

Dispersion von Röntgenstrahlen im Gebiet der K-Kante und der L-Kanten schwerer Atome

H. EISENLOHR u. G. L. MÜLLER

Aus dem Institut für theoretische Physik der Universität Freiburg i. Br.

(Z. Naturforschg. 8a, 429—432 [1953]; eingegangen am 30. Mai 1953)

Die von den Verfassern auf Grund der wellenmechanischen Dispersionstheorie berechnete Röntgenstreuung an schweren Atomen für einen geschlossenen Spektralbereich von sehr kurzwelliger Strahlung bis einschließlich der K- und L-Absorptionskanten wird an Hand zweier Beispiele für Tellur ($Z = 52$) und Wolfram ($Z = 74$) diskutiert und mit Meßwerten verglichen. Die als Ergebnis der Untersuchungen gewonnenen Streukurven zeigen systematische Abweichungen gegenüber früher errechneten und zum Teil gute Übereinstimmung mit der Erfahrung.

Die ersten klassischen Ansätze zur Behandlung des Problems der kohärenten Röntgenstreuung durch amorphe Stoffe gingen von geometrisch-interferenzmäßigen Überlegungen aus und führten zu Streuformeln, die gute Übereinstimmung mit der Erfahrung zeigten, solange man eine Röntgenstrahlung von genügend kurzer Wellenlänge benutzte. Im Bereich langwelliger Röntgenstrahlung und insbesondere in der Nähe von Absorptionskanten, wo die Bindungskräfte der Ladungen im Atom eine Rolle spielen, konnte die Streuwirkung auf Grund der einfachen interferenzmäßigen Vorstellung jedoch nicht mehr richtig dargestellt werden, so daß es sich als notwendig ergab, die wellenmechanische Dispersionstheorie heranzuziehen. Diese geht von der Wallerschen Streuformel aus. Nach ihr ist das für die kohärente Streustrahlung maßgebende Moment

$$\mathfrak{P} = \frac{e^2}{8\pi^2 m v^2} \left\{ F_0 \cdot \mathfrak{E}_0 - \mathfrak{S} \right\} \cdot e^{2\pi i \nu t} + \text{konj. Glieder.} \quad (1)$$

\mathfrak{P} besteht somit aus 2 Summanden. Der erste, proportional $F_0 \cdot \mathfrak{E}_0$ mit dem Atomamplitudenfaktor

$$F_0 = \sum_s \int \psi_{\varrho}^* e^{i(k-k_0, \tau_s)} \psi_{\varrho} d\tau, \quad (2)$$

entspricht der *geometrisch-interferenzmäßigen Theorie* (Streuwirkung einer Ladungswolke) und wird allein maßgebend für hohe Frequenzen. Der zweite Bestandteil von \mathfrak{P} , proportional

$$\mathfrak{S} = \frac{\hbar}{4\pi^2 m} \sum_{\varrho'} \left\{ \frac{(\mathfrak{E}_0 \mathfrak{A}_{\varrho' \varrho}) \cdot \mathfrak{A}_{\varrho' \varrho}^*}{\nu_{\varrho' \varrho} - \nu} + \frac{(\mathfrak{E}_0 \mathfrak{A}_{\varrho \varrho'}) \cdot \mathfrak{A}_{\varrho \varrho'}^*}{\nu_{\varrho' \varrho} + \nu} \right\} \quad (3)$$

und den Matrixelementen:

$$\begin{aligned} \mathfrak{A}_{\varrho \varrho'}^0 &= \sum_s \int \psi_{\varrho'}^* \cdot e^{-i(k_0, \tau_s)} \cdot \text{grad}_s \psi_{\varrho} d\tau, \\ \mathfrak{A}_{\varrho \varrho'}^* &= \sum_s \int \psi_{\varrho'} \cdot e^{i(k, \tau_s)} \cdot \text{grad}_s \psi_{\varrho}^* d\tau, \end{aligned} \quad (4)$$

trägt der *anomalen Dispersion* Rechnung (siehe Resonanznennen) und wird in der Nähe der Absorptionskanten maßgebend. (Die $\nu_{\varrho' \varrho}$ sind die zum Übergang vom Grundzustand in den Anregungszustand gehörenden Frequenzen; s ist Elektronenindex, k_0 , k sind die Ausbreitungsvektoren der einfallenden bzw. der gestreuten Röntgenwelle; die Eigenfunktionen ψ_{ϱ} , $\psi_{\varrho'}$ sowie $d\tau$ sind hochdimensional.)

