

Zur Dreistrahlinterferenz von Röntgen-Strahlen *

W. Uebach

Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft, Berlin-Dahlem **

(Z. Naturforsch. **28 a**, 1214—1220 [1973]; eingegangen am 21. April 1973)

Herrn Professor Dr. G. Borrmann zum 65. Geburtstag gewidmet

Another Study of the Three Beam Diffraction of CuK α -Radiation by (111) and ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) in a Ge Crystal

The eigenvalue problem of the Ewald-v. Laue dynamical theory of X-ray diffraction by perfect absorbing crystals has been solved in the case of simultaneous diffraction of CuK α -radiation by the (111) and ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) planes of Germanium. The calculated intensities of the three beams agree fairly well with those measured on platelets of different thickness.

1. Einleitung

Im Jahre 1965 berichteten Borrmann und Hartwig¹ erstmalig, daß Röntgen-Strahlen, welche die Laue-Braggsche Interferenz-Bedingung an den Netzebenen (111) und ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) eines versetzungsfreien Germanium-Einkristalls gleichzeitig erfüllen, weitaus weniger absorbiert werden als solche, die nur mittels einer dieser Ebenen interferieren. Inzwischen ist dieser Dreistrahlfall, neben einer Reihe anderer, von mehreren Autoren untersucht worden^{1–10}.

Ein einfacher Versuchsaufbau zum Nachweis und zur Messung des Effektes ist in Abb. 1 skizziert. Ein experimentelles Diagramm, Abb. 3, wird in Abschnitt 4 besprochen werden.

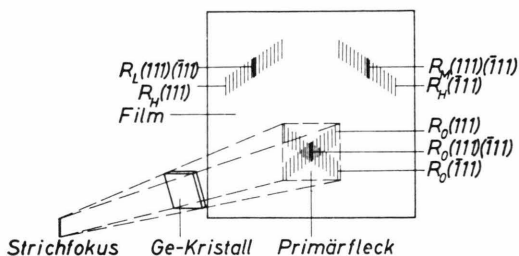


Abb. 1. Skizze des Versuchsaufbaus zum Nachweis der im Vergleich zum Zweistrahlfall (111) nochmals reduzierten Absorption im Dreistrahlfall (111) ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) und zur Messung der Reflexintensitäten (zur Erklärung der Reflexe siehe Text).

Bei der Interferenz unpolarisierter Röntgen-Strahlen an einer Netzebene werden in der Eintrittsfläche des Kristalls viermal unendlich viele zweikomponentige (d. h. aus zwei ebenen Wellen aufgebaute) Wellenfelder unterschiedlich angeregt. Sie werden

i. allg. verschieden stark absorbiert, zerfallen in der Austrittsfläche in ihre Komponenten und bilden somit zwei Strahlen – hier die Reflexe R_0 und R_H von (111) bzw. ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) – (Zweistrahlfall). Bei gleichzeitiger Interferenz an zwei Netzebenen entstehen in der Eintrittsfläche sechsmal unendlich viele dreikomponentige Wellenfelder unterschiedlicher Anregung und Absorption, welche an der Austrittsfläche zerfallen und drei Strahlen – hier die Reflexe R_0 , R_L und R_M von (111) ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) – bilden (Dreistrahlfall).

Absorbiert der Kristall stark, so wird die beobachtbare Strahlung vor allem durch das Wellenfeld kleinster Absorption bestimmt; seinen Absorptionskoeffizienten bezeichnen wir mit μ_{\min} . Im Zweistrahlfall gibt es für μ_{\min} eine allgemeingültige Formel (siehe ¹¹, Seite 417), im Dreistrahlfall nicht.

Für einige Dreistrahlfälle, darunter (111) ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$), ist μ_{\min} ausgerechnet worden. Auch die physikalische Interpretation ist klar: es kommt darauf an, wie nahe die Atome der Elementarzelle den Nullstellen des Wellenfeldes sind. Bei Reflexion an {111} liegen alle Atome außerhalb der Knotenebenen, und für Ge- und CuK α -Strahlung folgt unmittelbar

$$\mu_{\min}(111) \approx \mu_0(1 - 1/\sqrt{2})/\cos \Theta_{111} \approx 0,3 \mu_0$$

(Θ Braggscher Winkel).

Da $\mu_0 = 350 \text{ cm}^{-1}$ ist, wird $\mu_{\min}(111) = 105 \text{ cm}^{-1}$. Bei simultaner Reflexion an (111) und ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) liegen dagegen alle Atome in den Knotenlinien^{1, 2, 5} und es wurde $\mu_{\min}(111) (\bar{1}\bar{1}\bar{1}) = 18,5 \text{ cm}^{-1}$ berechnet. Diese bereits bekannten drei Zahlen können als Orientierungspunkte des Problems gelten.

* Dissertation Freie Universität Berlin, Juli 1971, gekürzte Fassung.

** Sonderdruckanforderungen an jetzige Anschrift: Senator für Wissenschaft und Kunst – Projektgruppen Curriculumforschung – Naturwissenschaften, D-1000 Berlin 13, Hallemweg 26.



