

Messungen zur Röntgenstrahl-Optik des Idealkristalls. II. Diffraction pattern mit 'Pendellösung' gleicher Neigung

VON M. RENNINGER

Abteilung für Interferenzoptik a. Kristallographischen Institut der Universität, 355 Marburg,
Gutenbergstrasse 18, Deutschland

(Eingegangen am 14. Juli 1967)

A double diffractometric verification of diffraction patterns of thin perfect crystals has been tried. In this case the diffraction patterns should be accompanied by 'Pendellösung' fringes of equal inclination. This aim could not be reached directly on account of the difficulty of preparing crystal sheets of the necessary extremely small thickness without lattice bending. But photographically the expected fringes appeared as fringes of 'equal orientation' on double diffractometric topographs of silicon sheets between 5 and 20 μ in thickness, not only in the Laue case but also in the Bragg case. This is the first observation of Pendellösung in the Bragg case.

1. Einführung

In den Jahren 1932–37, als es dem Autor vergönnt war, mit P.P. Ewald in dessen Stuttgarter Institut zusammenzuarbeiten, drückte Prof. Ewald oft, wenn er dem jungen Assistenten die Grund-Gedankengänge und -Ergebnisse der dynamischen Theorie darlegte, sein Bedauern aus darüber, dass so wenig Aussicht zu bestehen schien, die subtileren Details in den Aussagen der Theorie experimentell jemals nachzuprüfen. Er meinte vor allem die nur wenige Bogensekunden breite diffraction pattern des Idealkristalls für monochromatisch ebene Wellen, ganz besonders diejenige für den Braggfall, von ihm im Gespräch gerne 'Zylinderhutfkurve' genannt, aber auch die von Pendellösungs-Nebenmaximis begleitete, wie sie bei Kristallen begrenzter Dicke, sowohl im Laue- als im Braggfall zu erwarten ist.

Von dieser Zeit her datieren immer wieder erneut aufgenommene Bemühungen des Verfassers um Wege zur Realisierung des experimentellen Nachweises solcher Kurven. Noch kurz nach seinem Verlassen der Hochschule (aus politischen Gründen) konnte er wenigstens die Idee für einen solchen Weg mitteilen (Renninger, 1938), eine Idee, für deren Realisierung sich erst 17 Jahre später, nach dem Krieg die Gelegenheit fand (Renninger, 1955): Die Aufnahme der diffraction pattern des unendlich dicken Idealkristalls im Braggfall mit Hilfe eines Dreikristall-Verfahrens. Später ergab sich ein anderes Verfahren, mit welchem dasselbe Ziel auch bereits mittels Zweikristall-Reflexion in ($n, -n$)-Stellung zu erreichen ist, nämlich mit Hilfe der Anwendung asymmetrischer Bragg-Reflexion und der damit verbundenen beträchtlichen Steigerung der Reflexionsschärfe (Renninger, 1961, 1967). Mit der experimentellen Entdeckung des Phänomens der 'Pendellösung' überhaupt – das dürfte einer der schönsten Anlässe zur Genugtuung für den Schöpfer der dynamischen Theorie gewesen sein – sind Kato & Lang (1959) vorangegangen. Pendellösungsstreifen sind seither allen

Forschern, die sich mit Interferenz-Topographie, vor allem nach dem Lang'schen Verfahren, befassen, zu einer vertrauten und in vielerlei Formen sich äussernden Erscheinung geworden. Durch Kato (1961) haben sie eingehende experimentelle und theoretische Durchleuchtung erfahren.

Wo sie aber beobachtet werden, sind es bisher durchweg Pendellösungsstreifen *gleicher Dicke*, Keilplatten-Interferenzen oder aber Interferenzen gleicher Neigung im *Kristall-Innern*, gleicher Neigung der *Strahlen*, nicht der Wellen. Die von Ewald zuerst vorausgesagte Form der Pendellösung, nämlich Interferenz-Nebenmaxima der diffraction pattern von Kristallplatten begrenzter Dicke, wurde bis heute noch nicht beobachtet. Dies ist nicht verwunderlich, wenn man sich die schwer erfüllbaren quantitativen Voraussetzungen klar macht, unter denen sie sichtbar werden können: extrem dünne Kristalle, hohes Winkel-Auflösungsvermögen und Kristalle höchster Vollkommenheit.

Als der Verfasser vom Plan zur Herausgabe eines Festschriftes dieser Zeitschrift Kenntnis erhielt, unternahm er trotzdem speziell für dieses Sonderheft den Versuch zu einer Schliessung jener Lücke in der Bestätigung der alten Prognosen Ewalds. Leider ist ihm dies bis zum Ablauf der Einsendefrist nicht in gewünschtem Mass gelungen, und er muss sich mit der Vorlage einiger vorläufiger Ergebnisse begnügen, die ihm aber immerhin genügend bemerkenswert erscheinen, um ihre Mitteilung zu rechtfertigen.

Reflexionskurven, diffraction patterns, wie sie die Theorie für den Laue-Fall sowohl als den Braggfall beim Idealkristall begrenzter Dicke erwarten lässt, sind bei Zachariasen (1944) in übersichtlicher Weise dargestellt und in Fig. 1 von dort übernommen. Parameter, der die Kurvenform, speziell v.a. den Winkelabstand der Interferenz-Nebenmaxima bestimmt, ist dort eine Grösse A der Form:

$$A = \frac{\pi K}{\lambda} \Psi_H \cdot \frac{t_0}{\sqrt{\gamma_0/\gamma_H}}$$

K =Polarisationsfaktor (1 bzw. $\cos 2\theta$ für die beiden Polarisationsrichtungen).

$$\Psi_H = \frac{e^2}{mc^2} \frac{\lambda^2}{\pi V} \cdot F_H$$

F_H =Streuamplitude der Zelle.

