

# Eine Röntgenkleinwinkelkamera ohne Spaltlängenverschmierung, II.

A Small-Angle-Scattering Camera without Slitlength-Error, II.

H. Wawra

Westgasse 18, A-8055 Graz

Z. Naturforsch. **38 c**, 1–6 (1983); received June 11/August 16, 1982

Small-Angle X-ray-Scattering, Fats

A more detailed description of the small-angle-X-ray camera without slitlength-error is given together with a calculation of the beam condition and its influence on different scattering functions. Also the proceeding to measure molecular weights is described and some scattering curves are figured as an example of the equipments efficiency.

## Einleitung

Bei Röntgenkleinwinkelaufnahmen ist die Intensität der abgebeugten Strahlung relativ gering, besonders, wenn für die Erreichung eines höheren Auflösungsvermögens der Querschnitt des Primärstrahles klein gewählt werden muß. Bei fotografischen Aufnahmen kann dieser Nachteil durch entsprechend lange Belichtungszeiten oft kompensiert werden, bei Verwendung von Strahlungsdetektoren müssen jedoch andere Wege beschritten werden. Die Benützung des langen Brennflecks einer Röntgenröhre und die Verwendung eines 'langen' Primärstrahles bei gleichzeitiger Verschmierung der Streukurve ist weit verbreitet [1], es ist jedoch möglich, unverschmierte Beugungsfiguren zu erhalten und gleichzeitig die große Intensität des langen Brennflecks der Röntgenröhre auszunützen, wenn durch eine Vorrichtung zahlreiche dünne Primärstrahlen nach Art der Pinhole-Kamera erzeugt werden. Und zwar in einer Reihe parallel unmittelbar nebeneinander und in solcher Anzahl, daß der lange Brennfleck der Röntgenröhre vollständig ausgenützt wird. Trifft eine solche Schar von parallelen Einzelprimärstrahlen ein Präparat, so erzeugt jeder Strahl eine radialsymmetrische Beugungsfigur. Diese untereinander gleichen Beugungsfiguren durchdringen sich gegenseitig in dem Raum zwischen Präparat und Strahlungsdetektor und es entsteht das Problem, den Registrierteil der Kamera so auszubilden, daß trotzdem eine Streukurve gemessen wird, wie sie der Intensitätsverteilung längs des Radius einer einzelnen Beugungsfigur entspricht.

## Die Kamera

In Abb. 1 ist schematisch in der Draufsicht die Anordnung der wesentlichen Bauteile einer Röntgenkleinwinkelkamera angegeben, welche die geforderten Eigenschaften besitzt [2]. Die Röntgenstrahlung tritt aus dem Röhrenfocus durch das Kanalsystem I hindurch und trifft das Präparat P. Der Summenprimärstrahl wird dabei durch die Blenden  $E_1$ ,  $E_2$  und  $E_3$  in seiner Breite in üblicher Weise begrenzt. Der Registrierteil der Kamera besteht aus dem Detektorspalt Z und dem Kanalsystem II mit dem Strahlungsdetektor, eine Anordnung, die um eine durch das Präparat gehende gedachte Achse schwenkbar ist. Der Registrierteil kann nun durch eine Scan-Vorrichtung aus der Zeichenebene heraus bewegt werden und somit den Beugungswinkelbereich durchfahren. Kanalsystem I zerlegt den in die Kamera eintretenden Röntgenstrahl in zahlreiche

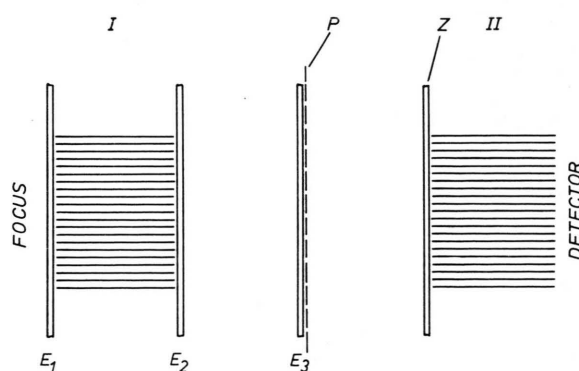


Abb. 1. Schematische Darstellung der wesentlichen Kamerabestandteile in der Draufsicht. Mit I und II sind die beiden Kanalsysteme bezeichnet, P ist das Präparat und Z soll den Detektorspalt darstellen.  $E_1$ ,  $E_2$  und  $E_3$  sind drei zwischen Focus und Präparat angeordnete Blenden für die Begrenzung des Summenprimärstrahles.

