

Aufbau und Test eines
Fluoreszenzanalysators
für die
Reziproke Röntgenholographie

Construction and Test of a Fluorescence Analyser
for Use in Reciprocal X-Ray Holography

Diplomarbeit am Fachbereich Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von
M. Tilman Donath
Hamburg im Mai 2002

Diese Diplomarbeit wurde in der Arbeitsgruppe von Prof.G.Materlik am Hamburger Synchrotronstrahlungslabor (HASYLAB) am Deutschen Elektronensynchrotron (DESY) angefertigt.

Hiermit versichere ich, diese Arbeit selbständig und unter ausschließlicher Zuhilfenahme der in der Arbeit aufgeführten Hilfsmittel erstellt zu haben.

Hamburg, den 17.5.02

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	7
2	Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie	11
2.1	Elastische/Inelastische Streuung	11
2.2	Absorption und Fluoreszenz	13
2.3	Streuung an Atomen	14
2.4	Brechungsindex	15
2.5	Kohärenz	16
3	Röntgenoptische Elemente	19
3.1	Kristalle	19
3.1.1	Kinematische Theorie der Röntgenbeugung	19
3.1.2	Dynamische Theorie	20
3.1.3	Mosaizität von Kristallen	24
3.2	Spiegel	26
3.3	Multilayer	26
3.4	Fokussierungs-Prinzipien	27
4	Röntgendetektoren	29
4.1	Ionisationskammer	29
4.2	Photonenzähler	30
4.2.1	NaJ - Szintillationszähler	30
4.2.2	Silizium Drift Detektor (SDD)	31
4.2.3	Lawinen-Photodiode (APD)	32
5	Totzeit und Totzeitkorrektur	35
5.1	Kontinuierliche Quelle	35
5.1.1	Nichtlähmbares System	36
5.1.2	Lähmbares System	36
5.2	Diskontinuierliche Quelle	36
5.2.1	$\tau < \tau_{bunch}$, nichtlähmbares System	37
5.2.2	$\tau > \tau_{bunch}$, nichtlähmbares System	38
5.3	Optimale Ereigniszählrate am Speicherring	39

6	Aufbau des Fluoreszenzanalysators	41
6.1	Einleitung	41
6.2	Form des Analysators	42
6.2.1	Logarithmische Spirale	42
6.2.2	Parameter der Logarithmischen Spirale	43
6.2.3	Vergleich: Flacher Analysator - Logarithmische Spirale	44
6.2.4	Umsetzung der Form in eine Optik	46
6.3	Eigenschaften des Analysators und der Kristalle	47
6.3.1	Lithiumfluorid (LiF)	47
6.3.2	Verzicht auf sagittale Fokussierung	49
6.3.3	Größe des Fokus	50
6.3.4	Parasitäre Reflexe	51
7	Charakterisierung des Fluoreszenzanalysators	53
7.1	Messaufbau	53
7.2	Reflektivität der LiF-Kristalle	56
7.3	Struktur der transmittierten Strahlung	60
7.4	Energiespektrum der transmittierten Strahlung	60
7.5	Effizienz ϵ	62
7.6	Unterdrückung des Strahlungsuntergrundes	64
7.7	Fazit, Verbesserungsvorschläge	65
8	Atomar auflösende Holographie	69
8.1	Idee der atomar auflösenden Holographie	69
8.2	Direkte Röntgenholographie (XFH)	70
8.3	Reziproke Röntgenholographie (MEXH)	72
8.4	Messung des holographischen Signals $\chi(\vec{k})$	75
8.4.1	Extraktion von $\chi(\vec{k})$ aus den gemessenen Daten	75
8.4.2	Absorptionskorrektur	75
8.5	Rekonstruktion	76
8.5.1	Rekonstruktionsalgorithmus nach Barton	76
8.5.2	Fehlerquellen in der Rekonstruktion	78
8.6	Holographie mit Multilayer-Monochromator	80
8.7	Abschätzung der für ein Hologramm benötigten Messdauer	82
9	Holographische Messungen an Cu₃Au	85
9.1	Übersicht	85
9.2	Cu ₃ Au	86
9.3	Durchführung der Messungen	89
9.3.1	Messaufbau	89
9.3.2	Justage	90
9.3.3	Gemischte Messungen	90
9.4	Messdaten	91

9.4.1	Messungen 1 und 2, mit energieauflösendem SD-Detektor .	91
9.4.2	Messung 3, mit Fluoreszenzanalysator	92
9.4.3	Messung 4, mit Fluoreszenzanalysator und APD, hohe Zählrate	93
9.5	Statistische Auswertung der Messdaten	94
9.6	Rekonstruktion der Messdaten	102
10	Zusammenfassung - Ausblick	107
A	Messdaten-Überblick	111
B	Zählstatistik	113
B.1	Binominalverteilung	113
B.2	Poissonverteilung	113
B.3	Momente einer Verteilung	113
B.4	Mittelwert und empirische Varianz	114
B.5	Fehlerfortpflanzung	115
C	Multilayer-Monochromator	117
D	Analysator für Cu-K_α-Strahlung, Konstruktionszeichnug	121
E	Fundamentale Konstanten	123

Kapitel 1

Einleitung

Die reziproke Röntgenholographie ist eine sich noch in der Entwicklung befindende Messmethode, die die Darstellung der Umgebung von Atomen mit atomarer Auflösung ermöglichen soll. Erst mit Hilfe der heute zur Verfügung stehenden intensiven Röntgenstrahlungsquellen erscheint ihre Realisierung möglich.

Bei der reziproken Röntgenholographie wird die von einem Atom (im Folgenden Detektor-Atom genannt) im Röntgenbereich emittierte Fluoreszenz als Funktion der Einfallsrichtung des anregenden Röntgenstrahls gemessen. Intensitätsschwankungen des Fluoreszenzsignals entstehen bei der Überlagerung der direkt einlaufenden Welle mit der in der Umgebung des Detektor-Atoms gestreuten Strahlung nach dem Prinzip der Interferenz. Dabei ist die Streuung dort am stärksten, wo die Ladungsdichte groß ist, was vor allem in der nahen Umgebung der Atomkerne der Fall ist. Man hofft daher, aus den bei mehreren Photonenenergien gewonnenen Datensätzen, die Elektronendichte in der Umgebung des Detektor-Atoms direkt rekonstruieren zu können. Ein von Barton zur Rekonstruktion vorgeschlagener Algorithmus wird in dieser Arbeit vorgestellt.

Im Rahmen dieser Diplomarbeit habe ich darauf hingearbeitet, die Methode der reziproken Röntgenholographie auf verdünnte Systeme auszudehnen, d.h. auf Proben, in denen die Detektoratome in niedriger Konzentration vorliegen. Direkte Folge der niedrigen Detektoratom-Konzentration ist ein entsprechend schwaches abgestrahltes Fluoreszenzsignal, das häufig nur einen kleinen Teil zu der gesamten von der Probe reemittierten oder gestreuten Strahlung beiträgt. Um dieses zu messen, muss es aus dem unter Umständen sehr starken Strahlungsuntergrund herausgefiltert werden, was prinzipiell mit energieauflösenden Detektoren möglich ist.

Mit energieauflösenden Halbleiterdetektoren lassen sich Holographiemessungen allerdings nicht in akzeptabler Messdauer realisieren, da diese Detektoren in ihrer Zählrate begrenzt sind. Dies gilt insbesondere für die Messung an verdünnten Systemen, wo das zu messende Fluoreszenzsignal nur sehr wenig zur gesamten Zählrate beiträgt. Auch die Messung mit einer noch intensiveren als der bisher

verwendeten Synchrotronstrahlungsquelle ist mit energieauflösenden Detektoren wegen deren begrenzter Zählrate nicht möglich.

In unserer Arbeitsgruppe sind daher zur Verbesserung des Detektor-Systems Schritte in unterschiedliche Richtungen unternommen worden, wobei es grundsätzlich zwei Ansätze gibt: 1. Der Übergang zu einem mehr-elementigen energieauflösenden Detektor und 2. die Verwendung von Analysatorkristallen in Verbindung mit einem schnellen Detektor. Im 1. Ansatz wird ein Detektor mit mehreren Pixeln benutzt, also mehrere Detektoren gleichzeitig. Dadurch können entsprechend der Anzahl der Elemente höhere Zählraten erreicht, bzw. es kann Strahlung aus einem größeren Raumwinkelbereich detektiert werden. Die Zählrate jedes einzelnen Detektor-Elementes bleibt jedoch begrenzt. Zudem muss für jedes Element eine eigene Ausleseelektronik vorhanden sein. Der Entwicklungsstand eines 61-zelligen Detektor wird in [HT00] vorgestellt.

Der 2. Ansatz, die Verwendung von Analysatorkristallen wurde in dieser Arbeit verfolgt und ein Analysator mit großer Raumwinkelakzeptanz von $\Omega = 3,3\% \cdot 4\pi$ aufgebaut.

Der Analysator lässt nur das Fluoreszenzsignal der Detektoratome passieren und nur dieses trifft auf den Detektor. Somit ist die Verwendung eines energieauflösenden Detektors nicht mehr erforderlich und es können auch deutlich schnellere, nicht-energieauflösende Detektoren eingesetzt werden. Da hinter dem Analysator nur noch eine Wellenlängenkomponente auf den Detektor trifft, kann die Intensität der einfallenden Strahlung deutlich höher gewählt werden. Die Zählrate des zu messenden Signals erhöht sich entsprechend und die Messdauer verkürzt sich, ohne dass der Detektor überlastet wird. Für verdünnte Systeme, mit einem im Verhältnis zum Untergrund sehr schwachen Fluoreszenzsignal, ist der größte relative Zählratengewinn zu erwarten.

Der gebaute Analysator besteht aus mehreren LiF-Kristallen, die in die Form einer logarithmischen Spirale gebogen wurden. Von einer Punktquelle emittierte Kupfer- K_α -Fluoreszenzstrahlung fällt auf der gesamten Oberfläche der so gebogenen Kristalle unter dem Bragg-Winkel θ ein. Die Bragg-Bedingung ist somit auf der gesamten Kristallfläche erfüllt und Cu- K_α -Fluoreszenzstrahlung kann, im Gegensatz zu flachen Analysatorkristallen, von der gesamten Oberfläche reflektiert werden. Der erfasste Raumwinkel Ω kann somit für gebogene Analysatorkristalle deutlich größer als für flache Kristalle sein.

Mit dem neuen Analysator wurden holographische Messungen durchgeführt. Dabei wurde der Versuch unternommen, mit einem Strahl hoher Energiebreite (großem $\Delta E/E$) und dadurch deutlich höheren Intensitäten als bisher zu messen. Der dazu neu implementierte Multilayer-Monochromator ist im Anhang C beschrieben. Zum Vergleich wurden auch Messungen mit einem energieauflösenden Detektor durchgeführt. Für die hier vorgestellten ersten Hologramm-messungen, die im Wesentlichen dem Test des neuen Detektor-Systems dienten, wurde

zunächst kein verdünntes, sondern ein bekanntes System mit hoher Konzentration der Cu-Fluoreszenzatomme, ein Cu_3Au -Einkristall, verwendet.

Der Aufbau dieser Arbeit gliedert sich in drei Teile:

- Die Kapitel 2-4 sollen eine kurze Einführung in die benötigten Grundlagen der Röntgenstrahlungs-Physik geben. Dazu gehört die prinzipielle Darstellung der verwendeten röntgenoptischen Elemente und der in den Messungen verwendeten Röntgendetektoren. Zusätzlich werden im Kapitel 5 für die Detektoren benötigte Totzeitkorrekturen hergeleitet und die Problematik bei der Messung an einer gepulsten Quelle, wie dem Speicherring DORIS bei DESY, dargestellt.
- Das Kapitel 6 beschreibt Prinzip und Konstruktion des gebauten Analysators. Im Kapitel 7 werden die Ergebnisse der Charakterisierung des Analysators vorgestellt und die Effizienz des Analysators berechnet. Auch die Ergebnisse der Untersuchung einzelner gebogener Kristalle werden präsentiert.
- Im Kapitel 8 wird die Theorie der atomar auflösenden Holographie dargestellt. Im anschließenden Kapitel 9 werden die an Cu_3Au durchgeführten Messungen beschrieben sowie die gemessenen Hologramme und die Ergebnisse der Rekonstruktionen gezeigt.

Kapitel 2

Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie

Hier sollen die wesentlichen Wechselwirkungsprozesse zwischen Photonen und Materie dargestellt werden. Dabei wird der Schwerpunkt auf die bei den benutzten Photonenenergien von $\sim 10\text{keV}$ wesentlichen Prozesse gelegt. Die Darstellung orientiert sich an [ANM01], [Kno79] und [DH88].

2.1 Elastische/Inelastische Streuung

Es gibt im Bereich von Photonenenergien unter 100keV im Wesentlichen zwei mögliche Streuprozesse. Die elastische Streuung an freien Elektronen (*Thomson-Streuung*) kann im klassischen Wellenbild verstanden werden. Die inelastische Streuung (*Compton-Streuung*) aber muss durch den Stoß eines Lichtquants mit einem Elektron erklärt werden und kann erst mit Hilfe des quantenmechanischen Bildes beschrieben werden. Beide Streuprozesse sollen im Folgenden kurz vorgestellt werden.

Die elastische Streuung erfolgt kohärent (s. Abschnitt 2.5) und ist damit für die Holographie von Bedeutung, da sie Interferenzmuster erzeugen kann. Im Gegensatz dazu verläuft die inelastische Streuung inkohärent. Im Bereich von Photonenenergien bei 10keV dominiert die elastische Streuung.

Auf die elastische Streuung an Atomen (*kohärente Streuung* oder *Rayleigh-Streuung*) wird im Abschnitt 2.3 eingegangen. Dort können die Elektronen nicht als frei angenommen werden und es ist die Bindung der Elektronen an das Atom zu berücksichtigen.

Elastische Streuung: Die elastische Streuung findet ohne Energieübertrag statt. Die Wellenvektoren der einfallenden Welle \vec{k} und der der ausfallenden Welle \vec{k}' unterscheiden sich im Betrag $|\vec{k}| = |\vec{k}'|$ nicht. Dabei ist der Zusammenhang zwischen Wellenzahl k und Wellenlänge λ eines Photons gegeben als $k = \frac{2\pi}{\lambda}$. Für ein einzelnes, freies Elektron lässt sich die Intensität der gestreuten Strahlung als

Funktion des Streuwinkels nach der klassischen Elektrodynamik berechnen. Dazu wird der differentielle Streuquerschnitt der Thomson-Streuung

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) = r_0^2 \cdot \frac{1}{2} (1 + \cos^2 \Psi) \quad (2.1)$$

angegeben. Dabei ist $r_0 = 2,82 \cdot 10^{-5} \text{ \AA}$ der klassische Elektronenradius und Ψ der Winkel zwischen einfallendem und gestreutem Strahl. Sei I_0 die Intensität (Photonen/Zeit) der einfallenden Strahlung und A_0 der Strahlquerschnitt. Bei einem einfallenden Photonfluss von $\Phi_0 = I_0/A_0$ ist die in ein Raumwinkelement $\Delta\Omega$ gestreute Intensität I_{sc} gegeben durch

$$I_{sc} = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) \cdot \Phi_0 \cdot \Delta\Omega. \quad (2.2)$$

Gleichung (2.1) gilt für unpolarisierte Strahlung. Für polarisierte Strahlung, wie von einem Ablenkmagneten am Speicherring, ergibt sich eine zusätzliche Abhängigkeit vom Winkel zwischen gestreutem Strahl und Strahlebene des Speicherrings.

Der Vektor

$$\vec{Q} = \vec{k} - \vec{k}' \quad (2.3)$$

wird Streuvektor genannt. Zwar findet in einem elastischen Streuprozess kein Energieübertrag statt, jedoch kommt es zu einem Impulsübertrag, der gerade $\hbar\vec{Q}$ entspricht. Hier ist $\hbar = \frac{h}{2\pi}$ mit dem Planckschen Wirkungsquantum h .

Inelastische Streuung: Die Compton-Streuung ist ein inelastischer Prozess, der näherungsweise über den Stoß eines einfallenden Photons der Energie $E_{e,kin} = \hbar ck$ mit einem als ruhend angenommenen Elektron beschrieben werden kann. Diese Näherung gilt solange $E_{e,kin} \ll m_0 c^2$. Aus Energie- und Impulserhaltung ergibt sich eine Verschiebung der Wellenlänge zwischen einfallendem und ausfallendem Photon von

$$\Delta\lambda = \lambda_c (1 - \cos \Psi) = \frac{h}{m_0 c} (1 - \cos \Psi) \quad (2.4)$$

und die Energie des gestreuten Photons zu:

$$E'_{e,kin} = \hbar ck' = E_{e,kin} \frac{1}{1 + \frac{E_{e,kin}}{m_0 c^2} (1 - \cos \Psi)} \quad (2.5)$$

Dabei ist m_0 die Ruhemasse des Elektrons und c die Lichtgeschwindigkeit, λ_c wird die Compton-Wellenlänge genannt.

Die Winkelabhängigkeit des differentiellen Streuquerschnittes, sowie relativistische Effekte werden durch die Klein-Nishina-Formel (siehe z.B. [Wil92]) beschrieben, auf deren Darstellung hier verzichtet werden soll.

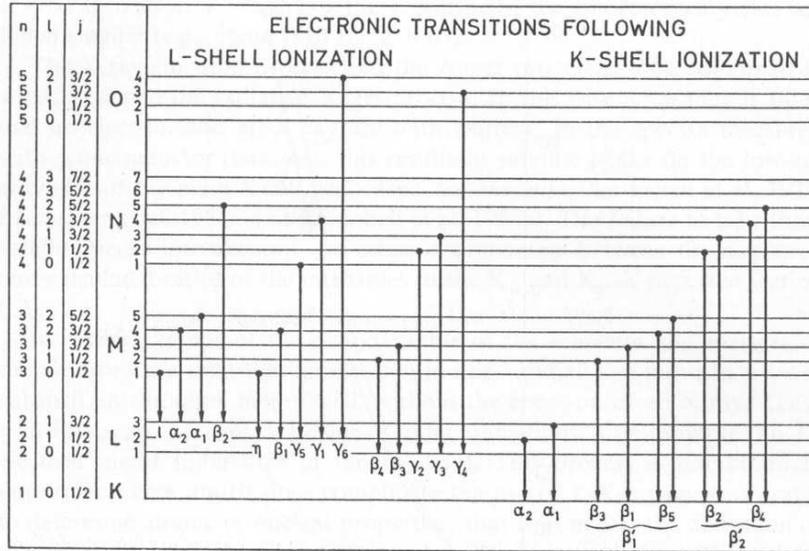


Abbildung 2.1: Nomenklatur der Fluoreszenzlinien nach [BCF⁺84]. Die nach den quantenmechanischen Auswahlregeln verbotenen Übergänge tragen keine Bezeichnung.

2.2 Absorption und Fluoreszenz

Bei der Photoionisation wird ein Photon von einem Atom absorbiert und ein Elektron aus dem Atom herausgeschlagen. Die Differenz zwischen der Energie E_0 des einfallenden Photons und der Bindungsenergie E_b des Elektrons übernimmt das Elektron als kinetische Energie $E_{e,kin}$ (Photoelektrischer Effekt nach Einstein).

$$E_{e,kin} = E_0 - E_b \quad (2.6)$$

Neben dem Photoelektron entsteht in diesem Prozess ein ionisiertes Atom mit einem Loch in einer seiner Elektronenschalen. Für Röntgenstrahlen entstehen diese Löcher typisch in der K oder L-Schale des Atoms. Bei der Relaxation, also der Neuordnung der atomaren Elektronen, kann wiederum ein Photon oder ein Elektron emittiert werden. Die Abstrahlung eines Photons bezeichnet man als *Fluoreszenz*, die Emission eines Elektrons geschieht entweder in einem *Auger*- oder in einem *Coster-Kronig-Prozess*.

Die nahezu monochromatische Fluoreszenzstrahlung eines Atoms, mit einer für das jeweilige Element charakteristischen Energie, macht es möglich die chemische Zusammensetzung einer Probe zu bestimmen. In der Röntgenholographie nutzt man für die Messung gezielt nur Fluoreszenz von einem speziellen Element.

Löcher in atomaren Schalen können durch Elektronen verschiedener höher gelegener Schalen besetzt werden. Die entsprechenden Übergänge und die entstehenden Fluoreszenzphotonen werden nach der Nomenklatur in Abb. 2.1 bezeichnet. Es werden Fluoreszenzphotonen unterschiedlicher Energien emittiert. Die Übergänge

unterscheiden sich jedoch stark in ihrer Wahrscheinlichkeit, die quantenmechanisch berechnet oder experimentell bestimmt werden muss.

Die Wahrscheinlichkeit, dass ein angeregtes Atom durch die Aussendung eines Photons relaxiert, wird durch die *Fluoreszenzausbeute* ω angegeben. Beispielsweise wird für die Wahrscheinlichkeit, dass ein Loch in der K-Schale durch ein Elektron der L₃-Unterschale gefüllt wird, der Parameter $\omega_{K\alpha 1}$ angegeben. Entsprechend erfolgt die Angabe für die anderen Schalen.

Die ebenfalls zur Absorption beitragenden Prozesse der *Paarbildung* und der Energieverlust durch *Ramanstreuung* in Festkörpern, können bei den hier verwendeten Photonenenergien vernachlässigt werden.

Neben der Photoionisation tragen noch weitere Prozesse zur Photabsorption bei. Die gesamt resultierende Abschwächung der einfallenden Intensität in einem Gas oder Festkörper wird durch den wellenlängenabhängigen *Absorptionskoeffizienten* μ beschrieben. Der Intensitätsverlauf ergibt sich als Funktion der im Material zurückgelegten Strecke d nach $I = I_0 \cdot e^{-\mu d}$.

Der makroskopische Absorptionskoeffizient μ kann durch atomare Größen ausgedrückt werden. Mit dem Photoabsorptionsquerschnitt σ_{abs} und der Teilchendichte ρ_{at} folgt:

$$\mu = \rho_{at} \cdot \sigma_{abs} \quad (2.7)$$

An Stelle des linearen Absorptionskoeffizienten μ wird häufig der von der Dichte des Materials ρ unabhängige Massenabsorptionskoeffizient μ/ρ angegeben.

2.3 Streuung an Atomen

Die elastische Streuung eines einzelnen, freien Elektrons (Thomson-Streuung) wird durch die Gleichung (2.1) beschrieben. Die elastische Streuung an den gebundenen Elektronen eines Atoms (Rayleigh-Streuung) erfordert zusätzliche Betrachtungen.

Die elastische Streuung erfolgt kohärent. Eine einfallende Welle mit Wellenvektor \vec{k} und die ausfallende, gestreute Welle in Richtung \vec{k}' sollen betrachtet werden. Erfolgt die Streuung an einem Elektron im Ursprung und gleichzeitig an einem Elektron am Ort \vec{r} , so ergibt sich zwischen den beiden Streuteilen ein Gangunterschied von $s = (\vec{k} - \vec{k}') / |(\vec{k} - \vec{k}')| \cdot \vec{r}$ und eine entsprechende Phasenverschiebung um:

$$\Delta\varphi = (\vec{k} - \vec{k}') \cdot \vec{r} = \vec{Q} \cdot \vec{r} \quad (2.8)$$

Berücksichtigt man diese Phasenverschiebung für die Berechnung der gestreuten Intensität von einem Atom, so ergibt sich durch Integration über die Elektronendichteverteilung $\rho(\vec{r})$ der Faktor

$$f^0(\vec{Q}) = \int d^3r \rho(\vec{r}) e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}} \quad (2.9)$$

Dies ist der *atomare Strukturfaktor*, der das Verhältnis der Streustärke eines Atoms relativ zur Streustärke eines freien Thomson-Elektrons angibt. Für $\vec{Q} \rightarrow 0$ nähert sich f^0 der Anzahl der ans Atom gebundenen Elektronen. Für ein elektrisch neutrales Atoms entspricht die Kernladungszahl Z der Zahl der Elektronen. Somit gilt $f^0 \rightarrow Z$. Für zunehmendes \vec{Q} überlagern sich die gestreuten Anteile mit unterschiedlicher Phase und es geht $f^0 \rightarrow 0$.

Bis jetzt ist die Bindung der streuenden Elektronen an das Atom und der Einfluss der diskreten Bindungsenergien E_{bind} in der Herleitung noch nicht berücksichtigt worden. In einem klassischen Ansatz kann man annehmen, dass man für die Berechnung des Strukturfaktors prinzipiell die gleiche Theorie wie für das Problem des gedämpften harmonischen Oszillators verwenden kann [Wil92]. Bei der Lösung dieses Problems wird die Schwingungsamplitude des Systems um einen Korrekturterm (real), der vom Abstand der erzwungenen Schwingungsfrequenz zur Eigenfrequenz des Systems abhängt, und einen Dämpfungsterm (imaginär), der vom Dämpfungsfaktor des Systems abhängt, verändert.

Entsprechend schreibt man den Strukturfaktor für ein Atom in der Form:

$$f(\vec{Q}, E) = f^0(\vec{Q}) + f'(E) + if''(E) \quad (2.10)$$

f' , f'' sind die sogenannten Dispersionskorrekturen. In der Nähe von Absorptionskanten ($E \approx E_{bind}$) zeigen f' und f'' resonantes Verhalten. Wenn die einfallenden Photonen eine geringere Energie E als die Bindungsenergie E_{bind} des Elektrons einer Bindungsschale (z.B. K-Schale) besitzen, wird die Anregung durch das elektrische Feld von der starken Bindung des Elektrons zum Atom unterdrückt. Dies wird durch ein negatives $f'(E)$ beschrieben. Für Anregungsenergien weit oberhalb von E_{bind} können die Elektronen als frei angesehen werden und die Korrektur f' verschwindet. Der imaginäre Beitrag if'' zum Strukturfaktor beschreibt die Absorption, die für $E = E_{bind}$ maximal wird.

2.4 Brechungsindex

Der Brechungsindex n eines Materials weicht im Bereich von Röntgenwellenlängen nur wenig von 1 ab und ist tatsächlich etwas geringer als 1. Dies ist ein fundamentaler Unterschied zu Lichtwellen, für die z.B. Glas einen Brechungsindex von $n = 1,5 - 1,8$ besitzt.

Der Brechungsindex für Röntgenstrahlung wird häufig durch die Komponenten δ und β ausgedrückt:

$$n = 1 - \delta + i\beta \quad (2.11)$$

wobei sich δ und β aus atomaren Größen ableiten:

$$\delta = \frac{2\pi \rho_{at} r_0}{k^2} [f^0(Q=0) + f'] \quad (2.12)$$

$$\beta = \frac{2\pi \rho_{at} r_0}{k^2} if'' = \frac{\mu \cdot k}{2}. \quad (2.13)$$

Hier ist ρ_{at} die Teilchendichte, d.h. die Anzahl von Atomen pro Volumen, r_0 ist der Elektronenradius und k die Wellenzahl der Photonen. Es ist δ für den Röntgenbereich in der Größenordnung 10^{-5} für Festkörper.

Der Wellenvektor in einem Medium ändert sich von k im Vakuum nach nk im Medium. Für eine ebene Welle, beschrieben durch $e^{inkz} = e^{i(1-\delta)z} e^{-k\beta z}$, erkennt man die exponentielle Amplitudenabnahme mit $k \cdot \beta$. Die Intensitätsabnahme erfolgt mit $2k\beta$. Dies ist gerade der Absorptionskoeffizient des Mediums ($\mu = 2k\beta$).

Durch atomare Größen ausgedrückt ergibt sich der Brechungsindex also zu:

$$n = 1 - \frac{2\pi \rho_{at} r_0}{k^2} [f^0(Q=0) + f' + if''] \quad (2.14)$$

2.5 Kohärenz

Die Darstellung der Kohärenz orientiert sich an [ANM01].

Reale Strahlung kann als ein aus ebenen Wellen zusammengesetztes Wellenpaket beschrieben werden. Das Wellenpaket unterscheidet sich von der einfachen ebenen Welle in zwei Aspekten: Es ist nicht vollständig monochromatisch und es breitet sich nicht nur in eine einzige Richtung aus. Dementsprechend wird zwischen zwei Komponenten der Kohärenz, der longitudinalen (oder zeitlichen) Kohärenz und der transversalen Kohärenz unterschieden. Für unsere Messungen mit relativ großer Breite des verwendeten Energiespektrums wird die longitudinale Kohärenz der kritische Parameter sein.

Die *longitudinale Kohärenzlänge* l_c für Photonen ist direkt von der Energiebreite ΔE (bzw. von $\Delta\lambda$ oder Δk) abhängig:

$$l_c = \frac{hc}{\Delta E} = \frac{\lambda^2}{\Delta\lambda} = \frac{2\pi}{\Delta k} \quad (2.15)$$

Zwei Strahlen die sich in ihrer Energie um ΔE unterscheiden sind nach zurücklegen der Distanz l_c in ihrer Phase um genau 2π gegeneinander verschoben. Dies gibt gerade die Definition für l_c .

Wird ein Strahl der Energiebreite ΔE geteilt und nach einem Gangunterschied s in den Strahlwegen wieder überlagert, so gibt der Vergleich von s mit l_c ein Maß für die Kohärenz (d.h. die Interferenzfähigkeit) der beiden Strahlteile. Für $s \ll l_c$ werden sich die Amplituden der Strahlen addieren und im Fall $s \gg l_c$ deren Intensitäten, da keine Phasenbeziehung zwischen den Strahlen besteht.

Die *transversale Kohärenzlänge* l_t wird durch die unterschiedlichen Ausbreitungsrichtungen der ebenen Wellen in einem Wellenpaket bedingt. Sie gibt die zur Wellenausbreitungsrichtung senkrechte Entfernung an, nach der die beiden ebenen Wellen einen Gangunterschied von 2π erreichen. Es sei die Divergenz des Wellenpaketes mit $\Delta\theta$ bezeichnet.

An einem Speicherring ist l_t vor allem durch die transversale Ausdehnung der Photonenquelle D , die durch die Ausdehnung der Elektronenpakete gegeben ist, bestimmt. Bei einem Abstand R zur Quelle, für den gilt $R \gg D$, kann man hier entsprechend $\Delta\theta$ durch $\Delta\theta = D/R$ ersetzen und erhält

$$l_t = \frac{\lambda}{\Delta\theta} = \lambda \left(\frac{R}{D} \right). \quad (2.16)$$

Was sind typische Kohärenzlängen der an einem Speicherring erzeugten Synchrotronstrahlung? Bei Verwendung eines Monochromatorkristalls von $\Delta\lambda/\lambda \approx 10^{-4}$ beträgt eine typische longitudinale Kohärenzlänge $l_c \approx 1\mu\text{m}$. Für eine vertikale Quellgröße von $100\mu\text{m}$ und einer Distanz von $R = 20\text{m}$ ergibt sich eine transversale Kohärenzlänge von $l_t \approx 20\mu\text{m}$.

Kapitel 3

Röntgenoptische Elemente

Die in den Hologramm-messungen benutzten röntgenoptischen Elemente sollen in diesem Kapitel kurz vorgestellt werden. Die Darstellung orientiert sich an [Aut01].

3.1 Kristalle

3.1.1 Kinematische Theorie der Röntgenbeugung

Ganz so wie der Strukturfaktor $f^0(\vec{Q})$ in 2.9 für ein Atom durch Integration über die Ladungsverteilung $\rho(\vec{r})$ berechnet wurde, kann die Streuamplitude für einen kompletten Kristall berechnet werden:

$$F_{kin}(\vec{Q}) = \int d^3r \rho(\vec{r}) e^{i\vec{Q}\cdot\vec{r}} \quad (3.1)$$

Es ist $\vec{Q} = \vec{k} - \vec{k}'$ der Streuvektor. Die Ladungsverteilung $\rho(\vec{r})$ besitzt für die periodische Struktur des Kristallgitters die Eigenschaft (unendlich ausgedehnter Kristall):

$$\rho(\vec{r} + \vec{T}) = \rho(\vec{r}) \quad (3.2)$$

Der Vektor $\vec{T} = r\vec{a} + s\vec{b} + t\vec{c}$ mit ganzen Zahlen r, s, t beschreibt die Gitterperiodizität. Die Vektoren \vec{a}, \vec{b} und \vec{c} sind die Einheitsvektoren des Gitters. Da die Ladungsdichte periodisch ist, kann sie in eine Fourierreihe entwickelt werden:

$$\rho(\vec{r}) = \frac{1}{V_{cell}} \sum_{\vec{G}} F_{\vec{G}} e^{-i\vec{G}\cdot\vec{r}} \quad (3.3)$$

mit dem Strukturfaktor für die Kristall-Einheitszelle:

$$F_{\vec{G}} = \int_{V_{cell}} d^3r \rho(\vec{r}) e^{i\vec{G}\cdot\vec{r}} \quad (3.4)$$

Durch die Periodizität der Ladungsverteilung gibt es Beiträge nur von diskreten Vektoren \vec{G} des *reziproken Raumes*. Aus (3.3) und der Bedingung in (3.2) ergibt sich die Forderung $e^{-i\vec{G}\cdot\vec{T}} = 1$ bzw. die Forderung $\vec{G}\cdot\vec{T} = z2\pi$ mit einer ganzen Zahl z . Aus dieser Bedingung folgen die Einheitsvektoren des reziproken Gitters:

$$\vec{a}^* = \frac{2\pi}{V_{cell}} \vec{b} \times \vec{c} \quad \vec{b}^* = \frac{2\pi}{V_{cell}} \vec{c} \times \vec{a} \quad \vec{c}^* = \frac{2\pi}{V_{cell}} \vec{a} \times \vec{b} \quad (3.5)$$

Sie sind die Basisvektoren des reziproken Gitters, gegeben durch $\vec{G} = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^*$ mit ganzen Zahlen h, k, l . Nur die Vektoren \vec{G} können in der Fourierentwicklung von $\rho(\vec{r})$ in (3.3) auftreten.

