

Suggestions for improvement

It is strongly believed that the actual measurements do not do justice to the presented technique. A few modifications in mode of procedure should be carried out in order to improve the accuracy. One of the most important changes is a better determination of the contraction factor k (empirical calculations indicate that the quotient $\frac{\Delta D}{D} / \frac{\Delta k}{k}$ is approximately equal to 1.5 for typical values of D , t and k). Also, the diffusion process ought to be interrupted without moving the capillaries. Though it is not likely that any appreciable disturbance is pro-

duced in this way, since the capillaries are so narrow, the possibility must not be overlooked. Thus, it is believed that the method should be able to give a better reproducibility than what is shown in Table 1.

Acknowledgements

The author is indebted to the Swedish Technical Research Council for a grant. This work has been partially supported by the Swedish Atomic Energy Commission (Statens råd för Atomforskning).

Thanks are due to Professor N. RYDE and to Dr. A. LUNDÉN for their kind interest in this work.

Über die Neukonstruktion einer Röntgen-Kleinwinkel-Kamera vom Kratky-Typ mit großem Auflösungsvermögen

Von S. EINS und D. UNANGST

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Jena
(Direktor: Prof. Dr. W. SCHÜTZ)

(Z. Naturforsch. 17 a, 198—202 [1962]; eingegangen am 27. Dezember 1961)

Es werden einige Besonderheiten der Neukonstruktion einer Kleinwinkelkamera für RÖNTGEN-Strahlen vom KRATKY-Typ beschrieben und ein bequemes Verfahren zur Justierung des Primärstrahl-fängers angegeben. Als Beleg für die Leistungsfähigkeit der Neukonstruktion werden Ergebnisse einer Untersuchung von Kollagen-Präparaten mitgeteilt.

Die wichtigste Kenngröße eines Gerätes zur Registrierung von RÖNTGEN-Kleinwinkelstreuung ist der kleinste Winkel, bei dem die Streustrahlung noch störungsfrei vermessen werden kann. Bei der Untersuchung von Makromolekülen oder anderen Teilchen tritt oft der Wunsch auf, Streuzentren mit immer größeren Abmessungen zu erfassen. Das Vordringen nach größeren Dimensionen erfordert aber wegen der immer kleiner werdenden Winkel einen immer größeren apparativen Aufwand und immer höhere Präzision.

Bei der Konstruktion unserer Präzisionskamera mit hohem Auflösungsvermögen haben wir uns eng an das von KRATKY und SKALA¹ angegebene Gerät gehalten, weil dieser Kamerateyp wegen seiner extrem kleinen Blendenstreuung für unser Vorhaben am geeignetsten erschien.

Im folgenden werden nur die Teile beschrieben,

die sich von der oben angegebenen Konstruktion unterscheiden bzw. auf die wir die mit unserem Gerät erzielten guten Ergebnisse zurückführen.

Das Blenden-system

Als „U-förmigen Rahmen“ verwenden wir in Anlehnung an KRATKY² und FIEDLER³ einen mit optischer Präzision eben polierten Glasblock, in den teilweise eine Rinne eingefräst worden ist. Als Blendenkörper dienen Stahlelemente, die in entsprechender Weise auf den Glasblock bzw. aufeinander angesprengt werden. Auch der variable Eintrittsspalt wird durch eine Endmaßkombination erzeugt; ein grober Vorspalt läßt RÖNTGEN-Licht nur auf den Eintrittsspalt fallen (Abb. 1 und 2).

Die von HENKE und SCHULZE^{4,5} sowie die von KNAPP^{6,7} vorgeschlagenen Varianten des Blenden-systems können ebenfalls leicht realisiert werden.

¹ O. KRATKY u. Z. SKALA, Z. Elektrochem. 62, 73 [1958].

² O. KRATKY, Z. Elektrochem. 58, 49 [1954].

³ H. FIEDLER, Naturwiss. 44, 85 [1957].

⁴ J. HENKE u. G. E. R. SCHULZE, Z. Naturforsch. 12 a, 346 [1957].

⁵ J. HENKE, Exp. Techn. Phys. 5, 180 [1958].

⁶ H. KNAPP, Kolloid-Z. 142, 163 [1955].

⁷ H. KNAPP, Z. angew. Phys. 9, 233 [1957].