Hönl¹ hat nun in einer früheren Arbeit gezeigt, wie man den „anomalen Dispersionsteil“ für eine Atomschale eines gegebenen Elementes berechnen kann und hat die Rechnungen speziell für die K-Elektronen explizite durchgeführt. Das Streumoment des Atoms (1) wird hierbei nach Multipolen entwickelt und die zu jedem Multipol gehörende charakteristische Frequenzabhängigkeit bestimmt. Bei der genauen Durchführung der Rechnung findet Hönl, daß zur Deutung der „anomalen Dispersion“ der K-Schale die Berücksichtigung der Dipolglieder praktisch bereits vollständig ausreicht. Die berechneten Dispersionskurven, die von der Kallmann-Markschen wesentlich abweichen, zeigten gute Übereinstimmung mit den damals vorliegenden Meßergebnissen.

Von den Verfassern wurde nun kürzlich die Hönl-sche Methode auf die L-Elektronenschale schwerer Atome übertragen. Es gelang auch hier, das Strah-

¹ H. Hönl, Ann. Physik. 18, 625 [1933].



lungsfeld des streuenden Atoms nach elektrischen Multipolen zu entwickeln und jedem Multipol eine spezifische Frequenzabhängigkeit zuzuordnen. Als Ergebnis dieser sehr umfangreichen Rechnungen wurde für den Atomfaktor F^2 (Streuintensität des Atoms bezogen auf die eines freien „Thomson-Elektrons“) folgender summarischer Ausdruck gefunden:

$$F^2 = F_0'^2 + \Delta_1 + \Delta_2. \quad (5)$$

Hierin bedeutet $F_0'^2$ den reduzierten idealen Atomfaktor, der im wesentlichen die „normale Dispersion“ beschreibt und für den in der Nähe der L-Absorptionskanten $F_0' = F_0 - n_K$ gilt; F_0 ist der „ideale Atomfaktor“ nach der geometrisch-interferenzmäßigen Theorie, n_K die „Zahl der Dispersionselektronen“ der K-Schale. Die beiden Glieder Δ_1 und Δ_2 enthalten die „anomale Dispersion“, Δ_1 röhrt allein von einem Dipol her, Δ_2 ist ein gemischtes Dipol-Quadrupolglied.

Der zur numerischen Berechnung der Streukurven notwendige Rechenaufwand ist recht erheblich, so daß die Streuformeln bisher nur auf zwei Streusubstanzen, Tellur und Wolfram, angewandt werden konnten. Für Tellur wurden Winkel- und Frequenzabhängigkeit der Streustrahlung getrennt untersucht, beim Wolfram beschränkten wir uns auf die Diskussion der Frequenzabhängigkeit. Die Untersuchungsergebnisse sind im einzelnen folgende:

1. Die Winkelabhängigkeit der Streustrahlung des amorphen Tellur wurde für drei zwischen K- und L-Kante gelegene Wellenlängen berechnet. Abb. 1 zeigt den Verlauf des Atomfaktors F^2 als Funktion von $\sin \theta/\lambda$ (θ = Braggscher Reflektionswinkel = halber Streuwinkel) bei diesendrei fest vorgegebenen Wellenlängen im Vergleich mit dem reduzierten idealen Atomfaktor ($F_0 - 1,2$)², wobei n_K als „Zahl der Dispersionselektronen“ für Tellur einer Arbeit von Hönl² entnommen wurde. Wie zu erwarten, liefert die Theorie die größte durch „anomale Dispersion“ verursachte Abweichung vom idealen Atomfaktor bei der Cr_K-Strahlung, deren Wellenlänge der L-Kante am nächsten liegt. Bei der Cu_K- und Ag_K-Strahlung ist die Abweichung vom idealen Atomfaktor geringer, außerdem erscheint sie hier mit entgegengesetztem Vorzeichen; wir befinden uns hier in dem Gebiet der durch die „anomale Dispersion“ der L-Schale verursachten Überhöhung des Atomfaktors (siehe unten). Die Abweichung des nach unseren Rechnungen gewonnenen Atomfak-

tors vom idealen wird in der Hauptsache vom Dipolglied Δ_1 getragen. Der Einfluß vom gemischten Dipol-Quadrupol-Glied Δ_2 bleibt gegenüber Δ_1 sehr klein, nimmt mit kürzer werdenden Wellenlängen zu und erreicht im extremsten Fall bei der Ag-Strahlung maximal 10% des Δ_1 -Wertes.

