

## Einfluß kleinster Gitterdeformationen auf den Weg und die Absorption interferierender Röntgen-Strahlen

Von U. BONSE

Physikalisches Institut der Universität Münster (Westf.)

(Z. Naturforsch. 18 a, 421–422 [1963]; eingegangen am 4. Februar 1963)

Wie vornehmlich BORRMANN<sup>1</sup> und v. LAUE<sup>2</sup> gezeigt haben, resultieren bei RÖNTGEN-Interferenzen im Idealkristall aus der hier möglichen weiträumigen kohärenten Überlagerung von einfallender Welle  $K_0$  und reflektierter Welle  $K_h$  sogenannte Wellenfelder, die sich insbesondere durch drei Eigenschaften von einfachen ebenen Wellen wesentlich unterscheiden:

1. Im Wellenfeld strömt die Energie der Komponenten  $K_0$  und  $K_h$  *gemeinsam* in einer neuen Richtung  $j$ . Dies führt bei seitlicher Eingrenzung zur Ausbildung von Wellenfeldstrahlen.
2.  $j$  überstreicht beim Durchschreiten des Interferenzbereiches bereits den gesamten Winkelbereich zwischen den Richtungen  $s_0$  und  $s_h$  der Wellenfeldkomponenten.  $j$  ist festgelegt durch  $|\xi|$ , wo  $\xi = D_h/D_0$  das Verhältnis der Amplituden  $D_h$  und  $D_0$  der dielektrischen Verschiebung der Komponenten ist. Wenn  $|\xi|=1$ , läuft der Strahl parallel zu den Netzebenen. Bei  $|\xi|<1$  werden diese „von vorn“ und bei  $|\xi|>1$  „von hinten“ angeströmt.
3. Wellenfeldstrahlen haben eine anomale Absorption. Je nach dem Wert von  $\xi$  kann diese größer oder kleiner als normal sein.

Die Breite des Interferenzbereiches beträgt einige Winkelsekunden, da sie der „Reflexionsstärke“  $|\chi_h| \approx 10^{-5}$  proportional ist. Aus diesem Grunde haben schon sehr kleine Gitterdeformationen einen starken Einfluß auf Wellenfelder. Bei stärkerer Störung der Gitterkohärenz werden die Wellenfelder zweifelsohne in ihre Komponenten zerfallen.

Es gibt jedoch gute Gründe für die Annahme, daß Wellenfelder auch im deformierten Gitter existieren, sofern die Deformation eine bestimmte, noch näher festzulegende Grenze nicht überschreitet. Dies dürfte zunächst sicher richtig sein für den Grenzfall beliebig kleiner Deformation. Außerdem aber spricht die Beobachtung gekrümmter Strahlwege in zwar schwach, aber doch merklich deformierten Kristallen und der dabei noch auftretenden anomal kleinen Absorption durch HILDEBRANDT<sup>3</sup> sowie durch den Verfasser<sup>4</sup> dafür,

daß auch im verbogenen Gitter der Energietransport durch Wellenfelder erfolgen kann.

Aus der Tatsache der Krümmung des Strahlweges folgt allerdings, daß das Wellenfeld beim Fortschreiten einer Veränderung unterworfen ist. Dies ist jedoch zu erwarten, wenn man annimmt, daß lokal „im Kleinen“ jeweils ein wie im Idealkristall auf das Gitter passendes Wellenfeld verwirklicht ist, was natürlich eine kontinuierliche Anpassung an den jeweils neu angetroffenen Deformationszustand bedingt. Diese Anpassung wird erleichtert durch den Umstand, daß bereits im Idealkristall nicht nur ein einziges Wellenfeld, sondern eine ganze Mannigfaltigkeit  $M(h)$  realisierbar ist. ( $h$ : reziproker Gittervektor der reflektierenden Netzebenenchar.  $M(h)$  ist die als Lösungsgesamtheit der dynamischen Grundgleichungen bekannte Dispersionsfläche.) So steht z. B. an einer bestimmten Stelle A des Strahlweges, wo das Gitter den Zustand  $h_a$  und das Wellenfeld gerade den Wert  $\xi_a$  haben möge, für den Übergang zur infinitesimalen benachbarten Stelle B mit dem Gitterzustand  $h_b$  die Mannigfaltigkeit  $M(h_b)$  der in einem Idealkristall an der Schar  $h_b$  möglichen Wellenfelder für die Wahl des neuen Wertes  $\xi_b$  zur Verfügung.  $M(h)$  ist, wie man zeigen kann, nach Zusammenfassung physikalisch nicht wesentlich verschiedener Wellenfelder auf einen Kreisring um den Nullpunkt in der komplexen  $\xi$ -Ebene eineindeutig abbildbar.

