

DISS. ETH NO. 30129

X-ray Dark-Field Imaging for Building Materials Characterization

A thesis submitted to attain the degree of

DOCTOR OF SCIENCES

(Dr. sc. ETH Zürich)

presented by

Caori Alejandra Organista Castelblanco

MSc. in Physics

National University of Colombia- Bogotá.

born on 12.02.1989

accepted on the recommendation of

Examiner: Prof. Dr. Marco Stampanoni

Co-examiner: Prof. Dr. Matthieu N. Boone

Co-examiner: Prof. Dr. Wataru Yashiro

2024

Abstract

Material scientists optimize materials and develop new ones to improve their durability, sustainability, and functionality. An important part of this goal is the characterization of the internal structure on different length scales, as changes in the nano- and micrometer ranges can influence the properties of the material on macroscopic scales. A better understanding of the structure therefore enables the production of new, higher-quality materials and the efficient use of existing materials.

Although there are several standardized techniques for structural characterization at different length scales, such as mercury porosity intrusion or x-ray micro-computed tomography (μ CT), the analysis of nanostructure remains a challenge. To date, the nanoscale can be assessed using high-precision quantitative methods, but without visual information about the structure. High-resolution imaging techniques can image the surface of the nanostructure but are limited to small, non-representative areas of up to a few micrometers. The most advanced techniques for material structural characterization at high resolution, such as ptychography or high-resolution μ CT, require high-brilliance radiation sources such as synchrotrons, which are expensive and not easily accessible. Consequently, there is a need for novel characterization techniques that, on one side, allow analysis and visualization in the nano-scale range within representative material volumes and, on the other side, are easily accessible to the community.

This dissertation investigates the potential of table-top x-ray dark-field imaging to locally characterize nanoscale features of building materials with sample sizes in the millimeter range and fields of view of a few centimeters. The work is divided into three stages.

In the first part, a dual-phase grating interferometer for dark-field imaging was developed that is sensitive to the signal of structures on the nanometer scale. A simulation framework based on Fresnel wave propagation was developed to optimize the parameters of the interferometer, such as the grating parameters. Based on the optimization results, two sets of gratings were produced: one set made of silicon for a design energy of 22 keV, and one made of gold for a design energy of 40.8 keV. The challenging production of the gratings was successfully carried out at the Paul Scherrer Institute (PSI) in Switzerland.

In the second stage, within a transfer of knowledge scheme, the gratings were integrated into a conventional μ CT system at the Center of X-ray Tomography of the Ghent University (UGCT). The commissioned interferometer is sensitive to structures in the range of a few to hundreds of nanometers with fields of view of a few centimeters. The ability of dual-phase X-ray grating interferometry (DP-XGI) to identify the nanostructure of samples with complex internal structures

was demonstrated with natural wood and Ketton limestones, which are relevant materials to the construction industry. Structural features in a range of hundreds of nanometers were identified by dark-field contrast retrieval. Due to the use of a conventional x-ray source and its compact configuration, this method promises to be more accessible and less expensive than synchrotron imaging.

Finally, using the link between small-angle scattering and dark-field contrast, the correlation function in the spatial domain of two alumina samples with different grain sizes was measured and modeled to derive quantitative information about the nanostructure. The results were validated using small-angle scattering and Talbot interferometry measurements at the Swiss Light Source (SLS). These results demonstrate that the dual-phase interferometer is capable of quantifying grain sizes of hundreds of nanometres, showcasing the potential of the interferometer to distinguish structural features in the nanometre range.

In this thesis, a dual-phase interferometer has been successfully developed, implemented in a conventional μ CT, and used to quantify the nanometer structure of building materials. Thereby, it demonstrates the potential of x-ray dark-field imaging with a DP-XGI as a highly sensitive and useful imaging method for nanoscale material characterization. The method can easily be applied to other areas of science and industry due to the use of conventional X-ray sources and its compact design. This project was developed within the framework of the Moccha CT project, a collaboration with The Laboratory of Wood Technology (UGent-Woodlab) and The Pore-scale Processes in Geomaterials Research group (UGent-PProGress) at the University of Ghent in Belgium.

Zusammenfassung

Die Materialwissenschaft entwickelt neue Materialien und optimiert herkömmliche Werkstoffe mit dem Ziel, deren Haltbarkeit, Nachhaltigkeit und Funktionalität zu verbessern. Ein wichtiges Teilziel ist dabei die Bestimmung der inneren Struktur auf verschiedenen Längenskalen, da Veränderungen im Nano- und Mikrometerbereich das Materialverhalten auf makroskopischen Skalen beeinflussen können. So ermöglicht ein besseres Verständnis der Struktur die Herstellung neuer, höherwertiger Werkstoffe sowie die optimale Nutzung herkömmlicher Materialien. Obwohl es mehrere standardisierte Verfahren, wie die Quecksilberporosimetrie oder die Röntgen-Mikro-Computertomographie, für die Strukturanalyse auf verschiedenen Längenskalen gibt, bleibt die Analyse der Nanostruktur noch immer eine Herausforderung.