Durch die hohe Präzision der industriell gefertigten Glas- und Endmaßoberflächen, die für die exakte Ausblendung des Primärstrahles verantwortlich sind, ist das Auftreten störender Streustrahlung auf ein Mindestmaß herabgesetzt.

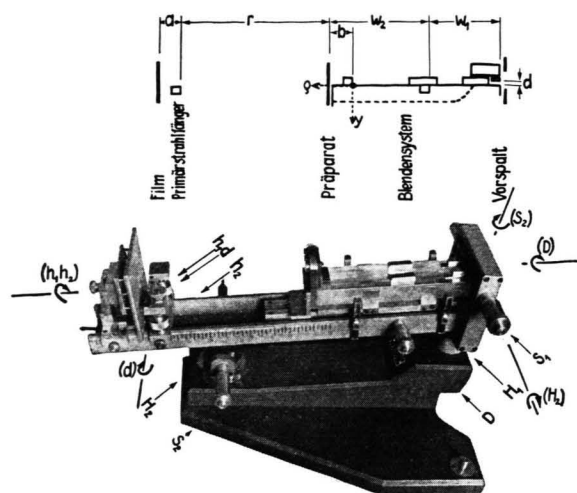


Abb. 1. Schematische Blendenanordnung (oben) und Gerät (unten) zur Verwendung bei nach unten geneigtem Strahlaustritt.

Der Primärstrahlfänger ist außerhalb und getrennt vom Vakuumkessel und von dem für die Ausblendung des Primärstrahles verwendeten Blendensystems justierbar. Geeignete Formgebung sorgt für einen möglichst kurzen Weg der Strahlung außerhalb des Vakuumkessels. Die Oberfläche des

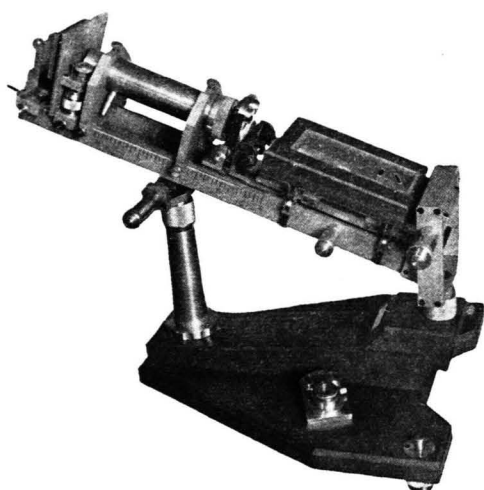


Abb. 2. Gerät mit Vakuumkessel und Staubschutz zur Verwendung bei nach oben geneigtem Strahlaustritt bzw. in Verbindung mit Kristallmonochromatoren.

als Fänger dienenden Stahleindmaßes kann mit Hilfe zweier unabhängig voneinander verstellbarer Feintriebe h_1 und h_2 (Abb. 1) für die Höhenverstellung und für eine Drehung um die Achse ($h_1 h_2$) und einer Schraube d für eine Neigung um die Achse (d) des Fängers in jede beliebige Lage zum Primärstrahl gebracht werden. Eine schnelle und bequeme Methode zur genauen Justierung des Primärstrahlfängers wird weiter unten angegeben.

Die Aufhängung des Blendensystems

Das Blendensystem, der Präparathalter, der Vakuumkessel und der Filmhalter (bzw. Halterung für Zählrohr oder SEV) sind auf einer U-Schiene so montiert, daß der Vakuumkessel, der Primärstrahlfänger und die Registriereinrichtung in verschiedenen Abständen zueinander und zum Präparat angeordnet werden können. Diese U-Schiene kann bei gleichzeitiger Betätigung der Verstellungen H_1 und H_2 bzw. S_1 und S_2 parallel zu sich in der Höhe bzw. nach der Seite verstellt werden. Bei der Neigung der Anordnung mit Hilfe der Verstellung H_2 allein um eine horizontale bzw. mit dem Feintrieb S_2 um eine vertikale Achse bleibt die Lage des Eintrittsspalt relativ zur Röntgen-Röhre erhalten, da die Drehachsen (H_2) und (S_2) sich in einem Punkt schneiden, der im Eintrittsspalt liegt.