Sonderdruckanforderungen an Dr. H. Wawra.

0341-0382/83/0100-0001 \$ 01.30/0



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Teilprimärstrahlen mit etwa quadratischem Querschnitt, ähnliches geschieht mit der von P ausgehenden Präparatstreue durch Zusammenwirken von Kanalsystem II und Detektorspalt Z. System II ist um eine Achse senkrecht zur Zeichenebene schwenkbar, so daß die notwendige Parallelstellung beider Kanalsysteme zueinander möglich wird. Da beide Kanalsysteme senkrecht zur Richtung der Kanäle um etliches größer sind als die Länge des Röhrenbrennflecks beträgt, so ist keine besondere Justierung der Kamera symmetrisch zur Brennfleckmittelnormale erforderlich, die Kamera braucht für den Betrieb nicht einmal senkrecht zu dem Röhrenfokus ausgerichtet sein. Wie ersichtlich, sind auch keine seitlichen Blenden für die Begrenzung des Summenprimärstrahles an seinen Schmalseiten vorhanden, die Eingrenzung wird der Wirkungsweise des Kanalsystems überlassen. Ähnliches gilt auch für den Detektorspalt Z und System II hinsichtlich der Präparatstreue.

### Der Primärstrahl

Die Ermittlung der Intensitätsverteilung eines Primärstrahles in der Registrierebene R erfolgt nach dem in Abb. 2 gezeichneten Strahlengang. Es genügt dafür eine zweidimensionale Betrachtungsweise. Jeder Punkt der Registrierebene innerhalb eines Kanales von System II erhält aus dem Röhrenfokus eine Strahlungsintensität, die proportional ist dem

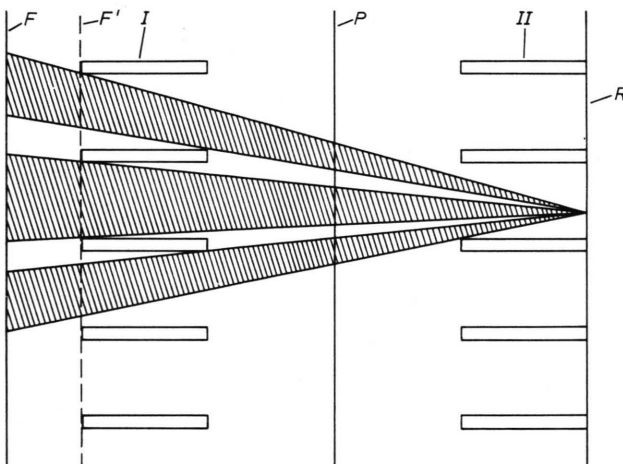


Abb. 2. Strahlengang für die Ermittlung der Intensitätsverteilung des Primärstrahles in der Registrierebene R bei Anwesenheit der beiden Kanalsysteme in der Draufsicht. F bedeutet den langen Brennfleck der Röntgenröhre, der für die Rechnung nach F' verlegt gedacht ist.

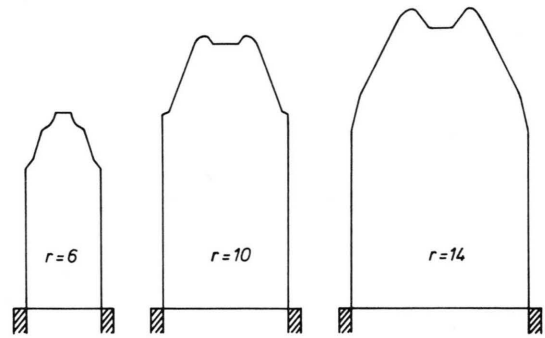


Abb. 3. Intensitätsverteilungen einzelner Teilprimärstrahlen in der Registrierebene für verschiedene relative Kanalbreiten  $r$  und für den Fall, daß beide Kanalsysteme exakt auf Lücke stehen. Die Beispiele sind in verschiedenen Ordinatenmaßstäben gezeichnet.