$\gamma_0(\gamma_H)$ =Richtungskosinus der einfallenden (gestreuten) Welle.

t_0 =Kristalldicke.

Gemäss Fig.1 sind Kurven mit einem vernünftigen – d.h. experimentell möglicherweise zugänglichen – Abstand der Interferenzmaxima für A -Werte zwischen 1 und 5 zu erwarten. Dieser Winkel-Abstand der Maxima ist dann von der Grössenordnung der Winkelbreite der diffraction pattern des dicken Kristalls, deren Form und Breite bereits experimentell erfasst wurden.

Zachariasen (1944) hat für A die Werte $\pi/2$ und π gewählt, weil die diffraction pattern des Lauefalls für $A = n\pi/2$ und $y = 0$ (y =normierte Winkelvariable) entweder ein Maximum der Höhe 1 oder eine Nullstelle hat. In diesem Fall gilt nämlich

$$R = \frac{P_H}{P_0} = \frac{[\sin^2(A\sqrt{1+y^2})]}{1+y^2}$$

Die Werte der Kristalldicke t_0 , für die das 'günstige' A gilt, ergeben sich aus:

$$t_0 = \frac{\sqrt{\gamma_0 \cdot |\gamma_H|} \cdot V}{\frac{e^2}{mc^2} \lambda \cdot K |F_H|} \cdot A$$

Beschränken wir uns auf die Polarisationsrichtung mit elektr. Vektor senkrecht zur Ablenkungsebene und setzen ferner *symmetrische* Reflexion, d.h. *symmetrischen* Laue- oder Braggfall, voraus, so wird $K=1$, $\sqrt{\gamma_0|\gamma_H|} = \cos \theta$ für den Laue-, $= \sin \theta$ für den Braggfall, und t_0 wird für den Lauefall:

$$t_0 = \frac{V \cos \theta}{\frac{e^2}{mc^2} \cdot \lambda |F_H|} \cdot A$$

für den Braggfall:

$$t_0 = \frac{V \sin \theta / \lambda}{\frac{e^2}{mc^2} |F_H|} \cdot A$$

Man sieht, beim Braggfall ist A für einen Kristall bestimmter Dicke wellenlängenunabhängig.

Tabelle 1 gibt einen Überblick über die zu erwartenden Daten für einige Interferenzen von Silicium.

2. Grundsätzliche Zusammenhänge. Erscheinungsformen von Pendellösungs-Interferenzen

Der Schilderung der eigenen Versuche mögen einige grundsätzliche Erwägungen vorangehen, vor allem im Hinblick auf die wesentlichen Unterschiede der bisher bekannt gewordenen Erscheinungsformen von Pendellösung unter sich und mit der hier angestrebten.

Ein Überblick über die prinzipiellen Zusammenhänge soll wie für viele Fragen der dynamischen Theorie ohne mathematischen Aufwand versucht werden mit Hilfe der 'Dispersionsfläche', dem geometrischen Ort der Wellenvektor-Anfangspunkte im reziproken Raum ('Ausbreitungspunkte' A_i , aller im Kristallinnern möglichen Wellen, vgl. Fig.2). Die in der Figur gestrichelt eingetragene Parallele zu einer der Asymptoten der Dispersions-Hyperbel, die 'Laue'-, oder nach Ewald 'Anregungs'-Kugel, bezeichnet entsprechend den geometrischen Ort von Wellenvektor-Anfangspunkten *im Aussenraum*, den 'Anregungspunkten' P_0 . Bewegung eines solchen Anregungspunktes P_0 auf der Lauekugel um eine Strecke x entspricht einer Drehung des zugehörigen Wellenvektors \mathbf{k}_0 um den Winkel x/k_0 . Die Ausbreitungspunkte von Wellen im Kristallinnern, die durch eine solche von aussen in den Kristall einfallende Welle angeregt werden, erhält man bekanntlich als die Schnittpunkte der Parallelen zur Kristalloberflächennormale durch P_0 mit der Dispersionsfläche (in der Figur eingetragen als $A_{1,2}^{Pr}$ für den symmetrischen Bragg-, als $A_{1,2}^{Lr}$ für den symmetrischen Laue-Fall). Diejenigen Winkelbereiche, die einem Bereich der normierten Winkelvariablen y in Fig.1 von -1 bis $+1$ entsprechen, im Braggfall der Darwin-

Tabelle 1. Reflexions-Winkelbreite $\Delta\theta$, Kristalldicke t_0 und Parameter A für verschiedene Reflexe von Silicium

hkl	θ	$ F_{290^\circ} $	$\Delta\theta$ (für $\Delta y = 2$)	t_0 (μ)						
				Symmetrischer Lauefall			Symmetrischer Braggfall			
				$A=1$	$A=\pi/2$	$A=\pi$	$A=1$	$A=\pi/2$	$A=\pi$	
Cu $K\alpha$	111	14,2°	60,2	6,9''	5,9	9,2	18,5	1,5	2,3 ₅	4,7
	333	47,5	33,9	1,9	7,3	11,5	23,0	8,0	12,6	25,2
	220	23,7	69,1	5,2	4,9	7,7	15,4	2,1	3,3 ₅	6,7
	422	44,1	50,5	2,8	5,2	8,1	16,3	5,1	7,9 ₅	15,9
Mo $K\alpha$	111	6,5	60,2	3,1	13,2	20,7	41,4	1,5	2,3 ₅	4,7
	333	19,9	33,9	0,6	22,1	34,7	69,5	8,0	12,6	25,2
	220	10,7	69,1	2,2	11,4	17,8	35,6	2,1	3,3 ₅	6,7
	422	18,7	50,5	1,0	15,0	23,5	47,0	5,1	7,9 ₅	15,9
	844	39,9	18,6	0,22	33,0	50,2	100,4	27,6	43,3	86,6