Setzt man (3.3) in (3.1) ein, so erkennt man nach den Rechenregeln für die Fouriertransformation, dass sich ein nicht verschwindendes F_{kin} nur im Fall $\vec{Q} = \vec{G}$ ergibt, wenn also der Streuvektor \vec{Q} gerade einem reziproken Gittervektor \vec{G} entspricht. Dies ist die sogenannte *Laue-Bedingung*. Sie besitzt dieselbe Aussage wie die *Bragg-Bedingung*

$$n\lambda = 2d \cdot \sin \theta, \quad (3.6)$$

die sich sehr anschaulich auf die Netzebenen eines Kristalls bezieht. Hier ist n die Ordnung des Reflexes, λ die Wellenlänge, d der Netzebenenabstand und θ der Bragg-Winkel.

Alle möglichen Netzebenen eines Kristallgitters können durch die reziproken Gittervektoren beschrieben werden. Die Parameter h, k, l ermöglichen eine eindeutige Beschreibung aller Reflexebenen und werden als *Miller Indizes* bezeichnet. Die Vektoren \vec{G} des reziproken Gitters stehen senkrecht auf den Beugungsebenen und sind mit dem Netzebenenabstand d verknüpft nach $d = \frac{2\pi}{|\vec{G}|}$.

Die kinematische Theorie liefert nur für kleine Kristalle eine Vorhersage über die gemessenen Intensitäten. In der Herleitung wird nicht berücksichtigt, dass die bereits gestreute Strahlung auf den Strahl zurückwirkt. Daher sehen alle Atome des Kristalls die gleiche einfallende Welle. Dadurch ergibt sich im Fall der Reflexion nach (3.1) eine zum Volumen des Kristalls proportionale Amplitude der gestreuten Strahlung. Für große Kristalle widerspricht dies offenbar der Energieerhaltung. Dennoch liefert der Strukturfaktor der Kristalleinheitszelle $F_{\vec{G}}$ eine gute Abschätzung der relativen Intensitäten der Reflexe.

3.1.2 Dynamische Theorie

Um die Streuung von Röntgenstrahlung an perfekten Kristallen richtig zu beschreiben, ist es nötig eine über den kinematischen Ansatz hinausgehende Theorie zu entwickeln. Eine solche Theorie muss berücksichtigen, dass die in den Kristall einfallende Welle teilweise abgeschwächt und in den ausfallenden Strahl reflektiert wird. Auch dieser reflektierte Strahl erfüllt die Bragg-Bedingung und kann

nochmals reflektiert werden, bevor er den Kristall verlässt. Die Theorie, die diese Mehrfachstreuungseffekte berücksichtigt wird als dynamische Theorie bezeichnet.

Um einen Wert für die Reflexbreite und die Eindringtiefe des Strahls in den Kristall abzuleiten, soll hier die ursprüngliche Herleitung von Darwin (1914), wie sie auch in [ANM01] dargestellt wird, in den wesentlichen Schritten nachvollzogen werden.

Betrachtet sei hier ein Kristall in symmetrischer Bragg-Geometrie und es sei vereinfachend die einfallende Welle als polarisiert angenommen, wobei das elektrische Feld senkrecht zur Ebene aus einfallendem und ausfallendem Strahl orientiert ist. Der Kristall wird als ein unendlicher Stapel von Atomebenen dargestellt. Jede Ebene reflektiert einen sehr geringen Anteil der Amplitude der einfallenden Welle. Bezeichnet man die Amplitude der einlaufenden Welle mit T , so lässt sich der reflektierte Anteil, der zudem um $-\frac{\pi}{2}$ phasenverschoben ist, nach der kinematischen Theorie als gT mit

$$g = \frac{1}{m} \left(\frac{2d^2 r_0}{v_c} \right) |F| \quad (3.7)$$

berechnen. Hier ist m die Ordnung des betrachteten Bragg-Reflexes, d der Abstand der Kristallebenen, F und v_c Strukturfaktor und Volumen der Kristalleinheitszelle.

Die durch eine Ebene transmittierte Strahlung ergibt sich zu

$$(1 - ig_0)T \approx e^{-ig_0} T. \quad (3.8)$$

Man erhält also eine leicht in der Phase verschobene transmittierte Welle. Hierbei ist $g_0 = \frac{|F_0|}{|F|} g$.

Wie berechnet man nun die Beugung von einem halbunendlichen Stapel von Ebenen? Dazu seien die einzelnen Ebenen nummeriert und wir betrachten die Ebene j und die Ebene $j + 1$. Der Strahl erfahre beim Durchlaufen des Zwischenraumes zweier Ebenen eine Phasenverschiebung um φ . Da wir uns bei der Betrachtung in der Nähe eines Bragg-Reflexes befinden, wird φ sinnvollerweise angegeben als

$$\varphi = m\pi + \Delta = m\pi(1 + \xi), \quad (3.9)$$

da die Phasenverschiebung beim doppelten Durchlaufen des Netzebenenabstandes ein ganzzahliges vielfaches von 2π beträgt. Dabei geben Δ bzw. ξ den Abstand vom Bragg-Reflex der Ordnung m an.

Der ausfallende Strahl direkt über der j -ten Ebene sei mit S_j bezeichnet. Zu ihm tragen der reflektierte Anteil der einfallenden Welle und der durch die j -te Ebene transmittierte S_{j+1} -Strahl bei. Dies führt auf die Gleichung:

$$S_j = -igT_j + (1 - ig_0)e^{i\varphi} S_{j+1} \quad (3.10)$$

Entsprechend ergibt sich für den einfallenden Strahl direkt unter der $j + 1$ -ten Ebene:

$$T_{j+1}e^{-i\varphi} = (1 - ig_0)T_j - ig_0e^{i\varphi}S_{j+1} \quad (3.11)$$

Die T - und S -Felder aus (3.10), (3.11) lassen sich durch Umformen und Einsetzen separieren. Dazu löst man (3.11) nach S_{j+1} auf und macht den Übergang von $j+1$ nach j . Die erhaltenen Ausdrücke für S_{j+1} und S_j werden in (3.10) eingesetzt und es ergibt sich die Gleichung

$$(1 - ig_0)e^{-i\varphi}[T_{j+1} + T_{j-1}] = (g^2 + (1 - ig_0)^2 + e^{-i2\varphi})T_j, \quad (3.12)$$

die ausschließlich von den Parametern T_{j-1} , T_j und T_{j+1} abhängt. Man macht für die Beschreibung des T -Feldes den Ansatz

$$T_{j+1} = e^{-\eta}e^{im\pi}T_j, \quad (3.13)$$

wobei η im allgemeinen eine komplexe Größe ist, deren Realteil die Abschwächung des einfallenden Strahls beschreibt. Setzt man den Ansatz (3.13) in (3.12) ein, so ergibt sich:

$$(1 - ig_0)e^{-i\Delta}[e^{-\eta} + e^{\eta}] = g^2 + (1 - ig_0)^2 + e^{-i2\Delta} \quad (3.14)$$

Da alle Parameter der obigen Gleichung klein gegen Eins sind, lässt sich die Gleichung durch Taylorentwicklung überführen in

$$\eta^2 = g^2 - (\Delta - g_0)^2 \quad (3.15)$$

und es ergeben sich die Lösungen

$$i\eta = \pm\sqrt{(\Delta - g_0)^2 - g^2} \quad (3.16)$$

Das gleiche Ergebnis für η ergibt sich aus dem Ansatz

$$S_{j+1} = e^{-\eta}e^{im\pi}S_j \quad (3.17)$$

für das ausfallende Feld S .

Nun kann die Reflektivität für die Amplitude $r = \frac{S_0}{T_0}$ und daraus die Reflektivität für die Intensität $R = |r|^2$ berechnet werden. Dazu wird (3.17) für $j=0$ geschrieben, so dass man einen Ausdruck für S_1 erhält, der wiederum in (3.10) eingesetzt wird. Durch Umformung der erhaltenen Gleichung ergibt sich:

$$r = \frac{S_0}{T_0} \approx \frac{g}{(\Delta - g_0) + i\eta} \quad (3.18)$$

$$= \frac{g}{(\Delta - g_0) \pm \sqrt{(\Delta - g_0)^2 - g^2}} \quad (3.19)$$

$$= \frac{1}{x \pm \sqrt{x^2 - 1}} \quad (3.20)$$

Hier wurde die Größe x eingeführt, die mit der Variablen ξ verknüpft ist:

$$x = \frac{\Delta - g_0}{g} = \frac{1}{g}(m\pi\xi - g_0) \quad (3.21)$$

Um sinnvolle Ergebnisse für die Reflektivität der Intensität R zu erhalten, wählt man das Vorzeichen in (3.20) für $x \geq +1$ negativ und für $x \leq -1$ positiv.

$$\begin{aligned} R(x) &= \left| \left(\frac{S_0}{T_0} \right) \right|^2 \\ &= (x - \sqrt{x^2 - 1}) \quad , \text{für } x \geq +1 \\ &= 1 \quad , \text{für } -1 < x < 1 \\ &= (x + \sqrt{x^2 - 1}) \quad , \text{für } x \leq -1 \end{aligned}$$

Im Fall $-1 < x < 1$ ergibt sich $R = 1$, also Totalreflexion.

Aus (3.22) kann nun die Breite der Darwinschen Reflexionskurve bestimmt werden. Es wird zunächst die Breite in ξ angegeben, dass sich aus x durch

$$\xi = \frac{gx + g_0}{m\pi} \quad (3.22)$$

ergibt. Die Darwin-Breite des Bereichs der Totalreflexion beträgt 2 in x und ergibt eine Breite in ξ von

$$\xi_D^{\text{total}} = \frac{2g}{m\pi}. \quad (3.23)$$

Die Halbwertsbreite (FWHM) ergibt sich zu

$$\xi_D^{\text{FWHM}} = \frac{3}{2\sqrt{2}} \xi_D^{\text{total}}. \quad (3.24)$$

Der Parameter ξ beschreibt die Breite der Reflexionskurve in Einheiten der Wellenlänge nach $\xi = \Delta\lambda/\lambda$. Aus der Bragg'schen Gleichung kann leicht der Zusammenhang zwischen ξ und der Winkelbreite des Reflexes $\Delta\theta_D$ abgeleitet werden:

$$\Delta\theta_D = \tan\theta \frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \tan\theta \cdot \xi_D \quad (3.25)$$

Ersetzt man auch noch g entsprechend (3.7), so folgt für die **Halbwertsbreite der Reflexionskurve nach Darwin**:

$$\Delta\theta_D^{\text{FWHM}} = \tan\theta \frac{3\sqrt{2}}{\pi} \left(\frac{d}{m} \right)^2 \frac{r_0|F|}{v_c}. \quad (3.26)$$

Für den (200)-Reflex von LiF und die Wellenlänge der Cu-K $_{\alpha}$ -Strahlung ergibt sich danach eine Halbwertsbreite von $\Delta\theta_D^{\text{FWHM}} = 5,84$ arcsec.

Die **Eindringtiefe** Λ_{ext} folgt direkt aus dem Realteil der Größe η . Zur Bestimmung von Λ_{ext} berechnet man, nach wie vielen Ebenen die einfallende Intensität

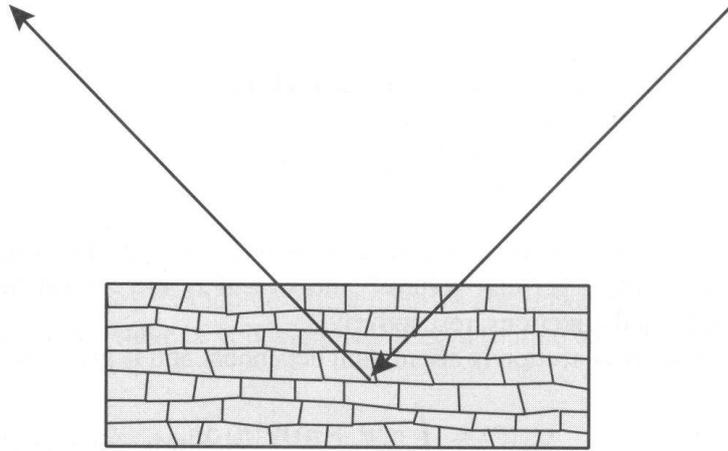


Abbildung 3.1: Ein Mosaikkristall besteht aus einkristallinen Blöcken unterschiedlicher Orientierung.

auf $e^{-1/2}$ abgefallen ist und multipliziert den erhaltenen Wert mit dem Ebenenabstand d . Ausgedrückt durch die Größe x ergibt sich:

$$\Lambda_{ext} = \frac{d}{2Re(g\sqrt{1-x^2})}. \quad (3.27)$$

Dieser Ausdruck ist noch von der Position auf der Reflexionskurve abhängig. Für $x = 0$ ergibt sich:

$$\Lambda_{ext} = \frac{d}{2g} = \frac{1}{4} \left(\frac{m}{d} \right) \frac{v_c}{r_0|F|}. \quad (3.28)$$

3.1.3 Mosaizität von Kristallen

Die an einem realen Kristall gemessene Reflexbreite und die gemessene Reflexintensität weichen von den nach der dynamischen Theorie vorhergesagten Werten häufig ab. Die Reflexbreite kann um ein vielfaches größer sein, als man dies nach der dynamischen Theorie und Gleichung (3.26) erwarten würde. Typische Mosaikkristalle zeigen eine Reflexbreite von $0,1^\circ$ bis $1,0^\circ$. Diese Beobachtung brachte Darwin 1922 dazu, ein Modell aufzustellen, das den Kristall als aus kristallinen Blöcken zusammengesetzt beschreibt. Ein solcher Kristall, der zunächst nur ein theoretisches Modell ist, wird als Mosaikkristall bezeichnet. Er besteht aus einkristallinen Blöcken unterschiedlicher Orientierung, wie er in Abb. 3.1 schematisch dargestellt ist. Die Vergrößerung der Reflexbreite des gesamten Kristalls kann in diesem Bild durch die statistische Verkippung der Mosaikblöcke gegeneinander verstanden werden.

Für kleine Mosaikblöcke kann man zunächst die kinematische Theorie zur Berechnung der reflektierten Intensität verwenden. Für größere Blöcke muss Mehrfachstreuung berücksichtigt werden und die reflektierte Intensität nähert sich dem

durch die dynamische Theorie vorhergesagten Wert an. Man nennt die durch die dynamische Theorie beschriebene Intensitätsabschwächung in einem einkristallinen Block *primäre Extinktion*.

Der einfallende Strahl durchdringt viele Mosaikblöcke. Wenn deren Verkipfung gegeneinander größer ist als die Reflexbreite eines einzelnen Mosaikblocks, so reflektieren sie Strahlung aus unterschiedlichen Richtungen bzw. Strahlung unterschiedlicher Energie. Wird ein Block durch einen parallel orientierten Block abgeschattet, so dass die auf ihn treffende Strahlintensität durch den zuvor passierten Block bereits abgeschwächt ist, so nennt man diesen Effekt *sekundäre Extinktion*.

Einen Kristall aus flachen und stark gegeneinander verkippten Kristallblöcke bezeichnet man als *idealen Mosaikkristall*. Für einen solchen Kristall kann die kinematische Theorie der Röntgenbeugung zur Berechnung verwendet werden. Weder primäre noch sekundäre Extinktionskorrekturen müssen hier durchgeführt werden, da man davon ausgeht, dass die Kristallblöcke ausreichend stark gegeneinander verkippt sind. Dadurch wird kein Kristallblock von einem anderen abgeschattet und die Eindringtiefe in den Kristall ist im Wesentlichen durch die Absorptionlänge des Materials bestimmt. Der nach der kinematischen Theorie für die reflektierte Intensität berechnete Wert liefert eine Abschätzung der maximal reflektierten Intensität. Die dynamische Theorie liefert im Allgemeinen einen kleineren Wert für die integral reflektierte Intensität als die kinematische Theorie. Die nach den beiden Theorien bestimmten Werte sind daher obere und untere Schätzwerte für die wahre Reflektivität des Kristalls.

Das Modell des Mosaikkristalls ist sehr grob und wird im allgemeinen die physikalische Wirklichkeit nicht richtig beschreiben. Allgemeiner als das Bild der Mosaikblöcke ist die Vorstellung von kohärenten Domänen im Kristall. Verursacht durch Kristalldefekte und Verspannungen kann man sich vorstellen, dass die Phasenbeziehung der Strahlung über eine gewisse Distanz verloren geht. Innerhalb einer kohärenten Domäne ist die Phasenbeziehung erhalten und die dynamische Theorie ist anzuwenden. Für die Berechnung der reflektierten Intensität müssen daher die Streuamplituden addiert werden. Für verschiedene Domänen sind die Intensitäten und nicht die Amplituden zu addieren. Eine kohärente Domäne kann von jedem Punkt aus betrachtet werden und erfordert nicht die Vorstellung von real existierenden Mosaikblöcken.

Die wesentliche theoretische Arbeit zu Mosaikkristallen wurde von Darwin (1922) veröffentlicht und später von Hamilton, Zachariasen, Werner, Becker & Coppens und anderen erweitert und verbessert. Ein ausführlicher Überblick über die wesentlichen Arbeiten zu Mosaikkristallen findet sich bei [Sab88] und [Aut01]. In der letzten Veröffentlichung werden auch Modelle für stark verformte Kristalle besprochen. Die verschiedenen Extinktionskorrekturen geben das Verhältnis von tatsächlich gemessener Intensität zu der nach der kinematischen Theorie erwarteten Intensität eines Reflexes an. Ihre Berechnung wird in [Wil92] beschrieben.

3.2 Spiegel

Spiegel arbeiten nach dem Prinzip der Totalreflexion. Für Röntgenstrahlung besitzen die meisten Materialien einen Brechungsindex n von unter 1 ($n = 1 - \delta$ mit $\delta \approx 10^{-5}$ in Festkörpern, Absorptionskomponente β vernachlässigt). An der Grenzfläche zwischen Vakuum mit $n = 1$ und einem optisch weniger dichten Material mit $n \leq 1$ wird die Strahlung vollständig reflektiert. Das Brechungsgesetz nach Snellius

$$\cos \alpha = n \cos \alpha' \quad (3.29)$$

beschreibt den Zusammenhang zwischen α und α' , den Winkeln, die einfallender bzw. transmittierter Strahl mit der Oberfläche einschließen. Totalreflexion tritt unterhalb eines kritischen Winkels α_c auf, für den $\alpha' = 0$ wird. Durch Reihenentwicklung von $\cos \alpha_c \approx 1 - 1/2\alpha_c^2$ und mit dem Brechungsindex aus (2.11) unter Vernachlässigung der Absorption β erhält man:

$$\alpha_c = \sqrt{2\delta} = \frac{\sqrt{4\pi\rho_{el}r_0}}{k}. \quad (3.30)$$

Hier bedeutet ρ_{el} die Elektronendichte und r_0 den klassischen Elektronenradius. Um für fokussierende Optiken große kritische Winkel α_c zu erreichen werden Materialien mit einer hohen Kernladungszahl Z , die hohe Elektronendichten aufweisen, verwendet.

Der Spiegel kann neben der Fokussierung des Strahls auch zum ‘‘Abschneiden’’ hochenergetischer Strahlungsanteile eingesetzt werden. Bei einem festen Einfallswinkel ergibt sich die kritische Energie E_c unter Verwendung von $E = \hbar ck$ aus (3.30) als Funktion des Einfallswinkels α :

$$E_c = \hbar ck = \hbar c \frac{\sqrt{4\pi\rho_{el}r_0}}{\alpha}. \quad (3.31)$$

Für den von uns verwendeten, Rh-beschichteten Spiegel, unter dem Einfallswinkel von 4 mrad, schätzt man die kritische Energie als $E_c \approx 16\text{keV}$ ab. Bei E_c ist die Reflektivität auf 50% abgefallen. Somit wird die Strahlung der verwendeten Photonenenergie $E = 10\text{keV}$ effektiv fokussiert, die Strahlung der zweiten Ordnung bei $E = 20\text{keV}$ aber bereits stark unterdrückt.

3.3 Multilayer

Multilayer (ML) sind Mehrschichtsysteme, die auch als LSM (*layered synthetic microstructures*) bezeichnet werden. Grundlegendes zu Multilayern findet sich im Kapitel 4 von [Koc91]. Das Wesentlichste sei hier kurz zusammengefasst.

ML erlauben bei ausreichend kleiner Periodendicke d die Reflexion unter größeren Winkeln als Spiegel. Durch die geringe Anzahl zur Reflexion beitragender

Lagen, im Vergleich mit der hohen Anzahl der beitragenden Ebenen in einem Bragg-reflektierenden Kristall, besitzen ML eine geringe Energieauflösung. Dies erlaubt den Aufbau von breitbandigen Monochromatoren, die einen hohen Strahlungsdurchsatz ermöglichen.

Die von uns für den Aufbau eines breitbandigen Monochromators verwendeten Multilayer werden im Anhang C vorgestellt.

ML werden durch die aufeinanderfolgende Abscheidung atomarer Lagen verschiedener Elemente hergestellt. Für Röntgenoptiken ist dabei ein hoher Unterschied in der Kernladungszahl Z der verwendeten Elemente A und B wesentlich. Die Lagen des Elements mit dem höheren Z und somit höherer Streuintensität können als die Reflexionsebenen angesehen werden. Im Unterschied zu einem Kristall sind diese nun nicht durch den Abstand der Atomebenen, sondern durch das Material mit niedrigerem Z getrennt.

Die Lagen werden im allgemeinen mit festen Schichtdicken t_A, t_B und eine Periodendicke von $d = t_A + t_B$ hergestellt. Die Anzahl der hergestellten Perioden beträgt gewöhnlich etwa 10-200. Die Periodendicke kann von 10\AA bis hin zu 100\AA und mehr betragen. Für Röntgenoptiken sind vor allem kleine Perioden interessant, da sie bei den verwendeten Wellenlängen die größten Bragg-Winkel ermöglichen.

Die Bragg-Gleichung für einen ML lautet:

$$m \cdot \lambda = 2d \cdot \sin \theta \left(1 - \frac{\delta}{\sin^2 \theta} \right) \quad (3.32)$$

Dabei wurde auch die Brechung des Strahls an der obersten Lage des ML berücksichtigt. Hier ist δ wie schon für den Brechungsindex $n = 1 - \delta + i\beta$ in (2.12) definiert.

Für einen ML mit n_{eff} effektiv zur Reflexion beitragenden Doppelschichten weisen die Bereiche zwischen den Bragg-Reflexen $n_{eff} - 1$ Nebenmaxima auf. Diese entstehen durch unvollständige Interferenz der Strahlung aus den einzelnen Schichten.

Die Halbwertsbreite der Bragg-Reflexe $\Delta\theta$ unter dem Bragg-Winkel θ und die Energieauflösung ΔE bei der Energie E sind nach [Koc91] näherungsweise gegeben durch:

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = \frac{\Delta E}{E} = \frac{1.8}{m \cdot n_{eff}} \quad (3.33)$$

Hier ist m die Ordnung des Bragg-Reflexes. Für $n_{eff} = 100$ und $m = 1$ ergibt sich $\Delta\theta/\theta \approx 2\%$.

3.4 Fokussierungs-Prinzipien

Sowohl Kristalle, Multilayer als auch Spiegel werden zur Konstruktion fokussierender Optiken verwandt.

In einer idealen fokussierenden Optik werden alle Strahlen aus einem Punkt in einen anderen Punkt reflektiert. Die Quelle wird auf die Probe abgebildet. Um eine 1:1 Abbildung mit einem Spiegel zu erreichen, muss der Spiegel Krümmung in mehr als einer Richtung aufweisen. Man unterscheidet dabei zwei Komponenten der Krümmung, die die *tangentiale* (oder *meridionale*) bzw. die *sagittale* Fokussierung bewirken. Bei der tangentialen Fokussierung liegen die Normalen der Spiegeloberfläche in einer Ebene mit den einfallenden und den reflektierten Strahlen. Die hierzu erforderlich Krümmung des Spiegels liegt gerade in der anderen Richtung, wie die für die sagittale Fokussierung benötigte Krümmung. Um einen sowohl tangential als auch sagittal fokussierenden Spiegel zu bauen, muss dieser die Form eines Ellipsoids annehmen. Dieses hat zwei Fokuspunkte und alle Strahlen aus einem Fokuspunkt werden in den anderen reflektiert. Es muss natürlich beachtet werden, dass bei der Reflexion an einem Spiegel der kritische Winkel α_c nicht überschritten werden darf. Daher sind alle Spiegel für Röntgenstrahlung relativ lang und sehr flach. Im Allgemeinen ist die Anfertigung eines Röntgenspiegels als Ellipsoid zu aufwendig und es werden stattdessen zylindrische oder toroidale Spiegeloberflächen hergestellt, mit denen die Form eines Ellipsoids gut angenähert werden kann.

Wird eine fokussierende Optik aus Kristallen oder Multilayern realisiert, so ist die Ellipsoid-Form nicht ohne weiteres anwendbar. Sowohl Kristall als auch Multilayer sind energiedispersive Komponenten, d.h. die Strahlen einer Wellenlänge werden nur unter dem durch das Bragg-Gesetz vorgegebenen Winkel reflektiert. Dieser Bragg-Winkel muss also an jedem Punkt der Oberfläche mit dem Einfallswinkel übereinstimmen. Dies ist für den im Kapitel 6 vorgestellten Analysator aus gebogenem LiF in Form einer logarithmischen Spirale realisiert.

Im Gegensatz zu Spiegeln, reflektieren Kristall- und Multilayer-Optiken also nur einen kleinen Teil des Energie-Spektrums und wirken so gleichzeitig als Monochromatoren. Dabei erlauben Multilayer die Reflexion mit einer größeren Bandbreite der Strahlung als Kristalle (zumindest für "gute" Kristalle mit geringer Reflexbreite). Anorganische Kristalle haben gegenüber Multilayern normalerweise eine deutlich kleinere Gitterperiode und somit einen größeren Bragg-Winkel. Daher können mit Kristallen größere Raumwinkel auf kleineren Distanzen erfasst werden, was eine kompaktere Dimensionierung der Optik erlaubt.

Kapitel 4

Röntgendetektoren

Dieses Kapitel erhebt keinesfalls den Anspruch auf Vollständigkeit, da die Darstellung aller verfügbarer Röntgendetektoren und derer Eigenschaften viel zu umfassend wäre. Die grundlegenden Konzepte dieser Detektoren werden z.B. in [Kno79] und [Don00] ausführlich und in [Vau86] stichpunktartig dargestellt. Hier sollen lediglich die Prinzipien der in dieser Arbeit verwendeten Detektortypen kurz dargestellt und später benötigte Formeln hergeleitet werden. Die wesentlichen Parameter der später eingesetzten Detektoren, wie die maximale Zählrate und die aktive Fläche, werden angegeben.

Das Prinzip von Ionisationskammern, die ein zur Strahlintensität proportionales Stromsignal liefern, wird in Abschnitt 4.1 vorgestellt. Verschiedene “Photonenzähler”, die einzelne Photonen detektieren und mit begrenzter Genauigkeit auch deren Energie bestimmen, werden im Abschnitt 4.2 vorgestellt.

Die *Nachweiswahrscheinlichkeit* eines Detektors (engl.: *detection efficiency*) ϵ_{det} ist definiert als das Verhältnis:

$$\epsilon_{det} = \frac{\text{Anzahl detektierter Photonen}}{\text{Anzahl auf den Detektor einfallender Photonen}}. \quad (4.1)$$

4.1 Ionisationskammer

Vielleicht der einfachste Detektor für Röntgenstrahlung ist eine Ionisationskammer. Sie wird in Verbindung mit einem Stromverstärker eingesetzt, um den Fluss der Röntgenstrahlung zu messen. Eine Zählung einzelner Photonen findet hier nicht statt. Eine häufige Anwendung der Ionisationskammer ist der Einsatz als Strahlungsmonitor, wofür die geringe Nachweiswahrscheinlichkeit bzw. die hohe Transmission ideal ist. Die Ionisationskammer besteht üblicherweise aus einer rechteckigen, gasdurchfluteten Kammer mit einem Eingangs- und einem Ausgangsfenster (häufig aus Kaptonfolie). Eine elektrische Spannung wird auf zwei im Detektor befindliche parallele Metallplatten gegeben und erzeugt zwischen diesen ein elektrisches Feld.

Bei der Photoabsorption der Röntgenstrahlen im Gas der Ionisationskammer entstehen Photoelektronen, Auger-Elektronen und auch Fluoreszenzphotonen. Letztere können wiederum absorbiert werden und letztlich ebenfalls geladene Teilchen erzeugen. Das elektrische Feld zieht die Elektronen und Ionen zu den Platten, wodurch ein Strom entsteht. Die Feldstärke in der Ionisationskammer betrug in unseren Messungen bei einem Plattenabstand von 1cm einige hundert Volt (400-700V). Man wählt die Feldstärke im oberen Bereich der Sättigung des Signals, so dass die geladenen Teilchen rasch aus der Kammer abgesaugt werden und möglichst nicht rekombinieren. Andererseits versucht man die bei noch höheren Feldstärken auftretende Stoßionisation anderer Gasatome durch die im Feld beschleunigten Elektronen und Ionen (Lawinenionisation) zu vermeiden.

Aus dem gemessenen Plattenstrom ist es möglich eine Abschätzung des Photonflusses zu gewinnen. Unsere Ionisationskammer wurde mit Stickstoff durchspült. Die für die Erzeugung eines Elektron-Ion-Paares nötige Energie beträgt in Stickstoff durchschnittlich $E_i(N_2)=36\text{eV}$. Der Anteil ϵ_{det} in der Kammer photoabsorbierter Strahlung, kann aus der bekannten Länge der Kammer Δx , dem Gasdruck und dem Photoabsorptionsquerschnitt des benutzten Gases bei der bekannten Photonenenergie berechnet werden. Man erhält aus diesen Werten die absolute Rate einfallender Photonen I :

$$I = \frac{I_{el}}{e(E_{ph}/E_i)^{-1}} \cdot \frac{1}{\epsilon_{det}}. \quad (4.2)$$

Dabei ist e die Elementarladung, I_{el} der gemessene Plattenstrom, E_{ph} die Photonenenergie und ϵ_{det} die Nachweiswahrscheinlichkeit, die durch

$$\epsilon_{det} = 1 - \exp(-\mu \cdot \Delta x) = 1 - \exp(-\mu_m \cdot \rho \cdot \Delta x) \quad (4.3)$$

gegeben ist. Hier ist $\mu_m = \mu/\rho$ der häufig tabellierte Massenabsorptionskoeffizient. Die Dichte ist durch den Luftdruck gegeben und beträgt für Stickstoff unter Normalbedingungen (273K, 1013hPa) $\rho = 1,25 \cdot 10^{-3}\text{g/cm}^3$.

Für die von uns verwendeten Ionisationskammern mit der Länge $l = 13\text{ cm}$ und einem Massenabsorptionskoeffizienten $\mu_m(N) = 2,9\text{cm}^2/\text{g}$ für Stickstoff (Quelle: XCOM Software) ergibt sich eine Nachweiswahrscheinlichkeit von $\epsilon_{det} = 4,6\%$. Weiter ergibt sich für die in den Hologramm-messungen verwendete Photonenenergie von $E_{ph} = 10,655\text{keV}$:

$$\frac{I}{[\text{Photonen/s}]} = 4,33 \cdot 10^{17} \cdot I_{el}/[\text{A}]. \quad (4.4)$$

4.2 Photonenzähler

4.2.1 NaJ - Szintillationszähler

Ein NaJ-Szintillationszähler (engl.: *NaI-Scintillation Counter*) kann zum Einzelnachweis von Photonen und bedingt auch zur Bestimmung der Photonenenergie

eingesetzt werden.

Szintillationszähler konvertieren Röntgenstrahlen durch besondere Materialien in optische Photonen, die dann mit Hilfe eines Photomultipliers oder einer Photodiode detektiert werden. Bei den Szintillatoren handelt es sich entweder um organische oder anorganische Materialien wie z.B. einkristallines Natrium-Jodid (NaJ), das zu den Alkalihaliden gehört. Natrium-Jodid wird durch eine geringe Konzentration von Thallium (Tl) aktiviert, das als Störstelle im Kristall Lumineszenzzentren erzeugt. Es werden so Energiezustände zwischen den Bändern des Kristalls eingefügt.

Da zur Erzeugung eines optischen Photons von einigen eV etwa 200 – 300 eV Energie benötigt werden, ist die Konversionsrate niedrig und daher auch die Energieauflösung für ein einzelnes Photonen gering.

Die Energieauflösung wird in erster Linie durch die Zählstatistik der Photoelektronen, das heißt die Variation der im Photomultiplier emittierten Zahl von Elektronen, bestimmt. Nach [Vau86] beträgt die Energieauflösung bei 5,9 keV etwa $\Delta E/E \approx 0,4$ für einen NaJ(Tl)-Detektor.

Szintillationszähler werden vorwiegend wegen ihrer großen aktiven Fläche und ihrer hohen Photonen-Nachweiswahrscheinlichkeit eingesetzt.