Öffnungswinkel, wie er durch den Abstand zweier benachbarter Stege von System II gegeben ist, abzüglich der Winkelbereiche, welche die im Öffnungswinkel liegenden Stege des Systems I verdecken. Mißt man Kanalbreiten in Vielfachen  $r$  der Stegdicken, so zeigt Abb. 3 die berechneten Intensitätsverteilungen in der Registrierebene für Einzelkanäle mit verschiedenen  $r$ -Werten und zwar für den Fall, daß beide Kanalsysteme genau auf Lücke stehen. Nun wäre eine solche exakte gegenseitige Justierung der beiden Systeme wegen der oft geringen Kanalbreiten praktisch schwer zu realisieren, tatsächlich spielt eine gegenseitige Verschiebung, im Extremfall um eine halbe Kanalbreite, über einen weiten Bereich von  $r$ -Werten keine Rolle. Es resultieren zwar bei einer Verschiebung z. B. um  $r/2$  in der Registrierebene etwas andere Intensitätsverteilungen, die integralen Intensitäten sind jedoch kaum verschieden, wie aus Abb. 4 zu entnehmen ist. Es sind nur

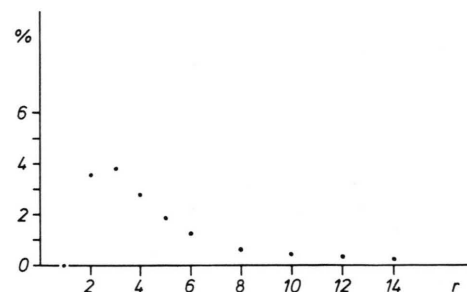


Abb. 4. Prozentueller Unterschied in der Primärstrahlintensität, wenn beide Kanalsysteme zueinander um die halbe Kanalbreite versetzt werden, gegenüber der Primärstrahlintensität bei jeweils exakt auf Lücke stehenden Kanalsystemen.  $r$  ist der Quotient aus Kanalbreite und Stegdicke.

Werte  $r < 6$  auszuschließen und das auch, weil für kleinere  $r$  die Abschattung der Strahlung durch die Stege von System I schon beachtlich ist.

### Der abgebeugte Strahl

Es wird hier nur mehr der Fall von exakt auf Lücke stehenden Kanalsystemen diskutiert und vorerst angenommen, daß nur je ein Kanal der Systeme I und II, die sich genau gegenüberstehen, geöffnet ist. Der Beugungswinkelbereich wird in Schritten von jeweils einer Detektorspaltbreite durchfahren, beginnend mit der Position null in der Primärstrahlmitte. Die weiteren Detektorspaltpositionen werden fortlaufend numeriert.

Natürlich sind Messungen im Bereich 0 bis etwa 2 praktisch nicht realisierbar, weil dieses Gebiet durch den Primärstrahl und dessen Randbereich eingenommen wird, doch ist es vorteilhaft die Rechnung bis zum Beugungswinkel null zu erstrecken. Bei unendlich kleinem Strahlquerschnitt würde die Meßanordnung eine vorgegebene winkelabhängige Intensitätsverteilung, also eine Streukurve exakt reproduzieren, bei endlich großen Querschnitten ist das im allgemeinen nicht mehr der Fall, sondern die Anordnung enthält im Strahlengang nunmehr eine gewisse Mannigfaltigkeit an Abbeugungswinkeln  $\vartheta$ , deren Einfluß auf die Messung der Streukurve ermittelt werden muß. Die Winkelmannigfaltigkeit, hier weiter als Häufigkeitsverteilungsfunktion  $H(\vartheta)$  bezeichnet, ist unter Berücksichtigung der zahlreichen Randbedingungen zumindest numerisch für jede Position des Detektorspaltes zu berechnen. Die Randbedingungen werden von den Dimensionen der verschiedenen Blenden, der Kanalsysteme und des Detektorspaltes gebildet, während das Präparat stets so groß angenommen wird, daß keine zusätzlichen Strahlbegrenzungen entstehen.

Bei Kenntnis von  $H(\vartheta)$  für eine Kamera mit bestimmten Abmessungen ist der verändernde Einfluß dieser Anordnung bei der Messung von Streukurven beliebiger Form, z. B. theoretisch vorgegebenen Streufunktionen  $\Phi(\vartheta)$ , leicht zu ermitteln. Der über den Winkelbereich des nichtverschwindenden Integranden gemittelte Wert des Integrales

$$\int_0^{\infty} H(\vartheta) \cdot \Phi(\vartheta) d\vartheta$$

ergibt den verlangten Ordinatenwert, der mit dem zur entsprechenden Winkelposition des Detektor-

spaltes gehörigen Wert der Streufunktion zu vergleichen ist.