Ewaldsche Totalreflexionsbereich, im Lauefall die Halbwertsbreite der diffraction pattern, sind ebenfalls eingetragen, mit je einem Doppelpfeil auf der Lauekugel. Innerhalb dieses Winkelbereichs wird sowohl im Braggfall als auch im Lauefall der Hauptteil der Integralintensität reflektiert. Der Abstand der beiden Ausbreitungspunkte A_1 und A_2 für eine diskrete monochromatische Primärwelle gibt das Mass für die Pendellösungs-Schwebungsperiode der beiden zugehörigen Wellenfelder. Praktisch aber hat man es im Normalfall nicht mit einer einzigen monochromatisch-ebenen Primärwelle zu tun, vielmehr erstreckt sich die Winkeldivergenz der Primärstrahlung, wenn nicht ganz besondere Massnahmen getroffen werden, weit über den ja nur Bogensekunden umfassenden Reflexions-Winkelbereich hinaus, und die austretende Strahlung wird ein Gemisch darstellen von Wellen verschiedener Schwebungsperioden. Darum werden bei Reflexion eines im Querschnitt breiten (oder, bei der Lang'schen Projektions-Topographie, auch nur im Zeitmittel breiten) Primärbündels an einer planparalleln Kristallplatte sowohl im Laue- als im Braggfall keinerlei Pendellösungs-Effekte, weder örtliche noch richtungsmässige zu erwarten sein [Fig. 3(a)]. Erst eine Spezialisierung der Versuchsbedingungen lässt solche in Erscheinung treten. Dies kann in verschiedener Weise geschehen, und so

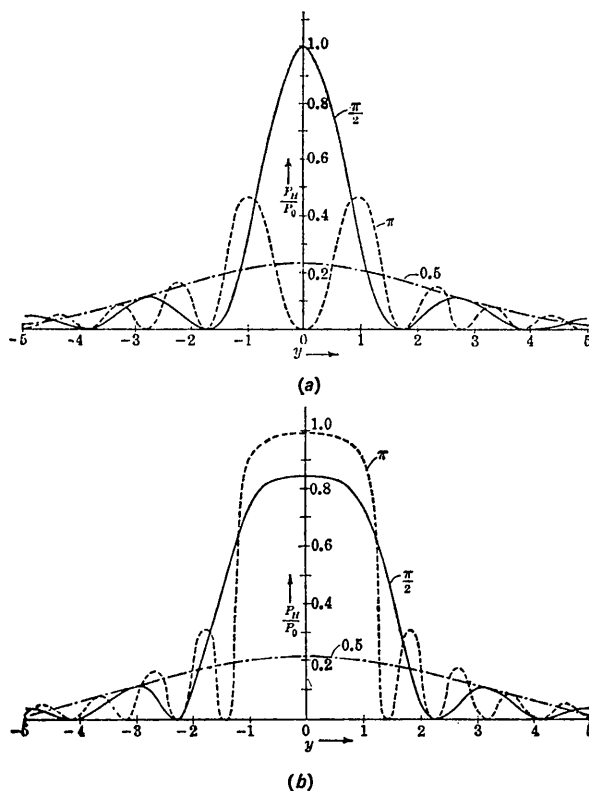


Fig. 1. Diffraction patterns für nicht absorbierende Kristalle begrenzter Dicke, (a) Laue-, (b) Braggfall für je drei verschiedene Werte des Parameters A : $\frac{1}{2}$, $\pi/2$ und π (nach Zachariasen, 1944).

sind bisher mehrere wesentlich verschiedene Erscheinungsformen von Pendellösung, sämtliche im Lauefall, bekannt geworden:

(i) Kristall planparallel, aber Primärbündel durch einen Spalt senkrecht zur Ablenkungsebene scharf ausgeblendet [Fig. 3(b)]. Auf dem Film erscheinen Bilder R_0 und R_H von der Intensitätsverteilung über den Querschnitt des Strahlenfächers beim Austritt aus dem Kristall, in Längsrichtung durchzogen von Interferenzstreifen gleicher Neigung im Kristallinnern. Es ist nicht möglich, diese Streifen als die Fortsetzung der Ewaldschen Rand-Nebenmaxima ins Kristallinnere hinein (in den Strahlenfächer) zu deuten. Man erkennt das schon aus der Tatsache, dass die Anzahl dieser Streifen im Strahlenfächer endlich ist, die der diffraction pattern-Nebenmaxima aber unendlich, und dass ausserdem der Gangunterschied nach aussen hin bei den ersteren ab-, bei den letzteren zunimmt. Dies wird unmittelbar deutlich, wenn wir die Erscheinungsform dieser selben Streifen bei einem keilförmigen Kristall (Keilkante parallel zur Ablenkungsebene) betrachten [Fig. 3(c)]. Die symmetrisch um die Mittelachse liegenden Streifen erscheinen dann vereinigt, umgebogen zu Haarnadelkurven mit Scheitelbögen gegen die Keilkante hin. Dies ist eine der beiden von Kato & Lang (1959) wiedergegebenen Erscheinungsformen. Ihre Deutung folgt nach Kato (1961) aus der Tatsache, dass die Winkeldivergenz des Primärbündels nicht nur auf die endliche Grösse des Röhrenfokus, sondern auch auf die eigentliche Divergenz der von jedem Punkt des Fokus ausgehenden, in sich kohärenten Kugelwellen zurückzuführen ist. Jede dieser Kugelwellen regt die Gesamtheit aller Wellenfelder an, die alle unter sich interferenzfähig sind. Nun ist, wiederum nach Kato, die Energie-Ausbreitungsrichtung (Strahlrichtung), immer parallel zur Normalen der Dispersionsfläche im zugehörigen Ausbreitungspunkt. Zu jeder Strahl-Richtung im Innenraum gehören also, ebenso wie zu jeder Wellenrichtung im Aussenraum (dort identisch mit Strahl-Richtung), zwei Ausbreitungspunkte, aber diese, A_1 und A_2 , liegen nicht auf einer gemeinsamen Parallelen zur Oberflächen-Normalen, sondern auf einem gemeinsamen Durchmesser der Dispersions-Hyperbel und sind also zwei verschiedenen Richtungen im Aussenraum zugeordnet. Die Schwebungsperiode und damit die Phasendifferenz beim Austritt aus dem Kristall wird bestimmt durch die Projektion des Abstandes A_1-A_2 auf die Strahlrichtung; sie ist massgebend für die Interferenzstreifen in den Sektions-Topogrammen. Diese Phasendifferenz nimmt in Übereinstimmung mit der Beobachtung mit der Kristalldicke, aber auch nach aussen (den Rändern des Strahlenfächers), ab und zwar bis auf den Wert Null, während sie für das Paar A_1, A_2 der Ausbreitungspunkte, d.h. für gemeinsame Primärstrahlrichtung im Aussenraum, unbegrenzt nach aussen hin (zu grösseren Winkelabweichungen) zunimmt. Sowohl die Streifen in den Sektionstopogrammen, als auch die Ewaldschen Nebenmaxima sind also Interferenzen gleicher Neigung, erstere aber der Strahl-

