

# Röntgen-Interface-Radiographie im Dunkelfeld

Andreas KUPSCH, Manfred P. HENTSCHEL, Axel LANGE, Bernd R. MÜLLER  
BAM Bundesanstalt für Materialforschung und –prüfung, 12200 Berlin

**Kurzfassung.** Es wird ein Verfahren zur Röntgenabbildung schwach absorbierender Objekte vorgestellt. Als kontrastgebender Effekt wird die Röntgenrefraktion an Ober- und Grenzflächen ausgenutzt. Zur Erzeugung eines sogenannten Dunkelfeldes wird ein schwach gekrümmter Transmissionseinkristall eingesetzt, der lokal, d.h. in einem kleinen Ausschnitt des Einstrahlquerschnitts, die Bragg-Bedingung erfüllt. Innerhalb dieser Zone erscheinen die durch Refraktion abgelenkten Strahlkomponenten als hell leuchtende Interface-Strukturen. Die Synthese mehrerer Dunkelfeldstreifen ergibt hochaufgelöste 2D-Abbildungen am Beispiel von biologischen und technischen Mikrostrukturen.

## Einführung

Spektakuläre Meldungen aus Synchrotron-Großforschungsinstituten über eine Vielzahl neuartiger radiologischer Abbildungsmethoden in den vergangenen zwei Jahrzehnten betreffen vor allem die Kontrasterhöhung schwach absorbierender Mikro- und Nanostrukturen durch Ausnutzung der Röntgenbrechung [1] an ihren Grenzflächen. Die Techniken umfassen u.a. Diffraction Enhanced Imaging (DEI, [2, 3]), „Phasenkontrast“-Abbildungen [4, 5], Talbot-Lau-Abbildungen [6-8], Refraction Enhanced Imaging (REI, [9, 10]) und beruhen sämtlich auf einer gezielten Nutzung der Strahlablenkung im Kleinwinkelbereich ( $2\theta < 1^\circ$ ).

Die hier beschriebene Dunkelfeld-Radiographie ist eine Variante des letztgenannten REI-Verfahrens mit Besonderheiten, die im experimentellen Teil beschrieben werden. Der Begriff „Dunkelfeld“ wird in der Licht- oder Elektronenmikroskopie verwendet, um die Ausblendung des direkten Strahlengangs zu bezeichnen. Herkömmliche radiographische Aufnahmen erfolgen auf direktem Durchstrahlungsweg, also im Hellfeld. Besteht jedoch die Anforderung, Proben geringer Dichte (z.B. Polymere) mittels Durchstrahlung zu charakterisieren, ist der Absorptionskontrast zu gering, um Probendetails aufzulösen zu können. Häufig wird in solchen Fällen die Neutronendurchstrahlung vorgezogen.

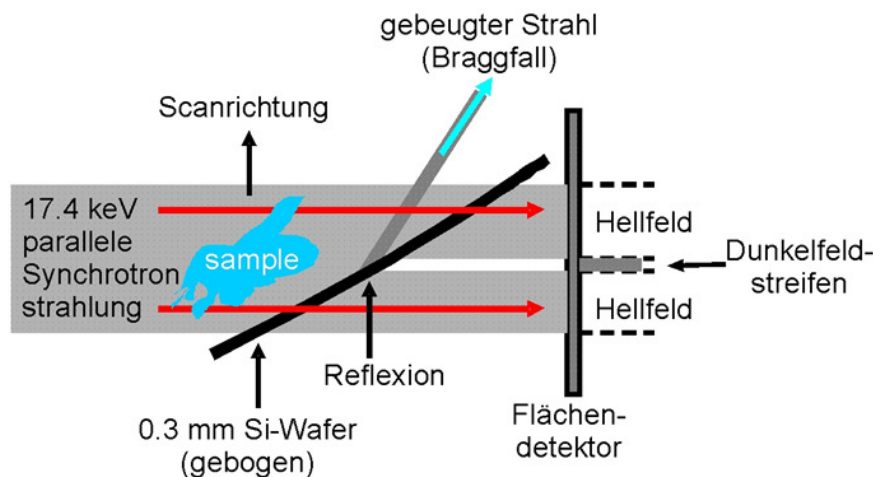
Hier wird gezeigt, dass mit Röntgenstrahlen durch geeignete Diskriminierung innere und äußere Strukturen sichtbar gemacht werden können. Typische Anwendungsfälle sind Kunststoffe, Komposite (GFK, CFK), aber auch biologische Proben.

