

## ДИФРАКЦИЯ И РАССЕЯНИЕ ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ

УДК 548.73

# О ПРОБЛЕМАХ ФАЗОВО-КОНТРАСТНОГО ИЗОБРАЖЕНИЯ МИКРООБЪЕКТОВ В КРИСТАЛЛАХ В СИНХРОТРОННОМ ИЗЛУЧЕНИИ

© 2025 г. Т. С. Аргунова<sup>1,\*</sup>, В. Г. Кон<sup>2</sup>, Д. Х. Лим<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

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

<sup>3</sup>Источник синхротронного излучения “Pohang Light Source”, Поханг, Республика Корея

\*E-mail: argunovat@mail.ioffe.ru

Поступила в редакцию 18.07.2025 г.

После доработки 11.08.2025 г.

Принята к публикации 11.08.2025 г.

Обсуждаются проблемы экспериментального исследования реальной структуры кристаллов методом фазово-контрастного изображения в синхротронном излучении (СИ), предложены способы их решения. Эксперимент выполнен на источнике СИ “Pohang Light Source” в г. Поханг, Республика Корея. Исследовались кристаллы алмаза. Анализируются возможности метода в исследовании слабых изменений плотности кристаллов в условиях пространственно неоднородной интенсивности пучка и наличия статистического шума как в самом пучке, так и в детекторе без пучка. Получены изображения различной формы и структуры, указывающие на наличие дефектов в кристалле, однако их идентификация требует более детального анализа.

DOI: 10.7868/S3034551025060035

## ВВЕДЕНИЕ

Рентгеновское излучение нашло широкое применение после своего открытия в 1895 г., причем сразу в двух областях: дифракции на атомной решетке в кристаллах и получении изображений внутренней структуры материалов методом неоднородного поглощения. До сих пор методы исследования в этих областях развиваются и совершенствуются. Пространственный период колебаний электромагнитного поля в жестком синхротронном излучении (СИ) с энергией фотонов 10–20 кэВ со-поставим, точнее не сильно меньше периода кристаллической решетки, поэтому углы дифракции относительно большие, что удобно для экспериментов. С другой стороны, преломление лучей на границе двух сред весьма слабое и лучи проходят через объект практически без изменения траектории. Изображение некристаллических объектов с размером, не сильно отклоняющимся от размеров человеческого тела, а также слабопоглощающих кристаллов вне условий Брэгга получается без искажений и определяется только поглощением. То есть хорошо видны оптически плотные участки объекта.

Однако при уменьшении размеров неоднородностей в просвечиваемом объекте контраст поглощения становится слабым. В этом случае более четкое изображение можно получить в когерентном излучении за счет изменения фазы волновой

функции СИ. На малом расстоянии от объекта детектор не регистрирует фазу, но с увеличением расстояния изменение фазы преобразуется в изменение интенсивности и можно получить фазово-контрастное изображение [1, 2]. Таким способом изучаются как мелкие объекты на воздухе [3–7], так и разного типа мелкие изменения электронной плотности в кристаллах [8–14]. Резкие изменения плотности возникают в порах, например в дислокационных микротрубках [10–12] в кристалле карбида кремния, а также в сферических порах, аккумулирующих вакансии в таких кристаллах, как сапфир, карбид кремния и других [13]. Поры относительно большого размера могут иметь самые разные формы, не только сферические [15, 16].

Исследование таких объектов частично упрощается тем, что их форма примерно известна и остается только определить размер. Также с помощью численного моделирования легко получить полное понимание, как эти изображения формируются [13, 14]. Недавно удалось идентифицировать и определить высоту ~1 мкм ступеней роста на поверхности кристаллов сапфира [17–20]. Однако в других кристаллах, например в алмазе, таких дефектов нет, но могут быть другие дефекты [21], которые до сих пор не изучались методом фазового контраста. Результаты такого исследования впервые представлены в настоящей работе, а также обсуждаются проблемы, которые при этом возникают.

На станциях современных источников СИ для регистрации изображений используются двумерные координатные детекторы, которые могут иметь битые пиксели. Сам пучок СИ может иметь конечные размеры и относительно высокую неоднородность, а также статистический шум. Все это уменьшает качество экспериментальных результатов и требует их тщательного анализа математическими методами обработки изображений.