Neigung im Innenraum,* mit endlicher Streifenzahl, letztere der *Wellen*-Neigung in Innen- und Aussenraum (oder auch Strahl-Neigung im Aussenraum), mit unendlicher Streifenzahl.

(ii) Kristall keilförmig, aber Primärstrahlbündel von breitem Querschnitt. Gleichgültig, ob Keilkante parallel oder quer zur Einfallsebene, erscheinen Interferenzstreifen gleicher Dicke parallel zur Keilkante (Fig. 3(d)). Auch diese Art von Streifen erscheint bereits bei Kato & Lang (1959). Sie ist es, die breiteste Bekanntheit gefunden hat und sie ist nichts anderes als kontinuierliche Überlagerung der Sektionsdiagramme sämtlicher Flächenelemente des Primärbündel-Querschnitts. Dass sich so die Interferenzstreifen für Keilkanten parallel zur Ablenkungsebene völlig herausmitteln bis auf die Scheitel der 'Haarnadel'-Bögen, ist unmittelbar ersichtlich. Weniger anschaulich, aber ebenfalls mühelos zu verstehen ist die Entstehung derselben Streifen, wenn die Keilkante senkrecht zur Ablenkungsebene steht. Ganz allgemein einleuchtendes Verständnis vermittelt wiederum ein Blick auf die Dispersionsfläche: Die die Schwebungsperiode der Streifen im Sektionstopogramm bestimmende Projektion aller Hyperbeldurchmesser auf die ihnen zugeordneten Strahlrichtungen hat für den Haupt-Durchmesser, nämlich die reelle Achse, ihren Maximalwert, ihre Änderung mit der Richtung verschwindet in erster Ordnung, sodass eine *vorherrschende* Schwebungsperiode zustandekommt, eben die der reellen Achse entsprechende.

Man sieht hier sofort ein, warum ähnliche Keilplatten-Interferenzen im *Braggfall* nie beobachtet werden, ja kaum denkbar sind. Denn dort liegt die reelle Hyper-

* Wenn auch, wegen der gegenseitigen Kompensation von R_H und R_O im Innenraum, nur im Aussenraum beobachtbar, nach Auftrennung von R_H und R_O .

belachse, und damit auch die Strahlrichtung mit gut definierter Schwebungsperiode parallel oder nahezu parallel der Kristalloberfläche. Dieser Richtung benachbarte Strahlen können also den unteren Kristallrand überhaupt nicht erreichen. Ausserdem wird im Braggfall der Hauptanteil der integralen Reflexionsintensität innerhalb eines Winkelbereichs reflektiert, für den reelle Ausbreitungspunkte und damit die Existenz zweier im reellen Raum interferierender Wellen überhaupt fehlen.

(iii) Kristall keilförmig, Kante parallel zur Ablenkungsebene. Das Primärbündel ist im Querschnitt breit, aber richtungsmässig so genau definiert, dass tatsächlich nur die beiden Ausbreitungspunkte A_1 und A_2 angeregt werden, und damit die dort auf der Dispersionsfläche senkrecht stehenden Strahlen S_1 und S_2 [Fig. 3(e)]. Jeder von ihnen spaltet beim Austritt wiederum in die O - und H -Richtung auf. Dort, wo sich im Aussenraum die von den Austrittsstellen von S_1 und S_2 ausgehenden Bündel überlappen, interferieren sie miteinander, wobei die Schwebungsperiode durch den Abstand der Ausbreitungspunkte A_1 und A_2 bestimmt ist. Die vorausgesetzte Keilform des Kristalls mit Dickenänderung senkrecht zur Ablenkungsebene wird also in dem Überlappungsbereich wiederum Interferenzstreifen gleicher Dicke entstehen lassen, aber Streifen mit einer von derjenigen der in Abschnitt (ii) besprochenen Streifen verschiedenen Periodizität. Nur für diejenige Primärstrahlrichtung, bei der A_1 und A_2 auf einem gemeinsamen Durchmesser (im *symmetrischen* Fall auf der reellen Achse) der Hyperbel liegen, ist der Streifenabstand genau derselbe wie dort und identisch mit dem Abstand der 'Haarnadel'-Scheitel in Abschnitt (i).