## Experimentelles

Die vorgestellten Experimente wurden an der BAMline [11, 12] des Berliner Synchrotronstrahlungsringes BESSY durchgeführt. Die einfallende, annähernd parallele Strahlung wird mit einem Doppelkristallmonochromator (Si (111)) auf eine Bandbreite von 0.01% beschnitten. Die nominelle Mittenenergie wurde zu 17.4 keV gewählt.

Abb.1 illustriert das Prinzip der Dunkelfeldradiographie für eine starre Kombination aus Analysatorkristall und Probe: Ein dünner, gekrümmter Einkristall (Si-Wafer von 0.3 mm Dicke) erfüllt die Bragg-Bedingung nur lokal. In der Projektion dieses Ortes wird im Primärstrahl eine verminderte Transmission (hier: 10 % der Transmission im Hellfeld) beobachtet; dies wird als *Dunkelfeld* bezeichnet. Abseits der Reflexionsorte verhält sich der Kristall wie ein herkömmlicher Absorber; dies wird als *Hellfeld* bezeichnet.

Tatsächlich ist der Kristall kontinuierlich gekrümmt. Er erfüllt also die Reflexionsbedingung nur an einem Ort ideal; in der Umgebung dieses Ortes wird die lokale Darwin-Prins-Rocking-Curve des Kristalls abgetastet; die Winkelfehlweisung wird (vertikal) auf den Detektor abgebildet. Bei einer Detektorpixelgröße von 7.3  $\mu\text{m}$  erstreckt sich der Dunkelfeldstreifen im gegebenen Beispiel über 40 Pixel, also etwa 300  $\mu\text{m}$ . Die Messzeit pro Einzelaufnahme beträgt 12 Sekunden.



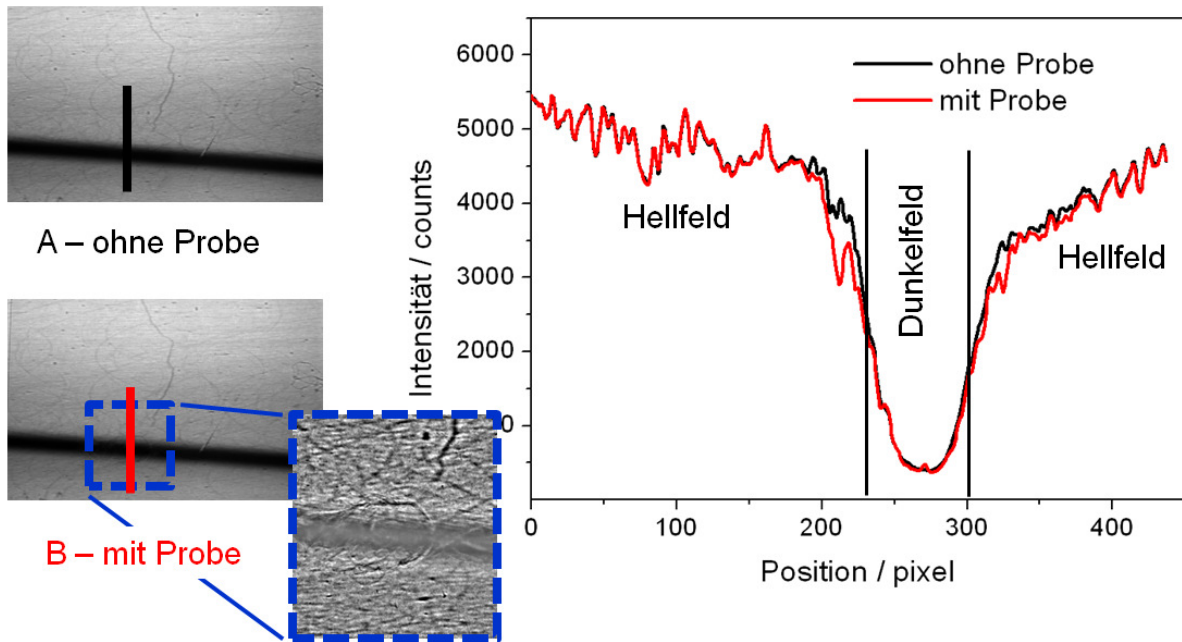
**Abb. 1:** Prinzip der Röntgen-Dunkelfeld-Abbildung: der gekrümmte Kristall erzeugt ein lokales Dunkelfeld (Streifen), in dessen Mitte die Bragg-Bedingung für den gewählten Reflex am besten erfüllt ist. Jenseits dieses Streifens (d.h. im Hellfeld) wirkt der Kristall wie ein herkömmlicher Absorber.