Die Zählrate dieser Detektoren ist durch die Lebensdauer der optisch angeregten Zustände von einigen μs begrenzt und beträgt bis zu $2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$.

4.2.2 Silizium Drift Detektor (SDD)

Ein Silizium Drift Detektor (engl.: *Silicon Drift Detector*) ist bereits ein spezieller Typ eines Halbleiterdetektors, von denen vor allem Germanium- und Silizium-Detektoren zu erwähnen sind. Halbleiterdetektoren sind gewissermaßen Festkörper-Ionisationskammern [DH88]. Der wesentliche Unterschied zu diesen besteht in der mittleren zur Produktion eines Ladungsträgerpaares benötigten Energie, die für Gasdetektoren rund 30 eV, für Silizium bei $T=300 \text{ K}$ aber nur 3,62 eV beträgt (Bandlücke in Si: 1,115 eV bei $T=300 \text{ K}$). Die Anzahl erzeugter Ladungsträger ist also deutlich größer als für Szintillations- oder Gaszähler, was eine bessere Energieauflösung ermöglicht.

Halbleiterdetektoren sind im Wesentlichen nichts anderes als großflächige Dioden der Dotierungsstruktur $n^+ \text{-i-p}^+$, die in Sperrrichtung betrieben werden. Bei der Wechselwirkung eines Photons im intrinsischen Gebiete der Diode entstehen Spuren von Elektron-Loch-Paaren. Im elektrischen Feld der Sperrspannung werden diese Paare getrennt und driften zu den jeweiligen Kontakten der Diode. Der so über die Diode fließende Strom wird elektronisch verstärkt und liefert das Messsignal. Um das hauptsächlich durch Leckstrom verursachte Rauschen der Detektoren zu unterdrücken, werden diese häufig gekühlt.

Das Wort Drift im Namen des SDD steht für das Driften der Ladungsträger und der SDD darf nicht mit einem gedrifteten Detektor verwechselt werden. Gedrif-

tete Detektoren haben ihren Namen, weil bei diesen ein Stoff, z.B. Lithium, als Donatoratom eindiffundiert wurde, um Akzeptor-Fehlstellen vollständig zu kompensieren. In SD-Detektoren driften lediglich die Ladungsträger im elektrischen Feld zu den Kontakten.

Halbleiterdetektoren werden vor allem wegen ihrer sehr guten Energieauflösung und der hohen Nachweiswahrscheinlichkeit eingesetzt. Die aktive Fläche A_{det} dieser Detektoren kann allerdings nicht beliebig groß gefertigt werden und einige cm^2 nicht übersteigen. Auch die Zählrate ist auf einige 100.000 Photonen/s beschränkt.

Die von uns verwendeten Silizium-Drift-Detektoren (Hersteller: Roentec) besitzen bei einer Zählrate von 30.000 s^{-1} und mit Peltier-Kühlung eine Energieauflösung von $<170 \text{ eV}$ bei einer Energie von $5,9 \text{ keV}$ (Mn-K_α), d.h. $\Delta E/E < 3\%$. Ihre Nachweiswahrscheinlichkeit für Strahlung bis zu Energien von 10 keV beträgt nahezu 100%. Die aktive Fläche ist mit $A_{det}=5 \text{ mm}^2$ angegeben.

4.2.3 Lawinen-Photodiode (APD)

Allgemeines zu Lawinen-Photodioden (engl.: *Avalanche Photo Diode*) findet sich im Buch von A. M. Sze [Sze85], aber auch in [Mar00] und [Vau86].

Eine APD ist eine Diode, die in der Nähe der Durchbruchspannung betrieben wird und z.B. durch einen p^+n -Übergang im Halbleiter realisiert werden kann. Das elektrische Feld in einer Si-APD beträgt $\sim 10^5 \text{ V/cm}$ und ist damit ausreichend, um freie Elektronen so stark zu beschleunigen, dass sie durch Stoßionisation weitere Elektron-Loch-Paare erzeugen, die wiederum zur Stoßionisation führen können. Es entsteht so eine Lawine (engl.: *avalanche*), die den Stromfluss um einen Faktor $10^1 - 10^3$ verstärkt.

Die genaue Verstärkung und auch die Nachweiswahrscheinlichkeit sind stark von der Energie der einfallenden Photonen abhängig. Photonen die auf die p^+ -Seite der Diode einfallen, werden innerhalb einer charakteristischen Absorptionslänge $1/\mu$ absorbiert und erzeugen Photoelektronen mit hoher kinetischer Energie. Diese schnellen Elektronen erzeugen im Halbleiter durch Stoßionisation weitere Elektron-Loch-Paare für deren Erzeugung in Si im Mittel eine Energie von $3,6 \text{ eV}$ benötigt wird, bis sie vollständig abgebremst sind (in Si für 10 keV im Mittel nach $1,4 \mu\text{m}$). Die genaue erreichte Verstärkung und deren Streuung, also die erreichbare Energieauflösung, hängen sehr davon ab, in welchem Bereich der APD die Ladungen erzeugt werden. Im vordersten Bereich der Diode (p^+ -Region) ist nur ein vergleichsweise geringes Feld vorhanden und Rekombination der Ladungsträger kann auftreten. Elektronen, die andererseits erst innerhalb des starken elektrischen Feldes der Diode erzeugt werden, liefern ebenfalls nicht mehr die volle Verstärkung. Die mit APDs erreichbare Energieauflösung ist für uns nicht ausreichend, um mit ihrer Hilfe die Fluoreszenzenergie vom Strahlungsuntergrund zu trennen.

APDs sind sehr schnelle Detektoren, die eine gute Zeitaufösung aufweisen und einen großen dynamischen Bereich besitzen. Allerdings können sie erst seit kurzem mit einer Größe der aktiven Fläche von $A_{det} \approx 1 \text{ cm}^2$ hergestellt werden. Damit sind sie für den Einsatz in Verbindung mit dem hier vorgestellten Fluoreszenzanalysator in ihrer Größe gerade ausreichend.

Der verwendete APD-Detektor besteht im Wesentlichen aus einer Si-APD (Bau-typ: C30916E, Hersteller: Perkin Elmer) mit aktiver Fläche von $A_{det} = 10 \text{ mm}^2$ und einer Reihe von miniaturisierten Hochfrequenzverstärkern (Typ: MAR-6). Die mit diesem Detektor maximal erreichbare Photonenzählrate ist nicht genau bekannt, sie liegt aber deutlich höher als die Bunchfrequenz am Speicherring DORIS, d.h. deutlich höher als 5MHz.

Kapitel 5

Totzeit und Totzeitkorrektur

Die Totzeit (engl.: *deadtime*) τ eines Detektorsystems beschreibt die Dauer, die das System nach einem Zählereignis inaktiv bleibt. In dieser Zeit können keine weiteren Ereignisse detektiert werden. Die physikalischen Eigenschaften des Detektormediums, aber häufig auch die unter Umständen viel langsamere Ausleselektronik, bestimmen die Totzeit des gesamten Detektorsystems. Die Ableitung der Totzeitkorrekturen in den Abschnitten 5.1 und 5.2 sind der Arbeit [Zel96] entnommen.

Je nach Verhaltensweise des Detektorsystems und Eigenschaften der Quelle müssen unterschiedliche Totzeitkorrekturen durchgeführt werden. Im Folgenden wird für die unterschiedlichen Systeme die Detektorzählrate (engl.: *detector count rate*) f_d als Funktion der wahren Zählrate (engl.: *true event rate*) f_t hergeleitet und die Totzeitkorrektur, also die entsprechenden Umkehrfunktionen $f_t(f_d)$, bestimmt.

Die hier vorgestellten Totzeitmodelle gelten in einfachen Spezialfällen. In der Praxis können auch Mischformen der Modelle auftreten.

5.1 Kontinuierliche Quelle

Kontinuierliche Quellen sind beispielsweise Röntgenröhren und Drehanoden.

Es werden zwei Arten von Detektorsystemen unterschieden. Wenn nach dem Auftreten eines Ereignisses im Detektor die Totzeit τ erneut beginnt, d.h. die Totzeit sich verlängern kann, nennt [Kno79] das System lähmbar (engl.: *paralysable*). Ist das System nach der Totzeit τ in jedem Fall wieder aktiv, d.h. die Totzeit beginnt durch ein in der Totzeit aufgetretenes Ereignis nicht noch einmal, so wird das System nichtlähmbar (engl.: *nonparalysable*) genannt.

5.1.1 Nichtlähmbares System

Nachdem ein Ereignis detektiert wurde ist das System für die Zeit τ unempfindlich für weitere Ereignisse. Die durchschnittliche Zeit vom Ende der Totzeit bis zum Auftreten eines erneuten Ereignisses beträgt im Mittel $1/f_t$ und die mittlere Zeit zwischen zwei Ereignissen somit $\tau_d = \tau + 1/f_t$. Dies liefert gerade die beobachtete mittlere Detektorzählrate:

$$f_d = \frac{1}{\tau_d} = \frac{f_t}{1 + f_t \tau}. \quad (5.1)$$

Die wahre Zählrate ergibt sich somit als:

$$f_t = f_d \frac{1}{1 - f_d \tau} \quad (5.2)$$

$$\approx f_d(1 + f_d \tau). \quad (5.3)$$

Die Näherung gilt für $f_d \tau \ll 1$.

5.1.2 Lähmbares System

In einem lähmbaren System darf nach einem wahren Ereignis für die Dauer der Totzeit τ kein weiteres Ereignis auftreten, da sich ansonsten die Totzeit um τ verlängert. Es sei angenommen, dass die Ereignisse unabhängig und nach der Poissonstatistik (s. Anhang B) verteilt auftreten. Dann lässt sich die Wahrscheinlichkeit dafür, dass innerhalb von τ kein Ereignis auftritt, angeben als

$$P_0 = e^{-\mu}, \quad (5.4)$$

wobei $\mu = f_t \tau$ gilt. Der Parameter μ ist der Erwartungswert der Poissonverteilung und beschreibt hier die mittlere Anzahl in der Zeit τ einfallender Photonen.

Mit der Wahrscheinlichkeit P_0 verstreicht die Zeit τ nach einem Ereignis ohne das ein weiteres Ereignis auftritt. Die Rate detektierter Ereignisse folgt daher einfach als:

$$f_d = f_t \cdot P_0 = f_t \cdot e^{-f_t \tau}. \quad (5.5)$$

Diese Gleichung lässt sich nicht nach f_t auflösen. Die wahre Zählrate f_t muss durch Näherungsverfahren aus f_d bestimmt werden.

5.2 Diskontinuierliche Quelle

Ein Speicherring stellt keine kontinuierliche Photonenquelle dar. Die Strahlung entsteht in den im Speicherring umlaufenden Elektronenpaketen, so dass deren Struktur und Umlauffrequenz auch die Struktur der emittierten Photonenpulse bestimmt. Die Quelle ist gepulst. (Die hier folgenden Überlegungen lassen sich im

Übrigen auch auf einen in einem festen Zeitfenster ausgelesenen, “gepulsten” Detektor bei kontinuierlicher Quelle anwenden. Dieser Fall tritt z.B. beim Auslesen eines CCD-Detektors nach einer festen Integrationsdauer auf.)

Am HASYLAB im 5-Bunch-Betrieb beträgt die Frequenz der umlaufenden Elektronenpakete $f_{bunch} = 5.183.272\text{s}^{-1}$ bzw. der Abstand zwischen den Paketen $\tau_{bunch} = 1/f_{bunch} \simeq 193\text{ns}$. Die Dauer eines einzelnen Photonenpulses beträgt nur $\sim 120\text{ps}$ und kann somit von keinem der in Kapitel 4 vorgestellten Detektoren zeitlich aufgelöst werden. Wohl aber ist es möglich, die einzelnen Elektronenpakete mit dem verwendeten APD-Detektor zu sehen, da die Totzeit τ des Detektorsystems kleiner als der zeitliche Abstand der Elektronenpakete τ_{bunch} ist. Der Fall $\tau < \tau_{bunch}$ soll nun zunächst betrachtet werden, anschließend der Fall $\tau > \tau_{bunch}$.

5.2.1 $\tau < \tau_{bunch}$, nichtlähmbares System

Innerhalb eines Photonenpaketes werden die Ereignisse als unabhängig voneinander und nach Poisson-Statistik verteilt angenommen. Der Parameter der Poissonstatistik ist durch $\mu = f_t \cdot \tau_{bunch} = f_t/f_{bunch}$ gegeben, was dem Erwartungswert der aus einem Elektronenpaket entstandenen Ereignisse entspricht.

Für die beiden wichtigen Fälle, dass aus einem einzelnen Elektronenpaket kein Photon ($k=0$) oder genau ein Photon detektiert wird ($k=1$), ergeben sich nach (B.2) die Wahrscheinlichkeiten:

$$P_0 = e^{-\mu} = e^{-f_t/f_{bunch}} \quad (5.6)$$

$$P_1 = \mu \cdot e^{-\mu} = f_t/f_{bunch} \cdot e^{-f_t/f_{bunch}}. \quad (5.7)$$

Die Detektorzählrate f_d ergibt sich, indem die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten eines Ereignisses P mit f_{bunch} multipliziert wird. Dies ist allerdings abhängig davon, was der Detektor als Ereignis akzeptiert.

Werden nur einzeln auf den Detektor treffende Photonen als Ereignis erkannt (nur $k = 1$), so ergibt sich die Detektorzählrate für den **Nachweis von Einzeleignissen** zu

$$\begin{aligned} f_d &= f_{bunch} \cdot P_1 \\ &= f_t \cdot e^{-f_t/f_{bunch}}. \end{aligned} \quad (5.8)$$

Die Totzeitkorrektur ist wiederum nur numerisch durchführbar, da (5.8) nicht nach f_t auflösbar ist.

Wird vom Detektor ein Ereignis, unabhängig von der Anzahl darin “gleichzeitig” auftretender Ereignisse ($k = 1, 2, \dots$) erkannt, dann ergibt sich eine höhere Wahrscheinlichkeit für die Detektion. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein oder mehrere Photonen aus einem Elektronenpaket detektiert werden $P_{k>0}$ ist gleich der

Wahrscheinlichkeit mehr als kein Photon ($k > 0$) zu detektieren:

$$P_{k>0} = \sum_{i=1}^{\infty} P_i = 1 - P_0. \quad (5.9)$$

Es folgt die Detektorzählrate für den **Nachweis von Einzel- und Mehrfachereignissen**:

$$\begin{aligned} f_d &= f_{bunch} P_{k>0} \\ &= f_{bunch} (1 - P_0) \\ &= f_{bunch} (1 - e^{-f_t/f_{bunch}}). \end{aligned} \quad (5.10)$$

Die Totzeitkorrektur ergibt sich durch Auflösen nach f_t als

$$\begin{aligned} f_t &= f_{bunch} \ln \left(\frac{1}{1 - f_d/f_{bunch}} \right) \\ &= f_d (f_d/f_{bunch})^{-1} \ln \left(\frac{1}{1 - (f_d/f_{bunch})} \right) \end{aligned} \quad (5.11)$$

$$\approx f_d \left(1 + \frac{1}{2} (f_d/f_{bunch}) \right). \quad (5.12)$$

Die Näherung gilt für $f_d/f_{bunch} \ll 1$ und entstand durch Taylorreihenentwicklung von $\ln(\frac{1}{1-x}) = x + \frac{1}{2}x^2 + \dots$.

5.2.2 $\tau > \tau_{bunch}$, nichtlähmbares System

Sei n die diskrete Anzahl der Elektronenpakete, die innerhalb einer Totzeit τ vorbeifliegen, also

$$n \cdot \tau_{bunch} < \tau < (n + 1) \cdot \tau_{bunch}, \quad (5.13)$$

wobei τ_{bunch} der zeitliche Abstand der Elektronenpakete ist. Die Totzeit tritt nach jedem detektierten Ereignis auf. Dadurch verringert sich die Rate tatsächlich zur Detektion zur Verfügung stehender Elektronenpakete auf:

$$f_{bunch} - n \cdot f_d = f_{bunch} \cdot (1 - n \cdot f_d/f_{bunch}). \quad (5.14)$$

Der Ausdruck (5.10) muß entsprechend mit dem Faktor $(1 - n f_d/f_{bunch})$ multipliziert werden und liefert:

$$f_d = f_{bunch} \cdot (1 - n \cdot f_d/f_{bunch}) \cdot (1 - e^{-f_t/f_{bunch}}). \quad (5.15)$$

Aufgelöst nach f_d ergibt sich:

$$f_d = f_{bunch} \cdot \frac{1 - e^{-f_t/f_{bunch}}}{1 + n(1 - e^{-f_t/f_{bunch}})}. \quad (5.16)$$

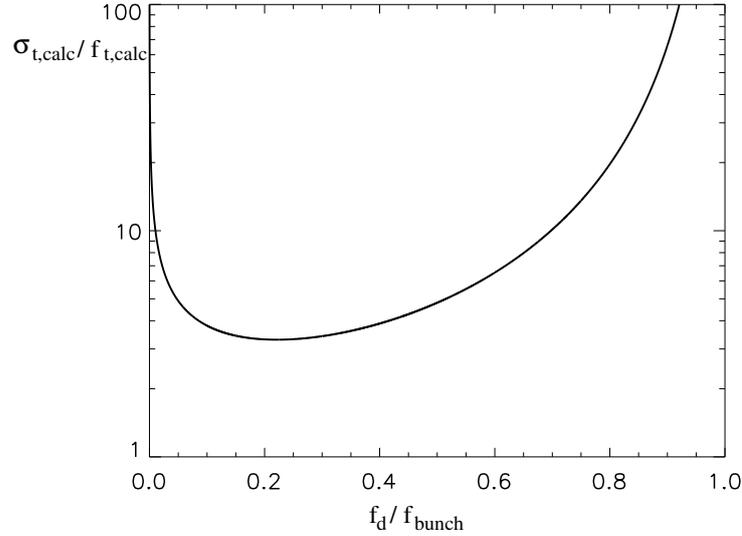


Abbildung 5.1: Darstellung des relativen Messfehlers nach der Funktion (5.18). Die Detektorzählrate wird relativ zur Bunch-Frequenz f_{bunch} angegeben.

Die Totzeitkorrektur folgt durch Auflösen nach f_t als:

$$f_t = f_{bunch} \ln \left(\frac{1}{1 - \frac{f_d/f_{bunch}}{1 - n \cdot f_d/f_{bunch}}} \right). \quad (5.17)$$

Im Fall $n=0$ ergibt sich also gerade wieder (5.10). Für große n geht (5.17) über in (5.2) mit $\tau = n \cdot \tau_{bunch}$.

5.3 Optimale Ereigniszählrate am Speicherring

Mit dem in 4.2.3 vorgestellten APD-Detektor erreicht man vollständige Auflösung der übergeordneten Elektronenpaket-Struktur, aber keinerlei Auflösung der internen Elektronenpaket-Struktur. Es ist also $\tau_{det} < \tau_{bunch}$ und somit die Totzeitkorrektur in (5.11) anzuwenden, sofern die Anzahl gleichzeitig detektierter Ereignisse nicht unterschieden werden kann, wie dies in unseren Messungen der Fall war. Die Elektronik war so eingestellt, dass sie alle Signale oberhalb einer gewissen Schwelle als Zählereignis akzeptiert. Es wurde also nur zwischen den Fällen “mindestens ein Ereignis” oder “kein Ereignis” unterschieden.

Ausgehend davon, dass die Rate f_t mit der die Photonen auf den Detektor einfallen beliebig variiert werden kann (beispielsweise durch Änderung der Einstellungen des Monochromators oder der Strahlfleckgröße), ist zu überlegen, wie groß die optimale Detektorzählrate ist. Dabei will man natürlich, dass die Messung mit dem besten Signal-/Rauschverhältnis durchgeführt wird.

Im Folgenden seien die Zählraten f als absolute Zahlen betrachtet, wie sie sich durch die Multiplikation mit einer beliebigen Messdauer Δt ergeben.

Für die wahre Zählrate f_t nehmen wir eine Verteilung nach Poisson an. Die Varianz von f_t ist dann gerade $\sigma_{f_t}^2 = f_t$. Nach Fehlerfortpflanzung (Anhang B.5) kann nun die Varianz $\sigma_{f_d}^2$ der sich nach (5.10) ergebenden Detektorzählrate berechnet werden. Aus der Detektorzählrate schließt man nach (5.11) wieder auf die wahre Zählrate, deren zurückerechneter Wert mit $f_{t,calc}$ bezeichnet werden soll. Die Varianz $\sigma_{f_{t,calc}}^2$ von $f_{t,calc}$ folgt wiederum durch Fehlerfortpflanzung der Varianz $\sigma_{f_d}^2$.

Für das Verhältnis von Streuung zu Signal der errechneten wahren Zählrate als Funktion der Detektorzählrate erhält man schließlich:

$$\frac{\sigma_{f_{t,calc}}}{f_{t,calc}} = \frac{1}{\sqrt{f_{bunch}}} \cdot \left(\frac{1}{1 - f_d/f_{bunch}} \right)^2 \cdot \frac{1}{\sqrt{\ln\left(\frac{1}{1 - f_d/f_{bunch}}\right)}} \quad (5.18)$$

Diese Funktion ist in Abb. 5.1 dargestellt und besitzt ein Minimum bei $f_{det}/f_{bunch} \approx 0,2$. Man erhält also ein optimales Signal-/Rauschverhältnis, wenn die Detektorzählrate etwa 20% der Bunchfrequenz beträgt. Oberhalb hiervon ist keine Verbesserung des relativen Messfehlers zu erwarten. Dies gilt so lange keine anderen Fehler, z.B. aus der Elektronik, in die Messungen eingehen.

Um dennoch bei höheren Zählraten zu messen, können natürlich Proportionalzähler eingesetzt werden. Diese integrieren über alle Photonen, auch über die aus einem einzigen Bunch. Um Proportionalzähler sinnvoll einsetzen zu können muss die Zählrate aber deutlich höher als 5MHz sein.

Kapitel 6

Aufbau des Fluoreszenzanalysators

6.1 Einleitung

Bereits in geringer Entfernung von den Absorptionskanten wird die Fluoreszenzstrahlung eines Atoms nahezu isotrop in alle Raumrichtungen emittiert. Wird sie im Strahlfleck einer intensiven Röntgenquelle angeregt, so kann die Intensität der gestreuten Strahlung die Intensität des Fluoreszenzsignals übersteigen. Neben der zu messenden Fluoreszenzintensität können auch Fluoreszenzsignale anderer angeregter Elemente im Messsignal vorhanden sein. Dies gilt insbesondere für verdünnte Systeme, d.h. für Systeme, in denen die interessierenden Atome nur in kleiner Anzahl bzw. geringer Konzentration vorkommen.

Die in Kapitel 4 vorgestellten energieauflösenden Halbleiterdetektoren können durch diesen starken Strahlungsuntergrund bei der Messung an einer intensiven Synchrotronstrahlungsquelle leicht ihre maximale Zählrate erreichen. Dies führt dazu, dass die Fluoreszenzstrahlung nur mit verminderter Zählrate gemessen werden kann.

Durch den Einsatz von Analysator-Kristallen als Monochromatoren (Frequenzfilter) kann der Strahlungsuntergrund erheblich unterdrückt werden. Der hier vorgestellte Fluoreszenzanalysator benutzt dazu die Bragg-(200)-Reflexion von Lithiumfluorid (LiF). Nur die im Fokus emittierte Cu-K $_{\alpha}$ -Fluoreszenzstrahlung soll den Analysator passieren können. Alle anderen Frequenzkomponenten der Strahlung sollten vom Analysator unterdrückt werden (s. auch Abschnitt 6.3.4). Der gebaute Analysator zeichnet sich durch eine hohe Raumwinkelakzeptanz aus, die durch Verwendung mehrerer gebogener Kristalle erreicht wird. Die spezielle Biegung der Kristalle in Form einer logarithmischen Spirale wird im Abschnitt 6.2.1 beschrieben.

Der Analysator ist speziell auf die Wellenlänge der Cu-K $_{\alpha}$ -Fluoreszenzstrahlung abgestimmt. Er wurde so kompakt dimensioniert, dass Messungen an atmo-

sphärischer Umgebung trotz der in Luft auftretenden Absorption möglich sind. Um einen entsprechenden Analysator für andere Wellenlängen zu konstruieren, müssen entsprechend anders geformte Kristalle verwendet werden.

Die Vorteile eines Analysators in Form einer logarithmischen Spirale zeigt die Veröffentlichung von Bakulin [BD00] auf. Dort werden Berechnungen des möglichen abgedeckten Raumwinkels für einen Analysator aus HOPG (= *highly oriented pyrolytic graphite*, eine orientierte Graphitstruktur) durchgeführt und es werden Referenzen auf aktuelle Versuche, Analysatoren aus Materialien hoher Mosaizität zu bauen, gegeben.

Ein ähnlicher wie der hier verfolgte Ansatz zum Aufbau eines Analysators aus LiF-Kristallen für die Röntgenholographie, allerdings in zylindrischer Anordnung, findet sich in [HMT⁺01]. Ein aus HOPG gebauter Analysator in Form einer logarithmischen Spirale wird in [Pea00] vorgestellt.

6.2 Form des Analysators

6.2.1 Logarithmische Spirale

In diesem Abschnitt wird dargestellt, welche Form ein Kristall mit zur Oberfläche parallelen Reflexionsebenen haben muss, um die aus einem Punkt emittierte Strahlung auf seiner gesamten Länge zu reflektieren. Es wird zunächst die Biegung des Kristalls in ebener Geometrie (tangentiale Fokussierung) betrachtet. Krümmung des Kristalls, einfallender und ausfallender Strahl liegen somit in der gleichen Ebene.

Um die Bragg-Bedingung auf der gesamten Kristalllänge erfüllen zu können, muss der Kristall in die Form einer logarithmischen Spirale (im Engl.: *logarithmic spiral* oder *equiangular curve*) gebracht werden. Alle aus dem Ursprung dieser Spirale auslaufenden Strahlen schneiden die Spiralkurve unter dem gleichen Winkel α . Wählt man α gleich dem durch $n\lambda = 2d \cdot \sin \theta$ gegebenen Bragg-Winkel θ , dann treffen alle im Ursprung emittierten Strahlen unter dem Bragg-Winkel auf die Oberfläche und nur für Strahlung der Wellenlänge λ ist die Bragg-Bedingung erfüllt (Reflexion höherer Ordnungen, s. Abschnitt 6.3.4). Die Strahlung wird allerdings nicht nur an der Oberfläche der Kristalle reflektiert. Auf die endliche Eindringtiefe der Strahlen wird in Abschnitt 6.3.1 eingegangen. Der Ursprung der logarithmischen Spirale stellt einen Fokuspunkt für einen derart gebogenen Kristall dar.

Mathematisch wird die logarithmische Spirale in Polarkoordinaten (ρ, φ) beschrieben durch ([BS91]):

$$\rho(\varphi) = \rho_0 e^{k\varphi}. \quad (6.1)$$

Der Parameter ρ_0 definiert den Radius bei $\varphi = 0$ und bestimmt somit die Größe der Spirale.

Die Änderung des Radius ρ erfolgt mit der Rate

$$\frac{d\rho}{d\varphi} = \rho_0 k e^{k\varphi} = k \cdot \rho(\varphi). \quad (6.2)$$

Der Winkel zwischen der Tangente an die logarithmische Spirale und dem Strahl aus dem Ursprung am Punkt (ρ, φ) ist gegeben durch:

$$\alpha = \tan^{-1} \left(\frac{r}{\frac{d\rho}{d\varphi}} \right) = \tan^{-1} \left(\frac{1}{k} \right). \quad (6.3)$$

Der Steigparameter k der Spirale ergibt sich danach aus dem Winkel α :

$$k = \frac{1}{\tan \alpha}. \quad (6.4)$$

Um einen Analysator zu bauen, wird man nur einen Abschnitt der Spirale zwischen zwei Winkeln φ_1 und φ_2 verwenden. Dabei ist die Größe der Spirale (der Parameter ρ_0) prinzipiell frei wählbar und man ist nur durch minimale Biegeungsradien der Kristalle bzw. den Materialverbrauch beschränkt. Bei der Wahl der Parameter φ_1 und φ_2 ist darauf zu achten, dass kein bereits reflektierter Strahl nochmals auf die Analysatorfläche trifft. Dies kann vor allem für kleine Einfallswinkel α leicht auftreten.

Der Übergang von der ebenen Geometrie zu einem vollständigen Analysator ist durch Rotation des Spiralenabschnittes um die liegende Achse in Abb. 6.2 möglich. Dabei entsteht eine Rotationsfläche, die einen gemeinsamen Ursprung bzw. einen Fokuspunkt besitzt.

Auf der anderen Seite der Spirale gibt es keinen ausgezeichneten Fokuspunkt. Die Strahlen laufen dort nicht in einem Punkt zusammen. Durch geschickte Wahl der Spiralparameter ist es jedoch möglich, die Strahlen auf relativ kleinem Raum zu bündeln. Der Bereich, in dem die reflektierten Strahlen die kleinste Ausdehnung besitzen, wird Strahltaile (im Engl.: *waist*) genannt.

6.2.2 Parameter der Logarithmischen Spirale

Die ideale Form des Analysators ist durch die Angabe der Parameter α , ρ_0 , φ_1 und φ_2 eindeutig bestimmt. Weitere Parameter können aus diesen Werten abgeleitet werden. Alle Werte für den gebauten Analysator sind in Tabelle 6.1 angegeben.

Der von der idealen logarithmischen Spirale insgesamt erfasste **Raumwinkel** Ω ergibt sich aus den Winkeln φ_1 , φ_2 und lässt sich durch Integration über die Einheitskugel berechnen:

$$\Omega = 4\pi \cdot \frac{1}{2} (\sin \varphi_2 - \sin \varphi_1). \quad (6.5)$$

Für die von uns konstruierte Spirale aus Einzelkristallen ist er durch die vorhandenen Lücken tatsächlich etwas kleiner als der durch die Formel bestimmte Wert. Der erfasste Raumwinkel wird in dieser Arbeit immer in Einheiten des vollen Raumwinkels 4π angegeben. Er kann nicht beliebig vergrößert werden, da für zu große $\Delta\varphi = \varphi_2 - \varphi_1$ die reflektierten Strahlen nochmals auf die Spirale treffen würden.

Die **Länge des Spiralabschnittes** l , gemessen von φ_1 bis φ_2 , bestimmt die Länge des Analysatorkristalls und ist gegeben durch:

$$l = \rho_0 \cdot \sqrt{1 + \tan^2 \alpha} (e^{\varphi_2/\tan \alpha} - e^{\varphi_1/\tan \alpha}) \quad (6.6)$$

Der **Krümmungsradius** r der Kristalle steigt für die logarithmische Spirale mit zunehmendem Abstand ρ zum Ursprung an. Er ist gegeben durch:

$$r(\rho) = \sqrt{1 + (1/\tan \alpha)^2} \cdot \rho = \sqrt{1 + (1/\tan \alpha)^2} \cdot \rho_0 \cdot e^{\frac{1}{\tan \alpha} \cdot \varphi} \quad (6.7)$$

Durch die Spiralkonstruktion selbst wird ein Teil des 2π -Halbraums über der Probe verdeckt. Der **verdeckte Winkel** ϑ lässt sich leicht aus dem Außenradius der Spiralkonstruktion und dem Abstand zum Fokus berechnen. Der anregende Strahl muss in einem größeren Winkel als $\vartheta = 31,4^\circ$ zur Analysatorachse einfallen, um am Analysator vorbeizukommen. Wird der Analysator wie in den Holographiemessungen senkrecht über der Probe platziert, so bedeutet dies für den Strahl einen maximal möglichen Einfallswinkel auf die Probe von $\theta_{max} = 90^\circ - \vartheta = 58,6^\circ$. Durch einen einfachen Zwischenraum im Analysator kann ϑ deutlich verkleinert werden. Für den hier vorgestellten Analysator kann durch das Entfernen eines Kristalls leicht eine Lücke geschaffen werden, die den verdeckten Winkel auf $\vartheta = 23,3^\circ$ verringert.

6.2.3 Vergleich: Flacher Analysator - Logarithmische Spirale

Welchen Vorteil bietet eine logarithmische Spirale gegenüber einem flachen Monochromatorkristall?

Um dies zu beantworten, muss für beide Analysatortypen das Produkt aus Raumwinkelapzeptanz Ω und Reflektivität R verglichen werden. Die Reflektivität soll hier nicht weiter betrachtet werden, ist aber natürlich wesentlich für die maximal erreichbare effektive Raumwinkelakzeptanz $\Omega \cdot R$.

In den Abb. 6.1 und 6.2 sind beide Monochromatoren dargestellt. Die erfassten Raumwinkel Ω_{flat} für einen flachen und Ω_{spiral} für einen Analysator in Form der logarithmischen Spirale sind näherungsweise gegeben durch:

$$\Omega_{flat} \approx \Delta\theta \cdot b/d \quad (6.8)$$

$$\Omega_{spiral} \approx \Delta\varphi \cdot b/d. \quad (6.9)$$

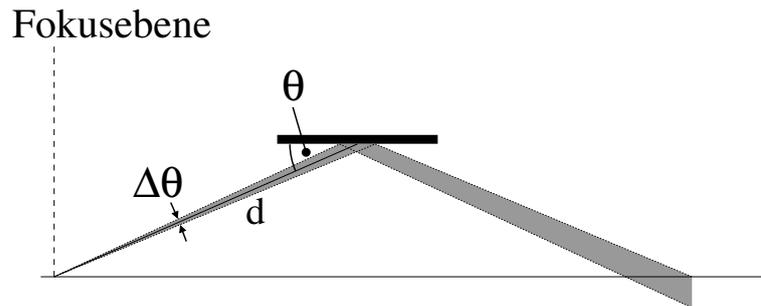


Abbildung 6.1: Flacher Analysatorkristall. Strahlung aus dem Fokus wird nur in einem um die Breite des Reflexes $\Delta\theta$ verbreiterten Bereich reflektiert.