Diese Erscheinungsform der Pendellösung wurde von Malgrange & Authier (1965) erstmalig realisiert. Natürlich ist die zu Beginn dieses Abschnittes 2 voraus-

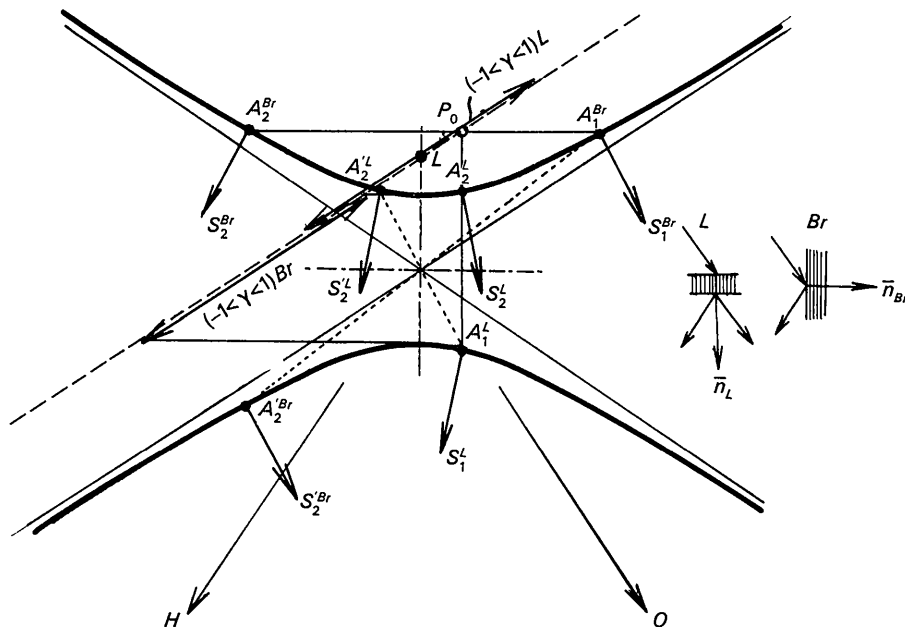


Fig. 2. Dispersionsfläche und Pendellösung.

gesetzte extrem genaue Richtungs-Definition des Primärbündels nicht ohne weiteres leicht zu erfüllen. Während für die in den Unterabschnitten (i) und (ii) beschriebenen Phänomene die spektrale Dispersion der Primärstrahlung ohne störenden Einfluss bleibt, ist dies gänzlich anders, wenn genau definierte Wellenrichtungen ausgesondert werden sollen. Hier wird es notwendig, von der die spektralen Einflüsse eliminierenden $(n, -n)$ -Doppelreflexion Gebrauch zu machen. Diese Bedingung erfüllen auch Malgrange & Authier (1965), indem sie einen dem Testkristall gleichen aber dickeren planparallelen Erstkristall vorschalten, und

ausserdem durch einen eleganten Ausblendungs-Kunstgriff dafür sorgen, dass nur ein kleiner Ausschnitt aus dem Strahlenfächer dieses 'Monochromator'-Kristalls, und zwar derselbe für den gesamten reflektierten Spektralbereich (z.B. α -Dublett) in dem den Testkristall treffenden Bündel enthalten ist. Dieses erfüllt damit für jede in ihm enthaltene Wellenlänge die vorgenannte Voraussetzung extrem geringer Winkeldivergenz.

Malgrange & Authier (1965) meinen, dass erst die auf diese Weise von ihnen beobachteten Interferenzen *eigentliche* Pendellösung im Ewaldschen Sinn bedeuten. In der Tat stehen sie diesen auch näher, da sie sich