Im Zweistrahlfall sind die Komponenten des Wellenfeldes, für das μ_{\min} gilt, immer gleich stark, es ist $I_0 : I_H = 1 : 1$. Im Dreistrahlfall ist keine Regel bekannt. Für (111) ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) gilt $I_0 : I_L : I_M = 2 : 1 : 1$, für (111) ($\bar{1}\bar{1}1$) jedoch $I_0 : I_L : I_M = 0 : 1 : 1$.

Bei endlicher Kristalldicke sind die Strahlen, die den Kristall verlassen, immer inhomogen; sie enthalten die Komponenten von Wellenfeldern, die stärker als mit μ_{\min} absorbiert werden. Im Zweistrahlfall gibt es eine allgemeingültige Formel für das integrale Reflexionsvermögen, die alle Felder berücksichtigt (z. B. ¹²). Im Fall (111) ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) weiß man aus den ersten Messungen der Absorption ¹³, daß die Felder mit $\mu > \mu_{\min}$ wichtiger sind als im Zweistrahlfall, denn mit zunehmender Kristalldicke t konvergiert der in der Tiefe t wirksame Absorptionskoeffizient μ_{eff} erheblich langsamer gegen μ_{\min} als im Zweistrahlfall.

Ziel dieser Arbeit ist es, die früheren Meßergebnisse ¹³ durch Experimente an einem neuen Kristall-exemplar zu überprüfen und zu erweitern, sowie durch vollständige numerische Berechnung der drei Reflexintensitäten als Funktion der Kristalldicke einen Vergleich zwischen Experiment und Theorie im Fall (111) ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) zu ermöglichen.

2. Theorie; Herleitung des Eigenwertproblems

Gleichzeitig mit unseren Rechnungen haben auch Feldman und Post eine numerische Lösung der Grundgleichungen für die Dreistrahlfälle (111) ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) und (111) ($\bar{1}\bar{1}1$) durchgeführt ^{8, 9}. Allerdings berichteten sie über ihre Rechnungen nur insoweit, als es zur Erklärung ihrer Beobachtung eines Hell-Dunkel-Effektes auf photographischen Aufnahmen nötig war, nämlich über Absorption und Anregung der Wellenfelder, nicht aber über die Intensitäten der drei Strahlen und den bei endlicher Kristalldicke wirksamen Absorptionskoeffizienten.

Hildebrandt führte seine ersten Rechnungen über die Aufstellung der Dispersionsgleichung ²; hier soll die von den meisten anderen Autoren benutzte, aber nur skizzierte Methode, nämlich die Darstellung als Eigenwertproblem, kurz entwickelt und begründet werden.

Die Grundgleichungen der dynamischen Theorie lauten ¹¹

$$(\mathbf{K}_m^2 - k^2) \mathbf{D}_m / \mathbf{K}_m^2 = \sum_n \chi_{m-n} \mathbf{D}_{n[m]}. \quad (1)$$

Dabei ist für m, n in unserem Fall $0 = (000)$, $L = (111)$ und $M = (\bar{1}\bar{1}1)$ zu setzen. Außerdem gilt

$$\mathbf{K}_m = \mathbf{K}_0 + \mathbf{b}_m. \quad (2)$$

Die drei Vektorgleichungen (1) lassen sich stets umformen in ein homogenes skalares Gleichungssystem sechsten Ranges mit komplexen Koeffizienten und mit den Komponenten von \mathbf{K}_0 als Parameter. Eine nützliche Vereinfachung erhält man durch

$$\mathbf{K}_m = \mathbf{K}_m^{\text{Lo}} - \mathbf{r}. \quad (3)$$

Dabei führt der Wellenvektor \mathbf{K}_m^{Lo} vom Lorentz-Punkt Lo aus zum Punkt m des reziproken Gitters, \mathbf{r} von Lo aus zur Dispersionsfläche. Lo ist nämlich, wie Ewald zeigte, in diesem Fall Inversionspunkt der Dispersionsfläche ⁶.

Definiert man noch Einheitsvektoren \mathbf{s}_m in Richtung der \mathbf{K}_m und beachtet, daß $\chi \approx 10^{-4} \ll 1$ ist, so läßt sich Gl. (1) umformen zu

$$-\frac{2}{k} (\mathbf{r} \mathbf{s}_m) \mathbf{D}_m = \sum_{n \neq m} \chi_{m-n} \mathbf{D}_{n[m]}. \quad (4)$$

Weiter zerlegen wir die Vektoren \mathbf{r} in orthogonale Komponenten x, y, z . Eintrittsfläche unseres Kristalls sei $(01\bar{1})$; x stehe darauf senkrecht, z sei parallel zur Symmetrieebene (200) , y senkrecht zu ihr. Bei Vorgabe eines Wertepaares (y, z) , d. h. bei Vorgabe einer bestimmten Einfallrichtung, bleiben noch die wegen der Absorption komplexen x als Parameter. Für die Vektoren $\mathbf{D}_{n[m]}$ gilt wie in ²

$$\mathbf{D}_{n[m]} = \mathbf{D}_n - \mathbf{s}_m (\mathbf{s}_m \mathbf{D}_n). \quad (5)$$