## Bildsynthese im Dunkelfeld

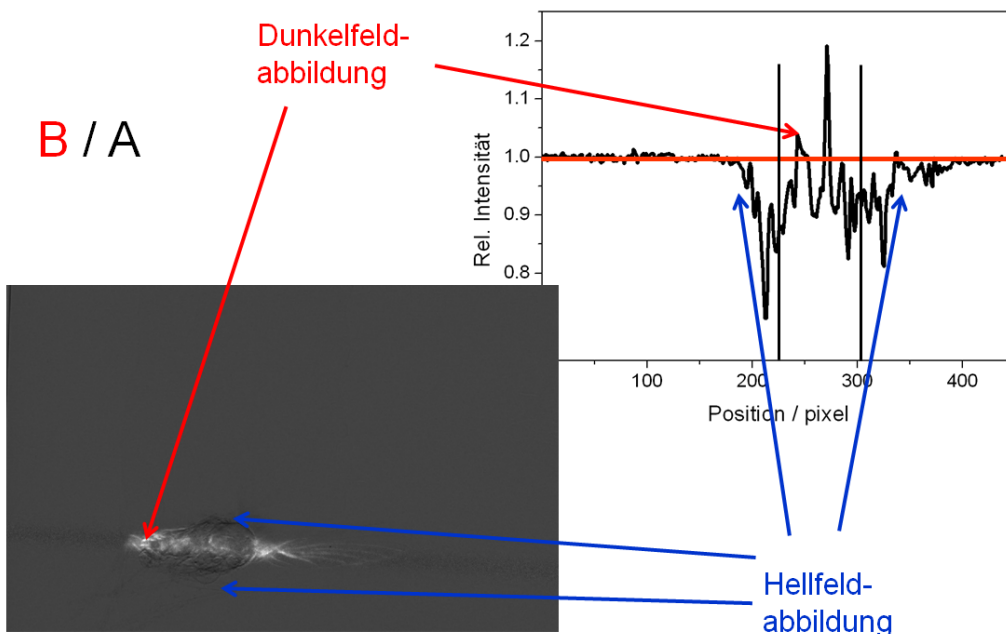
Als Testobjekt für die folgenden Betrachtungen wurde ein Taufliege (*drosophila melanogaster*) gewählt. Die Probe erstreckt sich über einen Bildbereich von etwa  $3 \times 3.5 \text{ mm}^2$ . Abb. 2 (links) zeigt Messbilder in Dunkelfeldaufstellung ohne (Leermessung) und mit Probe, die zunächst keine beobachtbaren Unterschiede aufweisen. Die Ausschnittsvergrößerung mit erhöhtem Kontrast lässt die Umrisse der Fliege (dunkel) abseits des Streifens schwach erkennen. Vertikale Profile über das Dunkelfeld weisen fernab des Streifens identische Intensitäten auf, im Probenbereich abseits des Streifens eine deutlich verminderte Intensität sowie geringe Intensitätserhöhungen im Dunkelfeld.