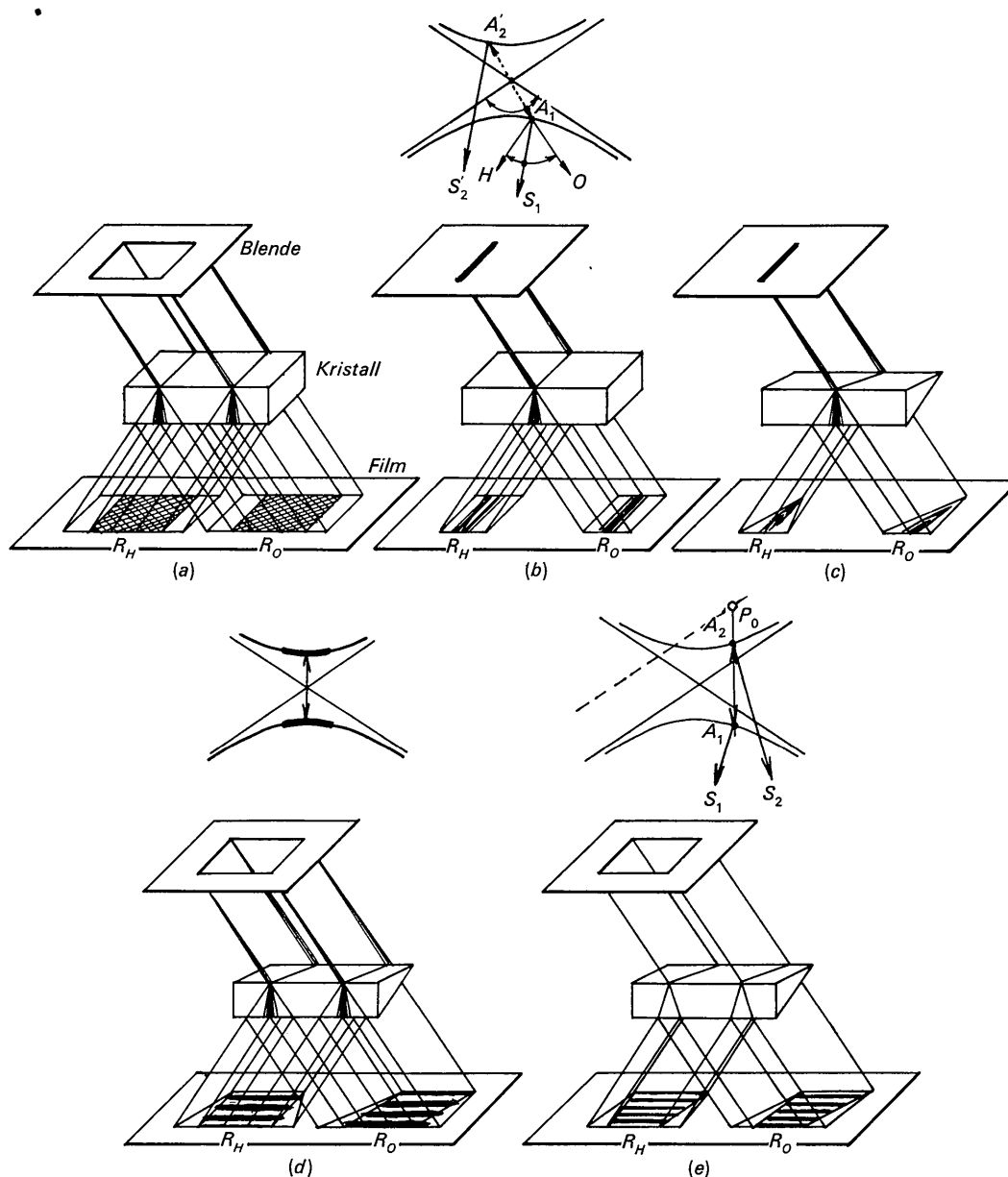


Fig. 3. Pendellösung unter verschiedenen Versuchsbedingungen. (a) Primärbündel divergent, breit, Kristall planparallel. (b) Primärbündel divergent, scharf ausgeblendet, Kristall planparallel. (c) Primärbündel divergent, scharf ausgeblendet, Kristallkeilförmig. (d) Primärbündel divergent, breit, Kristall keilförmig. (e) Primärbündel fast divergenzfrei, breit, Kristall keilförmig.

auf diskrete Strahlenrichtungen im Aussenraum beziehen. Malgrange und Authier möchten die unter (i) geschilderten Streifen umbenennen in: 'Kato-Streifen' o.ä. Aber auch diese 'Malgrange-Authier-Streifen' sind immer noch Streifen *gleicher Dicke, nicht gleicher Neigung*. Bei optimaler Winkel-Einstellung ihres Testkristalls wird der Streifenabstand identisch mit demjenigen der Haarnadel-Scheitel der 'Kato-Streifen' unter (i) und auch mit demjenigen der 'Kato-Lang-Streifen' unter (ii). Bei allen dreien ist dann die beat-Periode im symmetrischen Lauefall durch die Länge der reellen Hyperbelachse bestimmt. A_2 und A'_2 fallen zusammen, in den äusseren Hyperbelscheitel.

3. Versuche und Ergebnisse

In Bezug auf die selbstgestellte Aufgabe, nämlich Messung der tatsächlichen Winkelabhängigkeit der Reflexionskoeffizienten für Kristalle vorgegebener Dicke lässt ein nochmaliger Rückblick auf die in Tabelle 1 zusammengestellten Daten erkennen, warum die für diese diffraction patterns zu erwartenden Pendellösungs-Interferenzen gleicher Neigung bisher noch nicht beobachtet worden sind: Bei Kristallen von halbwegs handlicher Dicke ($> 0,1$ mm) ist der Winkel-Abstand der Nebenmaxima bereits so klein, dass an ihre Auflösung nicht zu denken ist. Auf der Suche nach Interferenzordnungen, bei welchen sich ein Erfolg am ehesten erwarten liess, bei welchen nämlich die Anforderung an das apparative Winkel-Auflösungsvermögen und die Voraussetzung kleinstmöglicher Kristalldicke in etwa die Waage halten, fiel die Wahl nach einigen Vorversuchen auf die Ordnungen (333) und (422) von Silicium mit Cu-Strahlung. Die Winkelbreiten der diffraction pattern sind bei diesen Interferenzen von erträglicher, experimentell gut beherrschbarer Grösse, grösser als zwei Bogensekunden. Ferner ist für sie wegen der Nähe ihres Bragg'schen Winkels an $\pi/4$ die eine der beiden Polarisationsrichtungen unterdrückt und damit störende Überlagerung verschiedener Interferenzsysteme vermieden. Und drittens ist gerade bei diesen Interferenzen die Grenze des doppel diffraktometrischen Auflösungsvermögens, d.h. die kleinste Grösse noch erfassbarer Einzelheiten aufgrund von oftmaliger Aufnahme der diffraction patterns von dicken Kristallen besonders vertraut.