Geht man nun daran, die differentielle Änderung  $d\xi$  des Wellenfeldes beim Fortschreiten um  $d\mathbf{r} = \mathbf{j} d\mathbf{l}$  von A nach B in Abhängigkeit von der Gitterdeformation herzuleiten, um auf diese Weise<sup>5</sup> den Strahlweg und die Absorption schrittweise zu berechnen, so macht gerade die Freiheit in der Wahl von  $\xi_b$  zunächst Schwierigkeiten.

Bei Wellenfeldanregung von außen sind zusätzlich zu den Grundgleichungen die Grenzbedingungen des LAUE- bzw. BRAGG-Falls zu erfüllen. Durch diese werden in der  $\xi$ -Ebene aus dem *zusammenhängenden* Ring für jeden der beiden Fälle zwei voneinander *getrennte*  $\xi$ -Kurven isoliert, denen zwei unzusammenhängende Teil-Dispersionsflächen („Schalen“) entsprechen. Allen Wellenfeldern dieser Schalen ist gemeinsam, daß bei ihnen Absorptions- wie auch Extinktionsdämpfung – wenn überhaupt – nur in einer bestimmten festen Richtung zur Kristalloberfläche auftreten. Dies ist gerade das Prinzip ihrer Auswahl. PENNING und POLDER haben nun die benötigte Einschränkung von  $M(h)$  durch Bindung an eine dieser Schalen erreicht<sup>7</sup>. Da

<sup>1</sup> G. BORRMANN, Naturwiss. 42, 67 [1955]; Artikel in „Beiträge zur Physik und Chemie des 20. Jahrhunderts“, Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig 1960.

<sup>2</sup> M. v. LAUE, Röntgenstrahlinterferenzen, Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt 1960.

<sup>3</sup> G. HILDEBRANDT, Z. Krist. 112, 340 [1959].

<sup>4</sup> U. BONSE, Beitrag zum Symposium über „Neue Fortschritte zur experimentellen und theoretischen Methodik der Kristallstrukturforschung“, München 1962.

<sup>5</sup> Diese Methode der dynamischen Behandlung der Wellenfeldausbreitung wurde zuerst von PENNING und POLDER<sup>6</sup> vorgeschlagen und angewendet. Gegenüber einer allgemeinen dynamischen Theorie der RÖNTGEN-Interferenzen im defor-

mierten Kristallgitter hat sie vor allem den Vorteil, wesentlich einfacher zu sein und außerdem direkt etwas zu liefern, was auch der Beobachtung zugänglich ist: nämlich den Verlauf einzelner Wellenfeldstrahlen.

<sup>6</sup> P. PENNING u. D. POLDER, Philips Res. Rep. 16, 419 [1961].

<sup>7</sup> Die genannten Autoren nehmen an, daß das Wellenfeld auf einer der im LAUE-Fall entstehenden Schalen bleibt. Da sie außerdem diese unter Vernachlässigung der (normalen) Absorption als rein reell ansetzen, lassen sie zugleich auch nur reelle  $\xi$ -Werte zu. Da im BRAGG-Fall bereits bei der Wellenfeldanregung wesentlich komplexe  $\xi$ -Werte auftreten, ist der Ansatz allein schon aus diesem Grunde hier nicht zu gebrauchen.



dies jedoch nach dem vorangegangenen darauf hinausläuft, jegliche Änderung der Richtung der Absorptions- bzw. Extinktionsdämpfung unter dem Einfluß der Gitterdeformation von vornherein auszuschließen, erscheint uns dieses Vorgehen nicht sehr sinnvoll. Man wird vielmehr durchaus damit zu rechnen haben, daß im deformierten Gitter ein Wellenfeld die an der Oberfläche zunächst angenommene Schale ohne Schwierigkeiten wieder verläßt und irgendwelche andere Zustände  $\xi$  der Umgebung annimmt.