Eine weitere Verstellung D bewirkt eine Schwenkung des Glasblockes um die „optische Achse“ (D) des Gerätes, die in der Oberfläche des Glasblockes liegt. Hierdurch kann der Eintrittsspalt parallel zu einem strichförmigen Röhrenfokus oder zur Fokallinie eines Monochromators eingestellt werden, ohne daß die anderen Verstellungen verändert zu werden brauchen.

So ist es auch verhältnismäßig einfach möglich, einen gleichmäßig ausgeleuchteten Primärstrahl zu erhalten, was die Auswertung wesentlich erleichtern kann⁸.

Der Präparathalter

Der von KRATKY und SKALA¹ angegebene, einfach zu justierende Präparathalter wurde so gestaltet, daß auch Zusatzgeräte, wie Flüssigkeitsküvette oder Verspannvorrichtung zur Untersuchung gestreckter Proben aufgesetzt werden können. Da das Präparat in der Verspannvorrichtung zu weit vom „fiktiven

⁸ O. KRATKY u. G. POROD, Acta Phys. Austr. 13, 76 [1960].

Austrittsspalt“ entfernt wäre, kann man den Präparhalter so auf einen Block aufsetzen, daß der Abstand Präparat – „Austrittsspalt“ wieder ebenso klein ist wie bei Durchstrahlung ohne Verspannvorrichtung, wodurch ein unmittelbarer Vergleich der Streudiagramme möglich ist (Abb. 2).

Das Justierverfahren des Primärstrahlfängers

Läßt man das primäre RÖNTGEN-Licht auf die gegen den Primärstrahl um den Winkel ϑ geneigte Fänger Oberfläche fallen, so sind mit kleiner werdendem Winkel ϑ folgende Schwärzungsbilder auf einem Film hinter dem Fänger zu beobachten.

1. Der Neigungswinkel ϑ ist größer als der Grenzwinkel ϑ_0 der Totalreflexion für RÖNTGEN-Strahlen

In dieser Einstellung wird das als Primärstrahlfänger dienende Stahlelement zur Aussendung von Sekundärstrahlung angeregt, die für einen bestimmten Austrittswinkel nach allen Richtungen hin gleich stark ist, aber einen kleinsten gegen die Fänger Oberfläche gemessenen Austrittswinkel ϑ_0 nicht unterschreitet (Abb. 3 a). Das ist verständlich, da die

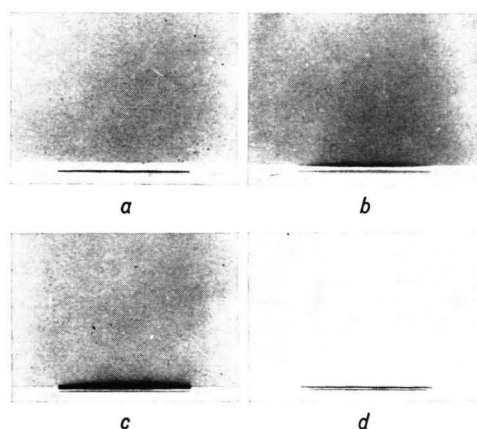


Abb. 3 a–d. Typische Aufnahmen zum Justieren des Primärstrahlfängers. Die Lage des Primärstrahles wurde durch eine zusätzliche Belichtung ohne Primärstrahlfänger markiert.

Sekundärstrahlung von einem Ort ausgeht, der ein endliches Stück unterhalb der Fänger Oberfläche liegt, und sie auf ihrem Weg nach außen (von dem für RÖNTGEN-Strahlen dünneren Medium ins dichtere) also einen bestimmten Winkel, nämlich den Grenzwinkel der Totalreflexion nicht unterschreiten kann. Der unter dem kleinsten Winkel austretende Strahl hat seinen Ursprung in einem die Fänger Oberfläche von innen streifend treffenden Strahl.

Wegen der günstigen Anregungsbedingungen der Fe-K α -Sekundärstrahlung durch die verwendete Cu-K α -Strahlung ist die Erscheinung sehr intensitätsstark und bei Belichtungszeiten von einigen Minuten zu registrieren. Wegen der azimutalen Richtungsunabhängigkeit und des Entstehungsortes dicht vor dem Film hat die durch diese Ursache auf dem Film hervorgerufene Schwärzung eine größere seitliche Ausdehnung als die durch Luftstreuung oder Totalreflexion verursachte.