Die Verhältnisse verkehren sich ins Gegenteil, wenn die Probenmessung (durch Division) auf die Leermessung mit Dunkelfeldstreifen normiert wird. Die dominierenden Kontraste treten im Dunkelfeld auf (Abb. 3). Der schmale Dunkelfeldstreifen kann nur einen Teil der Probe erfassen. Um ein komplettes Dunkelfeldbild der Probe zu generieren,

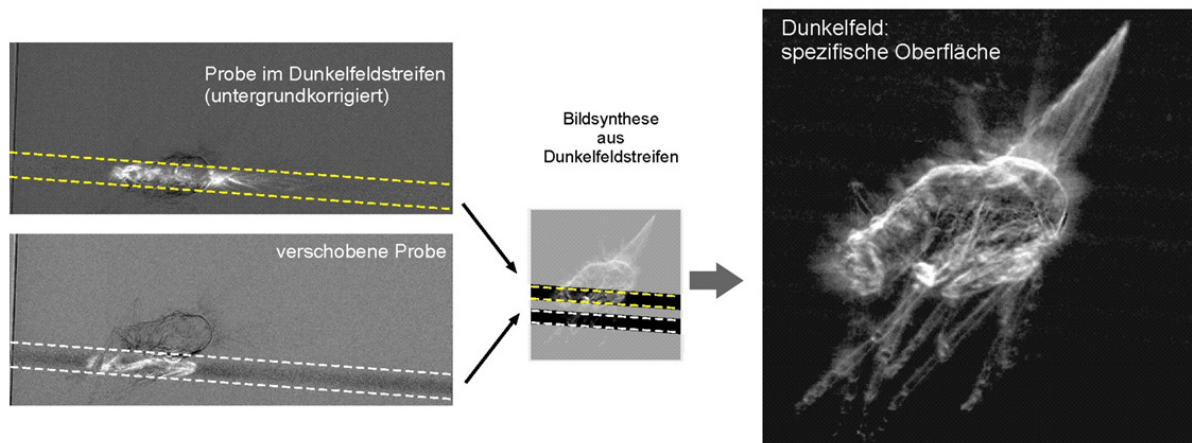
ergibt sich die Notwendigkeit, die Probe durch das Dunkelfeld zu scannen. Ihr Abbild im Dunkelfeld wird gemäß den bekannten Bewegungsparametern zu einem Gesamtbild zusammengesetzt (Abb. 4). Das Inkrement der Probenverschiebung wird dabei so klein gewählt, dass die betroffenen Probenbereiche im Dunkelfeld überlappen, hier ein Zwanzigstel der Streifenbreite (2 Pixel).



**Abb. 2:** Rohbilder mit und ohne Probe in Dunkelfeldaufstellung (links) mit höher kontrastiertem Ausschnitt (blau umrandet), der im Dunkelfeld keine Intensitätsunterschiede und im Hellfeld die Umrisse der Taufliche schwach erkennen lässt; Profile entlang der links angegebenen Linien über den Bereich des Dunkelfeldes (rechts).



**Abb. 3:** Der Quotient aus Proben- und Leermessung liefert die untergrundnormierte Abbildung: im Hellfeld erscheinen die Umrisse der Taufliche dunkel, im Dunkelfeldstreifen erscheinen die Grenz- und Oberflächen hell. Das Profil durch die normierte Abbildung gibt positive und negative Ausschläge im Dunkelfeld sowie ausschließlich negative Ausschläge im Hellfeld wieder.



**Abb. 4:** Prinzip der Synthese eines Dunkelfeldbildes aus Dunkelfeldstreifen von unterschiedlichen Probenpositionen.

### Bildgebung durch Röntgenrefraktion

Die physikalische Ursache für den Kontrast im Dunkelfeld ist die Brechung (Refraktion) der Röntgenstrahlen an inneren und äußeren Grenzflächen. Der Effekt wurde erstmals 1919 von Stenström [13] nachgewiesen. Er beschreibt die Ablenkung der Strahlung, wenn – wie an Grenzflächen - Unstetigkeiten der Elektronendichte auftreten. Der komplexe Brechungsindex  $n = 1 - \delta + i\beta$  umfasst neben der Absorptionskorrektur  $\beta$  (im Imaginärteil, verantwortlich für die Schwächung) die Dispersionskorrektur  $\delta$  (im Realteil,  $\delta$  liegt in der Größenordnung  $10^{-6}$ ), die in völliger Analogie zur optischen Brechung für eine Strahl**ablenkung** sorgt. Typische Brechungswinkel liegen unterhalb einer Bogenminute.

