express. 2020. V. 28. P. 1216.  
<https://doi.org/10.1364/OE.378083>
167. Sobolev E., Zolotarev S., Giewekemeyer K. et al. // Commun. Phys. 2019. V. 3. P. 97.  
<https://doi.org/10.1038/s42005-020-0362-y>
168. Robinson I., Schwenke J., Yusuf M. et al. // J. Phys. B. 2015. V. 48. P. 244007.  
<https://doi.org/10.1088/0953-4075/48/24/244007>
169. Seiboth F., Fletcher L.B., McGonegle D. et al. // Appl. Phys. Lett. 2018. V. 112. P. 221907.  
<https://doi.org/10.1063/1.5031907>
170. Vagovic P., Sato T., Mikes L. et al. // Optica. 2019. V. 6. P. 1106.  
<https://doi.org/10.1364/OPTICA.6.001106>
171. Kastirke G., Schöffler M.S., Weller M. et al. // Phys. Rev. X. 2020. V. 10. № 2. P. 021052.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevX.10.021052>
172. Eichmann U., Rottke H., Meise S. et al. // Science. 2020. V. 369 (6511). P. 1630.  
<https://doi.org/10.1126/science.abc2622>
173. Serkez S., Trebushinin A., Veremchuk M. et al. // Phys. Rev. Accel. Beams. 2019. V. 22. № 11. P. 110705.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevAccelBeams.22.110705>