Beim Neigen der Fänger Oberfläche, wobei evtl. gleichzeitig eine Höhenverstellung vorgenommen werden muß, wandert die untere Kante des durch Sekundärstrahlung geschwärzten Gebietes wegen

$$m_s = a \vartheta + a \vartheta_0 = a \vartheta + \text{const} \quad (1)$$

linear mit ϑ immer näher an den Primärstrahl heran (a ist aus Abb. 1 zu entnehmen, m_s ist die Entfernung auf dem Film zwischen der Kante durch Sekundäranregung und dem Primärstrahl). Dieses Wandern wird in einem m_s - ϑ -Diagramm aufgetragen, wobei für ϑ nur relative Werte [etwa Skalenteile auf der Neigungsspindel d (Abb. 1)] nötig sind. Einen absoluten Bezugspunkt liefert die Extrapolation dieser Geraden bis zu ihrem Schnittpunkt mit der Abszisse, für die nach Gl. (1) gilt:

$$\vartheta_1 = -\vartheta_0. \quad (2)$$

Nun liegen aber für die Größe dieses Grenzwinkels, besonders wenn die verwendete Wellenlänge in der Nähe einer Absorptionskante liegt, keine sicheren Werte vor. Diese Schwierigkeit kann mit Hilfe eines zweiten Fixpunktes überwunden werden, über dessen Bestimmung unter 2. berichtet wird.

2. Der Neigungswinkel ϑ erreicht den Grenzwinkel der Totalreflexion ϑ_0

Der interessierende „obere Grenzstrahl“ des Primärstrahlbündels erreicht diesen Winkel zuerst, da er mit dem kleinsten Einfallswinkel auf die spiegelnde Fänger Oberfläche auftrifft.

Eine intensive Schwärzung an der Kante der durch Sekundärstrahlung hervorgerufene Schwärzung zeigt das Auftreten dieses Effektes deutlich an (Abb. 3 b). Ein weiteres Unterscheidungsmerkmal ist die geringere seitliche Ausdehnung.

Nun ist aber für diese Einstellung

$$\vartheta_2 = \vartheta_0, \quad (3)$$

denn es handelt sich in beiden Fällen um das gleiche

Phänomen (Grenzstrahlen der Totalreflexion bzw. streifender Einfall).

3. Der Neigungswinkel ϑ ist kleiner als der Grenzwinkel der Totalreflexion ϑ_0

Alle Strahlen aus dem leicht divergenten Primärstrahl, die mit einem kleineren Winkel als ϑ_0 auf den Fänger auftreffen, werden totalreflektiert, alle anderen erzeugen Sekundärstrahlung, deren Kante infolge der auch jetzt noch auftretenden Grenzstrahlen wie oben eine stärkere Schwärzung aufweist (Abb. 3 c). Diese Kante wandert natürlich auch jetzt noch linear nach Gl. (1) weiter.

Mit den beiden Fixpunkten

$$\vartheta_1 = -\vartheta_0 \quad \text{und} \quad \vartheta_2 = \vartheta_0$$

ist nun aber auch die Einstellung für den gesuchten Winkel $\vartheta = 0$ bekannt (Halbierung der Strecke zwischen den beiden Fixpunkten im m_s - ϑ -Diagramm), ohne daß man den absoluten Wert für ϑ_0 zu kennen braucht.

Bei noch kleineren Winkeln werden alle Strahlen totalreflektiert, eine Kante durch Sekundäranregung tritt deshalb nicht mehr auf (Abb. 3 d).

Dieses systematische Vorgehen ermöglicht es, mit einigen wenigen Aufnahmen der sehr intensitätsstarken sekundären und totalreflektierten Strahlung bei zunächst willkürlich geneigtem Primärstrahlfänger die Neigung festzulegen, bei der die Oberfläche des Primärstrahlfängers parallel zu dem obersten Grenzstrahl des divergenten Primärstrahlenbündels verläuft und ihren Zweck erfüllt.