In Studien, die den sogenannten Phasenkontrast ausnutzen, wird die Ablenkung des Strahls vernachlässigt. Als kontrastgebender Effekt wird lediglich die *Phasenschiebung* einer Röntgenwelle an Grenzflächen angegeben, die ihre Richtung nicht ändert. Dass jedoch der „Phasenkontrast“ mit wachsendem Probe-Detektor-Abstand wächst, ist aus einfachen Überlegungen rein geometrisch auf die bessere Separation von gebrochener (abgelenkter!) und Primärstrahlung zurückzuführen. Als Besonderheit ist anzumerken, dass der Realteil des Brechungsindex kleiner als Eins ist, mithin die Strahlung beim Übergang von Vakuum in Materie vom Lot „weggebrochen“ wird. Bei Röntgenbrechung an einem konvexen Objekt treten nennenswerte Brechungswinkel also nur bei tangentialer Einstrahlung auf, und die Umlagerung der Intensität erfolgt „nach außen“.

In der hier vorgestellten Messanordnung bewirkt die Richtungsänderung der Strahlung, dass im Dunkelfeldbereich die Bragg-Bedingung *lokal* besser oder gar schlechter erfüllt wird. Die gemessene Intensität liegt also ober- oder unterhalb des Niveaus ohne Wechselwirkung mit der Probe (wie in Abb. 6 gezeigt).

Das Prinzip der Röntgendunkelfeldabbildung wird in der Literatur erstmals 1995 von Ingal & Beliaevskaya [9] beschrieben. Ab 2002 wurde es von einer japanischen Gruppe um Ando und Maksimenko (z.B. [10]) aufgegriffen und gezielt in Richtung medizinischer und tomographischer Anwendungen verfeinert.

Von den genannten Arbeiten unterscheidet sich die hier vorgestellte Messanordnung in mindestens drei Punkten:

- (i) die Primärstrahlung wird *nicht* (mittels eines asymmetrisch geschnittenen Kristalls [14]) aufgeweitet und damit nochmals monochromatisiert und parallelisiert
- (ii) die Krümmung des Kristalls führt zu einem lokalen Dunkelfeld, das ein Kontinuum von Beugungswinkeln wiedergibt

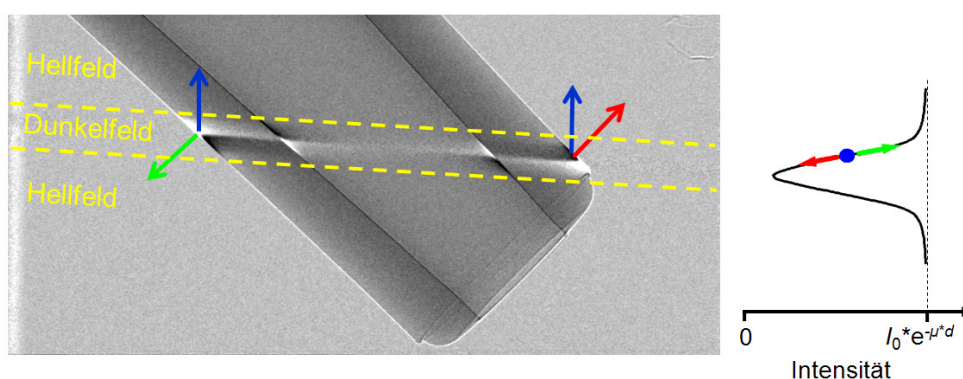
- (iii) der Kristall wird im Bragg-Fall („Rückreflexion“) betrieben, wodurch die extreme Empfindlichkeit der Reflektivität als Funktion der Kristalldicke (wie im Laue-Fall, z.B. [10]) aufgehoben ist

## Anwendungen

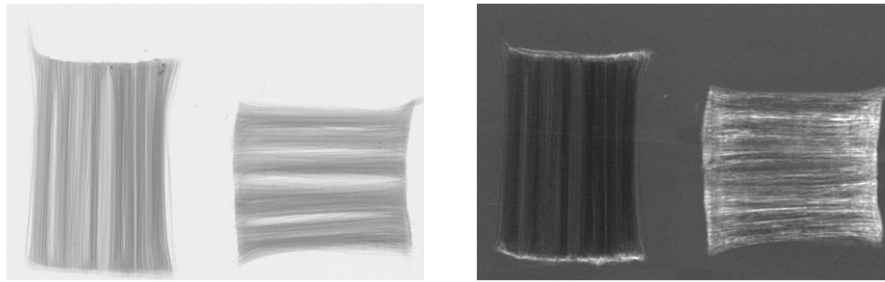
Abseits von biologischen Proben, die stets schwach absorbieren, eröffnet das dargestellte Messverfahren Perspektiven für Anwendungen in der zerstörungsfreien Materialprüfung bzw. -charakterisierung. Dazu werden hier zwei Beispiele angeführt.