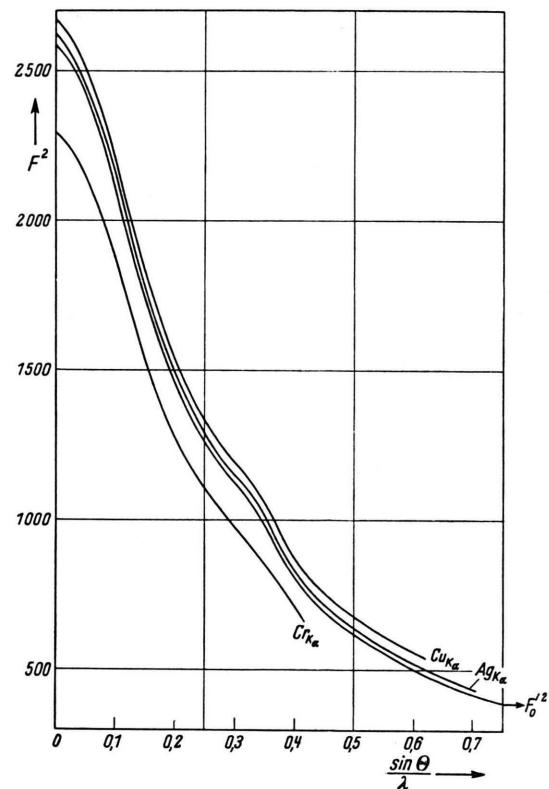


Abb. 1. Winkelabhängigkeit des Atomfaktors F^2 von Tellur ($Z = 52$) für Cr_K-Strahlung ($\lambda = 2,28 \text{ AE}$), Cu_K-Strahlung ($\lambda = 1,54 \text{ AE}$) und Ag_K-Strahlung ($\lambda = 0,588 \text{ AE}$) im Vergleich mit dem reduzierten idealen Atomfaktor F^2 .

2. Bei der Diskussion der Frequenzabhängigkeit des Atomfaktors beschränkten wir uns auf die Auswertung des Dipolgliedes Δ_1 , da Δ_2 — wie bereits bemerkt — außerhalb eines sehr engen Spektralbereichs um die L-Kanten und für nicht allzu kurzwellige Strahlung keinen nennenswerten Beitrag liefert. Der Einfluß höherer Schalen konnte auf Grund vorliegender Messungen der Photoabsorptionskoeffizienten auf der langwelligen Seite der L-Kanten teilweise mitberücksichtigt werden. Bei Tellur stützten wir uns auf Absorptionsmessungen von Biermann³; für Wolfram mußten wir, da keine

² H. Hönl, Z. Physik **84**, 15, Abb. 2 [1933].

³ H. Biermann, Ann. Physik **26**, 740 [1936].

geeigneten Messungen vorliegen, auf das von Jönsson⁴ gefundene Absorptionsgesetz zurückgreifen.

Die Dispersionskurven der Abb. 2 und 3, die den Atomamplitudenfaktor F in Abhängigkeit von der

Wellenlänge beim Streuwinkel $\theta = 0$ (Richtung des Primärstrahles) wiedergeben, zeigen qualitativ etwa denselben Verlauf. Während aber die Hönl'sche Dispersionskurve (gestrichelt) auf der langwelligen Seite der K-Kante asymptotisch in den