Die Leistungsfähigkeit des Gerätes

Bei der üblichen Berechnung des theoretischen Auflösungsvermögens wird mit einer zum Spalt symmetrischen Intensitätsverteilung gerechnet⁹. Es ergibt sich dabei für den kleinsten noch vermeßbaren Winkel δ_s die Beziehung

$$\delta_s = \frac{d}{2r} \frac{r+w_2}{w_1}. \quad (4)$$

(Die Bedeutung der einzelnen Größen ist in Abb. 1 angegeben.)

Bei Verwendung des KRATKYSchen Blendenprinzips ist jedoch die Intensität unsymmetrisch ver-

teilt⁹, und zwar so, daß der Abfall nach den vermeßbaren, also nicht durch den Primärstrahlfänger abgeschatteten Streuwinkeln hin steiler verläuft. Hierdurch ergibt sich eine modifizierte Beziehung

$$\delta_a = \frac{d}{2r} \frac{r+w_2}{w_1} - \frac{(\Delta y_s)_{r+b}}{r}. \quad (5)$$

$(\Delta y_s)_{r+b}$ bezeichnet die Verschiebung des Schwerpunktes der asymmetrischen Intensitätsverteilung gegenüber der symmetrischen an der Stelle $r+b$; sie ist an der Stelle Q (s. Abb. 1)

$$(\Delta y_s)_Q = \frac{d}{3} \left[\frac{Q(w_2-w_1-b) + (w_2-b)(w_1+w_2-b)}{2w_1(w_1+w_2-b)} \right]. \quad (6)$$

Diese geometrischen Betrachtungen berücksichtigen die Beeinflussung durch Toleranzen des Spaltsystems und durch Überstrahlung¹⁰ nicht.

Bei der experimentellen Bestimmung des kleinsten störungsfrei vermeßbaren Winkels muß man beachten, daß diese Größe abhängig vom Streuvermögen des Präparates ist¹¹, denn je länger man belichten muß, um eine vermeßbare Schwärzung zu erhalten, um so mehr wird durch die Überstrahlung am Primärstrahlfänger der Meßbereich kleinster Winkel eingeschränkt.

Wie eine Abschätzung zeigt, würden die Toleranzen des Blendensystems bei unserem Gerät den Winkelbereich nur in der Größenordnung 10^{-7} rad stören. Die festgestellte Überstrahlung wird deshalb ihre Ursache in der Struktur der Blendenoberflächen haben¹².

Um ein experimentell bestimmbares Maß für den kleinsten störungsfrei vermeßbaren Winkel δ_e zu bekommen, wurde als „Testpräparat“ die sich im Strahlengang befindliche Luft bzw. das Fenstermaterial des Vakuumsessels verwendet. Dieses Vorgehen ist unserer Meinung nach am sinnvollsten, da die so bestimmte Größe nur noch von den Konstruktionsmerkmalen des Gerätes und der Belichtungszeit, aber nicht mehr von den Zufälligkeiten eines Präparates abhängt.

In der Tab. 1 sind einige Werte, die mit unserem Gerät gemessen wurden, mit den theoretischen Werten verglichen.

Dabei konnten bei der oben angegebenen 12-stdg. Belichtungszeit ein gut auswertbares Diagramm vom Kollagen und bei der 3-stdg. Belichtungszeit ein sol-

⁹ O. KRATKY, Z. Elektrochem. **62**, 66 [1958].

¹⁰ O. KRATKY, Kolloid-Z. **144**, 110 [1955].

¹¹ H. JAGODZINSKI u. K. WOHLLEBEN, Z. Elektrochem. **64**, 212 [1960].

¹² O. KRATKY u. A. SEKORA, Mh. Chem. **85**, 660 [1954].

Belichtungs- zeit h	d mm	δ_s 10^{-4} rad	δ_a 10^{-4} rad	δ_a' 10^{-4} rad	δ_e 10^{-4} rad
12	0,09	6,40	5,75	3,75	4,00
8	0,05	3,55	3,19	3,18	3,48
3	0,03	2,13	1,91	1,91	1,97
$w_1 = 100$ mm Cu-K α -Strahlung		$w_2 = 100$ mm 50 kV, 20 mA,		$r = 245$ mm Halbwellenapp., ungef.	