Einen direkten experimentellen Beweis hierfür liefern die oben erwähnten Beobachtungen<sup>3,4</sup> gekrümmter Strahlwege in schwach verformten Kristallen. Die Anregung der Wellenfelder erfolgte hier im symmetrischen BRAGG-Fall. Da Strahlen beobachtet wurden, welche die Eintrittsfläche nach vorn wieder verließen, muß ausgehend von  $|\xi| < 1$  schließlich  $|\xi| > 1$  geworden sein. Dies ist jedoch mit dem Verbleib auf einer der BRAGG-Schalen nicht verträglich, da auf diesen entweder stets  $|\xi| < 1$  oder aber  $|\xi| > 1$  ist.

Man kann jedoch auf folgende Weise zu einem – wie es scheint – besser begründeten Ansatz für die Änderung des Wellenfeldes durch die Deformation gelangen. Mit Benutzung des „Wellenfeldvektors“  $\mathbf{w} = \mathbf{K}_0 + \mathbf{K}_h$ , durch dessen Einführung die Einheit des Wellenfeldes und die Gleichberechtigung von  $\mathbf{K}_0$  und  $\mathbf{K}_h$  auch formal sehr zweckmäßig berücksichtigt werden kann, stellt sich die dielektrische Verschiebung  $D$  als eine ebene Welle  $\mathbf{w}/2$  mit einer gitterperiodischen Amplitude  $D'$  dar:

$$D = \exp[-2\pi i(\mathbf{w}/2 \cdot \mathbf{r} - \nu t)] D'$$

$$\text{mit } D' = D_0[\xi \exp(-\pi i \mathbf{h} \cdot \mathbf{r}) + \exp(\pi i \mathbf{h} \cdot \mathbf{r})].$$

Im Idealkristall ist  $\mathbf{w}$  überall konstant. Die „Phasenrichtigkeit“ der Komponenten  $\mathbf{K}_0$  und  $\mathbf{K}_h$  miteinander und mit dem Gitter ist selbst über makroskopische Entfernungen hin gewährleistet. Im deformierten Gitter gilt dieses nur noch bis zu einer Maximalentfernung. Diese ist aber sicher am größten, und damit die Störung des dynamischen Wechselspiels am geringsten, wenn die Welle  $\mathbf{w}$  möglichst homogen ist, d. h. wenn durch die Deformation so wenig wie möglich an  $\mathbf{w}$  geändert wird. Es ist daher sinnvoll zu verlangen, daß die Ableitungen von  $\mathbf{w}$  nach dem Ort, welche ja die Inhomogenität von  $\mathbf{w}$  angeben, minimal sein sollen. Eine genauere Überlegung zeigt, daß man zweckmäßig für das doppeltskalare Produkt

$$\nabla \mathbf{w} \dots \nabla \mathbf{w}^* = \text{Minimum!}$$

zu fordern hat. Die Auswertung dieser Minimumforderung bei den Nebenbedingungen des Verbleibs von  $\mathbf{w}$  auf der jeweiligen lokalen allgemeinen komplexen Dispersionsfläche und der Wirbelfreiheit<sup>8</sup> von  $\mathbf{w}$  liefert nach einiger Rechnung eindeutig einen Ausdruck

für  $d\xi$  als Funktion der Deformation. Dieser ist von der Form

$$d\xi = \frac{A dl}{\sqrt{\chi_h \chi_h}} (FF \cdot B_1 \cos^2 \Theta + NN \cdot B_2 \sin^2 \Theta + FN \cdot B_3 \sin \Theta \cos \Theta),$$