Abb. 5 zeigt das untergrundkorrigierte Messbild der Düse einer medizinischen Spritze, die als Hohlkonus aufgefasst werden kann. Im Hellfeld sind die Prinzipien der Brechung an konvexen und konkaven Oberflächen als Intensitätserhöhung (außen) und –absenkung (innen) direkt ablesbar. Im Dunkelfeld steht die Orientierung der Oberflächen in Konkurrenz zur (durch den Braggreflex) vorgegebenen Streurichtung. In den Flanken des Dunkelfeldes vermindert sich die Intensität, wenn die gebrochene Strahlung die lokale Bragg-Bedingung auf dem Analysekristall besser erfüllt als die Primärstrahlung: es wird „dunkler als dunkel“ (roter Pfeil in Abb. 5). Umgekehrt erhöht sich Intensität, wenn die Richtung der gebrochenen Strahlung noch weiter aus dem Zentrum der Rocking Curve ausgerückt ist, als es lokal für die Primärstrahlrichtung der Fall ist; der Analysekristall wird „auf Durchlass geschaltet“ (grüner Pfeil in Abb. 5). Dieser Effekt kann in der Metrologie zur präzisen Kantendetektion mit direktem Zugang zur Orientierung der Grenzflächen genutzt werden, wenn leichte Materie mit harter Röntgenstrahlung charakterisiert wird („soft matter / hard X-rays“).

Als zweites Beispiel sind in Abb. 6 unidirektionale Glasfaserkomposite in zwei Orientierungen im Hell- und Dunkelfeld dargestellt. Während im Hellfeld keine auffälligen Unterschiede zu beobachten sind, erscheint im Dunkelfeld die Probe mit liegenden Fasern (parallel zum Dunkelfeldstreifen) deutlich heller. Es wird klar, dass bevorzugt die liegenden Flächen mit einer Normalen in Streurichtung ein Signal erzeugen. Die Anwendungen liegen in der Erkennung stark anisotroper (orientierter) Strukturen wie Rissen, Whiskern oder Nanodrähten.



**Abb. 5:** Untergrundkorrigierte Abbildung der Düse einer medizinischen Spritze in Dunkelfeldaufstellung. Im markierten Dunkelfeldstreifen sind sowohl erhöhte als auch verminderte Intensitäten zu beobachten. Diese geben eine sehr genaue Lokalisierung der Oberflächen und deren relative Orientierung zur Auslenkung aus der Rocking-Curve an.



**Abb. 6:** Synthetisierte Hell- (links) und Dunkelfeldradiographie (rechts) zweier unidirektionaler Glasfaserkomposite in zueinander senkrechten Orientierungen. Während im Hellfeld keine auffälligen Unterschiede zu beobachten sind, erscheint im Dunkelfeld die Probe mit liegenden Fasern (parallel zum Dunkelfeldstreifen) deutlich heller.

## Zusammenfassung

Eine neue Strategie der Dunkelfeldabbildung ist entwickelt und getestet worden.

Ihre Vorteile liegen wegen der ausschließlichen Winkelabhängigkeit (in Konkurrenz zur sogenannten Phasenkontrast-Technik) in der Entfernungsunabhängigkeit bzw. in ihrer *Unabhängigkeit von der Detektorauflösung*. Damit können refraktionsempfindliche Bildgebungssysteme in begrenzter Baugröße ohne Einschränkung der Funktionalität (Kontrastgebung) konstruiert werden. Zudem sind mittels der Krümmung des Analysekrystals die Breite des Dunkelfeldes und die Winkelauflösung der Brechung steuerbar.