Die Versuchstechnik war die bereits mehrfach dargelegte (s. Renninger, 1967): Aufnahme der diffraction patterns als Reflexionskurven aus ($n^V, -n^S$)-Reflexion, d.h. Doppelreflexion, bei welcher der erste Kristall in asymmetrischem Braggfall bei streifendem Strahleintritt reflektiert. Bei dieser Anordnung besitzt das von ihm austretende Primärbündel für den zweiten Kristall eine gegenüber symmetrischer Reflexion stark erhöhte Winkel-Schärfe (besser gesagt: Schärfe der $\theta-\lambda$ -Zuordnung) und ist so geeignet, die diffraction pattern des Zweitkristalls mit ihren charakteristischen Merkmalen formgetreu 'abzutasten'. Als Beispiel ist in Fig. 4 eine Registrierung der diffraction pattern von

(333) im symmetrischen Braggfall an einem dicken Si-Kristall wiedergegeben. Sie lässt erkennen, dass das Auflösungsvermögen der Anordnung hinreichen muss, um Einzelheiten der Form von der Ausdehnung einer halben Bogensekunde mit Sicherheit zu unterscheiden, also auch Interferenz-Nebenmaxima, wenn ihr Abstand von derselben Grössenordnung ist. 'Monochromator'-Erstkristalle mit erfahrungsgemäss optimalem Schräganschliff ($\beta = \text{tg } \varphi / \text{tg } \theta = 0,9$) standen von anderweitigen Versuchen her für (333) und (422) in erstklassiger Qualität zur Verfügung.

Die Hauptschwierigkeit bestand in der Präparierung genügend dünner aber noch manipulierbarer Kristallplättchen einer Dicke zwischen 5 und 20μ (s. Tabelle 1). Nach einigen vergeblichen Versuchen gelang dies auf folgendem Weg: In eine vorher doppel diffraktometrisch-topographisch auf höchste Vollkommenheit geprüfte Si Scheibe von 1–2 mm Dicke wird mittels Diamantbohrer ein Sackloch mit ebenem Boden gebohrt (8 mm dia.) bis zu einer Tiefe von etwa $\frac{2}{3}$ der Scheibendicke. Das Loch wird von innen unter Überprüfung durch einen Mikrometer-Taster schwach muldenförmig auspoliert und danach die ganze Scheibe von hinten her geschliffen auf ebener Fläche unter dauernder Überwachung der Dicke, in den letzten Stadien mittels Röntgenstrahl-Absorption. Die letzten 200μ werden chemisch abgetragen mit abgeschwächter Polier-Ätze. Es gelingt so tatsächlich, zu einer Restdicke von stellenweise weniger als $10\mu (\pm 5\mu)$ herunterzukommen, über den Bereich einer Fläche von 10–15 mm². Die dünnsten Stellen weisen Durchlässigkeit für sichtbares Licht auf, sie erscheinen gelblich durchscheinend. Der stehengebliebene dicke Aussenring des Kristalls gewährleistet bequeme Manipulierbarkeit der Kristallfolie, ohne Gefährdung für diese. Da sie noch gänzlich vom ursprünglichen Kristallverband getragen wird, sollte man mit Fug erwarten dürfen, dass sich die Qualität nicht einschneidend verschlechtert hat durch die Dicken-Abtragung. Leider aber hat sich diese Erwartung nicht erfüllt. Wiederholt erwies sich die restliche Folie als sehr stark verzerrt, das Gitter gekrümmt im Bereich mehrerer Bogenminuten. Fig. 5 zeigt ein doppel diffraktometrisches Reflexions-Topogramm der ebenen Rückseite einer der so präparierten Scheiben. Während der äussere stehengebliebene Ring keinerlei Verzerrung ausserhalb der Grenze von $\frac{1}{50}$ Bogense-

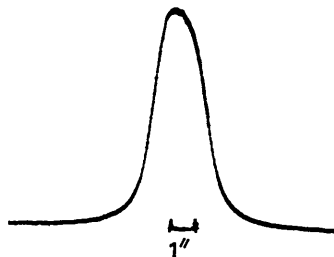


Fig. 4. Diffraction pattern Si (333) mit Cu $K\alpha$, symmetrischer Braggfall, an dickem Kristall registriert als ($(5n^V, -333)^S$) Reflexionskurve.

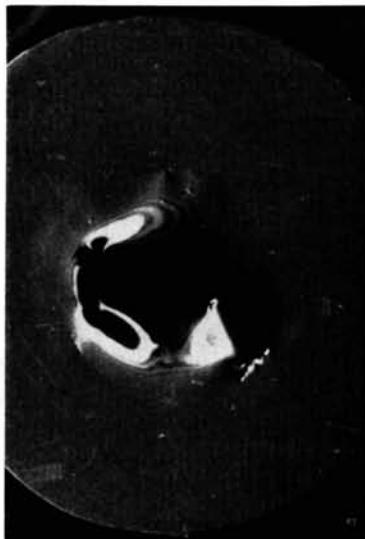


Fig. 5. Reflexionstopogramm $[(511)^V, -(333)^S]$ von Si-Scheibe, Dicken: Aussenring; 1,5 mm, Innenbereich (8 mm dia.): 5–20 μ .



(a)



(b)

Fig. 6. Stark vergrößerte Ausschnitte aus Topogrammen: (a) aus Fig. 5; (b) anderes Beispiel. Pendellösungsstreifen 'gleicher Orientierung'.