### СХЕМА ЭКСПЕРИМЕНТА И МЕТОД ИССЛЕДОВАНИЯ

Схема эксперимента по получению изображений мелких неоднородностей в кристаллах практически ничем не отличается от схемы получения изображений мелких объектов на воздухе. Она включает в себя источник излучения, монохроматор, кристалл и детектор (рис. 1). Результаты изучения кристаллов алмаза были получены на станции 6С (Biology and medical imaging) источника "Pohang Light Source" в г. Поханг, Республика Корея. Использовалось излучение вигтлера с энергией фотонов 25 кэВ, находящейся в начале доступного диапазона энергий 23–50 кэВ на данной станции. На станции установлен детектор Orga-Fusion (Hamamatsu Photonics, Japan), способный проводить измерения при любом уровне освещенности, но особенно в условиях низкой освещенности. Низкий уровень шума считывания детектора означает, что даже небольшое количество фотонов, регистрируемое от просвечиваемого объекта, не теряется в паразитном шуме, а обнаруживается количественно. Детектор записывал данные в файлы формата tiff целыми числами длиной 2 байта (16 бит) и создавал картинку квадратных размеров с числом пикселей 2304 на каждой стороне. Эффективный линейный размер пикселя составлял 0.325 мкм. Такой размер получается пересчетом реального размера пикселя 6.5 мкм после деления на 20. Как раз такое увеличение картинки достигалось преобразованием СИ в свет оптического диапазона в кристаллическом сцинтилляторе, после

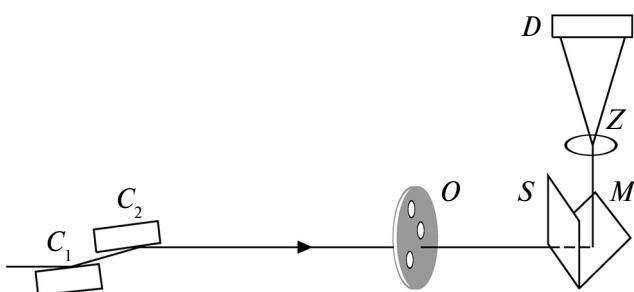


Рис. 1. Схема эксперимента:  $C_1$ ,  $C_2$  – кристаллы-монохроматоры 111 Si,  $O$  – объект исследования,  $S$  – сцинтиллятор,  $M$  – зеркало из кристалла Si,  $Z$  – оптический объектив,  $D$  – детектор.

чего картинка увеличивалась в 20 раз оптическим объективом.

В результате линейный размер изображения, которое детектор мог зафиксировать без сканирования, равнялся 750 мкм. Этот размер был соизмерим с эффективным размером пучка СИ, который формирует система щелей при заданном увеличении объектива. При этом падающее на детектор излучение давало неоднородную картинку даже без образца. В этих условиях измерения необходимо проводить в три этапа. Прежде всего записывалась картинка темного детектора, то есть, когда падающий пучок СИ был перекрыт заслонкой. Даже в этом случае детектор показывает картинку, содержащую статистические неоднородности, а также битые пиксели. Необходимо убедиться, что интенсивность помех мала, а битые пиксели не могут оказать существенное влияние на результат.

На втором этапе записывалась картинка пустого пучка СИ, причем такие картинки необходимо записать несколько раз, поскольку пучок содержит дробовой шум, и необходимо провести его оценку. Более детально об этом написано ниже. На третьем этапе записывается изображение кристалла в пучке СИ. Во всех случаях детектор фиксирует интенсивность излучения. Очевидно, что изображение кристалла получается вместе с изображением пустого пучка, которое содержит также изображение темного детектора, включая сцинтиллятор. Чтобы исключить паразитные изображения из картинок кристалла, нужно выделить числовые матрицы из файлов и разделить матрицу кристалла на матрицу пустого пучка.

Такая процедура эквивалентна вычитанию контраста пустого пучка из контраста кристалла в этом пучке, если оба контраста малы. В результате остается изображение кристалла в условно плоском пучке, что необходимо для обработки фазово-контрастного изображения и решения обратной задачи с целью получить количественную информацию о дефектах структуры. Если исследуемый кристалл не дает изображения, то должен получиться однородный фон. На самом деле фон получается неровным из-за статистического шума пучка. Величину шума можно характеризовать контрастом (видностью), который определим следующим образом:  $V = (F_{ma} - F_{mi})/(F_{ma} + F_{mi})$ , где  $F_{ma}$  и  $F_{mi}$  – максимальное и минимальное значения в матрице изображения. То есть изображение кристалла должно превышать этот шум, иначе информация получается неверной. Изучить уровень такого шума позволяет деление матриц пустого пучка СИ, полученных в разное время измерений.

