

Methode zur Bestimmung der Ausdehnung mittelgroßer idealer Gitterebenenbereiche auf Kristalloberflächen

Von A. KELLER

Universidad Técnica F. Santa María, Valparaíso (Chile)
(Z. Naturforsch. 18 a, 1205—1207 [1963]; eingegangen am 13. September 1963)

Ein charakteristischer RÖNTGEN-Strahl wird durch zwei enge parallele hintereinanderliegende Spalte geschickt und von einer ebenen Oberfläche des zu untersuchenden Kristalls unter einem BRAGGSchen Winkel reflektiert. Die Spaltbreiten sind so bemessen, daß die Beugung am zweiten Spalt eine minimale Reflexbreite ergibt. Findet man im Versuch diesen Wert, so kann man schließen, daß die Kohärenz der Wellen bei der Reflexion erhalten blieb, mithin der Kristall über den ganzen getroffenen Bereich ideal ist. Versuche mit MgO (Reflex 200) und Kalkspat (Reflex 211) ergaben annähernd die theoretischen Reflexbreiten; man kann aus diesen Ergebnissen auf Ausdehnungen der idealen Gitterebenenbereiche von mindestens 18 bzw. 24 μ schließen.

Die Frage nach der Größe der kohärenten Bereiche von Kristallen hat für zahlreiche Anwendungen Interesse, u. a. für den Bau von Elektroneninterferometern, die mit der Reflexion an Kristallen arbeiten^{1—3}.

Unter einem „kohärenten Bereich“ sei hier ein Bereich verstanden, in welchem jeder ganz in ihm verlaufende geschlossene Weg den BURGERS-Vektor Null ergibt. Der Bereich darf fehlerhafte oder fremde Einschlüsse, Hohlstellen, auch kleine in sich geschlossene Versetzungslinien enthalten.

Wenn in einem Kristallbereich der BURGERS-Vektor für jeden beliebigen Umlauf in einer bestimmten Gitterebene liegt, so wollen wir das so ausdrücken: Der Bereich besteht aus idealen Gitterebenen der betreffenden Orientierung; innerhalb der Gitterebene können dann Atome verschoben sein, aber ihre Atome, wie sie durch schrittweise Fundamentaltranslationen erreicht werden können, liegen in einer einblättrigen Fläche.

Die klassischen Methoden mit RÖNTGEN-Strahlen liefern nur Aussagen über kleine Bereiche (unterhalb von rund 1 μ), was mit der Eindringtiefe bei BRAGGScher Reflexion zusammenhängt. Ein neueres, von BARTH⁴ angegebene Verfahren arbeitet mit der Anordnung von Abb. 1. Die Spalte S₁ und S₂ sind wesentlich breiter als die idealen Gitterebenenbereiche des Kristalls. Durch die Kleinheit der letzteren wird eine Winkelstreuung des reflektierten Strahles hervorgerufen, die mit der Ausdehnung der idealen

Bereiche umgekehrt proportional ist. Damit diese Winkelstreuung mit der geometrischen Streuung konkurrieren kann, dürfen die Spalte nicht zu breit sein, was die Anwendungsmöglichkeit einengt. In der Tat scheint das Verfahren nicht auf Bereiche angewendet worden zu sein, die wesentlich über 1 μ liegen.

Bei größeren Bereichen ist man auf das Aufsuchen von Fehlern — Versetzungen und Stapelfehlern — angewiesen, sei es durch Ätzung der Oberfläche und nachfolgende mikroskopische oder elektronenmikroskopische Beobachtung, durch Infrarotdurchstrahlung nach der „Dekorationstechnik“⁵, durch elektronenmikroskopische Durchstrahlung^{6, 7}, durch RÖNTGEN-Durchstrahlung⁸ (in den beiden letzteren Fällen machen sich die Fehler durch erhöhte Reflexion bemerkbar) oder, gleichfalls in RÖNTGEN-Durchstrahlung, mit Hilfe des anomalen Transmissionseffekts^{9—11}. Im letzteren Fall kriecht der RÖNTGEN-Strahl entlang einer BRAGGSchen Fläche durch einen dicken Kristall, wobei sich die Fehler durch Absorption bemerkbar machen. Dieses Verfahren dürfte, wenn man von der elektronenmikroskopischen Durchstrahlung absieht, das einzige der vorgenannten Verfahren sein, bei dem man mit Sicherheit schließen kann, daß die sich als fehlerfrei ausweisenden Gebiete kohärent sind (in einem einzel-

¹ L. MARTON, Phys. Rev. **85**, 1057 [1952].

² L. MARTON, J. A. SIMPSON u. J. A. SUDDETH, Phys. Rev. **90**, 490 [1953].

³ A. KELLER, Optik **19**, 117 [1962].

⁴ H. BARTH, Z. Naturforsch. **13 a**, 680 [1958].

⁵ W. C. DASH, J. Appl. Phys. **27**, 1193 [1956].

⁶ J. D. VENABLES, Phys. Rev. **122**, 1388 [1961].