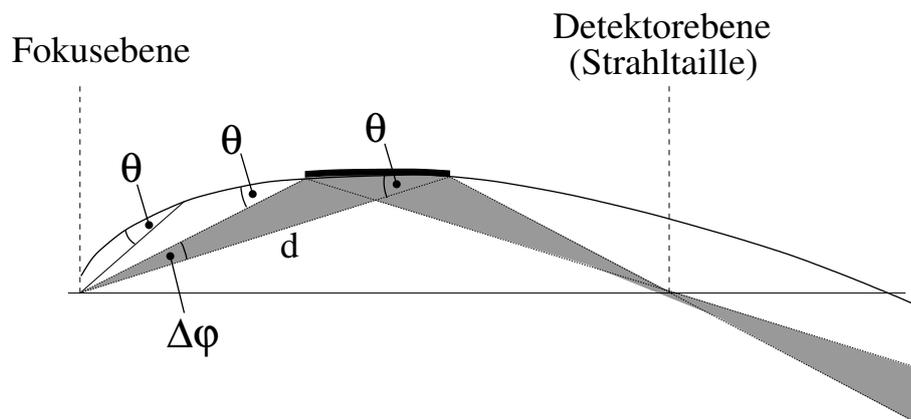


Abbildung 6.2: Analysator als logarithmische Spirale. Alle Strahlen aus dem Fokus treffen unter dem Braggwinkel θ auf die Spirale und werden reflektiert. Man beachte, dass die Strahltaile eine endliche Ausdehnung besitzt, da die Strahlen aus dem Fokus nach der Reflexion nicht wieder in einen Punkt fokussiert werden.



Abbildung 6.3: Der gebaute Fluoreszenzanalysator für Cu-K $_{\alpha}$ -Strahlung. Der Durchmesser der Analysatoröffnung beträgt $\sim 3,3$ cm. 16 Kristallhalter mit aufgeklebten Kristallen sind in einem Ring verschraubt. Siehe auch die Abbildung 7.3 und den Anhang D.

Hier ist b die Breite der Kristalle und d der Abstand zum Analysator. Die Breite b sei so gering gewählt, dass sie den Einfallswinkel nicht wesentlich ändert (s. Abschnitt 6.3.2). Man erkennt sofort, dass der erfasste Raumwinkel eines flachen Analysators proportional zur Breite des Bragg-Reflexes $\Delta\theta$ (s. Abschnitt 6.3.1) ist. Für eine logarithmische Spirale hingegen ist Ω durch den Parameter $\Delta\varphi = \varphi_2 - \varphi_1$ gegeben.

Für unseren Analysator beträgt $\Delta\varphi = 10^\circ$, die Breite der Bragg-Reflexe aber nur etwa $\Delta\theta \leq 1^\circ$. Der Vorteil eines Analysators in Form einer logarithmischen Spirale in Bezug auf den abgedeckten Raumwinkel ist somit offensichtlich.

Ein weiterer Vorteil der Spirale gegenüber flachen Kristallen ist die gute Fokussierung des Strahls in der Strahltaile. Ein Vorteil der flachen Kristalle ist der mit Hilfe von Blenden mögliche Einsatz bei verschiedenen Energien.

6.2.4 Umsetzung der Form in eine Optik

Um den Kristallen die ideale Form einer logarithmischen Spirale zu geben, ist es nötig, sie in zwei Richtungen zu biegen. Für den hier vorgestellten Analysator wurde allerdings auf sagittale Fokussierung verzichtet und die ideale Form aus 16 nur in einer Richtung gebogenen Kristallen angenähert realisiert. Die einzelnen Kristalle wurden dazu auf Aluminium-Trägern in einer Geometrie montiert, die

einem Fass ähnlich ist. Dazu wurden die einzelnen Träger in einen aus Aluminium gefertigten Ring eingeschraubt. Die Abb. 6.3 zeigt den gebauten Analysator. Die Konstruktionszeichnung der Träger und des tragenden Ringes ist im Anhang D abgebildet.

Die LiF-Kristalle mit sehr guter Oberflächenorientierung wurden vom Institut für Kristallographie in Moskau in die Form einer logarithmischen Spirale gepresst und an uns verschickt. Die Kristalle relaxierten jedoch und besaßen zunächst nicht mehr die richtige Form. Sie wurden von uns im Ofen bei Temperaturen von knapp über 100°C erneut auf die Aluminiumträger gepresst und dabei mit Epoxidharz an die Träger geklebt. Alle Teile wurden zuvor ausreichend aufgeheizt und nur für den Klebevorgang aus dem Ofen genommen.

Eine Oberfläche der Aluminiumträger wurde in Form der logarithmischen Spirale ausgefräst. Das entsprechende Gegenstück für den Press- und Klebevorgang wurde aus Edelstahl gefertigt. Mit Hilfe eines Verschiebetisches wurde das Gegenstück auf den darunter befestigten Kristall und Träger gepresst. Dabei erwiesen sich die Al-Träger in ihrer jetzigen Form für das Pressen als nicht besonders gut geeignet. Nicht aufliegende Bereich der schrägen Außenfläche geben beim Pressen nach, so dass sich die Kristallträger leicht aufbiegen.

6.3 Eigenschaften des Analysators und der Kristalle

6.3.1 Lithiumfluorid (LiF)

Für den Aufbau eines Analysators aus gebogenen Kristallen kommen z.B. einkristallines Silizium oder Germanium (bei deutlich größeren Biegeradien), HOPG (*“Highly Oriented Pyrolytic Graphite”*), gebogenes PG oder Glimmer (engl.: *mica*) in Betracht. Auch flache, mit einem räumlichen Profil strukturierte Multilayer können als Analysator eingesetzt werden. Durch die Herstellung mit einer ortsabhängigen Schichtdicke wird es hierbei unnötig, die Oberfläche zu biegen.

Reinstkristalle wie Silizium und Germanium sind vor allem dann vorteilhaft einzusetzen, wenn eine sehr gute Energieauflösung erreicht werden soll, was für die Trennung der Fluoreszenzstrahlung vom Strahlungsuntergrund nicht nötig ist. Es wurde in unserer Arbeitsgruppe bereits versucht, eine mit HOPG beschichtete logarithmische Spirale aus Plexiglas als Analysator einzusetzen. Dieser Versuch lieferte aber nur ein unbefriedigendes Ergebnis.

Wir haben uns zum Aufbau der logarithmischen Spirale aus LiF entschieden, da für LiF hohe Reflektivität bei gleichzeitig hoher Mosaizität des Materials zu erwarten ist. Eine Unsicherheit lag darin, dass wir nicht wussten, ob mit LiF die geringen Biegeradien von $\sim 100\text{mm}$ erreicht werden können (s. Auswertung in Abschnitt 7.2) und welche Eigenschaften die gebogenen LiF-Kristalle besitzen.

Parameter	Bezeichner	Wert
vorgegeben:		
Einfallswinkel	$\alpha = \theta_{Bragg}$	22,487°
Größe bestimmender Par.	ρ_0	2,58mm
Startwinkel	φ_1	62,5°
Endwinkel	φ_2	72,5°
abgeleitet:		
Erfasster Raumwinkel ¹⁾	$\Delta\varphi = \varphi_2 - \varphi_1$ Ω_{spiral}	10° 0,033 · 4π (0,020 · 4π)
Länge des Spiralabschnittes Durchmesser der Strahltaile ²⁾	l	20,42mm ~2,0mm (~10mm)
Krümmungsradius:		
-minimaler	$r(\varphi_1)$	94,07mm
-maximaler	$r(\varphi_2)$	143,41mm
Radius der Analysatoröffnung:		
-Fokussseite	x_1	16,61mm
-Detektorseite	x_2	16,49mm
Entfernungen vom Fokus:		
-zum Analysatoreingang		31,92mm
-zum Analysatorausgang		52,31mm
-zur Strahltaile	d_{waist}	~84,3mm
-Strahlweg gesamt	d_{path}	~91,2mm
Verdeckter Winkel	ϑ	31,4°

Tabelle 6.1: Geometrische Parameter, der für den Analysator verwendeten logarithmischen Spiral-Form.

¹⁾Der Analysator ist keine vollständige logarithmische Spirale, sondern besteht aus Einzelkristallen. Die wirkliche Abdeckung durch Kristalle beträgt nur etwa 70% dieses Raumwinkels. Zwei der 16 Kristalle waren zudem falsch justiert. Der tatsächlich erfasste Raumwinkel ist in Klammern angegeben.

²⁾Größe der Strahltaile für den aus flachen Kristallen aufgebauten Analysator (ohne sagittale Fokussierung) ist in Klammern angegeben.

LiF besitzt die NaCl-Struktur mit einer Gitterkonstanten von $a=4,0276\text{\AA}$. Erlaubt sind daher nur Bragg-Reflexe, bei denen alle Miller-Indizes gleichzeitig gerade oder ungerade Zahlen sind. Beispielsweise sind also die Reflexe (200), (400), (111) erlaubt. Alle anderen Reflexe, bei denen gerade und ungerade Indizes gemischt auftreten, sind verboten. Wir verwenden den (200)-Reflex in symmetrischer Anordnung, da er für Cu-K $_{\alpha}$ -Strahlung einen für die Konstruktion günstigen Bragg-Winkel von $\theta = 22,487^{\circ}$ besitzt.

Die nach der Darwinschen Theorie aus (3.26) berechnete Breite des Reflexes für einen Einkristall beträgt $\xi_D^{FVHM} = 5,84\text{arcsec}$. Die Breite der Reflexe vor dem Biegen der Kristalle wurde vom Institut für Kristallographie in Moskau als $\Delta\theta = 160\text{arcsec} = 0,044^{\circ}$ gemessen. Die Kristalle weisen also deutliche Mosaizitätseffekte (s. Abschnitt 3.1.3) auf.

Die nach der Darwinschen Theorie berechnete Extinktionslänge für symmetrische Bragg-Reflexion in LiF beträgt nach (3.28) $\Lambda_{ext} = 2,74\mu\text{m}$. Die Absorptionslänge in LiF beträgt $\Lambda_{abs} = 1/\mu = 231,67\mu\text{m}$. Auf Grund der starken Mosaizität des Materials wird im Folgenden Λ_{abs} als die beste Näherung an die wahre Eindringtiefe (vergl. Abschnitt 3.1.3) angenommen.

Allein durch die endliche Absorptionslänge und das Biegen der Kristalle kann eine zusätzliche Verbreiterung der Bragg-Reflexe $\Delta\theta_{bend}$ festgestellt werden. Bei Strahleinfall unter dem Winkel θ ist der Ort der Reflexion relativ zur Kristalloberfläche nur auf $\Delta l \approx \cos\theta \cdot \Lambda_{abs}$ genau bestimmt. Auf der Strecke Δl ändert sich die Oberflächenorientierung bedingt durch den Krümmungsradius r der Kristalle gerade um

$$\Delta\theta_{bend} = \frac{\Delta l}{r} \approx \frac{\cos\theta \cdot \Lambda_{abs}}{r}. \quad (6.10)$$

Für einen Biegeradius von $r = 100\text{mm}$ ergibt sich eine Verbreiterung um $\Delta\theta_{bend} \approx 432\text{arcsec} = 0,12^{\circ}$, die sogar größer als die Mosaizität der ungebogenen Kristalle ist.

Der einfallende Strahl trifft durch die größerer Biegung der Kristalle nun seltener auf einen reflektierenden Kristallit. Daher kann durch die Biegung auch die Reflektivität abnehmen.

6.3.2 Verzicht auf sagittale Fokussierung

Die ideale Form einer logarithmischen Spirale haben wir in unserem Analysator durch 16 flache Kristalle angenähert und auf die sagittale Fokussierung verzichtet. Welche Effekte entstehen dadurch?

Der Einfallswinkel α , unter dem Strahlen aus einem Punktfokus auf die Kristalle treffen, nimmt von der Kristallmitte nach außen hin ab. Beschreibt man den Abstand zur Kristallmitte durch den Winkel $\Delta\varphi$, der senkrecht zur Ebene der auf die

Spirale einfallenden Strahlen angegeben wird, dann ergibt sich der Einfallswinkel an dieser Position α' aus

$$\tan \alpha' = \tan \alpha \cdot \cos \Delta\varphi. \quad (6.11)$$

Bei einer Kristallbreite von $b=5\text{mm}$ und einer Entfernung zum Kristall von $\sim d_{\text{path}}/2 = 30\text{mm}$ ergibt sich aus $\sin(\Delta\varphi) = \frac{b/2}{d_{\text{path}}/2}$ ein $\Delta\varphi \approx 3,1^\circ$. Bei einem Einfallswinkel von $\alpha = 22,487^\circ$ folgt eine Änderung des Einfallswinkels auf $\alpha' = 22,457^\circ$, also eine Änderung des Einfallswinkels um nur $\Delta\alpha = \alpha' - \alpha = -0,030^\circ$, die vernachlässigt werden kann. Der Kristall reflektiert also auf seiner vollen Breite. Durch das Auseinanderlaufen des Strahls mit somit $2 \cdot 3,1^\circ$ ergibt sich an der Detektorposition, nach Zurücklegen des Strahlwegs von insgesamt $d_{\text{path}} = 91,2\text{mm}$ Entfernung, eine Reflexbreite von etwa $2 \cdot \sin(\Delta\varphi) \cdot d_{\text{path}} = 2b = 10\text{mm}$, also der doppelten Kristallbreite. Die Strahltaille wird somit deutlich größer als für die ideale Form der logarithmischen Spirale (Durchmesser: 10mm statt $0,2\text{mm}$). Der verwendete Detektor sollte möglichst die gesamte Strahltaille abdecken.

6.3.3 Größe des Fokus

Welche Struktur hat der Fokus des hier vorgestellten Analysators und wie groß darf der Strahlfleck auf der Probe sein? Es ist einerseits wichtig, dass der Fokus den gesamten Strahlfleck abdeckt und andererseits wichtig zu wissen, wie genau die Positionierung des Analysators zum Strahlfleck durchgeführt werden muss.

Wie im vorigen Abschnitt gezeigt, hat eine Verschiebung der Analysatorkristalle parallel zur Kristalloberfläche und senkrecht zur Symmetrieachse des Analysators nur wenig Einfluss auf den Einfallswinkel α . Die Dimension des Fokus für einen einzelnen Kristall wird daher im Wesentlichen nur durch die Ausdehnung des Fokus senkrecht zur Kristalloberfläche eingeschränkt. Der Einfallswinkel auf die Kristalle darf sich nicht um mehr als die Breite der Bragg-Reflexe $\Delta\theta$ verändern, damit Strahlen vom Kristall noch akzeptiert werden. Dann ergibt sich die Fokusaussdehnung senkrecht zum Kristall F_\perp aus dem Abstand d vom Fokus zum Kristall zu:

$$F_\perp = \Delta\theta \cdot d \quad (6.12)$$

Durch die ringförmige Anordnung von 16 gebogenen Kristallen bekommt der Fokus die Form eines Sterns aus 16 sich kreuzenden Streifen. Man wird den Strahlfleck auf der Probe auf das Zentrum dieses Sterns justieren. Der Durchmesser dieses Zentrums (der Fokusedurchmesser) nimmt linear mit dem Abstand zum Fokus d zu.

Für $\Delta\theta = 0,5^\circ$ und $d = d_{\text{path}}/2 = 45,6\text{mm}$ ergibt sich der Fokusedurchmesser zu $F_\perp = 0,40\text{mm}$.

h	k	l	E_{ph} [keV]	ϑ [1°]
2	0	0	8,049	0,00
4	0	0	16,098	0,00
6	0	0	24,147	0,00
8	0	0	32,196	0,00
4	0	± 2	20,122	19,70
6	0	± 2	26,830	13,89
7	1	1	21,798	17,24
8	0	± 2	34,208	10,65
9	1	± 1	29,261	13,50
9	1	± 3	32,081	18,36
11	1	± 1	36,898	11,08
11	1	± 3	39,297	15,28
12	2	0	35,387	18,92

Tabelle 6.2: Erlaubte Reflexe in einem 20° Kegel um den Reflex von CuK_α -Strahlung. Berücksichtigt wurden alle erlaubten Reflexe mit Energien bis zu 40keV.

Die Positionierung der Analysatorkristallträger muss entsprechend mit einer Genauigkeit von besser als F_\perp erfolgen. Die Verkipfung der Kristallträger gegen die Symmetrieachse des Analysators sollte zudem deutlich kleiner als $\Delta\theta$ sein.

6.3.4 Parasitäre Reflexe

Strahlung aus dem Fokus des Analysators kann auch an anderen Ebenen als der (200)-Ebene reflektiert werden. Dadurch ist es möglich, dass die Bragg-Bedingung auch für andere Wellenlängen als die der Cu-K_α -Fluoreszenz erfüllt wird. Es soll hier nun untersucht werden, ob solche Reflexe in die Strahltille bzw. in den hinter dem Analysator befindlichen Detektor treffen können, da in den Messungen sonst unter Umständen zusätzlich eine Lochblende zur Verkleinerung der Strahltille verwendet werden muss.

Die Strahltille ist etwa $d_{path}/2$ von den Kristallen entfernt. Ein reflektierter Strahl, der um $\vartheta = 20^\circ$ gegenüber dem (200) reflektierten Strahl verkippt ist, wird bereits um $d_{path}/2 \cdot \sin \vartheta = 15,6\text{mm}$ aus dem Zentrum der Strahltille herausreflektiert und trifft die Strahltille mit dem Durchmesser von nur etwa 10mm nicht. Es kommen daher nur Bragg-Reflexe in Frage, die weniger als $\vartheta/2$ gegen den (200)-Reflex verkippt sind.

Man beachte, dass die Einfallsrichtung der Strahlen auf die Kristalle durch die Geometrie des Aufbaus fest vorgegeben ist, aber beliebige Photonenenergien E_{ph} auftreten können. In Tabelle 6.2 sind alle erlaubten Reflexe mit $\vartheta \leq 20^\circ$ aufgelistet, für die die Photonenenergie $E_{ph} = 40\text{keV}$ nicht übersteigt. Die Einfallsrich-

tung des Strahls liegt in der (001)-Ebene, was der Orientierung der Kristalle im Analysator entspricht.

Für den gewünschten (200)-Reflex, aber auch für die höheren Ordnungen (400), (600),..., ist $\vartheta = 0^\circ$, d.h. die Strahlen fallen genau in die Strahltaile. Durch den (400)-Reflex wird auch Strahlung mit $E_{ph} = 16,098\text{keV}$ akzeptiert und es ist zu überlegen, inwieweit dies Einfluss auf die Messungen hat.

Alle anderen möglichen Reflexe sind nur für sehr hohe E_{ph} erlaubt. Durch die Verwendung eines Röntgenspiegels (s. Abschnitt 3.2) sind hochenergetische Komponenten in unserem Messaufbau allerdings bereits stark unterdrückt.

Kapitel 7

Charakterisierung des Fluoreszenzanalysators

7.1 Messaufbau

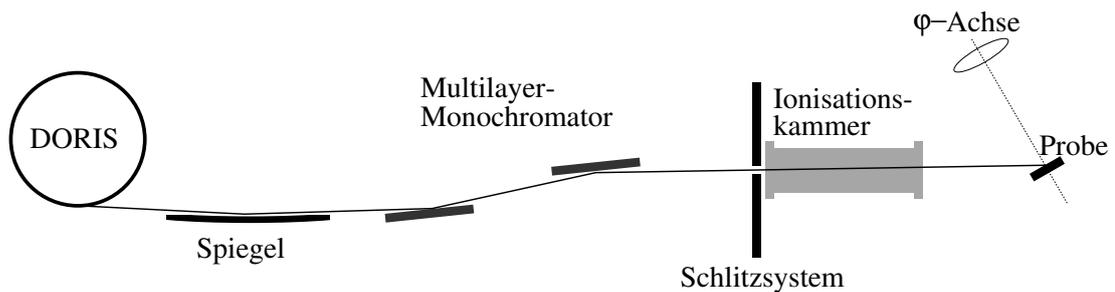


Abbildung 7.1: Der Messplatz CEMO schematisch.

Alle in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurden zwischen September und November 2001 am Strahl CEMO bei HASYLAB durchgeführt. Der Aufbau des Messplatzes CEMO ist in Abb. 7.1 schematisch dargestellt. Die Abb. 7.2 zeigt Aufnahmen des Messplatzes.

Der Speichering DORIS wurde bei einer Positronenergie von 4,5 GeV im 5-Bunch-Modus betrieben. Die von einem Ablenkmagneten emittierte Strahlung mit der kritischen Energie $E_c = 16,6 \text{ keV}$ wurde durch einen mit Rhodium beschichteten toroidalen Spiegel bei einem Einfallswinkel von 4 mrad im Verhältnis 1,4:1,0 fokussiert. Als Monochromator für die einfallende Strahlung diente ein +/- Aufbau aus Mo/C-Multilayern mit einer Periodendicke von $d = d_C + d_{Mo} = 3,70 \text{ nm}$. Dieser in einem mit Helium gefluteten Tank untergebrachte Monochromator wurde im Rahmen dieser Arbeit zum ersten Mal eingesetzt und wird im Anhang C beschrieben. Der Multilayer-Monochromator wurde auf die Energie $E_{ph} = 10,655 \text{ keV}$ eingestellt und zunächst das in Abb. C.2 dargestellte Spektrum aufgenommen.

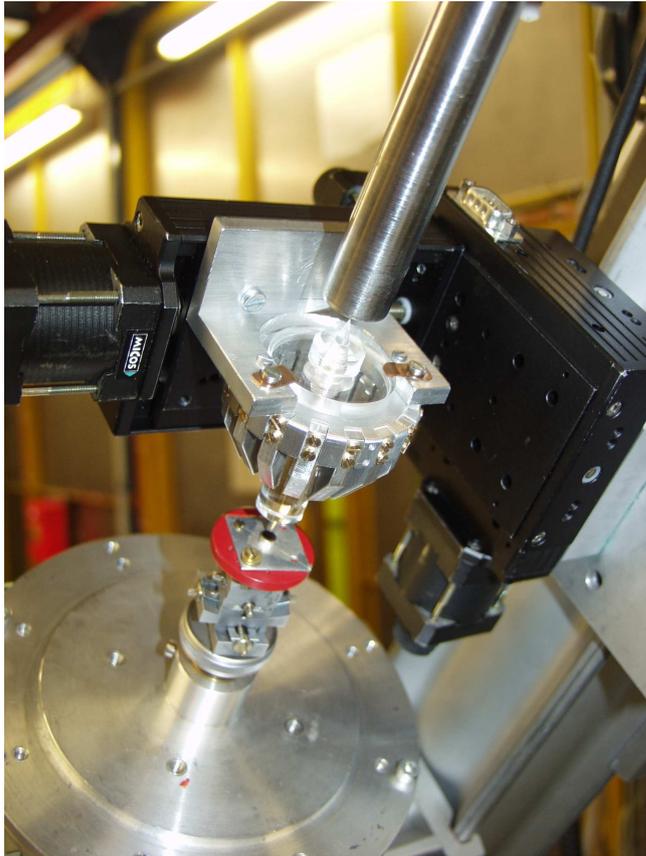
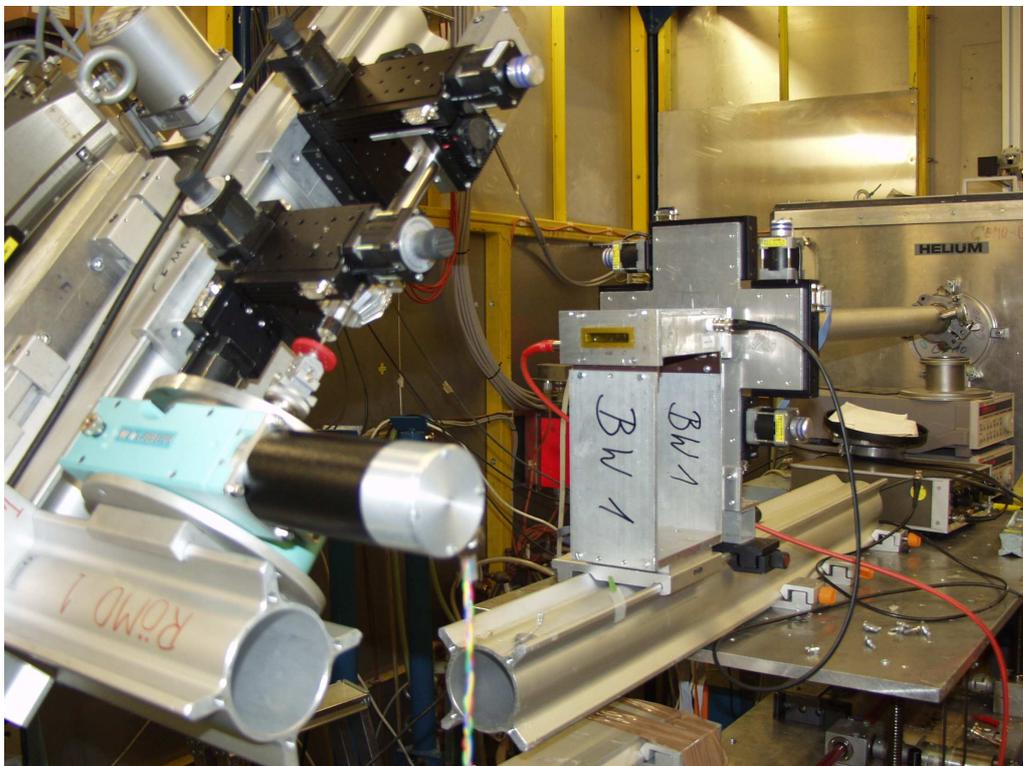


Abbildung 7.2: Messaufbau am Strahl CEMO bei HASYLAB, Oktober 2001.

Oben: Probe auf Goniometer und Drehkreis, Analysator mit Justiervorrichtung aus Plexiglas, SD-Detektor.

Unten: Monochromatortank, Schlitzsystem, Ionisationskammer und das Diffraktometer mit Verschiebetischen.



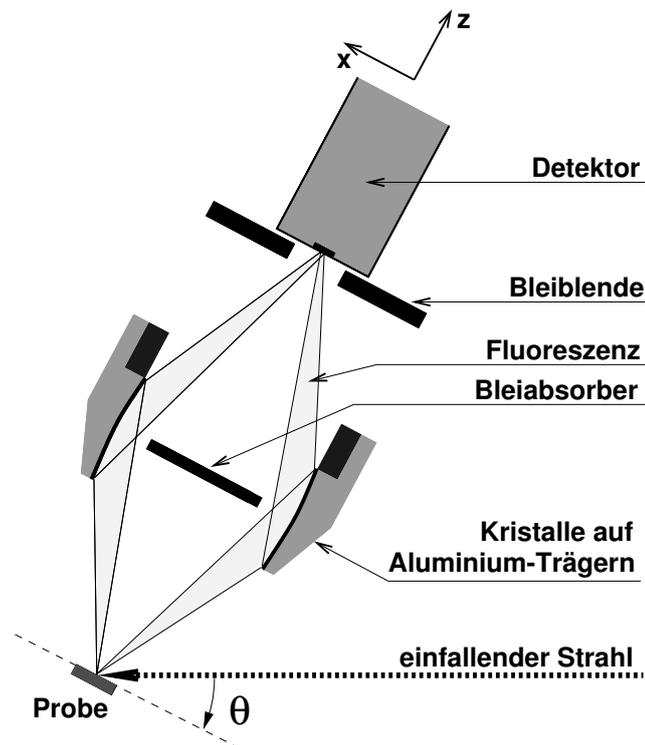


Abbildung 7.3: Messaufbau für die Charakterisierung der Spirale und die Hologramm-messungen.

Während der Messungen wurde E_{ph} nicht verändert, also nur mit dem vermes-senen Energiespektrum gearbeitet. Auf eine rückgekoppelte Stabilisierung des Monochromators (MOSTAB) wurde verzichtet.

Mit einem herkömmlichen Si-Monochromator (spektrale Bandbreite von $\Delta E/E \approx 10^{-4}$) liefert der gespiegelte Strahl am Messplatz CEMO Photonenströme von einigen 10^9 Photonen/s/mm². Mit dem Multilayermonochromator konnten auf Grund der höheren Bandbreite von $\Delta E/E \approx 2\%$ etwa $4 \cdot 10^{11}$ Photonen/s/mm² erreicht werden.

Das letzte Schlitzsystem hinter dem Monochromator bestimmte die Strahlfleck-größe. Ein weiteres in Abb. 7.1 nicht dargestelltes Schlitzsystem im Monochro-matortank unterdrückte elastische Streuung. Eine Ionisationskammer hinter dem letzten Schlitzsystem diente als Strahlungsmonitor. Der He-geflutete Bereich des Monochromatortanks wurde mit einem Flugrohr bis direkt vor das letzte Schlitz-system, in einer Entfernung von rund 60 cm von der Probe, verlängert.

Es wurden während der Messungen verschiedene der in Kapitel 4 beschriebenen Detektoren verwendet. In Abb. 7.2 ist ein SD-Detektor zu erkennen, der für die energieauflösenden Messungen benutzt wurde. Die Größe der aktiven Fläche dieses Detektors betrug nur $A_{det} \approx 5 \text{ mm}^2$. Um die optimale Position des Analy-

sators relativ zur Probe zu finden, wurde ein NaJ-Szintillationszähler mit einer Bleibende von 10 mm Durchmesser verwendet, der die gesamte Strahltaile erfassen konnte.

Für die Holographiemessungen mit der Spirale wurde ein schneller APD-Detektor mit einer aktiven Fläche von $A_{det} \approx 10 \times 10 \text{ mm}^2$ eingesetzt.

Der Aufbau des Detektorsystems über der Probe ist schematisch in Abb. 7.3 gezeigt. Probe, Analysator und Detektor wurden an einem Zwei-Achsen-Diffraktometer montiert, um die Drehung des gesamten Aufbaus um die zum einfallenden Strahl senkrechte Achse in der Strahlebene (θ -Achse) zu ermöglichen. Die Probe wurde mit einem Goniometerkopf auf einem zusätzlichen Drehkreis befestigt, um so die Drehung der Probe um die zur Probenoberfläche senkrechte Achse (φ -Achse) zu ermöglichen. Der Winkel θ ist gerade der Einfallswinkel. Mit dem zusätzlichen Freiheitsgrad in φ konnte die Einfallsrichtung des Strahls in den Holographiemessungen frei gewählt werden.

Sowohl der Fluoreszenzanalysator als auch der Detektor wurden auf Verschiebetischen an das Diffraktometer montiert und konnten zur optimalen Justierung bzw. zur Charakterisierung in allen drei Raumrichtungen bewegt werden.

Als Probe in den holographischen Messungen und zum Test des neu implementierten Detektoraufbaus wurde ein Cu_3Au -Einkristall (s. Abschnitt 9.2) verwendet.

7.2 Reflektivität der LiF-Kristalle

Die Reflexion von Cu-K_α -Strahlung wurde an zwei der insgesamt sechzehn Kristalle orts aufgelöst untersucht. Dazu wurden an mehreren Stellen der Kristalloberfläche Reflexionskurven als Funktion des Einfallswinkels aufgenommen. Aus den Kurven kann die maximale Reflektivität und die Reflexbreite sowie die absolute Position des Reflexes bestimmt werden.

Die Kristalle (Nr.2 und Nr.3) wurden auf dem Diffraktometer montiert und entlang ihrer Biegerichtung abgetastet. Mit Hilfe einer zur Kristalloberfläche etwa parallelen Translation und einer weiteren dazu senkrechten Translation wurde die gekrümmte Oberfläche abgefahren. Zur exakten Positionierung der Kristalle diente ein mit Fadenkreuz ausgestattetes Videomikroskop, das auf das Drehzentrum des Goniometers justiert war.