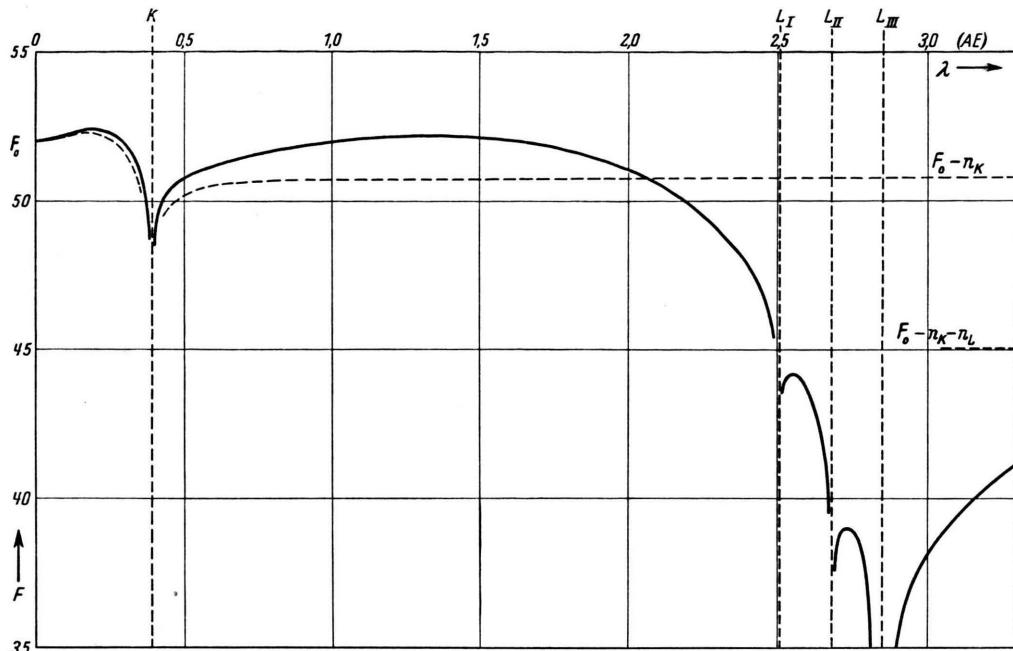


Abb. 2. Dispersionskurve für Tellur ($Z = 52$). Ausgezogene Kurve = Atomfaktor F als Funktion der Wellenlänge, gestrichelte Kurve = Hönl'sche Dispersionskurve für den K-Einfluß.

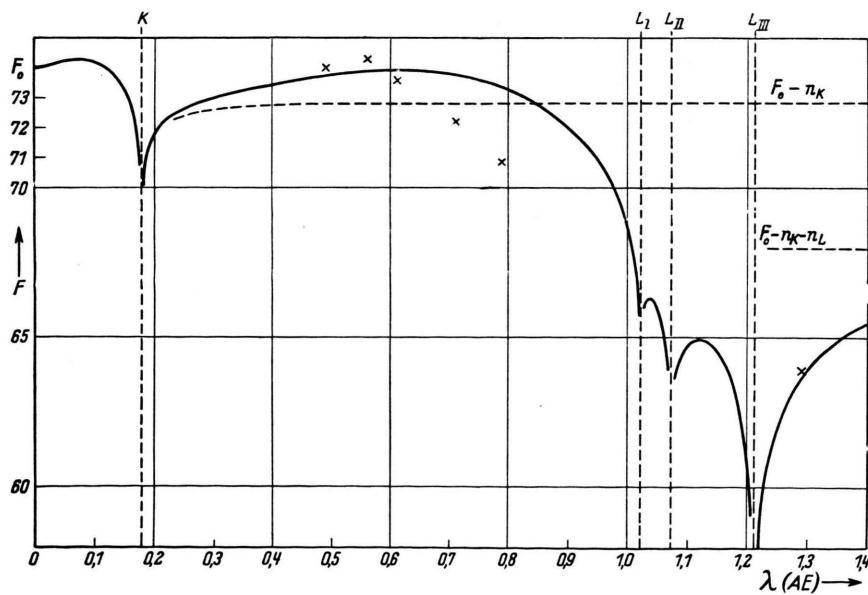


Abb. 3. Dispersionskurve für Wolfram ($Z = 74$). Ausgezogene Kurve = Atomfaktor F in Abhängigkeit von der Wellenlänge, gestrichelte Kurve = langwelliger Ast der Hönl'schen Dispersionskurve. $\times \times \times$ Meßwerte von Brentano und Baxter.