Интересно, что шум можно резко уменьшить по амплитуде, если выполнить усреднение экспериментальной матрицы методом расчета свертки с локализованной функцией разного типа. Наиболее удобными являются функция Гаусса и функция, отличная от нуля в квадрате заданного размера.

Результаты расчета показали, что такая процедура позволяет резко уменьшить амплитуду фонового шума, но устраниТЬ его совсем не удается. Дело в том, что кроме короткопериодного шума в пучке существует длиннопериодный шум, который таким способом не исчезает, хотя и имеет существенно меньшую амплитуду. Этот шум дает изображение, которое может исказить изображение объектов в кристалле, так как является ложным. Соответственно, нужно обращать внимание только на такой контраст, который превышает контраст шума в пучке СИ.

## РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ИХ ОБРАБОТКА

Результаты измерений детектор записывал в виде картинок формата tiff, 16 бит. Формат tiff позволяет записывать электронные книги любой степени сложности, но у него есть и простой вариант, когда он просто записывает матрицу целых чисел в диапазоне от 0 до 65535, каждое число в 2 байта без сжатия. Именно этот вариант используется для записи показаний детектора. На первом этапе необходимо проанализировать показания детектора при закрытом пучке, т.е. темного детектора, и убедиться, что детектор правильно настроен и условия эксперимента удовлетворительные.

Сами по себе показания темного детектора нигде не используются, но они влияют на другие показания. Поэтому необходимо убедиться, что это влияние не критическое. Обработка всех результатов выполнялась по собственным программам, написанным на языке VKACL [22]. Интерпретатор этого языка, все программы, которые на нем написаны, а также документацию можно получить на указанном сайте. Специальная программа вынимает из tiff-файла числовую матрицу и проводит ее предварительный анализ. В частности, можно просто получить минимальное, среднее и максимальное значения, а также координаты первых наиболее высоких значений.

Темный детектор должен показывать нули, но этого не происходит. Матрица имеет ненулевые значения. Более того, если среднее значение может быть достаточно малым, в данном случае оно равнялось 100, то максимальное значение может быть весьма большим. В проведенном исследовании оно равнялось 3605, а следующие за ним значения были равны 2461, 2436, 2212. Как известно, любой координатный детектор имеет битые пиксели. Таких пикселей не так уж и много, но они всегда есть. Их показания не нужно учитывать. Как правило, они показывают значения, никак не согласованные с соседями, а бывают и кластеры плохих пикселей, но реже.

Показать всю квадратную матрицу размером 2304, в которой нет конкретной картинки, в научной статье сложно. Поэтому на рис. 2 показан

квадратный фрагмент с линейным размером 200 пикселей, в центре которого стоит пиксель с максимальным значением. При этом удобно показывать натуральный логарифм значений с указанием конкретных координат области в большой матрице. В этом случае лучше видно, как изменяются и большие, и малые значения. Исходная матрица была нормирована на интервал от 0 до 1, а логарифм минимального и максимального значений показан над картинкой. Так как значения битых пикселей невелики, никаких специальных мер для учета показаний темного детектора не предпринималось.

На следующем этапе было измерено 10 картинок пучка СИ без кристалла. В квадрате с линейным размером 750 мкм пучок оказался неоднородным. Его изображение примерно похоже на среднюю часть изображения функции Гаусса, но имеет некоторые артефакты. Для получения однородного фона необходимо делить матрицу показаний детектора с образцом на матрицу пустого пучка СИ. Однако все изображения кристалла имеют статистический шум, который не следует смешивать с изображением самого кристалла. Чтобы понять уровень шума, разумно разделить матрицы пустого пучка из разных измерений. В этом случае остается только изображение шума. Сами изображения шума можно разделить на короткие и длинные. Первые быстро меняются и имеют малый период, вторые, наоборот.

Короткий шум можно значительно снизить методом усреднения матрицы по некоторому размеру путем расчета свертки матрицы с некоторой функцией, отличной от нуля в ограниченной области.