Für diese Messungen wurde nicht der Multilayer-Monochromator, sondern ein standardmäßiger Monochromatoraufbau aus $\text{Si}(111)$ -Kristallen bei der Photonenenergie $E_{ph}=8,048 \text{ keV}$ verwendet. Als Detektor diente eine Ionisationskammer am 2θ -Arm des Diffraktometers. Die Strahlgröße betrug bei der Messung an beiden Kristallen $1,0 \times 0,1 \text{ mm}^2$ (Breite \times Höhe). Dabei ist der Strahlfleck auf der Probe durch den flachen Einfallswinkel $\theta \approx 22,5^\circ$ um den Faktor $1/\sin \theta \approx 2,6$ größer, also $0,26 \text{ mm}$ hoch. Dementsprechend war, um die Kristalloberflächen vollständig abzutasten, eine Schrittweite auf der Kristalloberfläche von

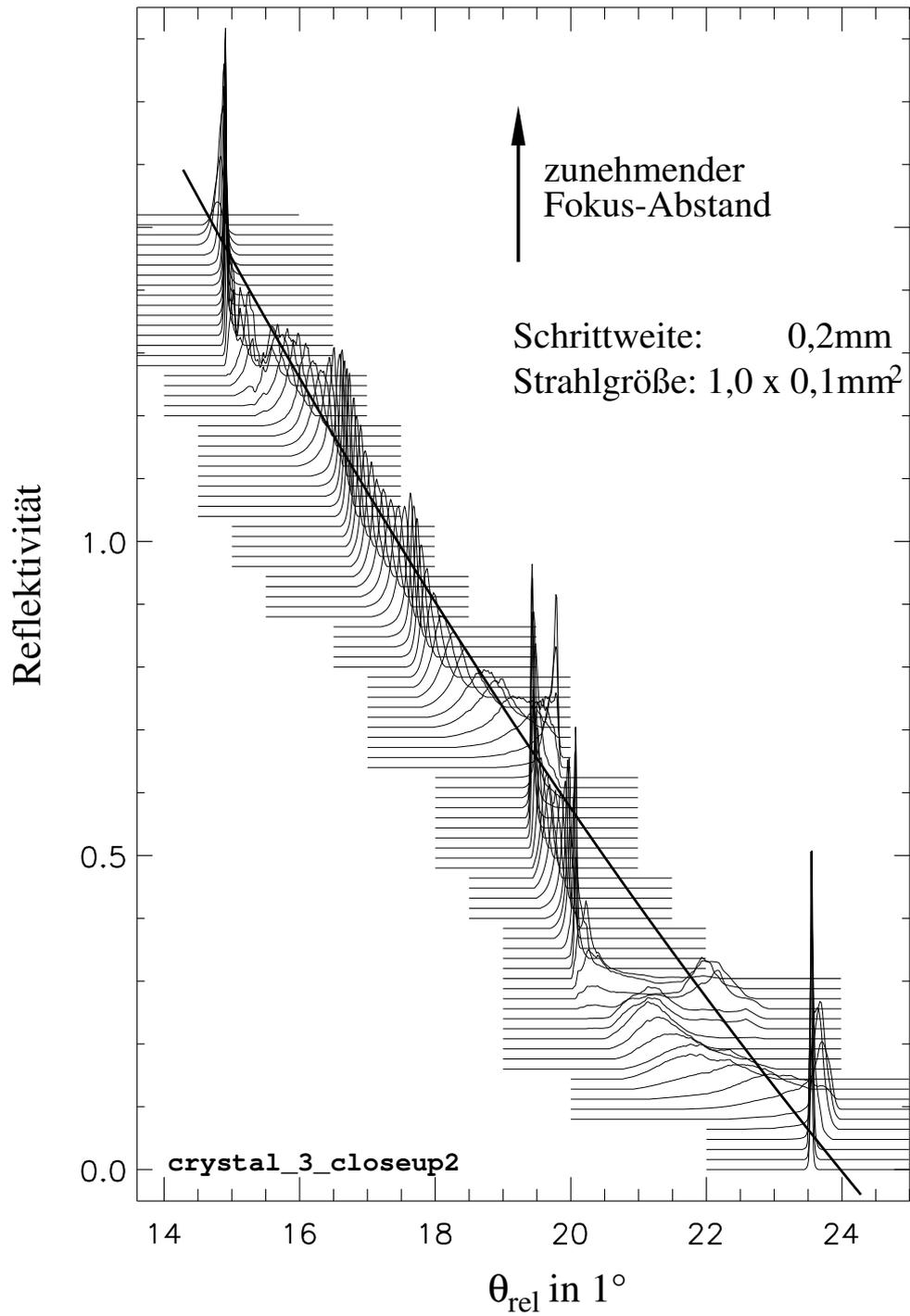


Abbildung 7.4: Bragg-(200)-Reflexionen des Analysatorkristalls Nr.3. Die Oberfläche wurde im Abstand von 0,2mm abgetastet. Die durchgezogene Linie stellt die Position der Maxima für die ideale Kristallform dar.

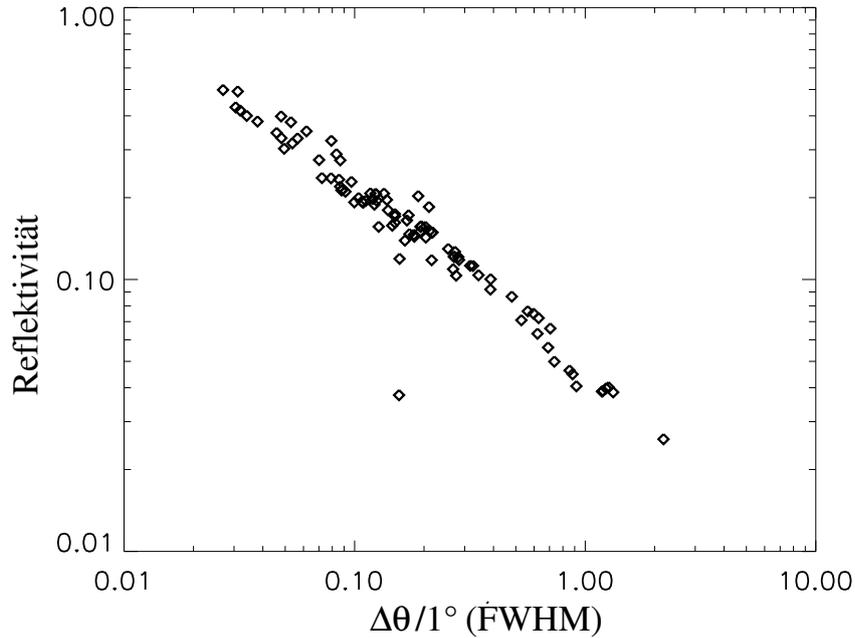


Abbildung 7.5: Breite der Bragg-Reflexe (FWHM) aufgetragen gegen die Reflektivität (Maximum der Intensität)

rund 0,2mm erforderlich. Die Messung mit vollständiger Oberflächenabdeckung nahm mehrere Stunden in Anspruch und wurde nur für Kristall Nr.3 mit 0,2mm Auflösung durchgeführt. Für die Messungen an Kristall 2 wurde die Schrittweite zu 1,0mm gewählt.

Die Reflektivität R wurde aus dem Verhältnis der Intensität im Maximum der Kurve I_{max} zur Intensität des direkten Strahls I_0 berechnet. Die an 100 verschiedenen Positionen gemessenen Reflexionskurven sind für Kristall 3 in der Abb. 7.4 dargestellt. Die Messungen an Kristall 2 ergaben ähnliche Resultate. Wegen der höheren Ortsauflösung der Messungen sollen hier nur die Ergebnisse der Messungen an Kristall 3 gezeigt werden.

Die theoretische Lage der Maxima, d.h. die Position, an der sie erscheinen sollten, ist in Abb. 7.4 als durchgezogene Kurve eingezeichnet. Man erkennt deutlich die Abweichung der Maxima von der gewünschten Position. Auch die Breite der Maxima $\Delta\theta$ variiert auf der Kristalloberfläche von $\Delta\theta = 0,02^\circ$ bis hin zu $\Delta\theta = 1,0^\circ$ erheblich. In den Bereichen hoher Reflektivität ändert sich die relative Position des Reflexes θ_{rel} kaum, was bedeutet, dass diese Bereiche keine Krümmung aufweisen. Ein Bereich durchgehender, gleichmäßiger Krümmung, wie sie eigentlich auf der ganzen Kristallfläche erreicht werden sollte, ist bei $\theta_{rel} = 15,5^\circ - 18,0^\circ$ zu erkennen.

In Abb. 7.5 ist $\Delta\theta$ gegen R für jeden einzelnen Messpunkt aufgetragen. Auf den

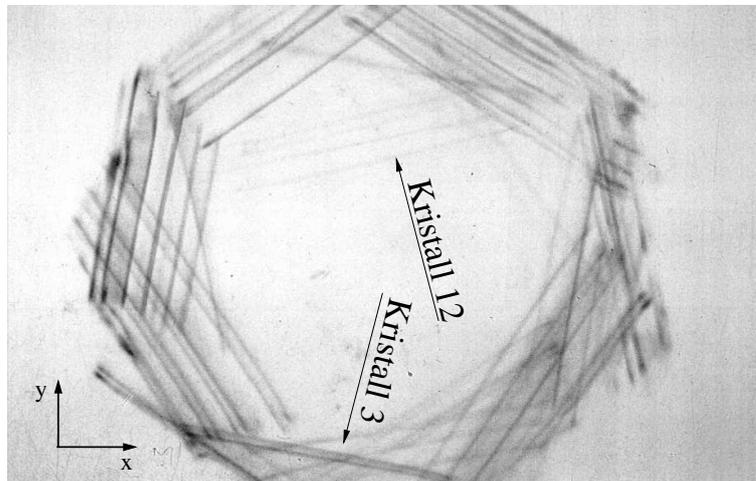
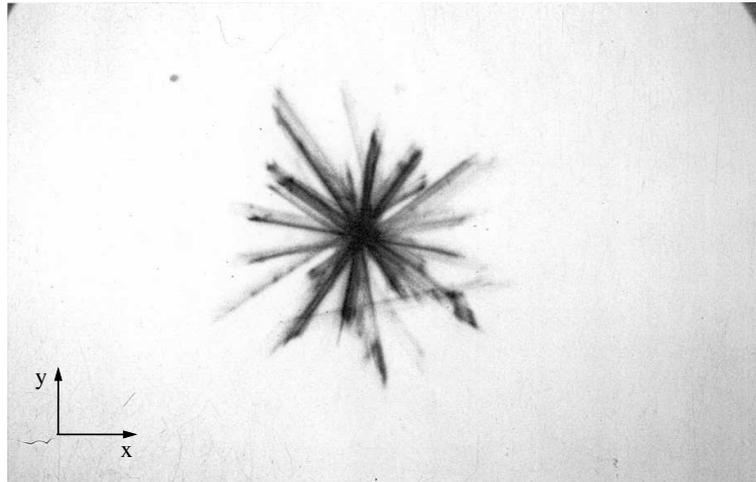


Abbildung 7.6: Aufnahmen auf Zahnarztfilm. *Oben:* an der Detektorposition. *Unten:* $\sim 3\text{cm}$ hinter der Detektorposition.

Verlauf der Reflektivitätsabnahme mit zunehmendem $\Delta\theta$ soll hier nicht weiter eingegangen werden. Die Beschreibung nicht-perfekter Kristalle ist, wie schon in Abschnitt 3.1.3 erwähnt, sehr kompliziert und würde den Rahmen dieser Arbeit sprengen.

Aus der Kurve können die mit dem verwendeten Material und der Strahlfleckbreite $0,26\text{ mm}$ erreichbaren Wertepaare von $\Delta\theta$ und R abgelesen werden. Die für den Analysator gewünschte Reflexbreite liegt bei $\Delta\theta \geq 0,5^\circ$ und bedingt eine Reflektivität von $R \leq 9\%$.

7.3 Struktur der transmittierten Strahlung

Die räumliche Verteilung der Intensität hinter dem Analysator wurde auf photographischem Film aufgenommen (s. Abb. 7.6). Dazu wurden Zahnarztfilme hinter dem Analysator im Bereich der Strahltaile platziert und die Struktur der reflektierten Strahlen für verschiedene Brennfleckgrößen abgebildet. Anschließend wurde die Ebene etwa drei Zentimeter hinter der Strahltaile dargestellt. Hier sind die divergierenden Strahlen der Kristalle bereits deutlich separiert und es ist möglich die Reflexe eindeutig einzelnen Kristallen zuzuordnen.

Für einen perfekt logarithmisch gebogenen Kristall würde man einen gleichmäßig verbreiterten Reflex erwarten. Stattdessen sieht man eine Streifenstruktur in der Reflexion jedes Kristalls. Diese Struktur stammt vermutlich von flachen, nicht gekrümmten Bereichen hoher Reflektivität.

Für den mit hoher Ortsauflösung vermessenen Kristall Nr.3 (s. vorheriger Abschnitt) lässt sich die Struktur der Reflexion auf dem Zahnarztfilm aus den ortsabhängig gemessenen Reflexionskurven erklären. Die Aufnahme zeigt Bereiche hoher Reflektivität, die offenbar mit den geraden Bereichen geringer Krümmung übereinstimmen. Hier ist die Reflexbreite gering, so dass der Strahlfleck von den flachen Kristallflächen abgebildet wird.

Die meisten anderen Kristalle zeigten mehr Streifen als der Kristall Nr.3. Das lässt vermuten, dass diese Kristalle eine stärker facettierte Oberfläche mit deutlich mehr flachen Bereichen aufweisen als dieser. Die Reflexion des Kristalls Nr.12 erscheint an einer vollständig falschen Position. Als Ursache hierfür ließ sich die Fehlstellung einer der Kristallhalterung identifizieren.

Die Zahnarztfilm-Aufnahmen bieten eine gute Möglichkeit, die Struktur der Einzelkristalle schnell zu bestimmen. Die gleichzeitige Charakterisierung aller Kristalle ist so innerhalb von Minuten möglich, während die ortsabhängige Aufnahme von Reflexionskurven mehrere Stunden benötigt. Die gesamte Kristallbreite wird untersucht, während der Kristall in den Reflexionskurven nur integral auf einer definierten Breite untersucht wird. Zudem kann eine mögliche falsche Positionierung der Kristalle einfach festgestellt werden.

7.4 Energiespektrum der transmittierten Strahlung

Die Zahnarztfilmaufnahmen geben keine Auskunft über den spektralen Gehalt der reflektierten Strahlung. Diese wurde daher mit einem energieauflösenden Detektor untersucht. Dazu wurde die Ebene um den Tailenbereich mit einem SD-Detektor in Schritten von $\Delta x = \Delta y = 1 \text{ mm}$ abgefahren und an 11×11 Punkten ein Energiespektrum aufgenommen. Aus den Spektren wurden die Intensitäten

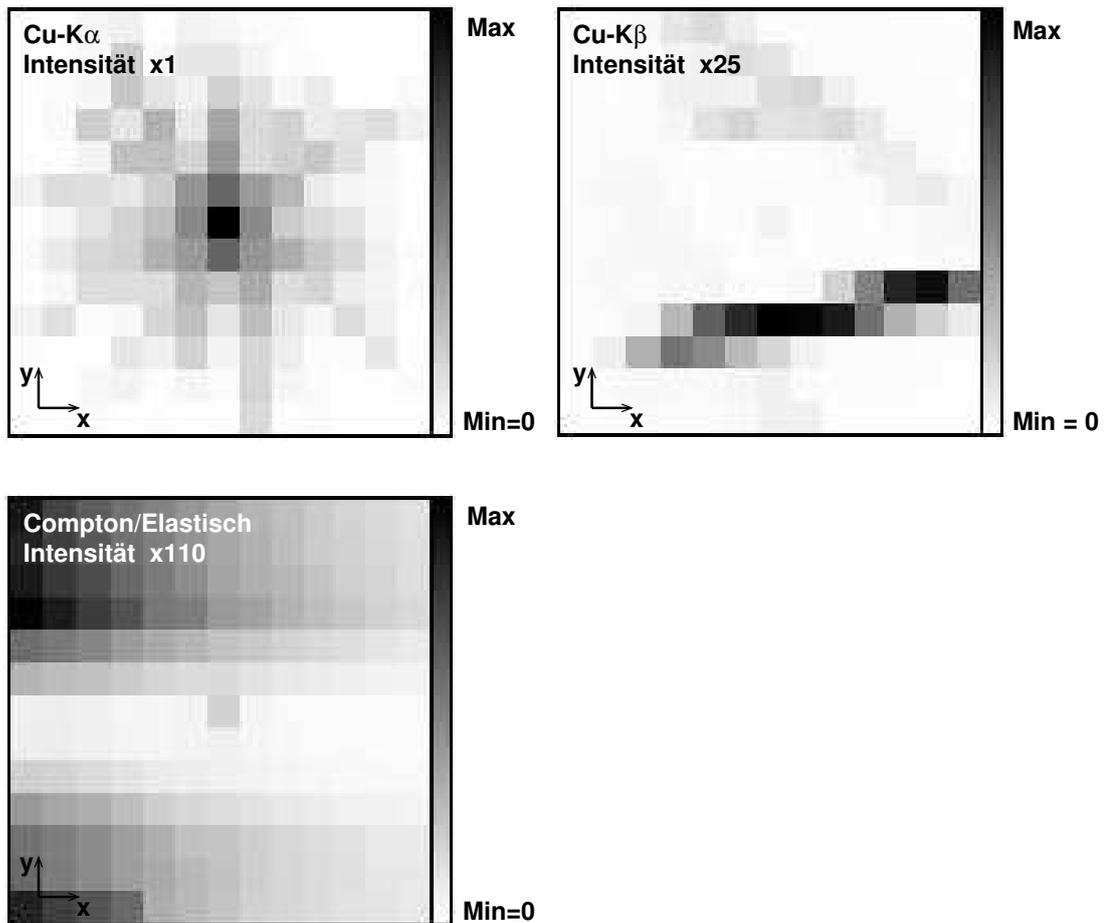


Abbildung 7.7: Räumliche Verteilung von Cu-K α - (*oben, links*), Cu-K β -Fluoreszenzstrahlung (*oben, rechts*) und der gestreuten Strahlung (*unten*) in der Strahltaile hinter dem Analysator. Ein Pixel entspricht $1 \times 1 \text{ mm}^2$. Die maximale Intensität in der Darstellung der Cu-K β -Strahlung ist $25 \times$ kleiner und die maximale Intensität in der Darstellung der gestreuten Strahlung $110 \times$ kleiner als die maximale Intensität in der Darstellung der Cu-K α -Strahlung.

der wesentlichen Strahlungsanteile Cu-K α -, Cu-K β -Fluoreszenz und der gestreuten Strahlung bestimmt. In Abb. 7.7 ist ihre räumliche Verteilung dargestellt. Die Strahlgröße betrug $1,0 \times 1,0 \text{ mm}^2$. Zusätzlich zu dem im Abschnitt 7.1 beschriebenen Aufbau befand sich ein Absorber aus $0,25 \text{ mm}$ dickem Aluminium vor der Probe im Strahlengang. Die Messdauer betrug 30 s je Messpunkt. Die Intensitäten der einzelnen Strahlungsanteile wurden aus den Spektren durch Anpassung von Gausskurven für jedes Spektrum bestimmt.

Die Cu-K α -Fluoreszenz zeigt hinter dem Analysator ein klares Maximum im Zentrum der Taille und mit zunehmendem Abstand abnehmende Intensität. Die

Breite der Verteilung entspricht etwa der Breite der im vorherigen Abschnitt gezeigten, auf photographischem Film aufgenommenen Reflexe. Die Verteilung der Cu-K $_{\beta}$ -Fluoreszenz zeigt ein sehr schwaches Maximum im Zentrum. Man erkennt allerdings deutlich die Reflexe zweier offenbar falsch justierter LiF-Kristalle. Der deutlichste Reflex stammt vom Kristall Nr.12, dessen Fehlstellung bereits auf den photographischen Aufnahmen erkennbar war. Der zweite Reflex stammt vermutlich vom Kristall Nr.1. Man beachte, dass diese Kristalle nicht wie gewünscht die Cu-K $_{\alpha}$ -, sondern die Cu-K $_{\beta}$ -Fluoreszenz reflektieren.

Die gestreute Strahlung ist sehr schwach und zeigt eine deutliche Zunahme bei Bewegung in Richtung der Strahlquelle (entgegen x-Richtung in Abb. 7.7). Dies ist vermutlich ein durch Luftstreuung vor der Probe verursachter Effekt, der mit zunehmender Verdeckung des Detektors durch den Analysator abnimmt.

7.5 Effizienz ϵ

Die Effizienz unseres Detektorsystems sei definiert als das Verhältnis von detektierter Strahlintensität zu der Strahlintensität, die von der Probe auf den durch das Detektorsystem abgedeckten Raumwinkel trifft:

$$\epsilon = \frac{\text{Anzahl detektierter Photonen}}{\text{Anzahl auf den Analysator einfallender Photonen}}$$

Dabei ist zu beachten, dass die so bestimmte Effizienz im Allgemeinen von der Strahlfleck- und der Detektorgröße abhängt. Zunächst wird die Effizienz $\epsilon_{Cu-K\alpha}$ mit dem im Kapitel 4 vorgestellten SD-Detektor mit nur $A_{det} = 5\text{mm}^2$ aktiver Fläche bestimmt. Die im Zentrum der Strahltaile (Zentren in den Darstellungen in Abb. 7.7) mit dem Detektor gemessenen Spektren werden dazu mit dem direkten, ohne Analysator aufgenommenen Spektrum verglichen.

Das direkte Spektrum der Cu $_3$ Au-Probe ist in Abb. 7.9 gezeigt und auf sein Maximum normiert. Alle weiteren Spektren wurden ebenfalls auf das Maximum des direkten Spektrums normiert. Alle Spektren wurden zudem auf das Ionisationskammersignal normiert. Die Messdauer für die Spektren betrug jeweils $t_{meas} = 200\text{s}$, die Strahlgröße betrug $0,1 \times 0,1\text{mm}^2$ bei einem Einfallswinkel von $\theta = 30^\circ$. Daraus folgt eine Strahlfleckgröße auf der Probe von $0,1 \times 0,2\text{mm}^2$. Zur Messung des direkten Spektrums wurde der auf Verschiebetischen montierte Analysator aus dem Strahl gefahren.

Der durch den SD-Detektor erfasste Raumwinkel Ω_{SDD} lässt sich aus der aktiven Fläche des Detektors $A_{SDD} = 5\text{mm}^2$ und dem Abstand des Detektors zur Quelle $d_{det} = 84.3\text{mm}$ einfach berechnen als $\Omega_{SDD} = A_{det}/4\pi d_{SDD}^2 = 4,455 \cdot 10^{-6} \cdot 4\pi$. Die Effizienz dieses Detektors nehmen wir als $\epsilon = 1$ an. Die Absorption der Cu-K $_{\alpha}$ -Strahlung an Luft beträgt über den Strahlweg d_{det} weniger als 15% und wird vernachlässigt.

Es sei angenommen, dass sich der direkt auf den SDD einfallende Photonenfluss pro Raumwinkel I_{direkt}/Ω_{SDD} nur unwesentlich von dem auf die LiF-Kristalle des Analysators einfallenden Photonenfluss pro Raumwinkel $I_{spiral}/\Omega_{spiral}$ unterscheidet. Die durch den unterschiedlichen Ausfallswinkel von 90° bzw. $\sim 65^\circ$ bedingte Änderung des Photonenflusses wird also vernachlässigt.

Die Effizienz des Analysators ϵ lässt sich dann einfach berechnen aus:

$$\epsilon = \frac{I_{spiral}/\Omega_{spiral}}{I_{direkt}/\Omega_{SDD}} = \frac{I_{spiral}}{I_{direkt}} \frac{\Omega_{SDD}}{\Omega_{spiral}} \quad (7.1)$$

Für unsere Messung ergibt sich $\frac{I_{spiral}}{I_{direkt}} = 0,874$, also eine fast identische gemessene Intensität bei Messung mit und ohne den Analysator. Das Verhältnis der erfassten Raumwinkel ist $\frac{\Omega_{SDD}}{\Omega_{spiral}} = \frac{4,46 \cdot 10^{-6}}{0,02} = 2,23 \cdot 10^{-4}$. Somit erhält man für das aus SDD und Analysator bestehende Detektorsystem die Effizienz für die Cu- K_α -Strahlung zu $\epsilon_{Cu-K_\alpha}^{SDD} = 1,95 \cdot 10^{-4}$.

Es muss berücksichtigt werden, dass die aktive Fläche des SD-Detektors nur einen Teil der gesamten Strahltaile erfasst. Wie im Abschnitt 9.4.2 gezeigt wird, konnte in der Messung mit dem größeren APD-Detektor die Strahltaile fast vollständig abgedeckt werden. Aus der dort gemessenen mittleren Zählrate von 244.000 s^{-1} , lässt sich die Effizienz des Analysators mit dem APD-Detektor $\epsilon_{Cu-K_\alpha}^{APD}$ bestimmen.

Ausschlaggebend für die absolute Effizienz des Analysators ist der Wert für $\epsilon_{Cu-K_\alpha}^{APD}$, da hier annähernd die gesamte in die Strahltaile reflektierte Strahlung detektiert wird. Es ergibt sich die

Effizienz des Analysators bei einer Strahlgröße von $0,2 \times 0,1 \text{ mm}^2$ zu:

$$\epsilon_{spiral} \approx 1,83 \cdot 10^{-3} \quad (7.2)$$

Zu dieser Effizienz tragen drei Effekte bei, die sich wegen der starken Inhomogenität der Kristalloberfläche aber nicht im Einzelnen aufschlüsseln lassen: 1.) Die Reflektivität R der LiF-Kristalle geht in die Effizienz ein. 2.) Die Strahlung aus dem $0,1 \times 0,1 \cdot \sin(28^\circ) \text{ mm}^2$ großen Fokus, wird besonders für scharfe Bragg-Reflexe nur teilweise von den Kristallen akzeptiert. 3.) Die ungenaue Biegung und Positionierung der Kristalle bzw. die niedrigere Reflektivität der LiF-Kristalle in ihrer tatsächlichen Position verringert die Effizienz erheblich.

Die mit dem Fluoreszenzanalysator **erreichbaren Zählraten** können nun einfach abgeschätzt werden.

Für eine unendlich ausgedehnte, homogene Probe kann die auf den Analysator einfallende Strahlintensität I nach (8.10) abgeschätzt werden. Die Zählrate hinter dem Analysator ergibt sich zu:

$$I_{det} = \epsilon_{spiral} I \approx I_0 \epsilon_{spiral} \frac{\Omega_{spiral}}{4\pi} \omega_A \frac{\mu_A^i}{\mu^i} \quad (7.3)$$

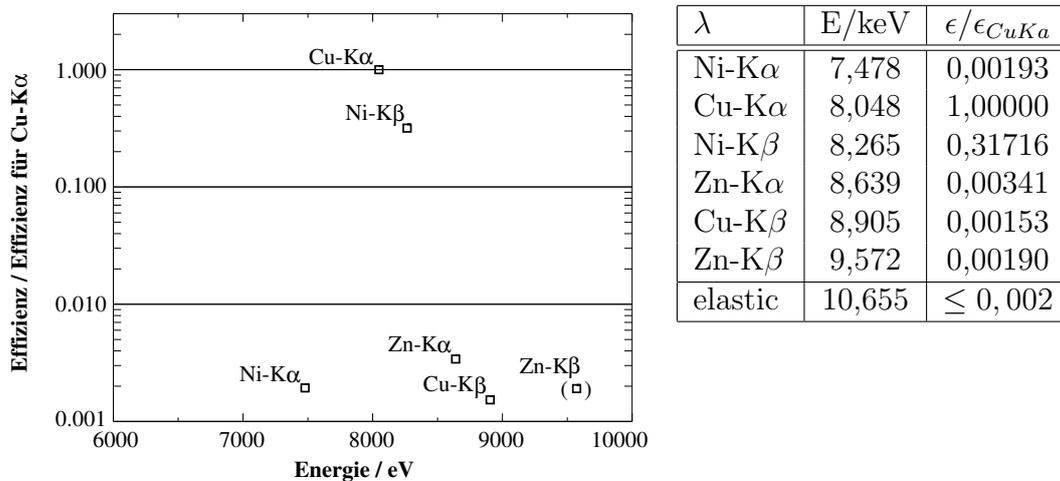


Abbildung 7.8: Unterdrückung anderer Wellenlängen

Hier sind I_0 die Intensität der einfallenden Strahlung, A das fluoreszierende Element, μ^i der Absorptionskoeffizient für die einfallende Strahlung, μ_A^i der nur durch das Element A bedingte Absorptionskoeffizient, μ^A der Absorptionskoeffizient für die Fluoreszenzstrahlung des Elementes A und ω_A die Fluoreszenzausbeute.

Für eine kleine Probe, bei der Absorptionseffekte zunächst vernachlässigt werden können, ergibt sich die gemessene Intensität einfach aus der Anzahl N_A der in der Probe vorhandenen Elemente A.

$$I_{det} \approx \Phi_0 \epsilon_{spiral} \frac{\Omega_{spiral}}{4\pi} \omega_A \sigma_A N_A \quad (7.4)$$

Dabei ist Φ_0 der Photonenfluss der einfallenden Strahlung und σ_A der Photoabsorptionsquerschnitt aus (2.7) des fluoreszierenden Elementes A.

7.6 Unterdrückung des Strahlungsuntergrundes

Zusätzlich zur Effizienz für Cu-K α -Strahlung wurde die Effizienz bzw. die Unterdrückung des Analysators für einige energetisch benachbarte Fluoreszenzlinien bestimmt. Eine Übersicht der bestimmten Werte bietet die Abb. 7.8.

Die Berechnung der Effizienzen wurde mit Hilfe der aus den Spektren in Abb.7.9 und 7.10 gewonnenen Intensitäten durchgeführt. Zunächst konnte aus der direkten Messung und der Messung mit Analysator die Unterdrückung der Cu-K β -Strahlung berechnet werden. Die Effizienz des Analysators für Cu-K β -Strahlung $\epsilon_{Cu-K\beta}$ lässt sich ebenso wie die für Cu-K α -Strahlung berechnen. Man erhält relativ zur Cu-K α -Strahlung eine Unterdrückung $\epsilon_{Cu-K\beta}/\epsilon_{Cu-K\alpha} = 0,0153$.

Es wurde auch die Unterdrückung der Fluoreszenz der Elemente Nickel und Zink untersucht. Dazu wurden Folien dieser Stoffe auf die Cu_3Au -Probe gelegt und wiederum Spektren aufgenommen (s. Abb. 7.10). Die Elemente Nickel und Zink unterscheiden sich in ihrer Kernladungszahl nur um eins von Kupfer, und die Absorption sowie die Fluoreszenz der K_α - und K_β -Linie sind etwa gleich stark wie für Kupfer bzw. Cu_3Au . Die Effizienz des Analysators für diese Wellenlängen lässt sich daher wie zuvor berechnen. Die Intensitäten werden dabei mit den in der direkten Messung bestimmten Intensitäten für Cu-K_α - bzw. Cu-K_β -Fluoreszenz verglichen. Die ermittelten Effizienzen sind ebenfalls in Abb. 7.8 normiert auf die Effizienz für Cu-K_α -Strahlung dargestellt.

Die Unterdrückung des elastisch und Compton-gestreuten Signals durch den Analysator kann aus dem Verhältnis der Intensitäten im Maximum der gestreuten Strahlung bei $E = 10,655 \text{ keV}$ gewonnen werden. Vergleicht man dazu die Intensität der Messung an der Ni-Folie mit der Intensität aus der Messung ohne Analysator, so ergibt sich die Effizienz bei $E = 10,655 \text{ keV}$ zu $\epsilon_{\text{scatter}} \leq \frac{3 \cdot 10^{-5}}{1,5 \cdot 10^{-2}} = 2 \cdot 10^{-3}$.

Man erkennt eine deutlich Abnahme der Effizienz der Spirale mit zunehmendem energetischem Abstand von der Cu-K_α -Fluoreszenzlinie. Es ist verwunderlich, dass die Effizienz für die energetisch weiter entfernte Zn-K_β -Strahlung etwas größer ist als die Effizienz für Cu-K_β -Strahlung. Unter Umständen ist dies auf die Fehlstellung der Kristalle Nr.1 und Nr.12 zurückzuführen. Einer dieser Kristalle war möglicherweise gerade so positioniert, dass er teilweise die Zn-K_β -Fluoreszenz reflektierte.

Auf die Messung der Intensität der Cu-K_α -Fluoreszenzstrahlung hatten die fehlorientierten Kristalle keine Auswirkung, da ihre Reflexe nicht durch das Zentrum der Strahltaile verlaufen (s. Abb. 7.7).

7.7 Fazit, Verbesserungsvorschläge

Es konnte gezeigt werden, dass ein Analysator aus gebogenem LiF in der Lage ist Cu-K_α -Fluoreszenzstrahlung effektiv vom Strahlungsuntergrund zu trennen. Eine kontinuierliche Biegung der Kristalloberfläche in die Form einer logarithmischen Spirale konnte aber nur teilweise erreicht werden. Die Effizienz des Analysators $\epsilon_{\text{Cu-K}_\alpha} \approx 1,83 \cdot 10^{-3}$ kann maximal den Wert der Kristallreflektivität R annehmen. Mit dem hier verwendeten Material wäre eine günstige Reflektivität entsprechend Abschnitt 7.2 durch $R \approx 0,09$ gegeben. Die erreichte Effizienz bleibt also um einen Faktor ($\frac{R}{\epsilon_{\text{Cu-K}_\alpha}} = 49,1$) hinter der Effizienz des optimalen Analysators zurück.

Vermutlich wäre die Verwendung anderer LiF-Kristalle mit höherer Mosaizität der ungebogenen Kristalle besser. Die Biegung ist hier vielleicht einfacher und präziser zu erreichen als bei den jetzt verwendeten Kristallen.