Zur Überführung von Gl. (4) in ein skalares Gleichungssystem hat Hildebrandt alle \mathbf{D}_m in Komponenten in den Richtungen der \mathbf{s}_m zerlegt. Die später notwendige Berücksichtigung der Randbedingungen vereinfacht sich jedoch erheblich, wenn man dafür sorgt, daß die Lösungsvektoren orthogonal sind. Dazu ist notwendig, daß die Koeffizientenmatrix symmetrisch (eigentlich sogar hermitisch) ist und das wiederum wird erreicht, wenn jedes \mathbf{D}_m in seine Komponenten senkrecht zu \mathbf{K}_m zerlegt wird:

$$\mathbf{D}_m = \sigma_m D_m^\sigma + \pi_m D_m^\pi \quad (\sigma_m, \pi_m \text{ Einheitsvektoren}) \quad (6)$$

Zur weiteren Umformung von Gl. (4) muß nun die Summation über $0, L$ und M durchgeführt werden, anschließend sind die $\mathbf{D}_{n[m]}$ mittels Gl. (5) aufzulösen und die \mathbf{D}_m nach Gl. (6) umzuformen. Man hat dann drei Vektorgleichungen, bei denen auf der linken Seite die nach Gl. (6) aufgelösten $\mathbf{D}_0, \mathbf{D}_L$

bzw. \mathbf{D}_M stehen. Multipliziert man die Gleichung mit \mathbf{D}_0 zuerst skalar mit σ_0 , dann mit π_0 , so erhält man

$$\begin{aligned} (2/k) (\mathbf{r} \mathbf{s}_0) D_0^\sigma + 0 + \chi(\sigma_L \sigma_0) D_L^\sigma + \chi(\pi_L \sigma_0) D_L^\pi \\ + \chi(\sigma_M \sigma_0) D_M^\sigma + \chi(\pi_M \sigma_0) D_M^\pi = 0, \\ 0 + (2/k) (\mathbf{r} \mathbf{s}_0) D_0^\pi + \chi(\sigma_L \pi_0) D_L^\sigma + \chi(\pi_L \pi_0) D_L^\pi \\ + \chi(\sigma_M \pi_0) D_M^\sigma + \chi(\pi_M \pi_0) D_M^\pi = 0 \quad (7) \end{aligned}$$

(dabei wurde gesetzt $\chi_{0-L} = \chi_{L-0} = \chi_{0-M} = \chi_{M-0} = \chi_{111} =: \chi$). Analog muß mit den Gleichungen für \mathbf{D}_L und \mathbf{D}_M verfahren werden, wobei zu beachten ist, daß in diesem Dreistrahlfall $\chi_{M-L} = \chi_{L-M} = \chi_{200} = 0$ ist.

Die \mathbf{s}_m stellen wir im gleichen Koordinatensystem wie die \mathbf{r} dar und erhalten

$$\begin{aligned} \mathbf{s}_0 &= (a, \quad 0, b) \\ \mathbf{s}_L &= (a, \quad c, d) \\ \mathbf{s}_M &= (a, -c, d) \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \text{mit } b &= \sqrt{3/2} \sin \Theta_{111}; \quad a = \sqrt{1-b^2}, \\ c &= \sqrt{8/9} \cdot b; \quad d = -b/3. \end{aligned}$$

Damit wird $(\mathbf{r} \mathbf{s}_0) = ax + bz$; $(\mathbf{r} \mathbf{s}_L) = ax + cy + dz$,
 $(\mathbf{r} \mathbf{s}_M) = ax - cy + dz$.

$$H := \begin{pmatrix} -bz/a & 0 & g_3 A & 0 & g_3 A & 0 \\ 0 & -bz/a & g_4 A & g_1 A & -g_4 A & g_1 A \\ g_3 A & g_4 A & (-cy-dz)/a & 0 & 0 & 0 \\ 0 & g_1 A & 0 & (-cy-dz)/a & 0 & 0 \\ g_3 A & -g_4 A & 0 & 0 & (cy-dz)/a & 0 \\ 0 & g_1 A & 0 & 0 & 0 & (cy-dz)/a \end{pmatrix}$$

H ist fast hermitisch, da $\text{Im}(A) \ll \text{Re}(A)$ ist.

Jedes Wertepaar (y, z) entspricht einer bestimmten Abweichung des einfallenden Strahles von der Richtung \mathbf{K}^{La} (La = Laue-Punkt, siehe z. B. ⁶), für welche die elementare Interferenzbedingung an (11) und (T11) gleichzeitig *exakt* erfüllt ist. Wegen der Symmetrie muß man für y und $-y$ das gleiche Ergebnis erhalten. Deswegen wurde y in 120 Schritten variiert entsprechend einer Abweichung der Einfallrichtung von \mathbf{K}^{La} zwischen $0,25''$ und $30''$, z in 141 Schritten entsprechend $\pm 30''$. Unter Verwendung eines Diagonalisierungsverfahrens nach Hessenberg wurde Gl. (10) also 16 920-mal mit Hilfe eines Computers gelöst.