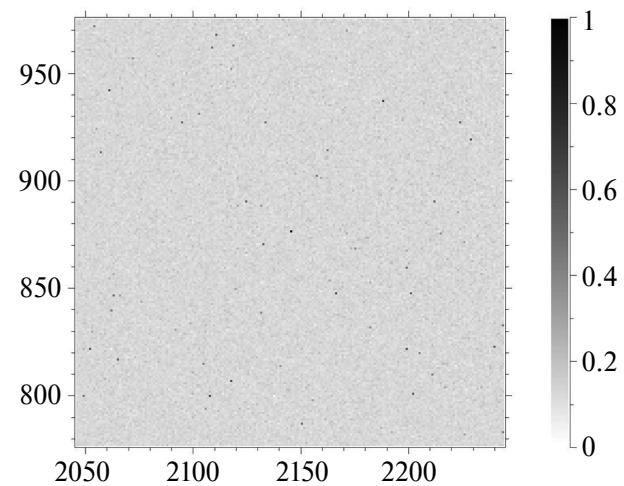


Рис. 2. Фрагмент распределения натурального логарифма числа отсчетов темного детектора с размером  $200 \times 200$  пикселей и с центром, соответствующим координатам самого большого пикселя, а именно  $x = 2145$ ,  $y = 877$ . На осях показаны номера пикселей в исходной матрице детектора размером  $2304 \times 2304$ . Карта цветов показана для нормированного массива. Значения минимума и максимума логарифма в реальном массиве равны 4.094 и 8.190, что соответствует числам отсчетов 60 и 3605.

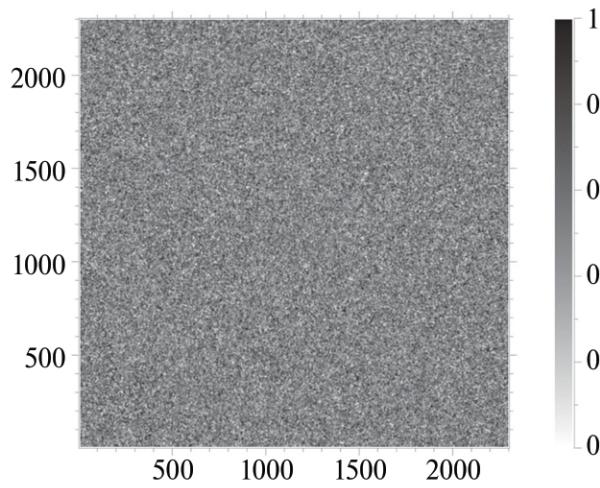


Рис. 3. Отношение показаний детектора на матрице размером  $2304 \times 2304$  для двух измерений пучка СИ без исследуемого кристалла после усреднения матрицы методом расчета свертки с матрицей, значения которой отличны от нуля в квадрате  $9 \times 9$  пикселей и равны между собой, а интеграл равен единице. Карта цветов показана для нормированного массива. Значения минимума и максимума в реальном массиве равны 0.980 и 1.021. Картинка показывает статистический шум пучка, который удваивается при делении, в то время как само отношение близко к единице.

Обычно в качестве такой функции используют функцию Гаусса. Но при усреднении шума заслуживает внимания и функция, отличная от нуля в заданном квадрате, где она равна константе и имеет единичный интеграл. Свертка с такой функцией вычисляется весьма быстро, но дает более четкий контраст. Усреднение проводилось по квадрату с линейным размером 9 пикселей, соответствующим длине когерентности 3 мкм, что соответствует данным многих экспериментов, выполненных ранее [10–14, 17–20].

По данным четырех расчетов с разными матрицами после деления среднее значение равно единице с относительно высокой точностью, а средний контраст равен 0.095 для исходных матриц и 0.021 для усредненных матриц. На рис. 3 показана усредненная матрица для одного из расчетов. Отметим, что конкретный рисунок матриц имеет случайный характер, и все вычисленные матрицы разные. Однако их статистические характеристики относительно близки, и разброс значений не превышает 10%. Особенности темного детектора при делении исчезают, но так происходит только тогда, когда интенсивность пучка СИ весьма велика. В данном случае максимум находился на уровне 50000.

Кристалл алмаза в виде пластинки имел размер  $9 \times 8$  мм<sup>2</sup>, и весь кристалл засветить пучком СИ было невозможно. По этой причине было получено 132 изображения различных участков кристалла, которые показывали самые разные детали, анализ которых выходит за рамки данной работы.