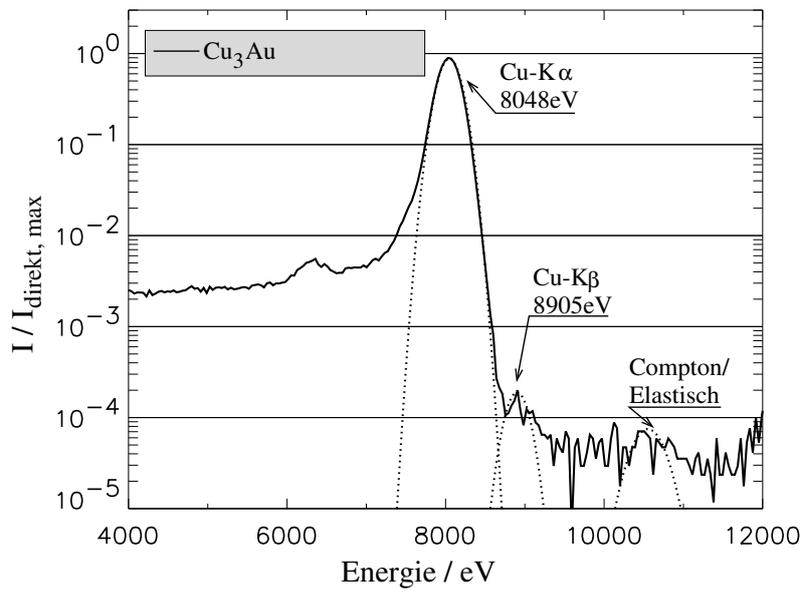
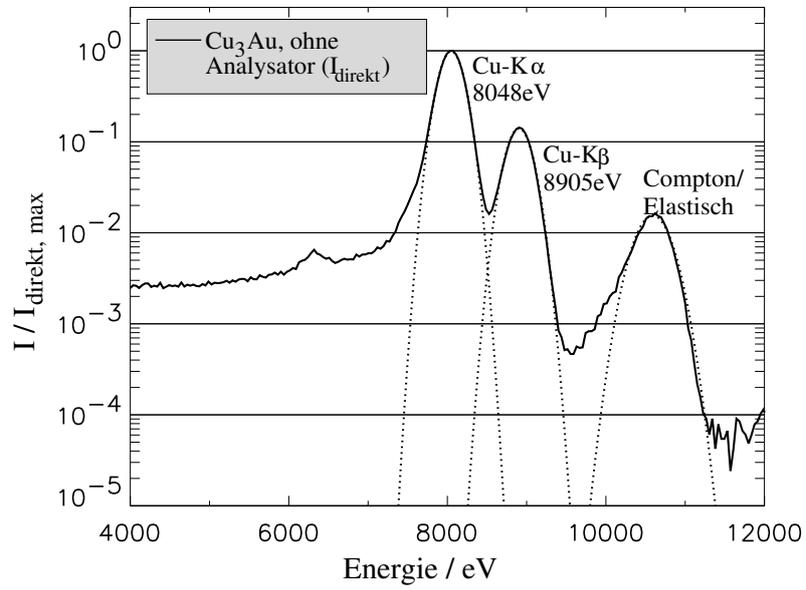


Abbildung 7.9: *Oben*: Direktes Spektrum mit SD-Detektor. *Unten*: Spektrum hinter dem Fluoreszenzanalysator.

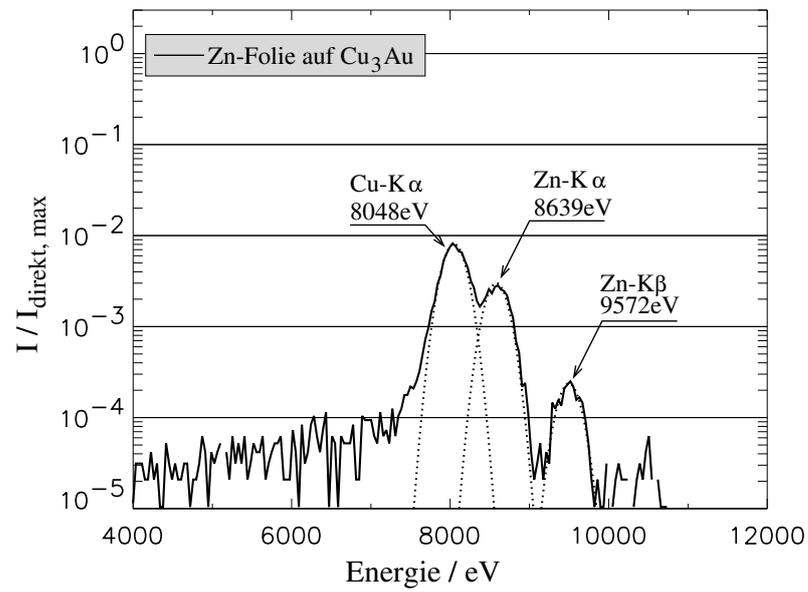
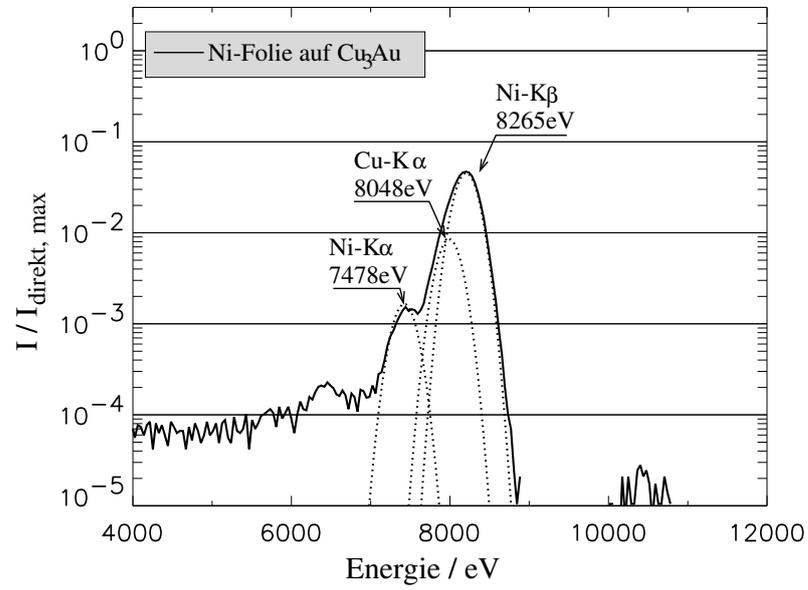


Abbildung 7.10: *Oben:* Spektrum mit $12,5\mu\text{m}$ Ni-Folie auf dem Cu_3Au -Kristall.
Unten: Spektrum mit $25,0\mu\text{m}$ Zn-Folie auf dem Cu_3Au -Kristall.

Für die hier erreichte Genauigkeit der Kristallbiegung war die Präzision der mechanischen Konstruktion im Wesentlichen ausreichend. Beim erneuten Bau eines derartigen Analysators mit exakter Kristallbiegung muss über den Einbau einer einfachen Feinjustage für die Kristallhalter nachgedacht werden. Diese sollte die Verschiebung der Kristalle mit Bewegung auf die Symmetrieachse und eine Verkippung der Kristalle zur Feinjustage des Einfallswinkels α ermöglichen.

Die Form der Kristallhalter mit der ausgefrästen Form des Analysators hat sich beim Aufpressen der Kristalle als nachteilig erwiesen. Die angeschrägte Außenfläche der Kristallhalter bietet beim Pressen keine gute Auflagefläche, so dass die Kristallhalter unter Druck etwas nachgeben und sich aufbiegen. Besser und einfacher wäre die Fertigung aus einem dünnen, auf der Rückseite flachen Kristallträger, der anschließend an einem kürzeren und ebenfalls flachen Halter befestigt wird. Dieser wiederum kann mit Schrauben zur Feinjustage an der Spiralkonstruktion befestigt werden. Der Vorteil eines großen, von allen Seiten zugänglichen Einfallswinkels bleibt dabei erhalten.

Die hier verwendete einfache Methode des Pressens in Metallformen scheint für eine gleichmäßige Formgebung der Kristalle nicht ausreichend zu sein. Gelingt es, die Kristallbiegung zu verbessern, so kann die Effizienz des Analysators um bis zu einen Faktor 50 gesteigert werden.

Kapitel 8

Atomar auflösende Holographie

8.1 Idee der atomar auflösenden Holographie

Im Jahre 1948 entwickelte der britische Wissenschaftler und gebürtige Ungar Dennis Gabor ein neues mikroskopisches Prinzip [Gab48], das er Holographie nannte. Der Name ist aus dem Griechischen abgeleitet (*holos*=vollständig, *grapho*=schreiben) und beschreibt die Idee der Holographie: Es wird die vollständige Information einer sich ausbreitenden Welle aufgezeichnet. Insbesondere wird neben der Intensität bzw. der Amplitude auch Phaseninformation gespeichert. Dazu wird das Interferenzmuster einer bekannten Referenzwelle mit einer unbekanntem zweiten Welle, der sogenannten Objektwelle aufgezeichnet. Die Information im entstehenden Interferenzmuster kann extrahiert, bzw. rekonstruiert werden, indem das Hologramm wieder mit der (konjugiert komplexen) Referenzwelle beleuchtet wird.



Abbildung 8.1: Dennis Gabor. Im Jahre 1971 wurde ihm der Nobelpreis für die “Erfindung und Entwicklung der holographischen Methode” verliehen ([nob]). Das Bild ist [phy] entnommen.

Eigentlich arbeitete D. Gabor daran, die Auflösung von Elektronenmikroskopen zu verbessern. Sein ursprünglicher Vorschlag war es, mit Elektronen aus einem Punktfokus, Holographie zu betreiben und er hoffte, somit atomare Auflösung zu erzielen. Die Holographie wurde aber vor allem durch die Erfindung des Lasers zunächst im Bereich optischer Wellenlängen bekannt. Die Idee der Elektronenholographie, wie Sie Gabor ursprünglich vorgeschlagen hatte, scheiterte an einer

nicht vorhandenen geeigneten Elektronenquelle, die nur eine sehr geringe Ausdehnung von $\sim 1\text{\AA}$ besitzen darf. Eine zu große Quelle lässt das hinter der Probe aufgezeichnete Interferenzmuster (Hologramm) verschwimmen.

Abraham Szöke veröffentlichte 1986 einen Vorschlag, wie man Gabors Idee zur Untersuchung von Atomen in Festkörpern umsetzen könnte [Szö86] und lieferte somit den Anstoß für die Röntgenholographie. Der Grundgedanke dieser Überlegung ist es, ein einzelnes Atom als Strahlungsquelle zu verwenden, wodurch eine ausreichend geringe Quellgröße für die Untersuchung der atomaren Umgebung dieses Atoms gegeben ist. Ein atomarer Prozess soll die Referenzwelle liefern, die an den umgebenden Atomen gestreut wird (Objektwellen) und mit der Referenzwelle interferieren kann. Als Referenzwelle kann das Quellatom Photoelektronen, Auger-Elektronen oder Fluoreszenzstrahlung emittieren. Die Holographie mit Aussendung von Fluoreszenzstrahlung wird im Abschnitt 8.2 als “Direkte Röntgenholographie” beschrieben.

Die atomar auflösende Holographie ist prinzipiell eine direkte Methode, die, ungleich den kristallographischen Methoden, Informationen über die atomare Umgebung eines Atoms liefert, ohne dass Annahmen über die Struktur oder der Vergleich mit Simulationen erforderlich wären.

Sowohl Elektronen- als auch Photonenstrahlung ist für die Holographie geeignet. Die Wellenlänge von $\lambda = 1\text{\AA}$ besitzen Elektronen und Photonen nach (8.1) bei einer Energie von $E_{el} \approx 150\text{eV}$ bzw. bei $E_{ph} \approx 10\text{keV}$.

$$\lambda_{ph}[\text{\AA}] = \frac{12,398}{E_{ph}[\text{keV}]} \quad \lambda_{el}[\text{\AA}] = \frac{12,264}{\sqrt{E_{el}[\text{eV}]}} \quad (8.1)$$

Allerdings unterscheiden sich für Elektronen und Photonen die Wechselwirkungsquerschnitte erheblich, wodurch Elektronen dieser Wellenlänge eine bedeutend geringere Eindringtiefe als Photonen der gleichen Wellenlänge aufweisen. Elektronenholographie bleibt daher auf oberflächennahe Bereiche beschränkt.

8.2 Direkte Röntgenholographie (XFH)

Die sogenannte *X-ray Fluorescence Holography* (XFH) ist eine spezielle Form der *Internal Source Holography* (ISH). Die Strahlungsquelle ist hier ein Fluoreszenz abstrahlendes Atom in der Probe. Das holographische Signal kommt durch die Überlagerung der auslaufenden Welle, die die Referenzwelle darstellt, mit den an den Umgebungsatomen gestreuten Anteilen zustande. Die austretende Fluoreszenzintensität wird orts aufgelöst bzw. richtungsabhängig gemessen. Die XFH-Methode ist schematisch in Abb. 8.2 dargestellt.

Bei dieser Form der Holographie ist die interferenzbildende Wellenlänge der Strahlung auf die wenigen Fluoreszenzlinien des Quellatoms beschränkt. Die Anregung

der Quellatome zur Fluoreszenz kann durch Elektronen oder Photonen mit einer Energie oberhalb der entsprechenden Absorptionskante erfolgen.

Die Bildung des holographischen Signals wird in [ANHM98] unter Vernachlässigung von Mehrfachstreuung nach der klassischen Elektrodynamik hergeleitet. Eine entsprechende quantenmechanische Ableitung findet sich in [MS97], soll hier aber nicht weiter betrachtet werden, da sie die gleichen Ergebnisse liefert. Es werden hier die wichtigsten Schritte der Herleitung aus [ANHM98] dargestellt und die Ergebnisse übernommen:

Das abstrahlende Fluoreszenzatom wird als ein punktförmiger Hertzscher Dipol im Ursprung des Koordinatensystems betrachtet. In der Realität enthält die Probe viele Fluoreszenzatom, die alle gleichzeitig emittieren. Es wird aber im Weiteren davon ausgegangen, dass sich die Signale der einzelnen Atome inkohärent überlagern und sich die Intensitäten der emittierten Strahlungen addieren. Das gemessene Hologramm stellt eine Überlagerung der einzelnen Hologramme dar. Sitzen alle Fluoreszenzatom in der gleichen atomaren Umgebung, so unterscheidet sich die Messung aller Atome nicht von der Messung eines einzelnen Atoms. Die Schwingung des Dipols im Koordinatenursprung sei beschrieben durch $\vec{p}_0 \cdot \sin(\omega t)$. Das elektrische Feld $E(\vec{r}_j)$ am Ort eines Streuatoms ist dann aus der klassischen Elektrodynamik bekannt und auch der elastisch gestreute Beitrag zum elektrischen Feld $\vec{E}_{r_j}(\vec{R})$ am Ort des Detektors \vec{R} lässt sich bestimmen. Die Betrachtung erfolgt rein kinematisch, also ausgehend davon, dass Mehrfachstreuung auf Grund der schwachen Streuung vernachlässigt werden kann und durch das gestreute Feld keine Rückwirkung auf die Atome erfolgt. Zudem wird davon ausgegangen, dass man sich nicht in der Nähe einer Absorptionskante befindet.

Das elektrische Feld am Ort des Detektors wird dann bestimmt als die Summe $\vec{E}_{det}(\vec{R}) = \vec{E}_{det}(\vec{k}) = E(\vec{R}) + \sum_j E_{r_j}(\vec{R})$. Dabei ist die Richtung des Wellenvektors der ausfallenden Welle \vec{k} parallel zu \vec{R} . Die tatsächlich gemessene Strahlungsintensität ist proportional dem Betragsquadrat des elektrischen Feldes im zeitlichen Mittel.

Es ergibt sich so für die **Intensität der XFH-Messung**

$$I_{XFH}^{unpol}(\vec{k}) \propto |\vec{E}_{det}(\vec{k})|^2 = \frac{2k^4 |\vec{p}|^2}{3R^2} \left(1 - 2r_0 \operatorname{Re} \sum_j \frac{e^{i(kr_j - \vec{k}\vec{r}_j)}}{r_j} f'(\vec{r}_j, \vec{k}) + \dots \right) \quad (8.2)$$

mit

$$f'(\vec{r}_j, \vec{k}) = f(\vec{r}_j, \vec{k}) \times \left[\left(1 - \frac{1}{(kr_j)^2} + i \frac{1}{kr_j} \right) \frac{1 + \cos^2(\vec{r}_j, \vec{k})}{2} - \left(\frac{-2}{(kr_j)^2} + i \frac{2}{kr_j} \right) \frac{\sin^2(\vec{r}_j, \vec{k})}{2} \right] \quad (8.3)$$

wobei auch noch über alle Orientierungen von \vec{p} gemittelt wurde, um die beliebige Orientierung der Polarisation von Fluoreszenzstrahlung zu berücksichtigen.

$f(\vec{r}_j, \vec{k})$ ist der Strukturfaktor des Atoms am Ort \vec{r}_j . Der Streuwinkel ist durch die Richtungen von \vec{r}_j und \vec{k} gegeben. Auf Grund der geringen Streuamplituden wurden die Streuterme höherer Ordnung vernachlässigt.

Der zweite Term in (8.2) beinhaltet die **holographische Information** und wird im Folgenden mit $\chi(\vec{k})$ bezeichnet:

$$\chi(\vec{k}) = -r_0 \operatorname{Re} \sum_j \frac{e^{i(kr_j - \vec{k}\vec{r}_j)}}{r_j} f'(\vec{r}_j, \vec{k}). \quad (8.4)$$

Der Faktor 2 aus (8.2) wurde weggelassen, um die Amplitude des Signals, also \sqrt{I} und nicht die Intensität I zu betrachten ($\sqrt{1+x} \approx 1+x/2+\dots$).

Der Faktor zur Umrechnung von f nach f' in (8.3) enthält Terme, die mit dem Abstand des Atoms r_j schnell abnehmen und als Nahfeldeffekte bezeichnet werden. Zudem tritt der Faktor $\frac{1+\cos^2(\vec{r}_j, \vec{k})}{2}$ auf, der der Thomson-Streuung aus (2.1) entspricht und einen richtungsabhängigen Beitrag liefert.

Es wird für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Rekonstruktionen vereinfachend $f' = f$ angenommen. Auf die hierdurch in der Rekonstruktion entstehenden Fehler wird im Abschnitt 8.5.2 eingegangen.

Aus $\chi(\vec{k})$ kann man leicht eine Abschätzung der **Amplitude des holographischen Signals** für Atome in geringer Entfernung r_j gewinnen. Relativ zur Referenzwelle ist diese aus $f \cdot r_0/r_j$ abschätzbar. Nimmt man z.B. für ein ^{79}Au -Atom den Strukturfaktor $f = 79$ und einen Abstand zu den nächsten Nachbarn von $r_j = 2,652\text{\AA}$ (wie in Cu_3Au) an, dann ist das holographische Signal etwa um $79 \times 2,652 \cdot 10^{-5}/2,652 = 8,5 \cdot 10^{-4}$ schwächer als die Referenzwelle.

8.3 Reziproke Röntgenholographie (MEXH)

Die reziproke Röntgenholographie wird auch als *Internal Detector Holography* (IDH) oder *Multiple Energy X-ray Holography* (MEXH) bezeichnet.

Eine schematische Darstellung dieser Methode ist in Abb. 8.3 gezeigt. Im Wesentlichen entspricht diese Methode der direkten Röntgenholographie, jedoch mit umgekehrtem Strahlengang. Die Strahlungsquelle befindet sich nun außerhalb der Probe und eine einlaufende, ebene Welle mit Wellenvektor $-\vec{k}$ stellt nun die Referenzwelle dar. Die an den Atomen der Probe gestreuten Anteile der Referenzwelle und die Referenzwelle selbst interferieren am Ort des sogenannten Detektoratoms, das dem Fluoreszenzatom, also der Strahlungsquelle, der direkten Röntgenholographie entspricht.

Die Strahlungsintensität am Ort des Detektoratoms hängt von der Einfallrichtung des Strahls ab und führt zur Photoionisation des Detektoratoms. Bei der Relaxation des Detektoratoms entstehen in einem sekundären Prozess Fluoreszenzphotonen und Auger-Elektronen, die in der reziproken Röntgenholographie,

ebenso wie die Photoelektronen, für die Messung des Hologramms genutzt werden können. Für alle im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurden die Fluoreszenzphotonen als Sekundärsignal gemessen.

Die reziproke Röntgenholographie erlaubt die Verwendung von Strahlung unterschiedlicher Wellenzahlen k . Damit ist sie der direkten Holographie überlegen, die an wenige zur Verfügung stehende Fluoreszenzlinien des Quellatoms gebunden ist. Es können somit tatsächlich 3-dimensionale Datensätze im k -Raum oder zumindest an mehreren Punkten des k -Raumes aufgenommen werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Messungen bei nur einer festen Wellenzahl k durchgeführt.

Entsprechend der Herleitung des Signals der direkten Holographie wird in [ANHM98] auch für die reziproke Röntgenholographie die Signalintensität hergeleitet. Dabei ist hier prinzipiell die Realisierung der Holographie mit polarisierter Strahlung am Synchrotronstrahlungslabor und die Realisierung mit unpolarisierter Strahlung von einer Röntgenröhre zu unterscheiden.

Für die **Intensität der MEXH-Messung im Fall unpolarisierter Strahlung** am Ort des Detektoratoms ergibt sich das gleiche Ergebnis wie schon für die direkte Holographie in (8.2). Lediglich der Vorfaktor muss durch $|\vec{E}_0|^2$, mit dem elektrischen Feldvektor \vec{E}_0 der einlaufenden Welle, ersetzt werden. Der Querbalken bedeutet auch hier das zeitliche Mittel. Die Funktion $\chi(\vec{k})$ wird entsprechend wie in (8.4) definiert.

Die **Intensität der MEXH-Messung im Fall vollständig polarisierter Strahlung** ergibt sich aus dem zeitlich gemittelten Quadrat der elektrischen Feldstärke am Detektoratom \vec{E}_{atom} :

$$I_{MEXH}^{pol}(\vec{k}) \propto \overline{|\vec{E}_{atom}(k)|^2} = E_0^2 - 2r_0 \operatorname{Re} \sum_j \frac{e^{i(kr_j - \vec{k}\vec{r}_j)}}{r_j} f(\vec{r}_j, \vec{k}) \times$$

$$\left[\left(1 - \frac{1}{(kr_j)^2} + i \frac{1}{kr_j} \right) \left(E_0^2 - \frac{(\vec{r}_j \vec{E}_0)^2}{r_j^2} \right) - \left(\frac{-2}{(kr_j)^2} + i \frac{2}{kr_j} \right) \frac{(\vec{r}_j \vec{E}_0)^2}{r_j^2} \right] + \dots (8.5)$$

Man erkennt sofort, dass der Term für das Fernfeld (Term mit der Konstante 1 in der ersten runden Klammer in Gleichung (8.5) stark von der Polarisationsrichtung abhängig ist. Atome, die sich in Richtung des elektrischen Feldvektors befinden, für die also gilt $\vec{r}_j \parallel \vec{E}_0$, tragen nicht zum holographischen Signal bei, da der Term in der zweiten runden Klammer in diesem Fall verschwindet. Dies ist verständlich, da durch die Dipolschwingung keine Energieabstrahlung in Richtung des anregenden Feldes erfolgt.

XFH

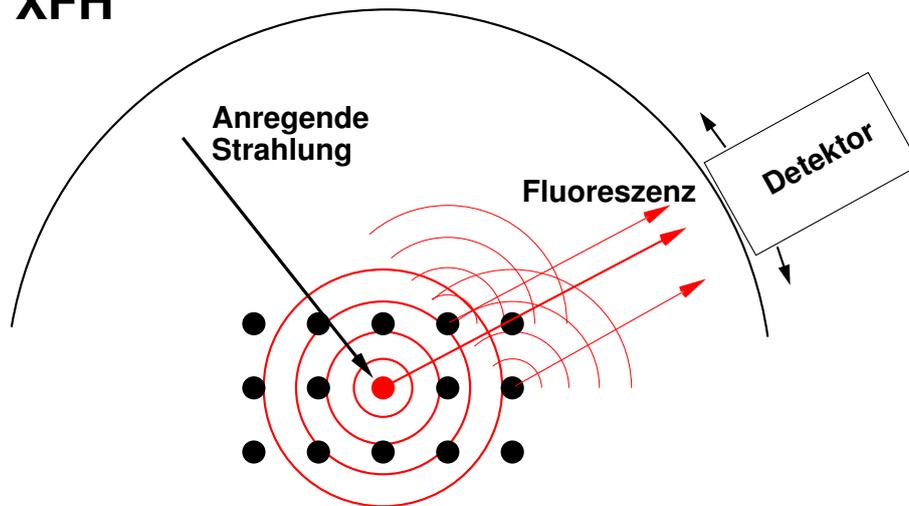


Abbildung 8.2: XFH-Methode. Die vom Quellatom ausgestrahlte Fluoreszenz (rot) wird an den Atomen der Probe gestreut. Durch den Interferenzeffekt misst man Variationen in der Intensität der Fluoreszenz als Funktion der Detektorposition.

MEXH

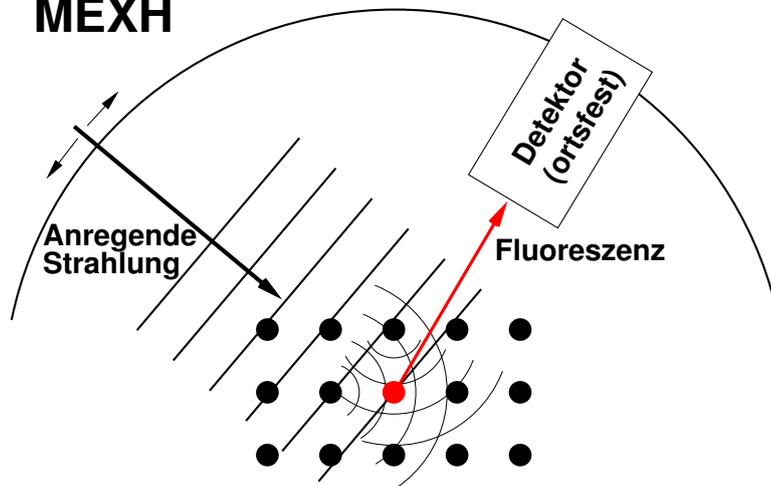


Abbildung 8.3: MEXH-Methode. Die ebene einfallende Welle wird an den Atomen gestreut. Die resultierende Strahlungsintensität am Ort des Detektoratoms (rot) wird aus der gemessenen Intensität der Fluoreszenzstrahlung bestimmt. Die Einfallrichtung der einfallenden Strahlung und die Wellenlänge wird variiert.

8.4 Messung des holographischen Signals $\chi(\vec{k})$

8.4.1 Extraktion von $\chi(\vec{k})$ aus den gemessenen Daten

Für den Fall einer festen Wellenzahl k , ist die Angabe der in Abschnitt 7.1 definierten Winkel θ, φ ausreichend für die Beschreibung des Wellenvektors \vec{k} . Die Intensität des gemessenen Fluoreszenzsignals sei mit $I_k(\theta, \varphi)$ bezeichnet. Die gemessene Intensität einer holographischen Messung, wie sie in (8.2) hergeleitet wurde, mit dem in (8.4) definierten $\chi(\vec{k})$ ist gegeben als

$$I_k(\theta, \varphi) = I_0(1 + 2\chi(\vec{k}) + \dots). \quad (8.6)$$

Der Mittelwert von $I_k(\theta, \varphi)$ sei als

$$\bar{I}_k = \frac{\sum_{\theta, \varphi} I_k(\theta, \varphi)}{\sum_{\theta, \varphi} 1} \quad (8.7)$$

definiert. Dieser Mittelwert wird an Stelle der nicht bekannten konstanten Intensität I_0 der Referenzwelle verwendet, um das reine holographische Signal $\chi(\vec{k})$ zu bestimmen. Dabei wird zusätzlich das holographische Signal auf die Intensität der Referenzwelle normiert:

$$2 \cdot \chi_k(\theta, \varphi) = \frac{I_k(\theta, \varphi) - \bar{I}_k}{\bar{I}_k} \quad (8.8)$$

Der Abzug eines von I_0 abweichenden \bar{I}_k führt dazu, dass ein konstanter Untergrund auf den Datensätzen verbleibt.

8.4.2 Absorptionskorrektur

Das holographische Signal im gemessenen Fluoreszenzsignal der Intensität I wird von einem starken geometrischen Effekt überlagert. Es sei hier für die Herleitung der benötigten Absorptionskorrektur die Probe als homogen aber ohne kristalline Struktur angenommen, so dass ein einheitlicher Absorptionskoeffizient μ für alle Ausbreitungsrichtungen angegeben werden kann. (In Nähe der Bragg-Reflexe gilt diese Herleitung prinzipiell nicht.)

Wir betrachten eine aus mehreren chemischen Elementen A, B,... (z.B. Cu und Au) bestehende Probe. Das Atom A strahlt das zu messende Fluoreszenzsignal ab. Die Abnahme der Strahlintensität $I(z)$ des einfallenden Strahls als Funktion der Eindringtiefe z bei einem Einfallswinkel von θ zur Oberfläche ist gegeben durch

$$I = I_0 \exp\left(-\mu^i \frac{z}{\sin \theta}\right). \quad (8.9)$$

I_0 ist die Intensität des einfallenden Strahls an der Oberfläche ($z = 0$). Dabei ist μ^i der Absorptionskoeffizient für die Wellenlänge der einfallenden Strahlung.

Entsprechendes gilt für die Abnahme der Intensität der unter dem Ausfallswinkel ϕ austretenden Fluoreszenzstrahlung der Atome A mit dem Absorptionskoeffizienten μ^A .

Durch differentielle Betrachtung der Intensitätsänderung und anschließende Integration lässt sich leicht die in ein Raumwinkelelement $\Delta\Omega$ abgestrahlte Intensität der Fluoreszenzstrahlung herleiten:

$$I(\theta, \phi) = I_0 \frac{\Delta\Omega}{4\pi} \omega_A \frac{\mu_A^i}{\mu^i} \left(1 + \frac{\mu^A \sin \theta}{\mu^i \sin \phi} \right)^{-1}. \quad (8.10)$$

Dabei ist μ_A^i der Absorptionskoeffizient, der nur durch die Atome A verursacht wird. Er ist gegeben durch $\mu_A^i = \sigma_A^i n_A$ mit dem Wechselwirkungsquerschnitt der Photoabsorption der Atome A für die einfallende Strahlung und der Teilchendichte n_A der Atome A in der Probe.

Aus den Messdaten müssen alle geometrischen Effekte entfernt werden, bevor das holographische Signal gewonnen werden kann. In den MEXH-Messungen ist der Ausfallswinkel ϕ fest durch die Detektorposition vorgegeben. Die Funktion (8.10) kann dann vereinfacht werden zu

$$I_\theta(\theta) = c_1 (1 + c_2 \sin \theta)^{-1}, \quad (8.11)$$

mit zwei über die Messung konstanten Parametern c_1 und c_2 , die an den jeweiligen Datensatz angepasst werden können.

8.5 Rekonstruktion

Um aus den gewonnenen holographischen Datensätzen tatsächlich ein Streudichtebild von der Umgebung des Detektor- bzw. Quellatoms zu erhalten, müssen die Daten numerisch rekonstruiert werden. In dieser Arbeit soll nur der tatsächlich auf die Messdaten angewandte Rekonstruktionsalgorithmus vorgestellt werden. Weitere Rekonstruktionsalgorithmen, auch für die Elektronenholographie, werden z.B. in [Len97] vorgestellt.

8.5.1 Rekonstruktionsalgorithmus nach Barton

Der in dieser und vielen bisherigen Arbeiten für die Rekonstruktion holographischer Daten verwendete Algorithmus geht auf Barton [Bar88], [Bar91] und eine Arbeit von Tong [TLH91] zurück, die diesen Algorithmus für die Elektronenholographie vorschlugen. Sie leiteten eine Funktion zur Berechnung der Feldamplitude $U_k(\vec{r}')$ am Ort \vec{r}' aus dem Integraltheorem von Helmholtz und Kirchhoff (siehe [Max99]) zunächst für die Messung bei nur einer Energie, d.h. für nur eine Wellenzahl k , ab. Die Feldverteilung in der Probe wird danach entsprechend den

Gesetzen der klassischen Elektrodynamik bestimmt, wobei allerdings die Forderung nach Quellenfreiheit des betrachteten Volumens nicht beachtet wird.

Weiter schlug Barton die Integration über alle Wellenzahlen k vor, so dass der Algorithmus quasi dem Integral einer Fouriertransformation entspricht. Man entfernt sich dadurch von der optischen Holographie, die aus 2-dimensionalen k -Raum Daten eine 3-dimensionale Feldverteilung rekonstruiert. Stattdessen wird nun aus 3-dimensionalen k -Raum Daten eine 3-dimensionale Streudichtevertelung gewonnen.

Nach [BRS86] sollten die Maxima in der nach (8.12) gewonnenen Größe $|U(\vec{r})|$ mit den Atompositionen in der Probe übereinstimmen (nicht bewiesen!). Man erhält also eine Darstellung der atomaren Umgebung des Detektoratoms (bzw. Emitteratoms in XFH).

P.M.Len beschreibt in [Len97] die Rekonstruktion in einem mathematisch allgemeinen Ansatz und sucht nach einer zur Faltungsfunktion des Streuprozesses in (8.4) orthogonalen Entfaltungsfunktion.

Die **Rekonstruktion nach Barton** erfolgt nach:

$$U(\vec{r}) = \frac{1}{2\pi R^2} \int_k dk e^{-ikr} \iint_{S(R)} d\sigma_{\hat{k}} e^{-i\vec{k}\vec{r}} \chi(\vec{k}) \quad (8.12)$$

Dabei beschreibt \vec{R} die Position des Detektors mit dem Abstand $R = |\vec{R}|$ zur Probe, der in der Herleitung als viel größer als die Ausdehnung der Probe angenommen wird. \vec{R} und \vec{k} sind parallel. Es wird integriert über alle Wellenzahlvektoren \vec{k} , wobei $\sigma_{\hat{k}}$ ein infinitesimales Stück der Oberfläche S im Ortsraum mit Radius R ist.