3. Rechnerische Auswertung

Als Ergebnis der Rechnung standen für jedes Wertepaar (y, z) sechs komplexe Eigenwerte x_j

Von den σ_m und π_m hatten wir bisher nur verlangt, daß sie senkrecht zum jeweiligen \mathbf{s}_m stehen. Zur Berechnung der in Gl. (7) auftretenden Skalarprodukte legen wir alle π_m parallel zur Symmetrieebene (200). Dann liegen alle σ_m in der von \mathbf{s}_L und \mathbf{s}_M aufgespannten Ebene und man erhält die geometrischen Faktoren g .

$$\begin{aligned} \sigma_0 \pi_0 &= \sigma_L \pi_L = \sigma_M \pi_M = \sigma_0 \pi_L = \sigma_0 \pi_M \\ &= \sigma_L \pi_M = \sigma_M \pi_L = 0, \\ \pi_0 \pi_L &= \pi_0 \pi_M = (a^2 + b^2) / \sqrt{a^2 + d^2} =: g_1, \\ \sigma_M \sigma_L &= a^2 - c^2 + d^2 =: g_2, \\ \sigma_0 \sigma_L &= \sigma_0 \sigma_M = \sqrt{1 - (4/3) \sin^2 \Theta_{111}} =: g_3, \\ \sigma_L \pi_0 &= -\sigma_M \pi_0 = \sqrt{1 - g_3^2} \sqrt{1 - g_1^2} =: g_4. \end{aligned} \quad (9)$$

Um den Parameter x in der Form $x D_m^{\sigma, \pi}$ auf die rechte Seite zu bringen, multiplizieren wir alle sechs Gln. (7) – nach Auflösung der Skalarprodukte – mit $-k/2a$ und nennen $A := -k\chi/2a$.

Mit allen diesen Bezeichnungen wird aus den Grundgleichungen schließlich

$$H \varphi' = x \varphi' \quad (10)$$

mit $\varphi' := (D_0^\sigma, D_0^\pi, D_L^\sigma, D_L^\pi, D_M^\sigma, D_M^\pi)$ und der symmetrischen Matrix

$(j=1, \dots, 6)$ und sechs komplexe Eigenvektoren φ_j' zur Verfügung.

a) Mit den Realteilen x_j' der Eigenwerte stellen die sechs Punktmengen (x_j', y, z) die sechsschalige Dispersionsfläche dar. Ihre Gestalt, die von anderen Autoren, speziell Ewald ⁶, diskutiert wurde, soll hier nicht weiter betrachtet werden.

b) Für den Absorptionskoeffizienten μ_s der Welle \mathbf{K}_m längs ihres Weges gilt bekanntlich $\mu_s = -4\pi K_m''$ [wie üblich setzen wir $X'' := \text{Im}(X)$] und für den normalen Absorptionskoeffizienten $\mu_0 = -4\pi K_m^{\text{Lo}''}$. Auf die Plattennormale bezogen wird dann $\mu = \mu_s/a$ [a aus Gleichung (8)]. Aus Gl. (3) folgt weiter, daß $K_m'' = K_m^{\text{Lo}''} - x''$ ist, da alle Imaginärteile senkrecht auf der Oberfläche stehen.

Aus den Imaginärteilen x_j'' der Eigenwerte ergeben sich also für jedes Wertepaar (y, z) die auf μ_0 bezogenen relativen Absorptionskoeffizienten

$$\mu_j(y, z) / \mu_0 = (1 + 4\pi x_j'' / \mu_0) / a. \quad (11)$$

Im gerechneten Bereich sind die jeweils kleinsten Werte teils der ersten, teils der dritten Schale der Dispersionsfläche zugeordnet.

c) Zur Berechnung der integralen Intensitäten muß noch die Anregung der Wellenfelder ermittelt werden. Die Lösungsvektoren φ_j' von Gl. (10) sind nur bis auf komplexe Faktoren c_j bestimmt. Die Randbedingungen fordern Stetigkeit der \mathbf{D} in der Eintrittsfläche, also

$$\sum_j c_j \varphi_j' = \varphi_a \quad (12)$$

(φ_a enthält die Amplituden der einfallenden Wellen), woraus die c_j zu berechnen sind. Nach der Normierung der φ_j' ($\varphi_j' \overline{\varphi_j'} = 1$) machen wir uns die „Fastorthogonalität“ der φ_j' zunutze und multiplizieren Gl. (12) skalar mit $\overline{\varphi_k'}$:

$$c_k = \left(\sum_j \varphi_j' c_j \right) \overline{\varphi_k'} = \varphi_a \overline{\varphi_k'} \quad (k=1, \dots, 6). \quad (13)$$

Die einfallende Strahlung (der Intensität 1) habe z. B. die Richtung von \mathbf{K}_0 und sei unpolarisiert (Polarisationswinkel β), wir setzen also

$$\varphi_a := (\sin \beta, \cos \beta, 0, 0, 0, 0) \quad (14)$$

[wäre z. B. \mathbf{K}_L die Einfallsrichtung (Umweganregung), so müßte

$$\varphi_a := (0, 0, \sin \beta, \cos \beta, 0, 0) \quad (15)$$

gesetzt werden]. Mit den Gln. (13) und (14) lassen sich die $\varphi_j := c_j \varphi_j'$ berechnen, welche nun direkt die Amplituden D_{mj} enthalten. Nach Zwischenrechnung und Mittelung über β erhalten wir

$$D_{(0,M,L)j}^2 = \frac{1}{2} (D_0^2 + D_{0j}^2) (D_{(0,M,L)j}^2 + D_{(0,M,L)j}^2). \quad (16)$$

Wir hatten den Vorteil, unsere bis hierher erhaltenen Resultate an denen prüfen zu können, die Post et al. schon mitgeteilt haben^{8,9}. Es zeigte sich, daß alle Kurven dieser Autoren in ihren wesentlichen Züge mit unseren Ergebnissen¹⁴ übereinstimmen, die wir daher hier nicht wiederholen wollen. Genauer betrachtet wurden diese Rechenergebnisse für solche einfallenden Strahlen, welche die Reflexionsbedingung an (111) exakt erfüllen; dabei sei α die Winkelabweichung von \mathbf{K}^{La} . Die Kurven der Absorptionskoeffizienten zeigen das entscheidende Minimum bei $\alpha=0$ und den Schnittpunkt der zu Schale 1 und Schale 3 gehörenden Kurven bei $\alpha=12$ Winkelsekunden, vgl. Fig. 2 in⁸.