⁷ R. H. FINCH, H. J. QUEISSE, G. THOMAS u. J. WASHBURN, J. Appl. Phys. **34**, 406 [1963].

⁸ A. R. LANG, J. Appl. Phys. **30**, 1748 [1959].

⁹ G. BORRMANN, Phys. Z. **43**, 157 [1941].

¹⁰ G. BORRMANN, W. HARTWIG u. H. IRMLER, Z. Naturforsch. **13 a**, 423 [1958].

¹¹ G. H. SCHWUTTKE, J. Appl. Phys. **33**, 2760 [1962].

¹² G. BORRMANN u. G. HILDEBRANDT, Z. Naturforsch. **11 a**, 585 [1956].



nen Experiment: daß sie aus idealen Gitterebenen bestehen).

Andererseits haben BORRMANN und HILDEBRANDT¹² sowie HUNTER¹³ nachgewiesen, daß schon ganz geringe Deformationen die Absorption erheblich erhöhen, so daß hier umgekehrt die kohärenten Bereiche in Wirklichkeit größer sein können als die Aufnahmen schließen lassen. Das Verfahren ist zudem leider nur anwendbar, wenn die idealen Bereiche mindestens rund 100μ groß sind; bei größeren Fehlerdichten kommt keine Strahlung durch, da die von den Fehlern geworfenen Schatten etwa 50μ breit sind und der Kristall ziemlich dick (z. B. 1 mm) sein muß, damit die normale Absorption hinreichend stark ist.

Es klafft also eine Lücke zwischen etwa 1 und 100μ , und es scheint deshalb von Interesse, hier eine Methode zu beschreiben, die einen Nachweis für die Idealität von Gitterebenenbereichen dieser Größenordnung erbringt.

Das Prinzip

Ein RÖNTGEN-Strahl, der eine starke Linie enthält, wird durch zwei schmale Spalte S_1 und S_2 (Abb. 1) geschickt und an der Oberfläche des zu untersuchenden Kristalls K unter einem BRAGGSchen Winkel γ reflektiert. Der Reflex wird auf dem Film F aufgenommen. Abstände und Spaltbreiten sind so bemessen, daß der zur Reflexion gelangende Frequenzbereich nur einen kleinen Teil der Linienbreite ausmacht. Auch ist der Bereich des Auftreffwinkels kleiner als der Winkelbereich, innerhalb dessen ein genau monochromatischer Strahl reflektiert wird.

Die Methode unterscheidet sich von der von BARTH⁴ dadurch, daß die „Beugung am Spalt“ benutzt wird. Diese wird nach der Reflexion am Kristall nur dann erscheinen, wenn die Phasenbeziehungen über die ganze von der Strahlung getroffene Kristalloberfläche erhalten bleiben. Die Methode liefert also in einem einzelnen Versuch einen Minimalwert für die Ausdehnung der idealen Gitterebenen. Die Erhaltung der Kohärenz ist besonders einfach und ohne genaue Ausmessung des Reflexes festzustellen dann, wenn die Breite des Beugungsbildes wesentlich kleiner ist als das geometrisch-optische Strahlungsfeld.

Nehmen wir einmal an, der Kristall sei ein idealer Spiegel und der Spalt S_1 sei sehr eng. Wenn wir

die Abstände konstant halten und die Breite a des Spaltes S_2 variieren, so wird bei großem a aus geometrisch-optischen Gründen ein breiter Reflex entstehen. Bei sehr kleinem a wird wegen der Beugung gleichfalls ein breiter Reflex entstehen. Dazwischen liegt ein Minimum. Wählt man $D_1 = D_2 = D$ und berechnet jenes Minimum der Halbwertsbreite b nach der Beugungstheorie (FRESNEL-Integrale), so erhält man¹⁴ für a den Wert

$$a_0 = 1,2 \sqrt{D \lambda}$$

und für die dazugehörige Halbwertsbreite b

$$b_0 = 0,87 \sqrt{D \lambda}.$$

Man beachte, daß $b_0/a_0 \approx 0,7$, während es nach der geometrischen Optik gleich 2 wäre.

Genau genommen müßte man bei der Rechnung berücksichtigen, daß in dem Strahl Wellenlängen vorkommen, die nur von einem Teil der getroffenen Kristalloberfläche reflektiert werden, weil für den restlichen Teil die BRAGGSche Bedingung nicht genau genug erfüllt ist. Hierauf wurde hier verzichtet.

Im Versuch wählt man $a = a_0$. Es ist aber nicht notwendig, diesen Wert genau einzuhalten, da b im Minimum liegt.

Durch die endliche Breite von S_1 entsteht ein Reflex, der etwas breiter ist als b_0 und leicht zu berechnen ist. Findet man im Versuch annähernd diese Reflexbreite, so kann man schließen, daß der Kristall mindestens über Bereiche von

$$a' = a_0/\sin \gamma$$

aus idealen Gitterebenen besteht. Es ist nicht notwendig, daß er über die Länge des Spalts ideal ist.