Unter den gegebenen Abmessungen der Kamera ist  $H(\vartheta)$  für Position 3 des Detektorspaltes und alle größeren Beugungswinkel etwa trapezförmig, für kleinere Winkel ändert sich diese Form, da es keine negativen Ablenkwinkel gibt und außerdem der Winkel null nur mit verschwindender Häufigkeit auftritt.

Sind nun alle Kanäle von System I geöffnet, so tragen auch Anteile von den beiden linken und rechten Nachbarteilstrahlen in unterschiedlichem Ausmaß zur registrierten Streuintensität bei. Wird auch für diesen Strahlverlauf  $H(\vartheta)$  berechnet, so folgt als wichtiges Resultat, daß sich die Winkelverteilungsfunktionen nicht von den für einen einzelnen Teilprimärstrahl berechneten unterscheiden. Die Kamera liefert für ein und dasselbe Präparat die gleiche Streukurve wie eine Kamera mit nur einem Teilprimärstrahl, also wie eine Pinhole-Kamera, denn die Öffnung aller übrigen Kanäle von System II ändert an den geometrischen Verhältnissen des Strahlverlaufes nichts mehr, bringt aber die gewünschte Vervielfachung der gemessenen Intensität.

Die Tab. I und II zeigen Resultate an zwei Beispielen von Streufunktionen  $\Phi(\vartheta)$ , nämlich  $e^{-a\vartheta^2}$  in Tab. I und  $e^{-b\vartheta}$  in Tab. II. Beide Funktionen besitzen eine Halbwertsbreite, die das 12,5fache der verwendeten Spaltbreiten und damit auch Kanalbreiten der Systeme I und II beträgt. Neben den Winkelpositionen des Detektorspaltes enthalten die Tabellen die Werte der Streukurven, die eine Kamera mit nur einem Teilprimärstrahl, also eine Pinhole-Kamera, liefert und schließlich in der letzten Spalte die Streukurvenwerte, wie sie durch die Kamera mit vielen parallelen Teilprimärstrahlen zustande kommen. In den Rechnungen wurden die Stegbreiten der Kanalsysteme null gesetzt und somit der ungünstigste Fall behandelt, da hier die Anteile aus den benachbarten Teilstrahlen am größten sind.

### Die Absolutmessung

Für verschiedene Untersuchungen mit der Röntgenkleinwinkelmethode, z. B. Molekulargewichtsbestimmungen an Makromolekülen in Lösung, ist die Messung der Intensität der gestreuten Strahlung relativ zur Intensität des Primärstrahles erforderlich, ein Verfahren, welches Absolutmessung genannt wird.

Tabellen I und II. Intensitätswerte in der Registrierebene R, berechnet nach dem beschriebenen Strahlengang für eine Pin-hole Kamera und eine Kamera mit zahlreichen parallel nebeneinander angeordneten Teilprimärstrahlen, wobei ein gedachtes Präparat P eine vorgegebene Streufunktion aufweist,  $e^{-a \cdot \vartheta^2}$  in Tab. I und  $e^{-b \cdot \vartheta}$  in Tab. II. Die Halbwertsbreite für beide Funktionen beträgt in der Registrierebene das 12,5fache der Detektorspaltbreite. Die Winkelwerte für eine Kamera bestimmter Abmessung erhält man durch Einsetzen der verwendeten Detektorspaltgröße und Division durch den Abstand Präparat–Detektorspalt bzw. Präparat–Registrierebene.

Tab. I.

Position des Detektorspaltes	Vorgegebene Streufunktion	Streukurve der Pinhole-Kamera	Streukurve der neuen Kamera
0	1,000	0,967	0,969
1	0,982	0,952	0,953
2	0,931	0,903	0,905
3	0,852	0,828	0,831
4	0,753	0,736	0,737
5	0,642	0,631	0,632
6	0,528	0,523	0,524

Tab. II.