⁴ E. Jönsson, Dissertation Uppsala 1928/2.

konstanten Wert $F_0 - n_K$ ausläuft, steigen unsere Dispersionskurven weit über diesen Wert hinaus und erreichen zwischen der K-Kante und den L-Kanten ein Maximum, das beim Tellur höher als F_0 liegt und beim Wolfram beinahe bis an diese Größe heranreicht. Es scheint daher nicht möglich, die Zahl der K-Dispersionselektronen in der bisherigen einfachen Weise experimentell zu bestimmen, wie dies ohne Kenntnis des Einflusses der anomalen L-Dispersion versucht worden ist⁵. Während für Tellur noch keine experimentellen Werte der Dispersion vorliegen, haben Brentano und Baxter⁶ bereits vor längerer Zeit Dispersionsmessungen an Wolfram in der Nähe der L-Kanten ausgeführt. Diese (durch $\times \times$ in das Wolfram-Diagramm eingetragen) bestätigen die von uns gefundene Überhöhung des Dispersionsverlaufs zwischen der K- und den L-Kanten. Die beiden Meßpunkte in der Nähe der L₁-Kante liegen allerdings etwas zu tief, während die beiden Meßwerte auf der langwelligen Seite der L-Kanten

wieder befriedigend mit unserer Kurve übereinstimmen. Man beachte, daß in diesen langwelligen Spektralbereich bereits die anomale Dispersion der M-Schale einwirkt, die in der vorliegenden Untersuchung nur teilweise berücksichtigt werden konnte. Die bezüglich der gesamten anomalen M-Dispersion korrigierte Dispersionskurve würde analog den oben besprochenen Verhältnissen an der K-Kante nach höheren F -Werten hin verschoben werden, also zugunsten der beiden auf der langwelligen Seite der L-Kanten gefundenen experimentellen Werte.

Eine ausführliche Mitteilung mit Darlegung des Rechenganges erfolgt demnächst in der „Zeitschrift für Physik“.

Herrn Prof. H. Hönl danken wir an dieser Stelle für die Anregung zu dieser Arbeit und sein förderndes Interesse. Für die großzügige Unterstützung der Arbeit durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft sei dieser ebenfalls bestens gedankt.

⁵ Vgl. R. W. James, The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays, London 1950.

⁶ J. Brentano u. A. Baxter, Z. Physik **89**, 720 [1934].

Elektronenzustände kubischer Kristalle in Brillouinscher Näherung*

Von J. HOMILIUS

Aus dem Institut für theoretische Physik der Universität Münster i. Westf.

(Z. Naturforschg. **8a**, 432—441 [1953]; eingegangen am 29. Mai 1953)

Eigenfunktionen und Energieflächen für die kubischen Gitter Γ_c , Γ_c' und Γ_c'' werden in erster Brillouinscher Näherung behandelt und insbesondere für das kubische Flächen-gitter näher untersucht. Es werden die Energieaufspaltungen in den Umgebungen der ersten sechs Resonanzstellen berechnet und Energiebänder längs charakteristischer Ge-radien auf den Begrenzungsfächeln der ersten Brillouin-Zonen graphisch dargestellt.

Zur Berechnung der inneren Feldemission in Ein-kristallen nach dem Houston'schen Ansatz^{1,2} ist die Kenntnis der Elektroneneigenfunktionen im Kristall und besonders der dazugehörigen Energiewerte in Abhängigkeit von den Impulsen bzw. Wellenzahlen nötig, und zwar kommt es besonders auf die Verhältnisse an den Bandgrenzen an. Aus den vorhandenen Rechnungen lassen sich meist nur der Energieverlauf längs Geraden, welche innerhalb der Zonen liegen, und die Wellenfunktion fast stets nur

für bestimmte Punkte des Wellenzahlraumes entnehmen. Eine für den ganzen Wellenzahlraum gültige Lösung wurde von Slater³ angegeben, doch ist sein Potentialansatz zu speziell, da er nur Fourier-Koeffizienten v_{100} enthält; die resultierenden Funktionen sind für unsere Zwecke zu schwer zu handhaben. Um Wellenfunktionen und Energieflächen in einer möglichst einfachen analytischen Gestalt zu gewinnen, welche die etwas komplizierten Operationen der Houston'schen Theorie zuläßt,

* Erster Teilauszug aus der Dissertation, Münster i. Westf.

¹ W. V. Houston, Physic. Rev. **57**, 184 [1940].

² J. Homilius, Z. Naturforschg. **7a**, 290 [1952].

³ J. C. Slater, Physic. Rev. **87**, 807 [1952].