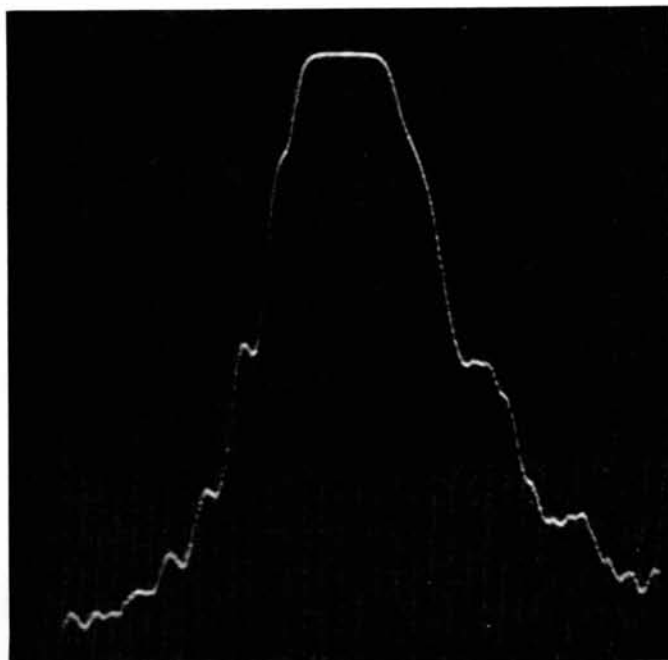


Fig. 7. Photometerkurve längs gestrichelter Linie in Fig. 6(b). Diffraction pattern (333) von dünnem Kristall, indirekt und verzerrt.

kunde erkennen lässt, zeigt der Innenbereich die starken Netzebenen-Verkrümmungen (deren vorgenanntes Ausmass allerdings erst mit Hilfe von Serien-Aufnahmen bei verschiedenen Winkelstellungen des Kristalls sichtbar wird).

Trotzdem wurde versucht, mittels Abtastung der Kristallfolie durch ein sehr scharfes Primärstrahlbündel (0,03 mm²) eine in kleinem Bereich genügend ebene Stelle zu finden für Aufnahme einer ungestörten diffraction pattern. In keiner der zahlreichen von verschiedenen Stellen aufgenommenen Reflexionskurven ist aber eine *sichere* Andeutung von Interferenz-Nebenmaximis zu erkennen. Die Kurven sind durchweg infolge der Gitterverbiegung verzerrt und verbreitert gegenüber derjenigen des dicken Kristalls (Fig. 4).

Immerhin ist ein Teilerfolg zu verzeichnen, der wenigstens wiedergegeben werden soll. Er ist bereits in Fig. 5 sichtbar. Dort und in weiteren ähnlichen Aufnahmen sind die gesuchten Interferenzen, wenn auch nicht auf die beabsichtigte Weise, doch in Erscheinung getreten: Die unerwünschten Gitter-Krümmungen realisieren die für die Aufnahme von Reflexionskurven erforderliche Kristalldrehung durch *örtliche* Orientierungs-Variation, so dass die zeitliche Abszissen-Variable in den Topogrammen als örtliche, wenn auch natürlich unregelmässig verzerrte Variable erscheint. Ein Teil des Mittelbereichs der Fig. 5 ist in Fig. 6(a) nochmals stark vergrößert wiedergegeben, dazu in (b) ein weiteres Beispiel. Beide zeigen deutlich Interferenzstreifen, welche die in maximaler Reflexion befindlichen Bänder begleiten. Eine Photometrierung längs der in 6(b) gestrichelt angedeuteten Linie (Fig. 7) lässt sich als – wenn auch in Abszisse und Ordinate verzerrte – diffraction pattern der gesuchten Art ansehen.* Natürlich sind an der Definition der genauen Lage der Interferenzstreifen ausser den Orientierungsschwankungen auch die örtlichen Dickenschwankungen beteiligt. Diese sind jedoch innerhalb der betreffenden Bereiche

* Die ausgeprägte 'Zylinderhut'-Form ist natürlich nur vorgetäuscht durch den exponentiellen Verlauf des Photometer-Ausschlags mit der Schwärzung.

geringfügig, vor allem z.B. längs der in Fig. 7 photometrierten Linie können sie als vernachlässigbar klein angesehen werden.

Es ist mit Sicherheit eine Frage nur noch kurzer Zeit, bis die gesuchten Kurven auch mit Hilfe des ursprünglich vorgesehenen Registrierverfahrens, und damit in quantitativ auswertbarer Form erzielt sein werden, brauchbar für Vergleich mit elektronisch für die speziellen Versuchsbedingungen aus der Theorie, u.a. auch unter Absorptionsberücksichtigung berechneten Kurven. Leider steht diese Zeit nicht mehr zur Verfügung bis zum definitiven Redaktionsschluss für das Festheft, sodass dieser Plan einer späteren Mitteilung vorbehalten bleiben muss.

Immerhin sind in den wiedergegebenen Topogrammen zwei Dinge erstmalig sichtbar geworden:

- (1) Pendellösungsinterferenzen *gleicher Neigung* (vergleichbar den Haidingerschen Ringen in der Optik), 'Fraunhofersche' Pendellösung gegenüber bisher ausschliesslich bekannter 'Fresnelschen'.
- (2) Pendellösungserscheinungen *beim Braggfall* überhaupt.

Herrn Dr J. Otto habe ich zu danken für fruchtbare Diskussionen und Mithilfe bei verschiedenen Rechnungen und Messungen, der Deutschen Forschungsgemeinschaft für grosszügige Unterstützung.

Literatur

- KATO, N. & LANG, A. R. (1959). *Acta Cryst.* **12**, 787.
 KATO, N. (1961). *Acta Cryst.* **14**, 526, 627.
 MALGRANGE, C. & AUTHIER, A. (1965). *C.r. Acad. Sci. Paris*, **261**, 3774.
 RENNINGER, M. (1938). *Z. Kristallogr.* **99**, 181.
 RENNINGER, M. (1955). *Acta Cryst.* **8**, 597.
 RENNINGER, M. (1961). *Z. Naturf.* **16a**, 1110.
 RENNINGER, M. (1967). *Advanc. X-Ray Analysis*, **10**, 32.
 ZACHARIASEN, W. H. (1944). *Theory of X-Ray Diffraction in Crystals*, S. 132. New York.