Position des Detektorspaltes	Vorgegebene Streufunktion	Streukurve der Pinhole-Kamera	Streukurve der neuen Kamera
0	1,000	0,874	0,879
1	0,895	0,852	0,855
2	0,801	0,789	0,792
3	0,717	0,713	0,715
4	0,642	0,640	0,641
5	0,574	0,574	0,574
6	0,514	0,514	0,514

Solche Messungen sind mit einer Kamera mit Spaltlängenverschmierung längst Routine, so daß nur mehr die speziellen Erfordernisse dargelegt werden, die es erlauben, auch mit der hier diskutierten Kamera Absolutmessungen durchzuführen.

Physikalische Grundlage ist stets die klassische Streuung elektromagnetischer Strahlung am Elektron, wie das durch den Thompsonfaktor angegeben wird, wobei Primärstrahl ebenso wie Streuung als Energiefluß pro Flächeneinheit zu messen sind. Da sich bei geeignetem Präparat die gesamte Primärstrahlenergie stets auf einem Querschnitt von der Größe einer Flächeneinheit verteilt denken läßt, so genügt für den Primärstrahl die Messung der integralen Intensität. Eine Messung, die an der Kamera durchgeführt werden kann, wenn Detektorspalt und Kanalsystem II aus dem Strahlengang zu entfernen sind.

Wird durch Verdecken von Kanälen des Systems I etwa ein einzelner Teilprimärstrahl erzeugt, so ist dessen integrale Intensität zu messen, wenn keine

Einengung des Strahls durch Detektorspalt oder Kanalsystem II erfolgt. Die zugehörige Streukurve eines geeigneten Präparates wird mit einem Detektorspalt von etwa quadratischer Öffnung ohne Kanalsystem II gemessen und auf Intensitätswerte pro Flächeneinheit  $J^*(\vartheta)$  reduziert. Damit sind die Größen in der richtigen Relation, die Vorgangsweise entspricht der Messung mit einer Pinhole-Kamera.

Durch Öffnung aller Kanäle von System I wird zum Summenprimärstrahl übergegangen und dessen integrale Intensität gemessen, das Resultat sei das  $n$ -fache der Intensität des Teilprimärstrahles. Werden Kanalsystem II und ein – langer – Detektorspalt wieder eingefügt und wird an demselben Präparat die Streukurve gemessen, so erhält man natürlich nicht die erforderliche Intensität  $n \cdot J^*(\vartheta)$ , sondern einen anderen Wert  $J(\vartheta)$ . Aus dem Verhältnis beider Größen resultiert der Umrechnungsfaktor  $f$ , der für die gewählte Kombination von Detektorspalt und Kanalsystem II eine Apparaturkonstante darstellt.