Das Integral lässt sich vereinfachen, wenn man es auf die Einheitskugel überführt. Ersetzt man $d\sigma_{\hat{k}}$ durch das infinitesimale Raumwinkelelement $d\Omega_k = R^2 \cdot \cos(\theta) d\theta d\varphi$, so ergibt sich die

Rekonstruktion nach Barton über die Einheitskugel:

$$U(\vec{r}) = \frac{1}{2\pi} \int_k dk e^{-ikr} \iint_{\hat{k}} d\Omega_{\hat{k}} e^{-i\vec{k}\vec{r}} \chi(\vec{k}) \quad (8.13)$$

Diese Rekonstruktionsvorschrift entspricht einer Fouriertransformation der abgeleiteten holographischen Funktion

$$\chi'(\vec{k}) = \frac{1}{2\pi} \frac{e^{-ikr}}{k^2} \chi(\vec{k}), \quad (8.14)$$

denn es ist

$$U(\vec{r}) = \int_k dk k^2 \iint_{\hat{k}} d\Omega_{\hat{k}} e^{-i\vec{k}\vec{r}} \chi'(\vec{k}) = \mathcal{F}(\chi'(\vec{k})). \quad (8.15)$$

Da die Fouriertransformation \mathcal{F} ebenso wie der Übergang von $\chi'(\vec{k})$ auf $\chi(\vec{k})$ mathematisch eindeutig ist, geht durch die Rekonstruktion mit dem Algorithmus

von Barton keinerlei experimentelle Information verloren. Verluste in der Phaseninformation des Signals entstehen bereits in der Messung und nicht als Folge der Rekonstruktion.

Natürlich erfolgt die Datennahme nicht über den gesamten k -Raum. Daher müssen für die Rekonstruktion der experimentellen Daten die Integrale in (8.13) sinnvoll durch Summen ersetzt werden. Ist, wie in unseren Messungen die Winkelabdeckung in φ -Richtung unabhängig von θ , dann ergibt sich

$$U(\vec{r}) = \frac{1}{2\pi} \sum_k e^{-i\vec{k}\vec{r}} U_k(\vec{r}) \quad (8.16)$$

mit der Rekonstruktion für eine einzelne Energie:

$$U_k(\vec{r}) = \sum_{\theta, \varphi} \cos(\theta) e^{-i\vec{k}\vec{r}} \chi(\vec{k}). \quad (8.17)$$

Das gefundene $U(\vec{r})$ gibt eine komplexe Amplitude am Ort \vec{r} an. Es ist jedoch nur der Betrag $|U(\vec{r})|$ relevant. Da die Phase bei der Rekonstruktion nicht absolut, sondern nur relativ bekannt ist (vergl. [Len97]), sind auch komplexe $U(\vec{r})$ nicht unphysikalisch. In Rekonstruktionen wird daher häufig $|U(\vec{r})|^2$ dargestellt.

Für die besondere Situation der Rekonstruktion bei nur einer Wellenlänge nach (8.17) entstehen sogenannte **Zwillingsbilder** (engl.: **Twin Images**). Da $U_k(\vec{r}) = U_k^*(-\vec{r})$ und somit $|U_k(\vec{r})|^2 = |U_k(-\vec{r})|^2$, ist die Rekonstruktion zentrosymmetrisch. Die rekonstruierten Intensitäten $U_k(\vec{r})$ bei \vec{r} und $-\vec{r}$ sind immer identisch. Tatsächlich hat Barton nachträglich die Integration über mehrere Wellenzahlen in der Rekonstruktion eingeführt, um genau diesen Effekt zu beseitigen.

8.5.2 Fehlerquellen in der Rekonstruktion

Holographische **Messungen an Kristallen** sind schwierig, da die im Kristallgitter regelmäßig angeordneten Atome noch über große Entfernung konstruktiv interferierende, gestreute Beiträge liefern. Selbst wenn keine dynamischen Effekte bzw. Mehrfachstreuung auftreten, wird das Signal weit entfernter Atome sich nicht auf Grund zufällig verteilter Gangunterschiede herausmitteln, sondern zum holographischen Signal beitragen. Nach (8.4) nimmt der Beitrag eines streuenden Atoms zwar mit $1/r_j$ ab, andererseits nimmt jedoch die Anzahl der Atome in einer Schale mit Radius Δr mit r^2 zu, so dass ein erheblicher Teil der holographischen Information $\chi(\vec{k})$ von weit entfernten Atomen beigetragen wird. Der Anteil der Information über die nahe Umgebung des Detektoratoms ist entsprechend gering. Die ausreichende Abtastung des k -Raums (s. unten) ist bei der Messung an Kristallen wegen der Bündelung der Intensität in scharfen Peaks (ähnlich wie in der Bragg-Streuung) praktisch nicht möglich. Da sich in Bragg-Reflexen die

Eindringtiefe erheblich ändert, gilt auch die in (8.10) abgeleitete Absorptionskorrektur nicht.

Die Problematik der Rekonstruktion von an Kristallstrukturen gemessenen Daten wird in [FNSM] behandelt.

Die Fernordnung der Atome bei der Messung an Kristallen erzeugt die als **Kossellinien** bezeichneten Strukturen [KLV35]. Es handelt sich um starke ringförmige Konturen, die in Kegeln um die reziproken Gittervektoren entstehen. Die Kossellinien können als Bragg-Reflexe von einer internen Quelle angesehen werden. Diese Linien sind auch deutlich in den im folgenden Kapitel präsentierten Messdaten zu erkennen. Sie treten in der reziproken Röntgenholographie gleichermaßen wie in der direkten Röntgenholographie auf. Ein kinematischer Ansatz, der mit Bezug auf die Röntgenholographie zeigt, wie die Kossellinien entstehen, findet sich in [ANHM98].

Der vorgestellte Rekonstruktionalgorithmus nach Barton berücksichtigt keine **Mehrfachstreuung**. Es wird davon ausgegangen, dass auf Grund der schwachen Wechselwirkung die einmal gestreute Welle nicht nochmals gestreut wird. In idealen Kristallen werden aber durch Mehrfachstreuung starke dynamische Effekte entstehen und die einfache Interpretation nach Barton ist nicht möglich. Zur Nutzung der an idealen Kristallen gewonnenen Information dient die Methode der stehenden Röntgenwellenfelder (engl. “*X-Ray Standing Waves*” oder kurz XSW). Sie nutzt gerade die an den Bragg-Reflexen gewonnene Information, um die Position der fluoreszierenden Atome relativ zu den Reflexebenen zu bestimmen. Dazu werden als Sekundärsignal z.B. Photoelektronen, Auger-Elektronen oder Fluoreszenzphotonen gemessen. Im Übrigen sei hier auf Literatur zur XSW-Methode, z.B. die Veröffentlichungen [Zeg93] oder [Aut01], verwiesen.

Polarisationseffekte treten bei der MEXH-Methode auf, wenn z.B. die vollständig polarisierte Strahlung von einem Ablenkmagneten für die Messung genutzt wird. Diese Effekte werden in [LGN⁺97] behandelt. Dort wird darauf hingewiesen, dass zur Rekonstruktion vollständiger räumlicher Strukturinformation die einfallende Strahlung entweder zirkular oder unpolarisiert sein sollte, oder alternativ die Messung für beide Polarisationsrichtung getrennt durchgeführt werden muss.

Im MEXH- und auch im XFH-Signal in f' aus (8.3) ist, wie schon erwähnt, ein der **Thomson-Streuung** entsprechender, richtungsabhängiger Term enthalten. Als **Nahfeldeffekte** werden die mit r_j abnehmenden Beiträge zu f' bezeichnet. Allgemein erhält man bei der Bildung des holographischen Signals also einen **anisotropen Strukturfaktor** f' .

Der richtungsabhängige Beitrag der Thomson-Streuung kann nicht ohne weiteres in der Rekonstruktion berücksichtigt werden.

In [HNKM00] wird gezeigt, dass zumindest die Nahfeldeffekte bei den verwendeten Wellenlängen von etwa 10keV bereits für nächste Nachbarn gering sind. Diese

werden daher zunächst vernachlässigt.

In den in später gezeigten Rekonstruktionen nach dem Algorithmus von Barton wird der anisotrope Strukturfaktor nicht berücksichtigt, da für den Strukturfaktor in (8.3) vereinfachend $f' = f$ angenommen wird. In [LGN⁺97] sind Referenzen auf Veröffentlichungen gegeben, die Rekonstruktionsalgorithmen, sogenannte SWIFT-Algorithmen (“scattered-wave included fourier transform”) vorschlagen, die auch einen anisotropen Strukturfaktor berücksichtigen.

Die **Abeckung des k -Raum** (im Engl.: *k-space sampling*), d.h. die Wahl der Wellenzahlen k und der Einfallsrichtungen, beschrieben durch θ und φ , hat ebenfalls Einfluss auf die rekonstruierten Bilder. Experimentell ist die Energie der einfallenden Strahlung begrenzt. Sie muss zwangsweise oberhalb der Anregungsenergie des Detektoratoms liegen. Auch die unterschiedlichen Eindringtiefen müssen beachtet werden.

Die Einfallsrichtung kann an großen Proben maximal den Halbraum über der Probe abdecken und Werte können nur an diskreten Positionen angegeben werden.

Marchesini [Mar00] schlägt zur Verfeinerung der experimentell gewonnen Daten, die praktisch nicht über den vollen 2π Raumwinkel über der Probe vorliegen, einen iterativen Algorithmus vor. Ausgehend von einer nach dem Algorithmus von Barton in (8.16) gewonnenen Ladungsverteilung soll ein Hologramm simuliert und durch Minimierung der Differenz zum gemessenen holographischen Datensatz verbessert werden. Möglicherweise lassen sich so auch die anderen hier beschriebenen Effekte, die vom Rekonstruktionsalgorithmus nicht berücksichtigt werden, unterdrücken.

Compton- und Raman-Streuung, Paarbildung, und Kern-Wechselwirkungen sind bei der hier benutzten Photonenenergien von $\sim 10\text{keV}$ vernachlässigbar und werden nur zur Vollständigkeit erwähnt.

8.6 Holographie mit Multilayer-Monochromator

In der MEX-Holographie ist nicht nur die Energie der einfallenden Strahlung variabel. Auch die Form des Energiespektrums kann teilweise verändert werden. Der in diesen Messungen verwendete Multilayer-Monochromator (s. Anhang C) liefert am Ablenkmagneten ein annähernd gaussförmiges Spektrum, mit dem Maximum bei der Photonenenergie $E = 10,655\text{keV}$ und einer Energiebreite von $\Delta E/E \approx 2\%$. Entsprechend war die Strahlintensität im Vergleich zur Messung mit einem Kristall-Monochromator wesentlich größer. Man vergleiche mit $\Delta E/E \approx 10^{-4}$ für einen Si-Kristall! Neben der für die Messung gewonnenen Intensität müssen aber die durch die zusätzliche spektrale Bandbreite entstandenen Effekte berücksichtigt werden.

Um die Kohärenz in der Röntgenholographie zu erhalten, muss hinreichend monochromatische Strahlung verwendet werden. Die longitudinale Kohärenzlänge $l_c = hc/\Delta E$ (s. Abschnitt 2.5) ist direkt von der Energiebreite ΔE abhängig. Sie wird in [BPS] als Abschätzung für den maximalen Radius der in der Röntgenholographie darstellbaren Umgebung angegeben.

Bei der MEX-Holographie ergibt sich ein Gangunterschied s zwischen gestreutem und direktem Strahl aus der Position des streuenden Atoms r_j relativ zum Detektoratom und der Wellenzahl \vec{k} des einfallenden Strahls. Die Phasendifferenz kann aus dem Exponenten in (8.5) als

$$\varphi = kr_j - \vec{k}\vec{r}_j \quad (8.18)$$

abgelesen werden und der Gangunterschied ergibt sich nach $s = \varphi/k$ aus der Wellenzahl k . Zwei Komponenten des Strahls mit unterschiedlichen Energien E_1, E_2 mit $\Delta E = E_2 - E_1$ besitzen im Interferenzsignal am Detektoratom ein um $\Delta\varphi = \Delta E/E \cdot \varphi$ verschobenes Interferenzsignal. Für einen Strahl mit energetischer Breite $\Delta E/E$ beträgt diese Differenz 2π , wenn der Gangunterschied gerade der longitudinalen Kohärenzlänge l_c entspricht. Für $\Delta\varphi \geq 2\pi$ wird sich das Interferenzsignal verwischen und es können keine Interferenzeffekte mehr beobachtet werden.

Für den Fall $\Delta E/E = 2\%$ und $E = 10\text{keV}$ ergibt sich $\Delta\varphi \approx 2\pi \cdot (s/62\text{\AA})$ bzw. eine Kohärenzlänge von $l_c = 62\text{\AA}$.

Welche Atome liefern in der Messung nun noch einen Interferenzbeitrag zum holographischen Signal? Der Gangunterschied s ist in den holographischen Messungen für Atome an den verschiedenen Positionen \vec{r}_j unterschiedlich und kann geschrieben werden als:

$$\begin{aligned} s &= \varphi/k \\ &= r_j(1 - \hat{k}\hat{r}_j) \\ &= r_j(1 - \cos(\vec{k}, \vec{r}_j)) \end{aligned} \quad (8.19)$$

Nur Atome mit $s < l_c$ liefern einen nicht verschwindenden Beitrag zum holographischen Signal. Man erkennt, dass bei Vorwärtsstreuung für parallele $\vec{k} \parallel \vec{r}_j$ der Gangunterschied $s = 0$ wird. (In MEXH ist der Wellenvektor der einfallenden Welle als $-\vec{k}$ definiert, daher gilt diese Aussage sowohl für XFH als auch für MEXH.) Die Verwendung eines breiten Energiespektrums führt zu starken Beiträgen der Atome in Vorwärtsstreuung, d.h. etwa aus einem Kegel um die Richtung von \vec{k} für die die Phasendifferenz $\Delta\varphi \leq 2\pi$ ist.

In [KM01] wird gezeigt, dass für ein vollkommen weißes Energiespektrum theoretisch nur noch die Atome in Vorwärtsstreuung zum gemessenen Signal beitragen. Man gelangt so zu einer Abbildung im Realraum, da die einfallende Strahlung nur dann ein starkes Fluoreszenzsignal liefern kann, wenn auch das

Referenzatom in Richtung der einfallenden Strahlung liegt. Die dort vorgestellten Messungen wurden allerdings ebenfalls an einer kristallinen Struktur, einem Si-Einkristall, der gleichzeitig als Detektor-Photodiode diente, durchgeführt, so dass auch hier Effekte einer periodischen Kristallstruktur auftraten.

In [BPS] werden holographische Messungen mit einer Röntgenröhre und einem durch zwei Filter geformten Energiespektrum vorgestellt. Bei diesen Messungen betrug die Energiebreite teilweise sogar $\Delta E/E = 10\%$.

Bei der holographischen Messung an Strukturen ohne Fernordnung sollte die Energiebreite des Spektrums keinen Einfluss auf die Darstellung der Umgebung des Detektoratoms haben. Für die durchgeführten Messungen an einem Einkristall ist keine einfache Aussage über die Auswirkungen möglich, da das beitragende Volumen eine Größe von etwa l_c^3 hat und in Cu_3Au somit etwa 10.000 Atome enthält.

8.7 Abschätzung der für ein Hologramm benötigten Messdauer

Wieviele Photonen müssen registriert werden, um aus den holographischen Daten die Umgebung eines Atoms rekonstruieren zu können?

Eine einfache Abschätzung wird z.B. in [Hio00] durchgeführt. Man fordert für die mittlere Varianz σ des holographischen Signals, gegeben durch $\sigma = \sqrt{N}$, mit der Anzahl gezählter Photonen N :

$$\sigma/N = 1/\sqrt{N} < |\chi| \tag{8.20}$$

Mit einer holographischen Amplitude von etwa $|\chi| = 10^{-3}$, wie sie in Abschnitt 8.2 für ein nächstes Nachbaratom in Cu_3Au ($r_c = 2,652\text{\AA}$) abgeschätzt wurde, ergibt sich die benötigte Photonenzahl zu $N_c = 1/|\chi|^2 = 10^6$. In dieser einfachen Abschätzung wird weder auf die k -Raum-Abdeckung eingegangen noch der Fall mehrerer zu rekonstruierender Atompositionen berücksichtigt.

Der Beitrag, den ein streuendes Atom nach (8.4) zum holographischen Signal liefert, nimmt linear mit dem Abstand ab. Die benötigte Photonenzahl für ein Atom nimmt daher quadratisch mit dem Abstand zu. Addiert man die für die Darstellung jedes einzelnen Atoms abgeschätzte Photonenzahl N_j in einem Cu_3Au -Kristall mit Radius r , so ergibt sich eine Abschätzung der für die

Darstellung des gesamten Kristalls benötigten Photonenzahl N :

$$\begin{aligned}
N &= \sum_j N_j \\
&\approx \sum_j (r_j/r_c)^2 \cdot N_c \approx \int_0^r dr 4\pi r^2 \rho_{at} (r/r_c)^2 \cdot N_c \\
&= \frac{4\pi \cdot \rho_{at}}{r_c^2} \frac{r^5}{5} \cdot N_c \\
&= \frac{4\pi \cdot 4(1/a)^3}{(2,652/3,75)^2 \cdot a^2} \frac{r^5}{5} \cdot N_c \approx \left(\frac{r}{a}\right)^5 \cdot 20 \cdot N_c
\end{aligned} \tag{8.21}$$

Die zur Rekonstruktion des Volumens benötigte Photonenzahl steigt also mit r^5 an. Der Radius des Volumens r wird auf die Gitterkonstanten von Cu_3Au $a = 3,75\text{\AA}$ bezogen.

Für die Darstellung eines Cu_3Au -Clusters von $r = 10\text{\AA}$ Radius werden demnach etwa $N = 3 \cdot 10^9$ Photonen benötigt. Für einen Cluster mit Radius $r = l_c$ und der Kohärenzlänge $l_c = 62\text{\AA}$, der in den Holographiemessungen verwendeten Strahlung (s. Abschnitt 8.6), ergibt sich etwa $N = 2 \cdot 10^{13}$.

Erfolgt die Datennahme mit einer Zählrate von 10^6 Photonen/s, so ergibt sich für die erforderliche Messdauer

$$t_{total} \approx \left(\frac{r}{a}\right)^5 \cdot 20 \text{ s.} \tag{8.22}$$

Für $r = 10\text{\AA}$ erhält man $t_{total} = 20 \text{ s}$, für $r = l_c$ wird $t_{total} = 2 \cdot 10^7 \text{ s}$, was 250 Tagen entspricht.

Kapitel 9

Holographische Messungen an Cu_3Au

9.1 Übersicht

Im Rahmen dieser Arbeit wurden holographische Messungen durchgeführt, bei denen zum ersten Mal der neue Analysator in Verbindung mit einem APD-Detektor eingesetzt und getestet wurde. Auch der in Anhang C beschriebene, aus Multilayern aufgebaute Monochromator wurde zum ersten Mal eingesetzt.

Die untersuchte Probe ist ein Cu_3Au -Einkristall, an dem Messungen bereits von T.Hiort (s. [Hio00]) im Rahmen ihrer Doktorarbeit durchgeführt wurden. Ein Einkristall ist für die Röntgenholographie zwar nicht gut geeignet (vergl. Abschnitt 8.5.2). Es wurde aber dennoch an dieser Probe gemessen, um zunächst den vollkommen neuen Messaufbau zu charakterisieren und um die mit dem Spektrum hoher Energiebreite gewonnenen Daten mit den früher aufgezeichneten vergleichen zu können. Zudem liefert der Kristall wegen der hohen Cu-Konzentration eine für die Messung hinreichend starke Fluoreszenzintensität.

Die Messungen wurden zunächst, wie in [Hio00], mit dem bekannten Detektor, einem energieauflösenden SD-Detektor, aber jetzt mit dem neuen Multilayer-Monochromator, begonnen. Anschließend wurden die Messungen mit dem Fluoreszenzanalysator und dem schnellen nicht-energieauflösenden APD-Detektor fortgesetzt. Eine Übersicht über alle durchgeführten Messungen findet sich im Anhang A.

Durch die Verwendung des schnelleren Detektors und die größere Intensität des Multilayer-Monochromators konnte eine Steigerung der Zählrate gegenüber dem alten Detektorsystem mit durchschnittlich 26.000s^{-1} auf das 10-fache (Messung 3) unter Verdoppelung der Strahlgröße erreicht werden. Es wurde auch der Versuch unternommen, durch weitere Vergrößerung der Spalte die Zählrate auf das 30-fache (Messung 4) zu erhöhen.

Bei identischem Strahlfleck hätte man also eine etwa 5-fach höhere Zählrate erhalten. Mit perfekt gebogenen Analysatorkristallen wäre eine etwa 250-fache Steigerung der Zählrate (gegenüber 26.000s^{-1}) möglich gewesen. Eine weitere Steigerung der Zählrate durch eine höhere Intensität des einfallenden Strahls ist, wenn Quelle und Probe dies erlauben, natürlich ebenfalls möglich.

Der Cu_3Au -Kristall enthält in hoher Konzentration Kupfer. Die Messung erfolgte also an einem nicht verdünnten System. Die zu erwartende relative Vergrößerung der Signal-Zählrate ist daher viel geringer als man dies an einem verdünnten System erwarten kann.

Zur Extraktion des holographischen Signals $\chi(\vec{k})$ wurden die Datensätze jeweils etwas unterschiedlich bearbeitet. Die durchgeführten Bearbeitungsschritte werden für die einzelnen Datensätze im Abschnitt 9.4 dargestellt. Es wurden keine Filterungen der Daten zur Unterdrückung hoher Frequenzen durchgeführt. In anderen Veröffentlichungen zur Holographie wurde dies getan, in der Hoffnung, mit Hilfe eines solchen Filters die Beiträge weit entfernter Atome aus den Datensätzen entfernen zu können und nur die Information aus einer nahen Atomumgebung zu behalten. Wie in [FNSM] gezeigt wird, ist dies aber nicht möglich.

Die aus den Datensätzen erhaltenen Rekonstruktionen werden im Abschnitt 10 präsentiert.

9.2 Cu_3Au

Auricuprid (Cu_3Au) besitzt die fcc-Struktur mit einem Au-Atom im Ursprung und drei flächenzentrierten Cu-Atomen je Einheitszelle (s. Abb. 9.1). Die Gitterkonstante (Kantenlänge der Einheitszelle) beträgt $a=3.748\text{\AA}$.

Der verwendete Probenkristall misst 2mm in der Höhe und 8mm im Durchmesser. Die Probenoberfläche ist etwa parallel zur (001)-Ebene, mit einer Verkippung von maximal $0,1^\circ$. Die Elementenzusammensetzung beträgt 24% Au und 76% Cu, mit einer Inhomogenität von $\pm 5\%$. Die Mosaizität in der (001)-Richtung beträgt $0,2^\circ$.

Tabelle 9.1 zeigt die Bindungsenergien der wesentlichen Schalen von Kupfer und Gold, Tabelle 9.2 die Emissionslinien der beiden Elemente. Für die verwendete Photonenenergie von $E_{ph} = 10,655\text{keV}$ kann in den Cu-Atomen die Bindungsenergie der Elektronen der K-Schale ($8,979\text{keV}$) überwunden werden. Die Cu-Atome werden daher zu Fluoreszenz der Energie $E_{Cu-K\alpha 1} = 8,0478\text{keV}$, $E_{Cu-K\alpha 1} = 8,0278\text{keV}$ oder $E_{Cu-K\beta 1} = 8,9053\text{keV}$ angeregt. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein angeregtes Atom unter Aussendung eines dieser Photonen zerfällt, beträgt $\omega_{K\alpha 1} = 0,263$, $\omega_{K\alpha 2} = 0,132$ und $\omega_{K\beta 1} = 0,059$. Für die Elektronen der Au L-Schale liegt die Bindungsenergie über der Photonenenergie E_{ph} und die Anregung von Fluoreszenzstrahlung im Röntgenbereich ist somit nicht möglich. Das Signal von der Probe enthält daher keinen Untergrund der Au-Fluoreszenzlinie.

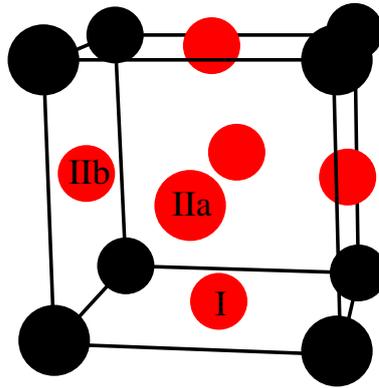


Abbildung 9.1: FCC-Struktur von Cu_3Au . Die Atome auf den Ecken der dargestellten Einheitszelle sind Au-Atome (schwarz), die flächenzentrierten sind Cu-Atome (rot). Man erkennt zwei unterschiedliche (001)-Ebenen mit einer halben Gitterkonstante Abstand. Eine der Ebenen enthält Cu- und Au-Atome, die andere Ebene enthält ausschließlich Cu-Atome. Die unterschiedlichen Kristallpositionen der Cu-Atome werden im Folgenden wie in der Graphik mit I, IIa und IIb bezeichnet.

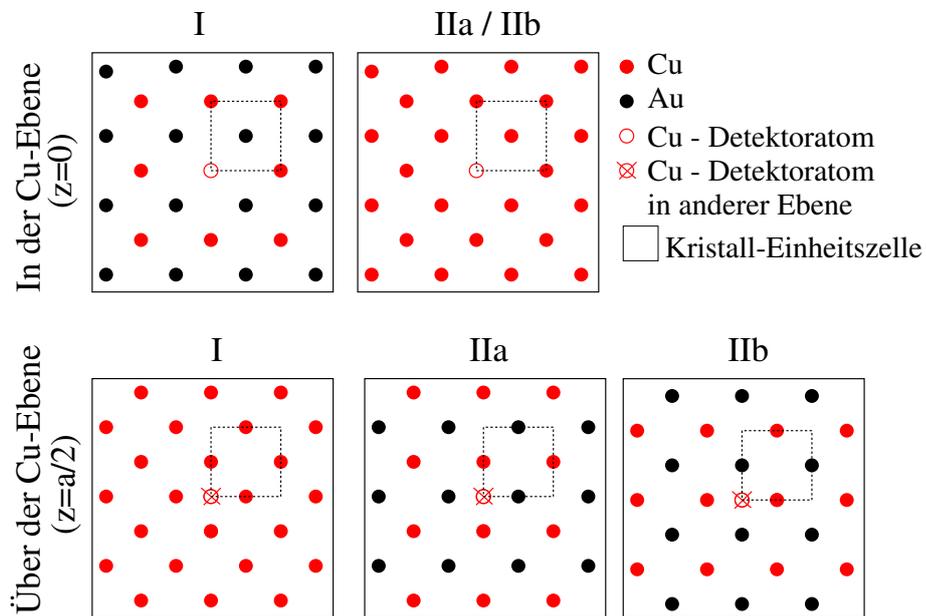


Abbildung 9.2: Die verschiedenen Umgebungen der Cu-Atome in Cu_3Au in der (001)-Ebene. *Oben*: Umgebung in der Ebene des jeweiligen Cu-Atoms. Die Ebenen für Cu-IIa und IIb unterscheiden sich nicht. *Unten*: Ebenen $a/2$ über bzw. unter den jeweiligen Cu-Atomen.

	K (1s)	L ₁ (2s)	L ₂ (2p _{1/2})	L ₃ (2p _{3/2})	M ₁ (2s)	M ₂ , ...
²⁹ Cu	8,979	1,096	0,952	0,933	0,123	...
⁷⁹ Au	80,725	14,353	13,734	11,919	3,425	...

Tabelle 9.1: Bindungsenergien von Kupfer und Gold bis zur L-Schale in keV nach [Vau86].

	K_{α_1}	K_{α_2}	K_{β_1}	L_{α_1}	L_{α_2}	L_{β_1}	L_{β_2}	L_{γ_1}
²⁹ Cu	8,0478	8,0278	8,9053	0,9297	0,9297	0,9498	-	-
⁷⁹ Au	68,804	66,990	77,984	9,7133	9,6280	11,4423	11,5847	13,3817

Tabelle 9.2: Emissionslinien von Kupfer und Gold in keV nach [Vau86].

Prinzipiell kann mit dem neuen Detektorsystem auch bei höheren Anregungsenergien gemessen werden, da die Au-Fluoreszenz die Messung mit dem Analysator nicht beeinflusst. Auch als Sekundärsignal kann die Au-Fluoreszenz verwendet werden. Hierzu muss allerdings ein anderer, in seiner Form an die Energie der Au-L _{α_1} Fluoreszenzphotonen angepasster Analysator verwendet werden.

Was erwartet man in der Rekonstruktion der Messdaten? Die Holographie liefert nur das überlagerte Bild der Umgebung aller Cu-Atome.

In der Einheitszelle eines Cu₃Au-Kristalls gibt es nur ein Au-Atom, so dass alle Au-Atome des Kristalls auf äquivalenten Positionen im Gitter sitzen. Hingegen ist Cu in der Einheitszelle auf drei Positionen verschiedener Symmetrie eingebaut. In Abb. 9.2 sind die verschiedenen Umgebungen der einzelnen Cu-Atome in der (001)-Ebene dargestellt. Die Ebenen der Cu-Atome selbst und die Ebenen mit einem Abstand $z=a/2$ zum jeweiligen Cu-Atom sind gezeigt.

Die Cu-Atome auf der (100)- und (010)-Fläche sitzen in einer Umgebung mit jeweils zweizähliger Symmetrie, die jeweils um 90° gegeneinander verdreht sind, sich aber in der Summe zu einer Umgebung 4-zähliger Symmetrie ergänzen. Das Cu-Atom auf der (001)-Fläche weist für sich schon eine vierzählige Symmetrie bezüglich der (001)-Drehachse auf. Das in der Röntgenholographie gemessene Signal ist die Überlagerung der Umgebungen aller Cu-Atome und besitzt dementsprechend ebenfalls die vierzählige Symmetrie des Kristallgitters.

Die Überlagerung aller Umgebungen eines Cu-Atoms, wie man sie aus der Rekonstruktion der gemessenen holographischen Daten in der (001)-Ebene erhalten sollte, ist in der folgenden Tabelle gezeigt. Die Spalte "Atome" gibt an, welche drei Atome sich an der entsprechenden Position relativ zur Cu-Position befinden, die Spalte " f_{ges} " den sich gesamt ergebenden Strukturfaktor für diese Position. Dabei wurde der Strukturfaktor f der Cu- und Au-Atome entsprechend der Kernladungszahl Z der Elemente angenommen. Für das Element Au mit $Z=79$ ist er deutlich größer als für Cu mit $Z=29$. Positionen mit einem höheren f_{ges} sollten auch in der Rekonstruktion entsprechend stärker erscheinen, da der Strukturfaktor direkt in das holographische Signal in (8.5) eingeht.

z	Position	Atome	$f_{ges} = \sum f_0$
z=0	$(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0) a + \vec{T}$	AuCu ₂	$79 + 2 \cdot 29 = 137$
	$(1, 0, 0) a + \vec{T}$	Cu ₃	$3 \cdot 29 = 87$
z=a/2	$(\frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}) a + \vec{T}$	AuCu ₂	$79 + 2 \cdot 29 = 137$

9.3 Durchführung der Messungen

9.3.1 Messaufbau

Für die Hologramm-messungen wurde der gleiche Messaufbau verwendet, der auch schon zur Charakterisierung des Analysators diente. Der Aufbau ist im Kapitel 7.1 ausführlich beschrieben. Alle Hologramm-messungen wurden im Oktober 2001 am Strahl CEMO bei HASYLAB durchgeführt: die Messungen 1+2 mit einem energieauflösenden SD-Detektor und die Messungen 3+4 mit dem neuen Detektorsystem aus Analysator und APD-Detektor.

Die Datennahme erfolgte in den Messungen mit dem energieauflösenden Detektor über einen Winkelbereich des Einfallswinkels θ von $\theta = 20^\circ - 79^\circ$. In den Messungen mit dem Analysator war nur ein Winkelbereich von $\theta = 20^\circ - 60^\circ$ zugänglich, da der Analysator im Pol der Probe platziert war. Prinzipiell kann bei räumlich festem Detektor (s. Abschnitt 9.3.3) auch bis zu höheren θ -Werten gemessen werden.

Die Daten aller durchgeführten Messungen wurden in diskreten Schritten von $\Delta\varphi = \Delta\theta = 1^\circ$ aufgenommen. Somit nimmt die Informationsdichte zum Pol der Probe ($\theta = 90^\circ$) hin zu. Die Anzahl der Messpunkte pro Raumwinkel ist dort am höchsten.