Die Intensitätskurven der 18 an der Eintrittsfläche entstehenden Wellen ergeben für die beiden Wellenfelder kleinster Absorption bei $\alpha=0$ den erwarteten Wert $I_0 : I_L : I_M = 2 : 1 : 1$. Wir verdanken dem Ver-

gleich den Hinweis auf unseren versehentlich um den Faktor $\sqrt{2}$ zu groß geratenen Abszissenmaßstab. Andererseits vermuten wir, die Richtung der Abszissenachse in Fig. 2 aus⁹ müsse umgedreht werden. Das wird wichtig, wenn diese Figur mit Fig. 2 a aus⁸ zwecks Diskussion vereinigt werden soll.

Im ganzen dürfen wir der Meinung sein, eine gesunde Basis zur Berechnung der Stärke der drei Strahlen, die den Kristall verlassen, zu besitzen. Eine Diskussion der obengenannten Zusammenhänge ist wohl eine Aufgabe für sich, die hier nicht begonnen werden kann. Was in den kompliziert aussehenden Kurven an Einfachem zu finden sein könnte, gründet sich auf die wohl plausible Überlegung: jeder Schwingungszustand eines Dreistrahlalles ist zusammengesetzt aus den – durch die Phasendifferenz 0 bzw. π zwischen \mathbf{K}_0 - und \mathbf{K}_H -Welle gekennzeichneten – Schwingungszuständen der beteiligten Zweistrahlfälle.

d) Aus den Amplituden in der Kristall-Eintrittsfläche nach Gl. (16) und den Absorptionskoeffizienten aus Gl. (11) erhält man jetzt für eine Kristalldicke t die integrale Intensität in den drei Strahlrichtungen:

$$I_{0,L,M}(t) = \sum_y \sum_z \sum_j D_{(0,L,M)j}^2 \exp\{-\mu_j(y,z)t\}, \quad (17)$$

und zwar bei Verwendung von Gl. (14) mit \mathbf{K}_0 , bei Verwendung von Gl. (15) mit \mathbf{K}_L als Einfallsrichtung.

Aus Gl. (17) lassen sich nun das Intensitätsverhältnis der drei Strahlen untereinander und der in einer bestimmten Kristalltiefe wirkende „effektive Absorptionskoeffizient“

$$\mu_{\text{eff}}(t) := (\ln I_1 - \ln I_2) / (t_2 - t_1) \quad (18)$$

mit $I_{1,2} := I_0(t_{1,2}) + I_L(t_{1,2}) + I_M(t_{1,2})$ und $t = (t_1 + t_2)/2$ ($t_1 < t_2$ wenig verschiedene Dicken) ermitteln und direkt mit den experimentellen Ergebnissen vergleichen (s. Abbn. 4 und 5 im Abschn. 5).

e) Die Poynting-Vektoren \mathbf{S}_j der sechs Wellenfelder setzen sich für jede Einfallsrichtung aus den Intensitätsbeiträgen in den drei Richtungen \mathbf{s}_0 , \mathbf{s}_L und \mathbf{s}_M zusammen:

$$\mathbf{S}_j = D_{0j}^2 \mathbf{s}_0 + D_{Lj}^2 \mathbf{s}_L + D_{Mj}^2 \mathbf{s}_M. \quad (19)$$

Sie liegen innerhalb der von \mathbf{s}_0 , \mathbf{s}_L und \mathbf{s}_M gebildeten Borrmann-Pyramide, die hier an die Stelle des Borrmann-Fächers des Zweistrahlalles tritt. Abbildung 2 zeigt die Beiträge der \mathbf{S}_j in Abhängigkeit von der Einfallsrichtung bei ständig erfüllter Bragg-

Bedingung an (111), wobei die Werte paarweise zusammenfallen.

In Ergänzung zu Abb. 2 sind auch die Richtungen der S_j berechnet worden¹⁴. Dabei ergab sich, daß der zu K^{La} gehörende Poynting-Vektor S_1 des Wellenfeldes minimaler Absorption nicht parallel zur

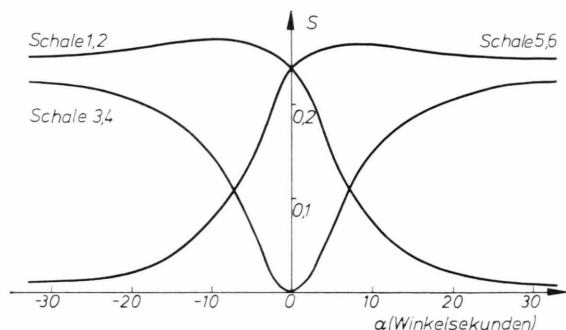


Abb. 2. Beträge der Poynting-Vektoren aller sechs Wellenfelder in Abhängigkeit von der Abweichung α von K^{La} bei ständiger Einhaltung der elementaren Interferenzbedingung an (111) [K^{La} erfüllt diese Bedingung an (111) und (111)].