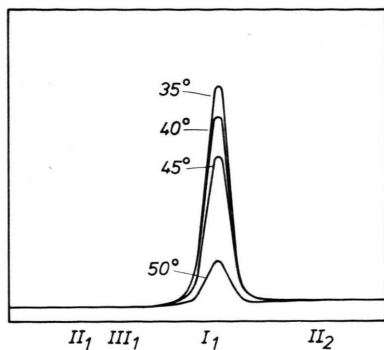


Abb. 5

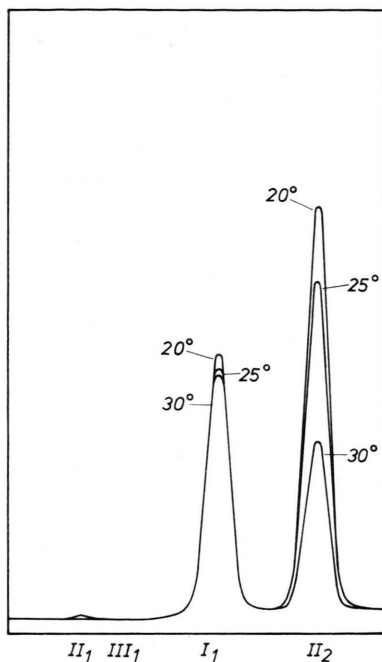


Abb. 6

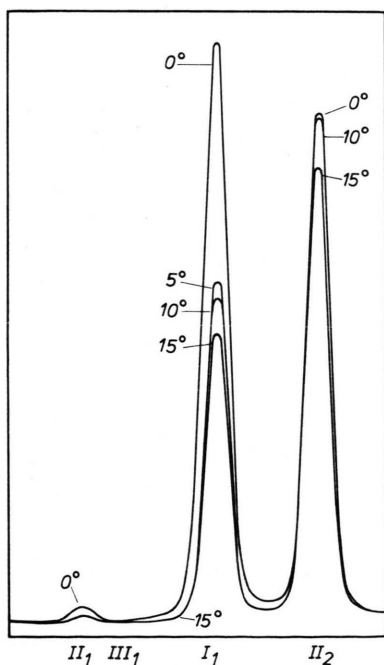


Abb. 7

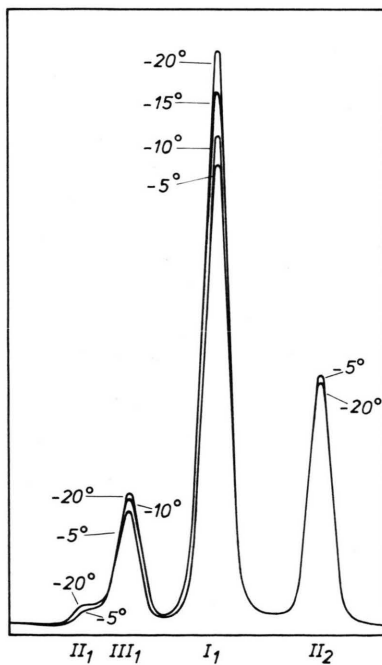


Abb. 8

Abbn. 5–8. Röntgenbeugungskurven eines Fettpräparates im Bereich der größten Maxima für jeweils in Schritten von  $5^\circ$  verringerter Präparattemperatur. Die römischen Zahlen bezeichnen die Reflexpositionen für die entsprechenden Kristallarten (I bis III), die Indices geben die Ordnung der Reflexe an. Die Ordinate in Abb. 8 ist gegenüber den Ordinaten der übrigen Abbildungen halbiert.

Für die Praxis wird die Prozedur nicht jedesmal ausgeführt, sondern ein geeignetes Referenzpräparat für die Ermittlung der integralen Primärstrahlintensität geeicht und ebenso der Faktor  $f_{\text{ein}}$  für allemal bestimmt. Die Streukurvenform des Referenzpräparates unterliegt im übrigen keinerlei Einschränkungen.

### Anwendungen

Als Beispiel ist eine Serie von Beugungskurven wiedergegeben, die bei Untersuchungen der Temperaturabhängigkeit kristalliner Anteile in Depotfetten von Tieren erhalten wurde [3]. Die Messungen wurden an üblichen Röntgenröhren mit Cu-Anode und einer Leistung von 1,6 kW ausgeführt, die einzelnen Meßpunkte sind jedoch nicht angegeben, sondern die Kurven der besseren Übersichtlichkeit wegen durchgezeichnet.

Von dem vollständig geschmolzenen Fett ausgehend wurde das Präparat in Schritten von  $5^\circ$

abgekühlt und jeweils die Einstellung des Temperaturgleichgewichtes durch wiederholtes Durchmessen der Beugungskurve verfolgt, bis reproduzierbare Meßresultate auftraten.

Die in den Abb. 5 bis 8 wiedergegebenen Beugungsmaxima rühren von den langen Abständen der sich bildenden Glyceridkristalle her, mit Gitterkonstanten von 4,35 nm (Kristallart I), 6,9 nm (Kristallart II) und 5,9 nm (Kristallart III), daneben erscheinen auch Reflexe höherer Ordnungen. Die Kamera besitzt in der hier verwendeten Ausführung ein Auflösungsvermögen\* von 20 nm, ein Wert, der ohne große Veränderungen wesentlich erhöht werden kann.

\* Darunter versteht man bei einer Röntgenkleinwinkelkamera den kleinsten für die Messung noch verwendbaren Beugungswinkel  $\vartheta$ , meist ausgedrückt durch den zugehörigen, nach der Braggschen Formel berechneten Identitätsabstand.

[1] A. Guinier und G. Fournet, J. Phys. Rad. 8 (1947) (nach einer mathematischen Ableitung von Bouzitat und Germain sowie du Mond).

[2] H. Wawra, Z. Naturforsch. 31c, 635–640 (1976).

[3] H. Wawra, Z. Naturforsch. 33c, 28–38 (1978).