Sind die idealen Gitterebenen kleiner als a' , so ist der Reflex breiter. Sind sie viel kleiner, so haben wir den Fall von BARTH⁴. Annähernd ist dann

$$b = 0,88 D \lambda/a'' \sin \gamma,$$

a'' = Größe der idealen Gitterebenen.

Dabei ist allerdings vorausgesetzt, daß die idealen Bereiche wenig verkippt sind. Eine Methode, die Verkippung gesondert zu bestimmen, findet sich bei BARTH⁴.

Experimentelles

Es wurde mit $\text{Cu K}\alpha_1$, 46 kV, 20 mA gearbeitet. $D_1 = D_2 = D$ betrug etwa 20 cm; die Spaltbreiten waren beide 6μ . Die errechnete Reflexhalbwertsbreite war $7,6 \mu$. Der Film war Peruline F 10 orthochromatisch ultrahart. Belichtungszeit etwa eine Stunde.

¹⁴ A. KELLER, Scientia 111, 27 [1960].

¹³ L. P. HUNTER, J. Appl. Phys. 30, 874 [1959].

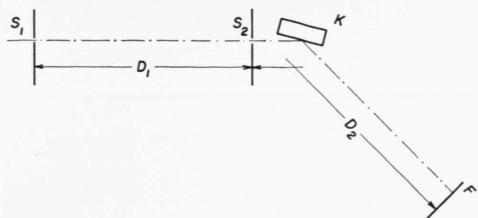


Abb. 1. Versuchsanordnung. S_1 und S_2 sind schmale Spalte, durch die der RÖNTGEN-Strahl auf den Kristall K fällt. D_2 ist der Weg des Strahles von S_2 zum Kristall K und von dort zum Film F.

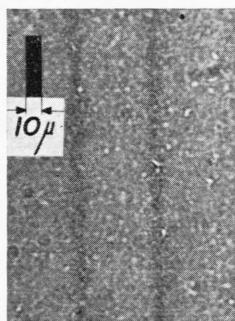


Abb. 2. Reflex 200 von MgO. Theoretische Halbwertsbreite für idealen Kristall $7,6 \mu$. Die doppelte Linie erklärt sich durch Reflexion an in verschiedenen Höhen befindlichen Kristallpartien, die etwas um die Horizontalachse geneigt sind.

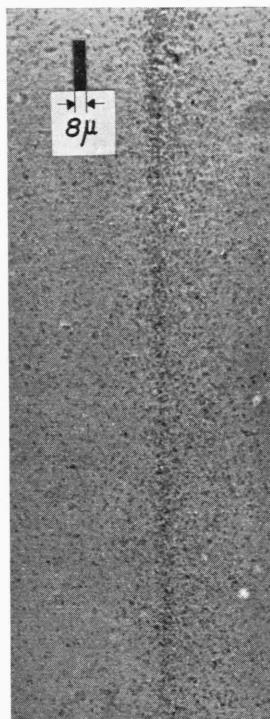


Abb. 3. Reflex 211 von Kalkspat. Theoretische Halbwertsbreite für idealen Kristall $7,6 \mu$.

Um den Kristall in die richtige Winkellage zu bringen, wurde nacheinander je einer der beiden Spalte entfernt und beide Male der Reflex auf demselben, dicht hinter dem Kristall angebrachten empfindlichen Film aufgenommen. Es erscheinen dann zwei Paare paralleler Linien; jedes Paar besteht aus einer $K\alpha_1$ - und einer $K\alpha_2$ -Linie. Durch Verdrehung des Kristalls bringt man beide $K\alpha_1$ -Reflexe zur Deckung.

Bei zahlreichen Versuchen wurde S_1 oder S_2 in einzelne Spalte von etwa 100μ Länge aufgeteilt, indem ein horizontales, aus $0,4 \text{ mm}$ starken, im lichten Abstand $0,1 \text{ mm}$ aufgeklebten Metalldrähten bestehendes Gitter davorgesetzt wurde. Dadurch sollte eine Verbreiterung des Reflexes durch unvollkommene Parallelität der Spalte oder Verkippung des Kristalls vermieden werden. Es wurden aber in keinem Fall schmalere Reflexe gefunden, so daß der Mehraufwand an Expositionszeit nicht gerechtfertigt erscheint.

Ergebnisse

Versuche mit MgO (Optical Irode Magnorite von Norton Co., Worcester, Mass.), Reflex 200 (Spaltebene) und Kalkspat, Reflex 211 (Spaltebene) ergeben die theoretische Breite von etwa 8μ , wie Abb. 2 und 3 zeigen. Für die idealen Gitterebenenbereiche errechnet sich als Minimalwert 18μ für MgO und 24μ für CaCO_3 .

Mit diesen Kristallen war trotz zahlreicher Versuche keine Spur von anomaler Transmission zu beobachten.

Dasselbe MgO, auf 300° erhitzt und in Wasser abgeschreckt, sowie andere Kalkspatsorten ergaben breitere Reflexe. Ein Pyritkristall in Reflexion 200 ergab Reflexe zwischen 20 und 35μ , was auf ideale Gitterebenenbereiche von etwa 5 bzw. 2μ schließen läßt.