Plattennormalen $[110]$ verläuft, sondern um etwa 5° von ihr nach K^{La} hin abweicht. Das ergibt sich allein schon aus dessen Intensitätsverhältnis $I_0 : I_L : I_M = 2 : 1 : 1$. Da der Strahlweg des Wellenfeldes kleinster Absorption im Zweistrahlfall (111) jedoch parallel zu den (111)-Netzebenen verläuft, sollten sich die Wellenfelder der beiden Fälle im Kristall trennen, und auf photographischen Aufnahmen müßten die (111)-(111)-Verstärkungspunkte neben den (111)-Linien liegen. In der Tat wurde dies, allerdings an anderen Dreistrahlfällen, beobachtet: die Dreistrahl-Verstärkungspunkte bildeten an den Zweistrahl- R_{II} -Linien kleine „Nasen“*.

4. Experimente

a) In einer ersten Versuchsreihe wurde zwischen der mit Strichfokus $4 \times 0,04 \text{ mm}^2$ verwendeten Röntgen-Röhre und dem Kristall ein Quarzmonochromator nach Johansson eingebaut, welcher ein monochromatisches Strahlenbündel mit einer Divergenz von $2^\circ \times 2^\circ$ lieferte. Diese Methode ergab die bisher klarsten Photographien der (111)-(111)-Dreistrahlreflexe (Abb. 3; vgl. Abb. 1), denn das Bremskontinuum wurde vom Monochromator zurückgehalten und sowohl die normal absorbierten Strahlen ($\mu_0 = 350 \text{ cm}^{-1}$) als auch die (111)-Zweistrahl-„Bänder“ waren bereits verschwunden.

* Nachlaß Dr. W. Hartwig.

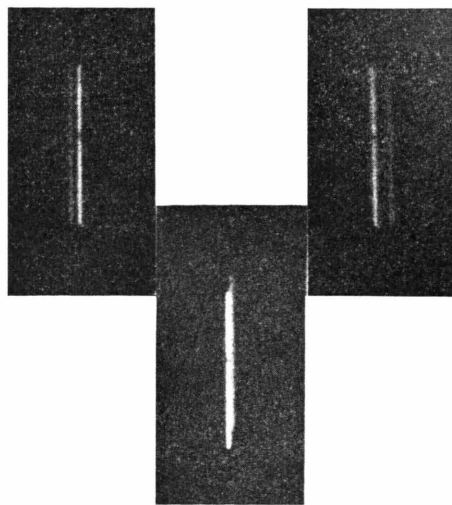


Abb. 3. Die drei Reflexe des Dreistrahlalles (111) (111) bei starker Absorption ($\mu_0 t = 38,5$; μ_0 normaler Absorptionskoeffizient, t Kristalldicke). Ein Quarzmonochromator lieferte ein Strahlenbündel der Divergenz $2^\circ \times 2^\circ$. Cu-Röhre, 34 kV, 10 mA; $t = 1,1 \text{ mm}$; Abstände Fokus—Kristall 20 cm, Kristall—Film 40 cm; Aufnahmezeit 80 h. Die Reflexe sind auf das Fünffache vergrößert und müßten dabei Abstände von ca. 1 m voneinander haben. Starke Reflexe: Cu- $K\alpha_1$, schwache Reflexe: Cu- $K\alpha_2$.

Mit dieser Methode wurden auch im Fall (111) (111) einige Versuche gemacht. Nach Hildebrandt¹⁰ ist in diesem Fall R_0 erheblich schwächer als R_L und R_M ; nach Ewald und Hénoc⁶ gilt für das Feld kleinster Absorption $I_0 = 0$; nach Post et al. wird dieses Feld aber nicht angeregt⁹. Wir fanden R_0 gerade noch erkennbar, während R_L und R_M stark, allerdings durch Kristallfehler, verunstaltet waren. Was bei perfektem Kristallgitter auftritt, bleibt nach wie vor offen.

Für Zählrohrmessungen mußte wegen der zu geringen Reflexintensitäten auf die Verwendung eines Monochromators verzichtet werden.

b) Bei einer Versuchsanordnung entsprechend Abb. 1, jedoch unter Benutzung des Punktfokus ($0,4 \times 0,4 \text{ mm}^2$) der Röntgen-Röhre, wurden mit einem Zählrohr die Intensitäten der Dreistrahlreflexe in Abhängigkeit von der Kristalldicke gemessen (siehe auch¹³). Ein Kristall mit planparallel geschliffenen Stufen stellte Dicken von etwa 0,7; 0,9; 1,1 und 1,3 mm zur Verfügung und ermöglichte so eine Überprüfung und Erweiterung früherer Messungen. Allerdings war in der Umgebung des Reflexes R_0 ein Strahlungsuntergrund vorhanden, welcher aus dem an einer $\{220\}$ -Ebene reflektierten und somit schwach absorbierten Bremskontinuum stammte. Versuche, den Untergrund durch Verwendung von Filtern zu schwächen, führten zu verlängerten Meßzeiten. Kürzeste Meßzeit bei weni-

ger als 4% Meßfehler ergab sich ohne Filter bei einer Spannung von 34 kV an der Cu-Feinfokusröhre. Der Untergrund und die bei $t < 1$ mm noch meßbaren Intensitäten der $\{111\}$ -Linien wurden nahe R_0 gemessen und subtrahiert.