Die potentiellen Anwendungen betreffen die präzise Kantendetektion sowie die Bestimmung von Grenzflächenorientierungen in der Metrologie, die Bestimmung der spezifischen Oberfläche zur quantitativen Angabe der orts aufgelösten Defektdichte und die Qualitätssicherung bei der Herstellung von einkristallbasierten Bauteilen wie integrierten Schaltkreisen.

Die Übertragbarkeit der vorgestellten Technik von den idealtypischen Bedingungen (Monochromasie und Parallelität der Strahlung) am Synchrotron auf divergente, polychromatische Laborquellen (Röntgenröhren) ist Gegenstand weiterer Untersuchungen.

## Danksagung

Die Autoren danken dem Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) für finanzielle Unterstützung im Verbundprojekt 3D-Analyse (Laufzeit 2010-2013) unter dem Förderkennzeichen 03MS607D.

## Referenzen:

- [1] M.P. Hentschel, R. Hosemann, A. Lange, B. Uther, R. Brückner: Röntgenkleinwinkelbrechung an Metalldrähten, Glasfäden und hartelastischem Polypropylen, *Acta Cryst. A* **43** (1987) 506-513.
- [2] E. Förster, K. Götz, P. Zaumseil: Double Crystal Diffractometry for the Characterization of Targets for Laser Fusion Experiments. *Kristall und Technik* **15** (1980) 937-945.
- [3] D. Chapman, W. Thomlinson, R. E. Johnston, D. Washburn, E. Pisano, N. Gmür, Z. Zhong, R. Menk, F. Arfelli, and D. Sayers: Diffraction enhanced x-ray imaging, *Phys. Med. Biol.* **42**, (1997) 2015.
- [4] S.W. Wilkins, T.E. Gureyev, D. Gao, A. Pogany, A.W. Stevenson: Phase-contrast imaging using polychromatic hard X-rays, *Nature* **384** (1996) 335-338.
- [5] D. Paganin, S.C. Mayo, T.E. Gureyev, P.R. Miller, S.W. Wilkins: Simultaneous phase and amplitude extraction from a single defocused image of a homogeneous object, *J. Microsc.* **206** (2002) 33-40.
- [6] A. Momose: Phase-sensitive imaging and phase tomography using X-ray interferometers. *Opt. Express* **11**, (2003) 2303-2314.

- [7] F. Pfeiffer, T. Weitkamp, O. Bunk, C. David: Phase retrieval and differential phase-contrast imaging with low-brilliance X-ray sources, *Nature Physics* **2** (2006)258-261.
- [8] I. Manke, N. Kardjilov, R. Schäfer, A. Hilger, M. Strobl, M. Dawson, C. Grünzweig, G. Behr, M. Hentschel, C. David, A. Kupsch, A. Lange, J. Banhart: Three-dimensional imaging of magnetic domains, *Nature Communications* **1** (2010) 125. (doi: 10.1038/ncomms1125)
- [9] V.N. Ingal, E A Beliaevskaya: X-ray plane-wave topography observation of the phase contrast from a non-crystalline object, *J. Phys. D* **28** (1995) 2314-2317.
- [10] M. Ando, A. Maksimenko, H. Sugiyama, W. Pattanasiriwisawa, K. Hyodo, C. Uyama: A Simple X Ray Dark- and Bright-Field Imaging Using Achromatic Laue Optics, *Jpn. J. Appl. Phys., Part 1*, **41** (2002) L1016-L1018.
- [11] W. Görner, M.P. Hentschel, B.R. Müller, H. Riesemeier, M. Krumrey, G. Ulm, W. Diete, U. Klein, R. Frahm: BAMline: The first hard X-ray beamline at BESSY II, *Nucl. Instrum. Meth. A* **467–468** (2001) 703–706.
- [12] A. Rack, S. Zabler, B.R. Müller, H. Riesemeier, G. Weidemann, A. Lange, J. Goebbels, M.P. Hentschel, W. Görner: High resolution synchrotron-based radiography and tomography using hard X-rays at the BAMline (BESSY II). *Nucl. Instrum. Meth. A* **586** (2008) 327–344.
- [13] W. Stenström: Experimentelle Untersuchungen der Röntgenspektrallinien, Dissertation, Universität Lund (1919).
- [14] I. Fankuchen: A Condensing Monochromator for X-Rays. *Nature* **139** (1937) 193-194.