Gegenwärtig können Nanostrukturen mit hochpräzisen Verfahren quantitativ analysiert werden, ohne jedoch visuelle Informationen über die Struktur zu liefern. Hochauflösende bildgebende Verfahren können Oberflächenstrukturen im Nanometerbereich abbilden, sind aber auf kleine, nicht repräsentative Flächen im Mikrometerbereich beschränkt. Zudem benötigen die derzeit fortschrittlichsten Strukturbestimmungsmethoden, wie die Ptychographie oder die hochauflösende Mikro-CT, hochbrillante Strahlungsquellen wie Synchrotrone, die teuer und teilweise schwer zugänglich sind. Daher besteht Bedarf an neuen Strukturbestimmungsmethoden, die zum einen für die Analyse und Visualisierung im Nanometerbereich geeignet, und zum anderen weitgehend verfügbar sind.

Diese Dissertation untersucht das Potential der Dunkelfeldbildgebung mit konventionellen Röntgenquellen für die lokale Erfassung von Merkmalen im Nanometermassstab von Baustoffproben von einigen Millimetern Grösse und einer Detektorengrösse von wenigen Zentimetern. Die Arbeit ist in drei Teile gegliedert.

Im ersten Teil wurde ein Dualphasengitterinterferometer für die Dunkelfeldbildgebung entwickelt, das sensitiv für das Signal von Strukturen im Nanometermassstab ist. Für die Optimierung der Parameter des Interferometers, wie beispielsweise der Gitterparameter, wurde ein Simulationsprogramm auf Basis von Fresnel-Wellenpropagatoren geschrieben. Basierend auf den Optimierungsergebnissen wurden Gitter für zwei Interferometer hergestellt: Ein Gittersatz aus Silizium für eine Design-Energie von 22 keV, und einer aus Gold für eine Design-Energie von 40.8 keV. Die herausfordernde Herstellung der Gitter erfolgte am Paul Scherrer Institut (PSI) in der Schweiz.

Im zweiten Schritt wurden die Gitter im Rahmen eines Programms für Wissenstransfer in einem konventionellen μ CT-System am „Center of X-ray

Tomography of the Ghent University (UGCT)“ in Belgien integriert. Das in Auftrag gegebene Interferometer ist sensitiv für Strukturen im Bereich von einigen wenigen bis hunderten Nanometern mit Bildgrößen von wenigen Zentimetern. Die Eignung des Dualphasenröntgeninterferometers (DP-XGI) zur Bestimmung der Nanostruktur von für die Bauindustrie relevanten Proben mit komplexer innerer Struktur wurde anhand von Messungen an Holz und Kettonstein demonstriert. Mit den gewonnenen Dunkelfelddaten konnten Strukturen mit einer Größe von mehreren hundert Nanometern bestimmt werden. Mit einer konventionellen Röntgenquelle und einer Länge von nur einem Meter hat diese Methode das Potential eine kostengünstigere und leichter zugängliche Alternative zu einem Synchrotronexperiment zu sein.

Zum Schluss wurde mithilfe der Beziehung zwischen Kleinwinkelstreuung und Dunkelfeldkontrast die Korrelationsfunktion im Ortsraum von zwei Aluminiumproben mit unterschiedlichen Korngrößen gemessen und simuliert, um quantitative Information über die Nanostruktur zu gewinnen. Die Resultate wurden mittels Kleinwinkelstreuung- und Talbotinterferometriemessungen an der Swiss Light Source (SLS) validiert. Diese Ergebnisse zeigen die Eignung des Dualphasen-Interferometers zur Bestimmung von Korngrößen im Bereich weniger Nanometer und das Potential zur Unterscheidung von Struktureigenschaften im Nanometerbereich.

Im Rahmen dieser Dissertation wurde ein Dualphaseninterferometer erfolgreich entwickelt, in ein konventionelles μ CT implementiert, und für die Quantifizierung der Nanometerstruktur von Baumaterialien eingesetzt. Damit wird das Potential der Röntgendunkelfeldbildung mit Dualphaseninterferometrie als hochsensitives und effektives Bildgebungsverfahren für die Materialcharakterisierung im Nanometerbereich aufgezeigt. Die Methode kann aufgrund der Verwendung von konventionellen Röntgenquellen und der kompakten Bauweise leicht auf andere Bereiche der Wissenschaft und Industrie angewendet werden. Diese Arbeit wurde im Rahmen des Moccha CT Projekts, eine Zusammenarbeit von „The Laboratory of Wood Technology (Ugent-Woodlab)“ und „The Pore-scale Processes in Geomaterials Research group (Ugent-PproGress)“ an der Universität Gent in Belgien, entwickelt.