worin  $\Theta$  der BRAGGSche Winkel ist. Seine Aufspaltung in die drei Hauptdeformationen  $FF$ ,  $NN$  und  $FN$  ermöglicht es, sofort deren Wirkungen auf das Wellenfeld einzeln zu studieren. Es gibt  $FF$  die Krümmung der Netzebenen,  $NN$  die Änderung des Abstandes der Netzebenen in einer Richtung senkrecht zu diesen und  $FN$  die Fächerung der Netzebenen an. Jede beliebige Deformation läßt sich aus ihnen zusammensetzen.  $A$ ,  $B_1$ ,  $B_2$  und  $B_3$  hängen nicht von der Deformation, sondern nur vom momentanen Zustand des Wellenfeldes  $\xi_a$  ab. Man beachte, daß die Beziehung für beliebige komplexe  $\xi$  gilt. – Für die Berechnung der Absorption benötigt man noch die Erweiterung der Beziehung für den auf den Strahlweg bezogenen Absorptionskoeffizienten  $\sigma_j$  auf komplexe  $\xi$ . Hierfür folgt

$$\sigma_j = \sigma \frac{1 + |\xi|^2 + 2A \xi_r}{\sqrt{1 + |\xi|^4 + 2|\xi|^2 \cos 2\Theta}}$$

$$\text{mit } A = C[\text{Re } \chi_{ih} + (\xi_i/\xi_r) \text{Im } \chi_{ih}]/\chi_{i0},$$

wo  $\xi_r$ ,  $\xi_i$  Real- und Imaginärteil von  $\xi$  bedeuten und im übrigen die üblichen Bezeichnungen verwendet sind.

Mit den erhaltenen Ausdrücken wurden Strahlwege bei verschiedenen Deformationen numerisch berechnet. Hier können nur die Strahlwege bei den elementaren Verformungszuständen kurz skizziert werden.  $FF \neq 0$  oder  $NN \neq 0$  bewirkt stets eine Krümmung des Strahles. Dabei werden anomal schwach absorbierte Wellenfelder im gleichen Sinne wie die Netzebenen bzw. in Richtung der Gitterverdichtung abgelenkt. Für anomal stark absorbierte Felder gilt das Gegenteil. Die Gitterfächerung beeinflusst das Wellenfeld je nach der Größe von  $|\xi_i|$  unterschiedlich. Es können sowohl eine einfache Strahlumlenkung als auch zwei Umlenkungen nacheinander in entgegengesetztem Sinne oder auch gar keine Einwirkung auf den Strahl vorkommen (z. B. bei  $\xi_i \equiv 0$ ). Die Strahlkrümmungen sind – wie erwartet – etwa um den Faktor  $1/|\chi_h| \approx 10^5$  größer als die Krümmungen der Netzebenen.

Aus den hier abgeleiteten Beziehungen folgt das Ergebnis von PENNING und POLDER als Spezialfall bei Beschränkung auf rein reelle  $\xi$ -Werte. Dies ist bei der Verschiedenheit der Ansätze bemerkenswert.

Eine ausführliche Darstellung des hier skizzierten Ansatzes und der mit ihm erhältlichen Ergebnisse wird an anderer Stelle gegeben werden.

Die numerischen Rechnungen wurden auf der von der Deutschen Forschungsgemeinschaft bereitgestellten elektronischen Rechenmaschine im Institut für Angewandte Physik der Universität Münster durchgeführt.

<sup>8</sup> Die Forderung  $\text{rot } \mathbf{w} = 0$  ist im Grunde trivial. Sie sorgt lediglich dafür, daß bei Erfüllung der Minimumbedingungen stets wieder ein echter Wellenvektor  $\mathbf{w}$  herauskommt,

d. h. daß überall  $\text{Re}(\mathbf{w})$  senkrecht auf den Phasen- und  $\text{Im}(\mathbf{w})$  senkrecht auf den Amplitudenflächen der Welle  $\mathbf{w}$  bleibt.