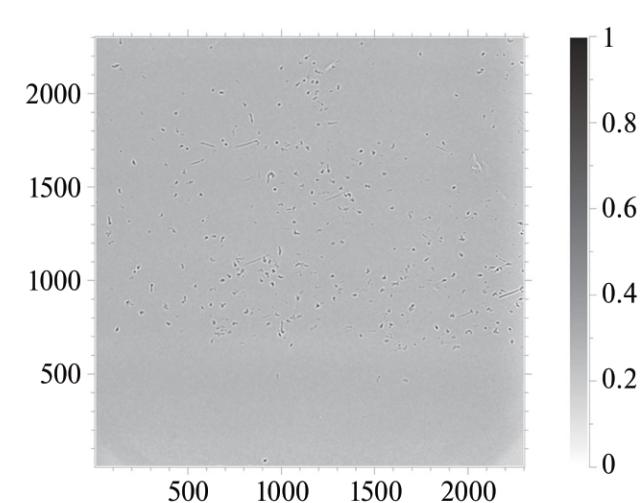


Рис. 4. Изображение дефектов в кристалле алмаза толщиной 1 мм. Представлено отношение показаний детектора с исследуемым кристаллом и без него примерно для такой же экспозиции после усреднения матрицы методом расчета свертки с матрицей, значения которой отличны от нуля в квадрате  $9 \times 9$  пикселей и равны между собой, а интеграл равен единице. Карта цветов показана для нормированного массива. Значения минимума и максимума в реальном массиве 0.811 и 1.399.

На рис. 4 показан только один участок, содержащий большое число относительно мелких изображений, представляющих собой светлое пятно, окруженное темной оболочкой. Есть почти круглые изображения диаметром  $\sim 30$  пикселей. Очевидно, что это мини-фокусировка пучка СИ пустотой с круглым сечением размером  $\sim 10$  мкм. Данная картинка показана после деления матрицы кристалла на матрицу пустого пучка примерно с такой же экспозицией и после усреднения по 9 пикселям, как и на рис. 2. С учетом степени когерентности пучка такое усреднение почти не портит размеры изображений объектов, но значительно подавляет статистический шум.

Общий контраст матрицы 0.266 значительно превосходит контраст пустого пучка. По этой причине результат достоверный, хотя контраст пустого пучка здесь тоже присутствует, но он в 10 раз меньше. Происхождение указанных дефектов пока не известно. Они могут быть как внутри, так и на поверхности. Второе более вероятно, но чтобы ответить на этот вопрос, нужно провести дополнительные исследования кристалла. Цель данной работы состоит лишь в демонстрации возможностей исследования кристаллов методом фазово-контрастной микроскопии.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнен эксперимент по исследованию дефектов в кристалле искусственного алмаза, полученного методом химического осаждения из газовой фазы (chemical vapour deposition, CVD). Использовался метод

фазово-контрастной микроскопии на источнике СИ “Pohang Light Source” (Поханг, Республика Корея). Обсуждаются особенности и проблемы таких измерений, к которым относятся: проверка показаний темного детектора, т.е. без освещения пучком СИ, анализ контраста, связанного со статистическим шумом в пучке СИ, исключение неоднородного распределения интенсивности в падающем пучке. В результате измерений показано, что кристалл имеет самые разнообразные дефекты, в том числе локальные дефекты размером  $\sim 10$  мкм. Из полученных данных можно сделать вывод о целесообразности использования метода фазово-контрастной микроскопии для диагностики кристаллов.