Kontrollmessungen an verschiedenen Stellen einer jeden Kristallstufe ergaben — bis auf eine Ausnahme — stets die gleichen Reflexintensitäten. Dies und die Tatsache, daß R_L und R_M immer innerhalb der Meßgenauigkeit gleich stark waren, zeigt, daß die zweifellos vorhandenen Kristallfehler (man beachte auch die kleine Unterbrechung in den Reflexen in Abb. 3) sich im Fall (111) ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) nicht merklich auswirkten.

5. Meßergebnisse und Vergleich mit der Theorie; Diskussion

a) Für Einstrahlung in Richtung \mathbf{K}_0 zeigt die durchgezogene Linie in Abb. 4 a das berechnete Intensitätsverhältnis $I_L/I_0 = I_M/I_0$, das mit wachsender Kristalldicke dem Wert 0,5 zustrebt. Die experimentellen Punkte wurden aus $(I_L + I_M)/2 I_0$ ermittelt, die Fehlergrenzen folgen aus den Fehlern der Ein-

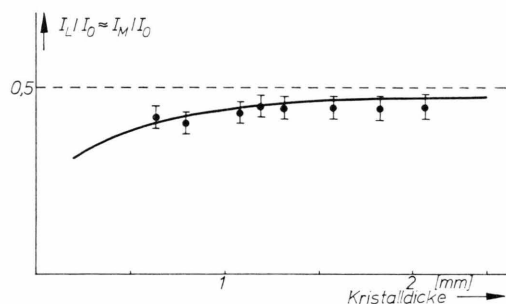


Abb. 4 a. Intensitätsverhältnisse in Abhängigkeit von der Kristalldicke t bei Einstrahlung in Richtung \mathbf{K}_0 . Ausgezogene Kurve: Rechenergebnisse.

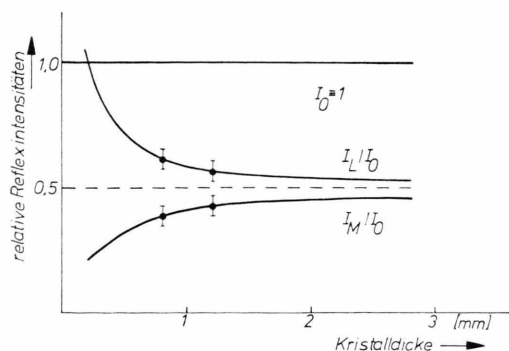


Abb. 4 b. Intensitätsverhältnisse in Abhängigkeit von der Kristalldicke t bei Einstrahlung in Richtung \mathbf{K}_L (nach Schätzung von W. Hartwig). Ausgezogene Kurven: Rechenergebnisse.

zelmessungen. Die Übereinstimmung mit der Rechnung liegt innerhalb der Fehlergrenzen.

Abbildung 4 b zeigt die entsprechenden Intensitätsverhältnisse bei Einstrahlung in Richtung \mathbf{K}_L . Man sieht, daß auch bei unsymmetrischer Einstrahlung das Intensitätsverhältnis dem Wert 2 : 1 : 1 zustrebt, ein weiterer Beweis dafür, daß es sich, unabhängig von den Anregungsbedingungen, immer um das gleiche Wellenfeld handelt. Experimentelle Werte hat Hartwig durch Abschätzung der Reflexintensitäten eigener Aufnahmen bei zwei Kristalldicken gewonnen. Auch hier ist die Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment gut.

Nach Abb. 4 ändert sich das Intensitätsverhältnis der drei Strahlen nur wenig mit der Dicke. Daher wurden die Intensitäten I_0 , I_L , I_M addiert und aus der Abnahme ihrer Summe beim Übergang von t_1 zu t_2 der in der Tiefe $t = (t_1 + t_2)/2$ wirksame Absorptionskoeffizient $\mu_{\text{eff}}(t)$ der noch vorhandenen Wellenfelder rechnerisch und experimentell ermittelt.

Die durchgezogene Linie in Abb. 5, die das Re-

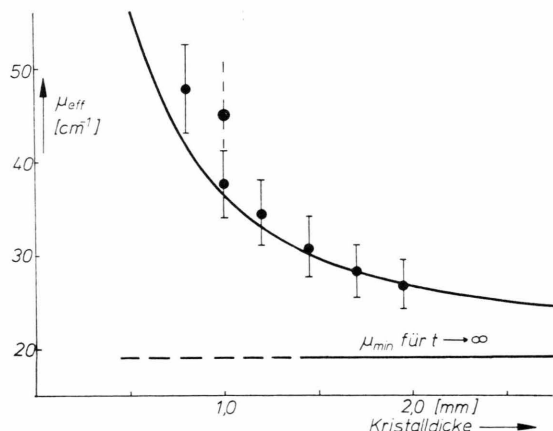


Abb. 5. Der in der Kristalltiefe t wirksame Absorptionskoeffizient in Abhängigkeit von t . (111) ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$), Ge, CuK α . \bullet eigene Messungen: die Werte bei 0,8; 1,0 und 1,2 mm wurden neu gemessen, der Wert bei 1,2 mm stimmt mit dem ersten der vier früher ¹³ gemessenen überein. \bullet ist der von Borrmann und Hartwig mit Hilfe von photographischen Aufnahmen ermittelte Wert aus ¹. Ausgezogene Kurve: Rechenergebnisse.