Tab. 1.

ches von einem Aerosilpräparat erhalten werden. In der Tabelle bedeutet δ_s der berechnete kleinste vermeßbare Winkel bei symmetrischer Intensitätsverteilung, δ_a der entsprechende bei asymmetrischer Intensitätsverteilung. Zur Berechnung von δ_a' wurde die Lage des Schwerpunktes der Intensitätsverteilung aus Aufnahmen des Primärstrahles experimentell bestimmt und dann in Gl. (5) eingesetzt, δ_e ist der rein experimentell bestimmte kleinste vermeßbare Streuwinkel. Bei diesen Winkeln trat bei den angegebenen Spaltweiten und Belichtungszeiten der „Überstrahlungsbereich“ gerade noch nicht störend in Erscheinung.

Wie die Tabelle zeigt, liegt der experimentell bestimmte Wert immer zwischen den berechneten Werten δ_s und δ_a' für den symmetrischen und asymmetrischen Fall. Der große Unterschied zwischen den Werten δ_a' und δ_a (bzw. δ_s) für $d = 0,09$ mm ist auf den bei dieser Größe des Eintrittspaltes sich bemerkbar machenden Einfluß der endlichen Ausdehnung des Röhrenfokus zurückzuführen. Man kann nämlich in diesen Fällen durch geeignete Justierung einen noch steileren Abfall der Primärstrahlintensität nach der vermeßbaren Seite des Kleinwinkel-Diagramms hin erreichen, als das bei ungenügender Justierung oder vollständiger Ausleuchtung des Eintrittspaltes der Fall wäre. Hierdurch verschiebt sich entsprechend der Schwerpunkt des Primärstrahles.

Zur kontinuierlichen Kleinwinkelstreuung des „Kollagens“

Bei unseren Untersuchungen des Kollagens in der Rinderschwanzsehne konnten wir dank des hohen Auflösungsvermögens unseres Gerätes unabhängig und etwa gleichzeitig mit JAGODZINSKI¹¹ eine kontinuierliche Kleinwinkelstreuung feststellen, für die

JAGODZINSKI das an der Sehne haftende Bindegewebe verantwortlich macht. Darüber hinaus konnten wir einen Alterungseinfluß auf diesen Effekt nachweisen. Abb. 4 zeigt das Streudiagramm einer 5, 9 und 24 Monate alten Probe. Die kontinuierliche Streuintensität wächst mit zunehmendem Alter unter Abnahme der Intensität des diskontinuierlich gestreuten Lichtes. Es erscheint uns die Deutung naheliegend, daß mit wachsendem Alter das Eiweiß zerfällt und die dabei entstehenden Koagulate der Zersetzungsprodukte den kontinuierlichen Anteil verstärken.

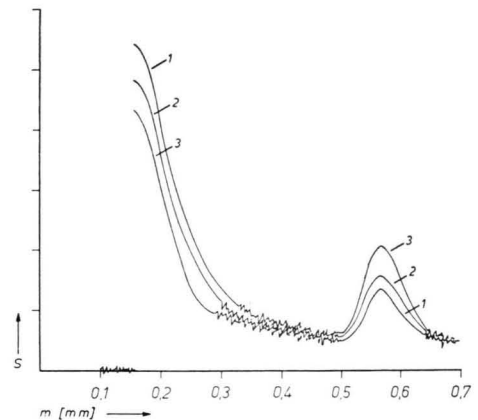


Abb. 4. Kontinuierliche und 1. Ordnung der diskontinuierlichen Kleinwinkelstreuung vom Kollagen der Rinderschwanzsehne. Kurve 1: 24 Monate altes Präparat, Kurve 2: 9 Monate und Kurve 3: 5 Monate altes Präparat. Die Schwärzungen sind auf den Wert des Schleiers normiert.

Herrn Prof. Dr. W. SCHÜTZ danken wir für sein förderndes Interesse. Besonderer Dank gebührt dem Leiter der Institutswerkstatt, Herrn Mechanikermeister H. KNIELING und seinen Mitarbeitern für die wertvollen Ratschläge bei der Konstruktion und für die überaus präzise und gewissenhafte Ausführung der Arbeit. Dem VEB Carl Zeiss Jena sind wir für das Eingehen auf unsere Wünsche hinsichtlich des Glasblockes zu Dank verpflichtet.