Работа выполнена в рамках Государственного задания НИЦ “Курчатовский институт” и Государственного задания ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Snigirev A., Snigireva I., Kohn V. et al.* // Rev. Sci. Instrum. 1995. V. 6. № 12. P. 5486. <https://doi.org/10.1063/1.1146073>
2. *Cloetens P., Barrett R., Baruchel J. et al.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 1996. V. 29 № 1. P. 133. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/29/1/023>
3. *Лидер В.В., Ковальчук М.В.* // Кристаллография. 2013. Т. 58. С. 764. <https://doi.org/10.7868/S0023476113050068>
4. *Hwu Y., Tsai W.L., Groso A. et al.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2002. V. 35. № 13. P. R105. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/35/13/201>
5. *Meuli R., Hwu Y., Je J. H. et al.* // Eur. Radiol. 2004. V. 14. № 9. P. 1550. <https://doi.org/10.1007/s00330-004-2361-x>
6. *Lee J.S., Weon B.M., Park S.J. et al.* // Sci. Rep. 2004. V. 14. № 9. P. 1550. <https://doi.org/10.1007/s00330-004-2361-x>
7. *Margaritondo G., Hwu Y.* // J. Imaging. 2021. V. 7. № 8. P. 132. <https://doi.org/10.3390/jimaging7080132>
8. *Gastaldi J., Mancini L., Reinier E. et al.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 1999. V. 32. № 10A. P. A152. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/32/10A/331>
9. *Agliozzo S., Cloetens P.* // J. Microscopy. 2004. V. 216. № 1. P. 62. <https://doi.org/10.1111/j.0022-2720.2004.01385.x>
10. *Kohn V.G., Argunova T.S., Je J.H.* // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 91. P. 171901. <https://doi.org/10.1063/1.2801355>
11. *Kohn V.G., Argunova T.S., Je J.H.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2010. V. 43. P. 442002. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/43/44/442002>
12. *Kohn V.G., Argunova T.S., Je J.H.* // AIP Adv. 2014. V. 4. P. 097134. <https://dx.doi.org/10.1063/1.4896512>
13. *Kohn V.G., Argunova T.S., Je J.H.* // Phys. Status Solidi. B. 2018. V. 255. P. 1800209. <https://doi.org/10.1002/pssb.201800209>
14. *Аргунова Т.С., Кон В.Г.* // Успехи физ. наук. 2019. Т. 189. С. 643. <https://doi.org/10.3367/UFNr.2018.06.038371>
15. *Zabler S., Riesemeier H., Fratzl P. et al.* // Opt. Express. 2006. V. 14. № 19. P. 8584. <https://doi.org/10.1364/OE.14.008584>
16. *Zaslansky P., Zabler S., Fratzl P.* // Dental Mater. 2010. V. 26. № 1. P. e1. <https://doi.org/10.1016/j.dental.2009.09.007>
17. *Argunova T.S., Kohn V.G., Lim J.-H. et al.* // Phys. Lett. A. 2024. V. 525. P. 129901. <https://doi.org/10.1016/j.physleta.2024.129901>
18. *Аргунова Т.С., Кон В.Г., Лим Д.-Х. и др.* // ФТТ. 2024. Т. 66. С. 2201. <https://doi.org/10.61011/FTT.2024.12.59595.6479PA>
19. *Argunova T.S., Kohn V.G., Roshchin B.S. et al.* // Mater. Phys. Mech. 2024. V. 52 (5). P. 64. [https://doi.org/10.18149/MPM.5252024\\_7](https://doi.org/10.18149/MPM.5252024_7)
20. *Argunova T.S., Kohn V.G., Lim J.H. et al.* // J. Surface Investigation: X-ray, Synchr. and Neutron Techn. 2024. V. 18. Suppl. 1. P. S16. <http://dx.doi.org/10.1134/S1027451024701817>
21. *Мартюшов С.Ю., Шульпина И.Л., Ломов А.А. и др.* // ФТТ. 2023. Т. 65. № 11. С. 1874. [http://dx.doi.org/10.18149/MPM.5252024\\_7](http://dx.doi.org/10.18149/MPM.5252024_7)
22. *Кон В.Г.* 2025. <https://kohnvict.ucoz.ru/vkac1/ACLnews.htm>

## PROBLEMS WITH SYNCHROTRON RADIATION PHASE CONTRAST IMAGING OF MICRO-OBJECTS IN CRYSTALS

T. S. Argunova<sup>a,\*</sup>, V. G. Kohn<sup>b</sup>, J.-H. Lim<sup>c</sup>

<sup>a</sup>*Ioffe Institute, Russian Academy of Sciences, 194021, St. Petersburg, Russia*

<sup>b</sup>*National Research Centre “Kurchatov Institute”, 123182, Moscow, Russia*

<sup>c</sup>*Pohang Light Source, 37673, Pohang, South Korea*

\*E-mail: argunovat@mail.ioffe.ru

**Abstract.** Problems in experimental study of real crystal structures using phase-contrast imaging with synchrotron radiation (SR) are discussed and methods for their solution are proposed. The experiment was conducted at the Pohang Light Source, in Pohang City, Republic of Korea. A diamond crystal was examined. The capabilities of the method in studying weak changes in crystal density under conditions of spatially non-uniform beam intensity, beam statistical noise and detector imperfections are analyzed. Images of various shapes and sizes were obtained, showing the presence of defects. However, a more detailed analysis is required to identify the defects.