chenergebnis zeigt, nähert sich mit wachsender Dicke dem minimalen Koeffizienten $\mu_{\text{min}} \approx 19 \text{ cm}^{-1}$ nur sehr zögernd und ist selbst bei $t = 2,5 \text{ mm}$ noch gut 20% von ihm entfernt. Die früher erwähnte Näherungsformel für μ_{eff} [Gl. (3) in ⁸], die bei „großen“ t gelten soll, ergibt bei $t = 2,5 \text{ mm}$ $\mu_{\text{eff}} = (18,5 + 4) \text{ cm}^{-1} = 22,5 \text{ cm}^{-1}$, liegt hier also um etwa 10% unter der berechneten Kurve.

Die nach obigem Verfahren gewonnenen experimentellen Daten sind, zugleich mit ihren Fehlerspannen, als Punkte in Abb. 5 eingetragen, zusammen mit dem von Borrmann und Hartwig¹ bei 1,0 mm bestimmten Wert 45 cm^{-1} (dicker Punkt).

b) Abbildung 5 zeigt gute Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment bei größeren Kristalldicken, während sich bei kleineren Dicken Abweichungen ergeben. Ursache hierfür könnten die erwähnten Korrekturen für Untergrund und Zweistrahlinterferenzen sein, die mit abnehmender Kristalldicke immer wichtiger werden. Eine weitere denkbare Fehlerquelle wäre unzureichende Perfektion der Kristalle. Die im Kapitel 4 a erwähnten Beobachtungen im Dreistrahlfall $(111)(\bar{1}\bar{1}1)$ beweisen das Vorhandensein von Fehlern, die im Fall $(111)(\bar{1}11)$ auf dem Film nicht beobachtbar waren. Inzwischen

haben erste umfangreichere Aufnahmeserien klar gezeigt, daß $(111)(\bar{1}\bar{1}1)$ wesentlich empfindlicher auf Kristallfehler reagiert als $(111)(\bar{1}11)^*$, wobei z. Zt. noch offen ist, ob es sich um Fehler auf den Oberflächen oder im Innern der Kristallscheiben handelt. Für die vorliegenden Untersuchungen war die Kristallgüte, soweit man das z. Zt. beurteilen kann, ausreichend.

Zusammenfassend ist zu sagen, daß die dynamische Theorie Ewalds und v. Laues auch diesen relativ komplizierten Fall von Röntgen-Strahlinterferenzen richtig beschreibt, woran allerdings nach den vielen bisher bekannten Experimenten, die stets die Theorie bestätigten, kaum noch zu zweifeln war.

Herrn Prof. Dr. G. Borrmann verdanke ich zahlreiche Anregungen und Diskussionen, ohne die diese Arbeit nicht zustande gekommen wäre.

* G. Hildebrandt, mündliche Mitteilung.

¹ G. Borrmann u. W. Hartwig, Z. Kristallogr. **121**, 401 [1965].

² G. Hildebrandt, Phys. Stat. Sol. **15**, K 131 [1966]; **24**, 245 [1967].

³ E. J. Saccocio u. A. Zajac, Phys. Rev. **139**, A 255 [1965].

⁴ T. Joko u. A. Fukuhara, J. Phys. Soc. Japan **22**, 597 [1967].

⁵ P. Penning, Advances in X-ray Analysis **10**, 67 [1967]. — P. Penning u. D. Polder, Philips Res. Repts. **23**, 1 [1968].

⁶ P. P. Ewald u. Y. Héno, Acta Cryst. **A 24**, 5 [1968]. — Y. Héno u. P. P. Ewald, Acta Cryst. **A 24**, 16 [1968].

⁷ A. A. Katsnelson, V. I. Kisin u. N. A. Polyakova, Sov. Phys.-Crystallography **14**, 839 [1970]. — T. I. Borodina, A. A. Katsnelson u. V. I. Kisin, Phys. Stat. Sol. (a) **3**, 105 [1970].

— V. I. Iveronova, A. A. Katsnelson, T. I. Borodina u. I. G. Sapkova, Phys. Stat. Sol. (a) **11**, 39 [1972].

⁸ S. Balter, R. Feldman u. B. Post, Phys. Rev. Lett. **27**, 207 [1971].

⁹ R. Feldman u. B. Post, Phys. Stat. Sol. (a) **12**, 273 [1972].

¹⁰ G. Hildebrandt, Acta Cryst. **A 25**, S 209 [1969].

¹¹ M. v. Laue: Röntgenstrahlinterferenzen, Akad. Verlagsgesellschaft, Frankfurt (Main) 1960.

¹² N. Kato, J. Phys. Soc. Japan **10**, 46 [1955].

¹³ W. Uebach u. G. Hildebrandt, Z. Kristallogr. **129**, 1 [1969].

¹⁴ W. Uebach, Dissertation, Freie Universität Berlin, Juli 1971.