Die Messungen wurden zum großen Teil im **“kontinuierlichen Modus”** durchgeführt, was bedeutet, dass die Probe während der Datennahme kontinuierlich um die φ -Achse rotiert wurde. Gezählte Photonen wurden dabei über Schritte von $\Delta\varphi = 1^\circ$ aufintegriert. Bei Messungen mit nicht kontinuierlicher Datennahme wurde zunächst die φ -Position angefahren und dann ortsfest gemessen. Nach der Aufnahme einer vollständigen Rotation wurde der einfallswinkel θ um 1° erhöht. Im kontinuierlichen Modus erreicht man integral eine vollständige Abdeckung des φ -Winkelbereichs während der θ -Bereich nicht vollständig abgefahren wird. Durch Divergenz des einfallenden Strahls ergibt sich aber auch in den MEXH-Messungen ein über leicht verschiedene Einfallswinkel θ integriertes Signal. Die Abtastung des k -Raums ist bei der Messung an Kristallen in jedem Fall nicht zufriedenstellend möglich, da das holographische Signal hohe Frequenzkomponenten enthält (Kossellinien führen zu “undersampling”). Die Integration über einen ausreichend großen Winkelbereich sollte aber zumindest reproduzierbare Ergebnisse liefern, die nicht von der “zufälligen” Orientierung der Einfallsrichtung abhängen.

Die Dauer für die Aufnahme einer vollständigen Rotation um die Probenachse

betrug etwa 7 Minuten, die Aufnahme eines vollständigen Datensatzes in φ und θ somit einige Stunden. Für alle Messaufbauten wurden mehrere Datensätze gemessen, teilweise vollständig innerhalb eines Synchrotronstrahlungslaufes (d.h. zwischen zwei aufeinander folgenden Strahlinjektionen).

Um die Stabilität des vom Monochromator gelieferten Energiespektrums zu gewährleisten, wurde nach einer Strahlinjektion einige Minuten gewartet, bevor mit einer neuen Messung begonnen wurde. Dennoch zeigen sich in den Messdaten (in der Messung 1) einige leichte unperiodische Oszillationen im Ionisationskammersignal, die vermutlich auf thermische Effekte an den Multilayern oder Strahlageschwankungen zurückzuführen sind. In den anderen Messungen erscheinen diese Oszillationen der einfallenden Strahlungsintensität nicht.

9.3.2 Justage

Die Justage des Diffraktometers wurde mit Hilfe einer feinen Nadel auf dem Goniometerkopf des Drehkreises (φ -Achse) durchgeführt. Zunächst wurde die Nadel mit einer Genauigkeit von circa $\pm 0,1$ mm in das Drehzentrum des Diffraktometers (θ -Achse) und der φ -Achse gebracht. Anschließend wurde die Goniometernadel in das Zentrum des einfallenden Strahls verfahren.

Die Goniometernadel wurde nun durch die gehaltete Probe ersetzt und die Probenoberfläche mit Hilfe eines Theodoliten auf die alte Nadelhöhe eingestellt. Die Orientierung der Oberfläche senkrecht zur φ -Achse erfolgte mit Hilfe eines von der Kristalloberfläche reflektierten Laserstrahls. Die Verkippwinkel des Goniometerkopfes wurden nachgestellt, bis sich der reflektierte Laserstrahl bei Rotation der Probe um die φ -Achse nahezu nicht mehr bewegte. Diese Justage ist erforderlich, um die einfache Absorptionskorrektur nach (8.11) zu ermöglichen. Ohne diese Justage würde sich der Einfallswinkel θ über den φ -Scan zu stark ändern.

9.3.3 Gemischte Messungen

Die Signalamplitude der direkten (XFH) und der reziproken (MEXH) Röntgenholographie entsteht gleichzeitig. Die gemessene Fluoreszenzintensität ist sowohl von der Einfallsrichtung der anregenden Strahlung, als auch von der Ausfallsrichtung der Fluoreszenzstrahlung abhängig. Ändert sich eine der Richtungen, so werden die Intensitätsschwankungen entsprechend der XFH- bzw. MEXH-Methode sichtbar.

Versucht man das reine MEXH-Signal zu messen, so muss man eine Überlagerung mit dem XFH-Signal verhindert werden. Dies kann praktischerweise durch die Beibehaltung der Detektorposition relativ zur Probe erreicht werden. Man misst über die Änderung des Einfallswinkels so nur das MEXH-Signal und vermeidet jegliche Variationen durch die XFH-Struktur.

Für die hier durchgeführten Messungen bedeutet dies, dass der Detektoraufbau synchron mit der Probe um die θ - und die φ -Achse rotiert werden müsste. Wir haben jedoch auf die Rotation des Detektorsystem um die φ -Achse verzichtet, da dies für die Messungen einen zusätzlichen Aufwand bedeutet hätte, der für den qualitativen Test des neuen Systems nicht erforderlich ist. Es wurde aber darauf geachtet, dass durch die Positionierung des Detektorsystems im Pol der Probe, die Effekte der gemischten Messung des XFH- und MEXH-Signals minimiert wurden. Dies setzt aber einen um die φ -Achse hinreichend homogenes Detektorsystem voraus. Ist dies nicht gegeben, können Überlagerungen des XFH-Signals in den Daten vorhanden sein.

Wird der Analysator nicht um die φ -Achse gedreht, so ist es prinzipiell möglich durch die Entfernung eines Kristalls eine Lücke zu schaffen, durch die der einfallende Strahl hindurchtreten kann. Der erreichbare maximale θ -Winkel kann so vergrößert werden.

9.4 Messdaten

9.4.1 Messungen 1 und 2, mit energieauflösendem SD-Detektor

In den Messungen 1 und 2 wurde ein SD-Detektor der Firma Roentec mit einer aktiven Fläche $A_{SDD} = 5\text{mm}^2$ und einer Nachweiswahrscheinlichkeit für Cu- K_α -Strahlung von $\epsilon_{SDD} \approx 1$ benutzt. Der Abstand des Detektors zur Probe wurde als $d_{SDD} = 60\text{mm}$ gewählt, so dass die Zählrate einen für diesen Detektor optimalen Wert von etwa $\sim 26,000$ Photonen/s betrug. Es ergibt sich somit ein abgedeckter Raumwinkel von $\Omega_{SDD} = A_{SDD}/(4\pi d_{SDD}^2) = 4\pi \cdot 8,79 \cdot 10^{-6}$. Die Strahlgröße betrug in beiden Messungen $0,2 \times 0,05\text{mm}^2$ und der einfallende Photonenfluss wurde nach (4.4) zu $2,55 \cdot 10^9$ Photonen/s berechnet.

Die Messung 2 wurde im Gegensatz zur Messung 1 im kontinuierlichen Modus durchgeführt. Es konnten jedoch keine prinzipiellen Unterschiede zwischen den Daten festgestellt werden, so dass hier nur die Ergebnisse der Messung 2, in der insgesamt 17 Datensätze aufgenommen wurden, vorgestellt werden. Die ersten vier Datensätze wurden vor einer HASYLAB-Servicewoche (Messzeitunterbrechung), die übrigen im Anschluss daran aufgenommen. Die Messungen nach der Servicewoche wurden mit einer kürzeren Messdauer pro Messpunkt durchgeführt ($t_{mess} = 0,66\text{s}$ statt $t_{mess} = 0,88\text{s}$). Wo sich die Parameter der Datensätze unterscheiden, werden diese im Anhang A getrennt aufgeführt.

Die gemessenen Daten sind in Abb.9.3 dargestellt. Es ist ein mit dem Ionisationkammersignal normierter einzelner Datensatz vor und nach der Bearbeitung, sowie die Summe aller bearbeiteten Datensätze dargestellt. Die Bearbeitung umfasste folgende Schritte: 1.) Totzeitkorrektur nach (5.2). 2.) Normierung auf das

Ionisationskammersignal. 3.) Absorptionskorrektur nach (8.11), wobei für jede φ -Position die optimalen Parameter c_1, c_2 durch die Methode des kleinsten Abstandquadrates angepasst wurden.

Der dargestellte Datensatz vor der Totzeitkorrektur enthält eine leicht erkennbare Stufe. Während der Messung wurde hier der Speicherring neu gefüllt und anschließend mit höherer Zählrate weitergemessen. Die Stufe konnte durch die Berechnung der Totzeitkorrektur vollständig aus den Daten entfernt werden.

Man findet in den Messungen 1+2 leichte Artefakte, die 4-fache Symmetrie aufweisen und am Kreuzungspunkt zweier Kossellinien (s. Abschnitt 8.5.2) der Orientierung (111) auftreten. Sie sind wahrscheinlich auf Bragg-Reflexionen der kristallinen Probe zurückzuführen, durch die der einfallende Strahl direkt von der Probe in den Detektor reflektiert wurde. Ähnliche Artefakte zeigt das Signal eines zweiten SD-Detektors, der in einer seitlichen Position montiert war. Dort erscheinen sie aber an anderen Winkelpositionen. Es handelt sich hier also nicht um ein holographisches Signal.

In den Daten lassen sich auch Kosselkegel um die (001)-Richtung (φ -Achse) erkennen. Man sieht die Kegel der Ordnung (004) bei $\theta = 38,4^\circ$ und (006) bei $\theta = 68,5^\circ$. Diese sind wegen der groben Abtastung in Schritten von 1° nur teilweise getroffen und nicht so deutlich zu erkennen wie die anderen Kossellinien.

9.4.2 Messung 3, mit Fluoreszenzanalysator

In Messung 3 wurde der Fluoreszenzanalysator in Verbindung mit einem APD-Detektor eingesetzt. Die aktive Fläche des Detektors betrug $A_{det} = 10 \times 10\text{mm}^2$ und erfasste somit annähernd die gesamte vom Analysator fokussierte Strahlung. Der durch den Analysator abgedeckte Raumwinkel betrug $\Omega_{spiral} \approx 0,02 \cdot 4\pi$.

Die Strahlgröße wurde in dieser Messung auf $0,2 \times 0,1\text{mm}^2$ erhöht, wodurch sich der einfallende Photonenfluß etwa verdoppelte. Die mittlere Zählrate konnte so auf 244.000 Photonen/s gesteigert werden. Aus diesen Werten ergibt sich für die Effizienz des Detektoraufbaus $\epsilon \approx 1,83 \cdot 10^{-3}$. Dieser Wert ist größer als der für Fluoreszenzanalysator und SD-Detektor (vergl. Abschnitt 7.5).

Man erreicht einen effektiven abgedeckten Raumwinkel von $\Omega_{spiral} \cdot \epsilon_{spiral} \approx 3,7 \cdot 10^{-5} \cdot 4\pi$. Dieser ist um einen Faktor ~ 4 größer als der in den Messungen 1+2 mit dem SDD abgedeckte Raumwinkelwinkel.

Diese Messung wurde im kontinuierlichen Modus über einen Winkelbereich von $\theta = 20^\circ - 69^\circ$ durchgeführt. Es wurden insgesamt 7 vollständige Datensätze aufgenommen.

Die gemessenen Daten sind in Abb. 9.4 dargestellt. Es ist ein mit dem Ionisationskammersignal normierter einzelner Datensatz vor und nach der Bearbeitung, sowie die Summe aller bearbeiteten Datensätze dargestellt. Die Bearbeitung umfasste folgende Schritte: 1.) Normierung auf das Ionisationskammersignal. 2.)

Normierung auf eine konstante Funktion für alle φ -Scans, d.h. für die einzelnen Datensätze zu jeder θ -Position. Die Funktion wurde durch die Methode der kleinsten Abstandsquadrate an die φ -Scans angepasst.

Eine Absorptionskorrektur nach (8.11) konnte nicht durchgeführt werden, da das Signal in den Datensätzen als Funktion von θ oszilliert. Der Ursprung dieser Oszillationen ist bisher nicht verstanden. Eine Totzeitkorrektur nach (5.11) wurde durch die Normierung auf die konstante Funktion unnötig, da die absolute Zählrate sich während eines φ -Scans nur unwesentlich ändert. Allerdings geht durch diese Normierung Information aus den Datensätzen verloren.

Die Oszillationen, im durch das Ionisationskammersignal normierten Signal, sind als Funktion von θ summiert über alle φ -Werte für zwei Datensätze der Messung 3 in Abb. 9.5 dargestellt. Sie zeigen für beide Datensätze einen ähnlichen aber nicht völlig identischen Verlauf. Eine systematische Abhängigkeit von der θ -Richtung ist erkennbar.

Bei zukünftigen Messungen sollte auf jeden Fall während der Messungen ein Taktgeber mitgezählt werden (war hier nicht der Fall), um einen Einfluss der Messelectronik vollständig auszuschließen. Oszillationen, wie sie bei der Messung 1 im Ionisationskammersignal auftauchten (vergl. Abschnitt 9.3.1), traten bei diesen Messungen nicht auf. Durch die systematische Abhängigkeit von der θ -Position liegt die Vermutung nahe, dass die Oszillationen durch einen geometrischen Effekt erzeugt werden und tatsächlich eine Abhängigkeit von der θ -Position des Messaufbaus vorhanden ist.

Der gemessene Datensatz ist neben den Oszillationen frei von Artefakten und durch die höhere Anzahl gesamt gezählter Photonen pro Raumpunkt deutlich weniger verrauscht als der Datensatz der Messung 2.

9.4.3 Messung 4, mit Fluoreszenzanalysator und APD, hohe Zählrate

In der Messung 4 wurde die Strahlgröße gegenüber der Messung 3 nochmals verdoppelt auf $0,2 \times 0,2 \text{ mm}^2$. Der Photonenstrom lag im Mittel fast dreimal so hoch wie in Messung 3 und die mittlere Detektorzählrate konnte auf 781.000 Photonen/s gesteigert werden.

Es wurde nur ein vollständiger Datensatz aufgenommen. Die gemessenen Daten sind in Abb. 9.6 dargestellt. Es ist ein auf das Ionisationskammersignal normierter einzelner Datensatz vor und nach der Bearbeitung dargestellt. Bei der Bearbeitung wurde der Datensatz 1.) über das Ionisationskammersignal normiert und 2.) eine Absorptionskorrektur nach (8.11) über den von Artefakten (s. unten) freien Bereich durchgeführt und auf den Rest der Daten extrapoliert.

In den Messdaten sind die gleichen Oszillationen wie schon in Messung 3 zu erkennen. Zudem zeigt der Datensatz starke Artefakte, die die Amplitude des holographischen Signals χ um mehr als das 100-fache übersteigen. Die Artefakte

zeigen 4-fache Symmetrie (s. Schnitt entlang der φ -Richtung in Abb. 9.7) und sind daher höchstwahrscheinlich auf Bragg-Reflexionen von der Probe zurückzuführen. Durch die zusätzlich Vergrößerung des Strahlflecks wird unter Umständen die einfallende Strahlung von der Probe Bragg-reflektiert. Der reflektierte Strahl kann auf Grund des Absorbers im Analysator nicht direkt in den Detektor fallen, sondern trifft vermutlich zunächst einen Teil des Analysators und wird dann vom Analysator in den Detektor reflektiert oder gestreut.

9.5 Statistische Auswertung der Messdaten

Als Maß für die Messgenauigkeit, mit der das holographische Signal in den einzelnen Messungen bestimmt wurde, soll die Standardabweichung des holographischen Signals χ angegeben werden. Die gemessenen Daten sollten, sofern keine weiteren Einflüsse auf das Messsignal vorliegen, der Zählstatistik nach Poisson, die im Anhang B beschrieben wird, genügen.

$\bar{\chi}$ sei der Mittelwert über die einzelnen Datensätze i des Signals $\chi_i(\theta, \varphi)$. Der Mittelwert über alle θ, φ -Positionen einer Größe f sei im Folgenden mit $M(f)$ bezeichnet.

Es wurde zunächst für alle θ, φ -Werte aus den Datensätzen die empirische Standardabweichung $S(\bar{\chi})$ berechnet und anschließend der Mittelwert $M(S(\bar{\chi}))$ gebildet.

Zum Vergleich wurde die Standardabweichung σ nach der Poissonverteilung berechnet. Diese ergibt sich aus der Anzahl insgesamt gezählter Photonen N nach $\sigma = \sqrt{N}$. Auch hier wurde der Mittelwert $M(\sigma)$ berechnet.

	Messung			
	1	2	3	4
Datensätze n	2	17	7	1
$M(N_{\theta, \varphi})$	52.634	314.152	1.125.922	488.958
$M(1/\sqrt{N_{\theta, \varphi}})$	0,0044	0,00182	0,00095	0,0014
$M(S(\bar{\chi}_{\theta, \varphi}))$	-	0,00181	0,000915	-
$M(\bar{\chi})$	0.0032	0,00173	0,00106	-

Die Bestimmung der empirischen Standardabweichung S ist nur für eine ausreichend große Stichprobe sinnvoll. Werte wurden daher nur für die Messungen 2+3 mit $n=7$ bzw. $n=17$ Datensätzen angegeben.

Der Mittelwert der Standardabweichung $M(S)$ stimmt sehr gut mit dem nach der Poissonstatistik berechneten überein. Man kann also davon ausgehen, dass die Datennahme und die Bearbeitung der Messdaten reproduzierbar erfolgte. Die Poissonstatistik ist offenbar auf die Verteilung der Zählereignisse anwendbar.

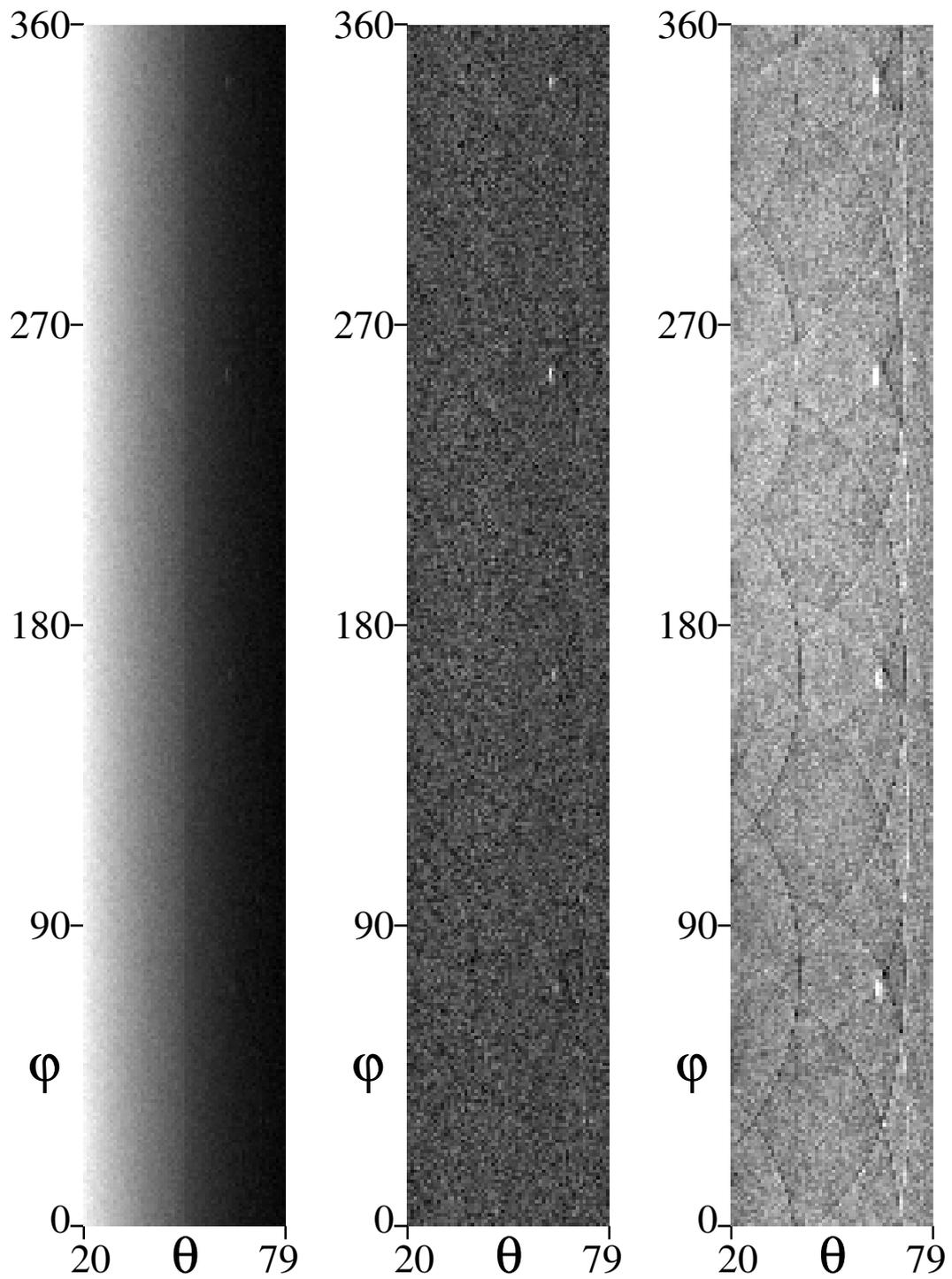


Abbildung 9.3: **Messung 2 mit SD-Detektor** - *links*: Normierter Datensatz, *mitte*: nach Totzeitkorrektur und Absorptionskorrektur mit Absorptionsfunktion, *rechts*: alle korrigierten Datensätze aufaddiert.

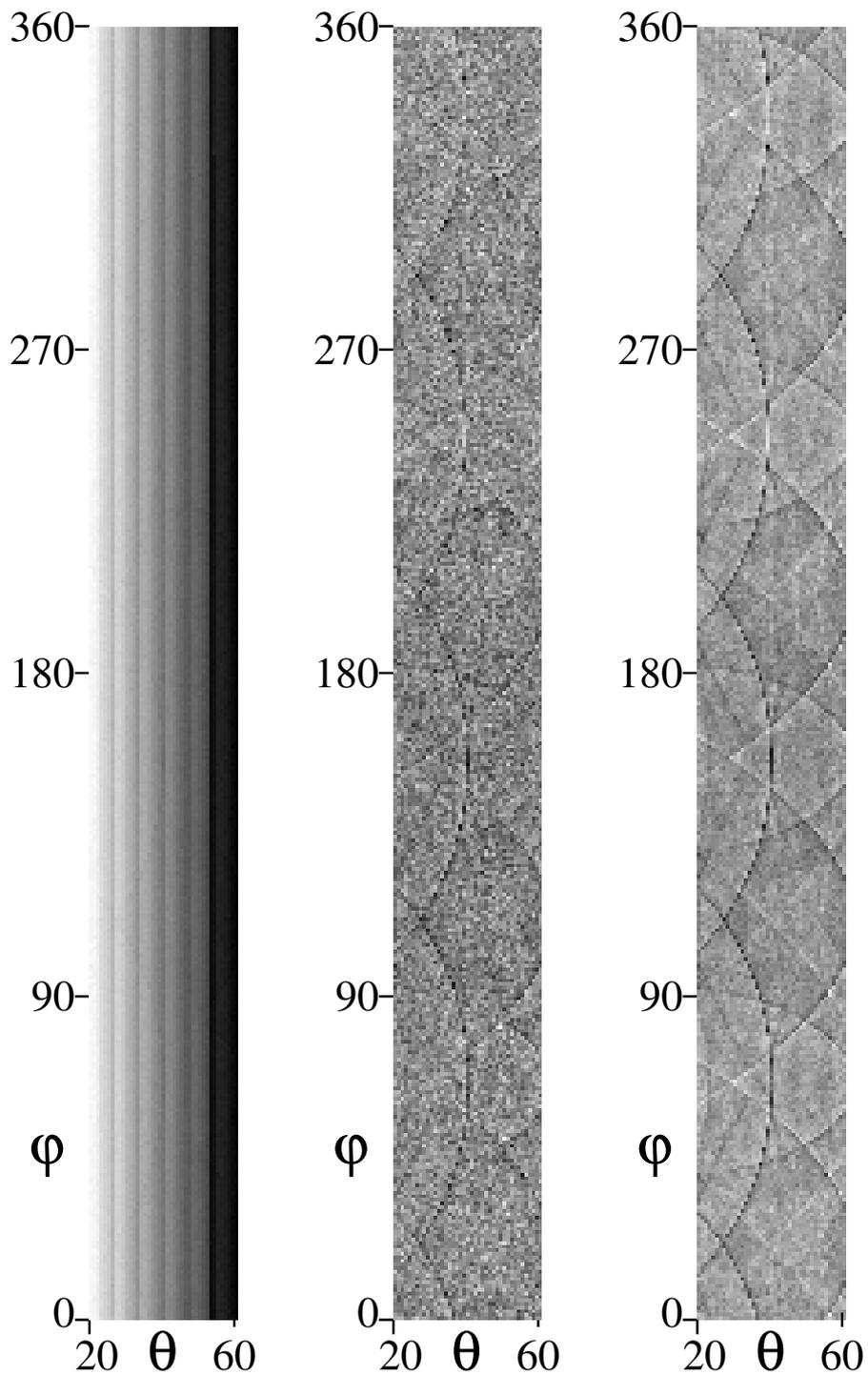


Abbildung 9.4: Messung 3 mit Analysator und APD - *links*: Normierter Datensatz, *mitte*: nach Totzeitkorrektur und Absorptionskorrektur für einzelne θ -Werte, *rechts*: alle korrigierten Datensätze aufaddiert.

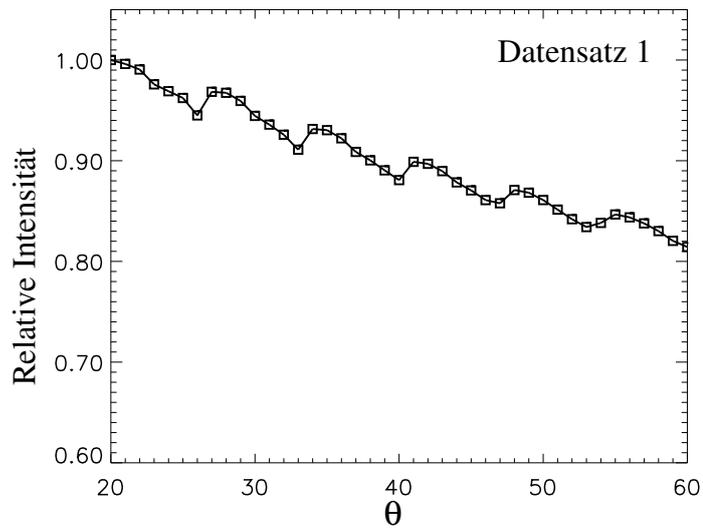
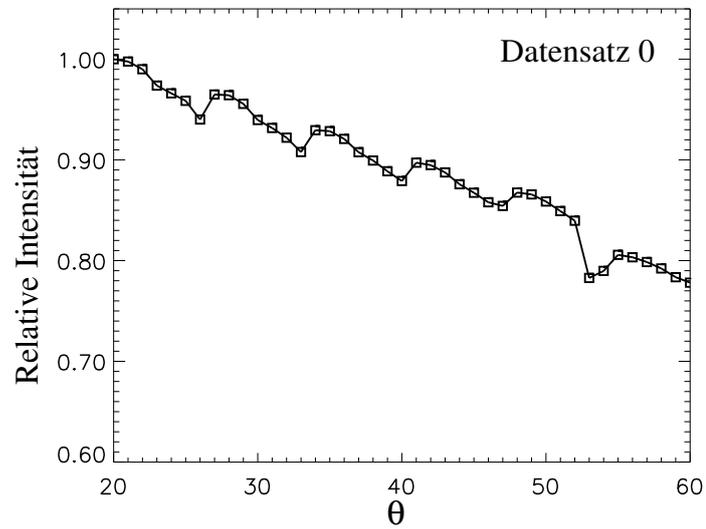


Abbildung 9.5: Oszillation in zwei Datensätzen der Messung 3. Es ist die relative Intensitätsschwankung in der Messung als Funktion von θ nach der Normierung durch das Ionisationskammersignal dargestellt. Das Signal aller φ -Positionen wurde addiert.

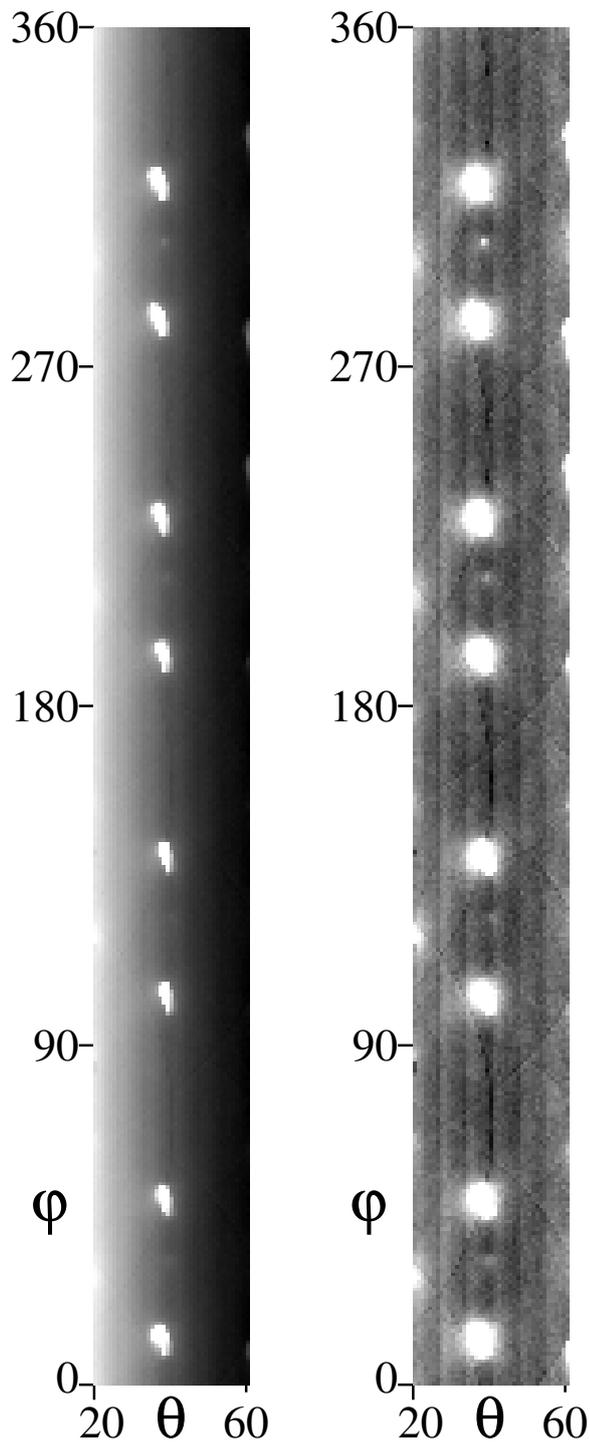


Abbildung 9.6: Messung 4 mit Analysator und APD - *links*: Normierter Datensatz, *mitte*: nach Totzeitkorrektur und Absorptionskorrektur mit extrapolierte Funktion. Es wurde nur ein vollständiger Datensatz aufgenommen. Die maximale Intensität der Strahlung ist etwa dreimal größer als die durchschnittliche Intensität. Im bearbeiteten Datensatz (*mitte*) wurde in der Darstellung bei 1% der maximalen Amplitude abgeschnitten.

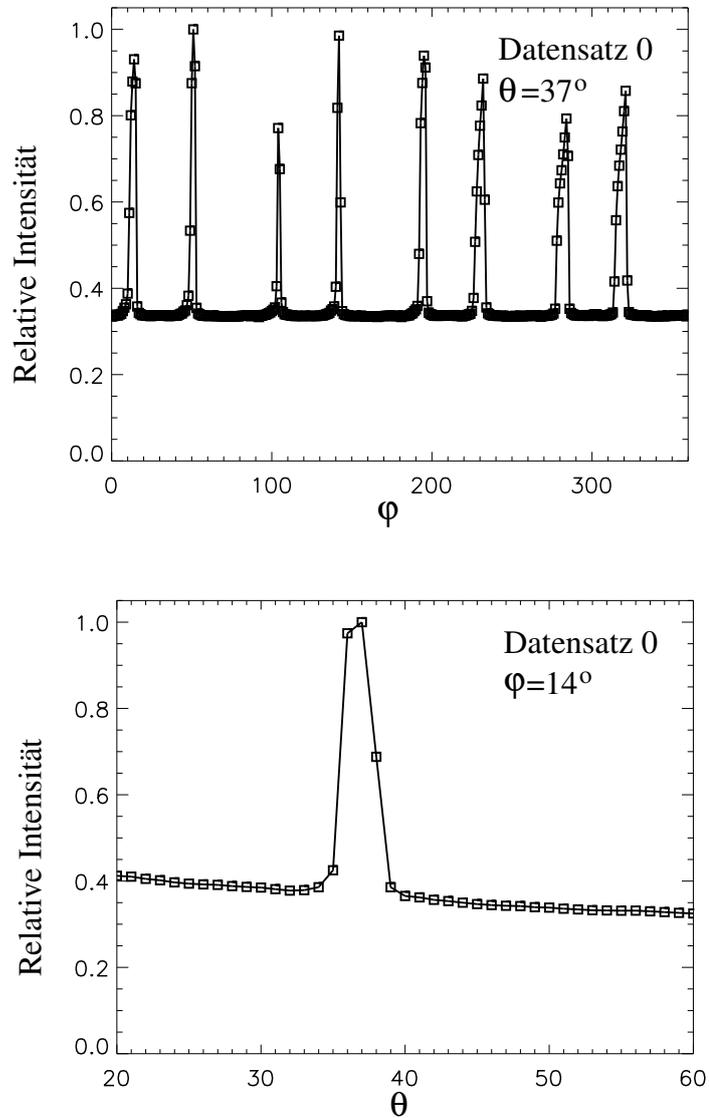


Abbildung 9.7: Schnitt durch die Maxima der Artefakte in Messung 4. *Oben:* Schnitt bei $\theta = 37^\circ$. *Unten:* Schnitt bei $\varphi = 14^\circ$. Es ist die relative Intensitätsschwankung in der Messung als Funktion von θ nach der Normierung durch das Ionisationskammersignal dargestellt.

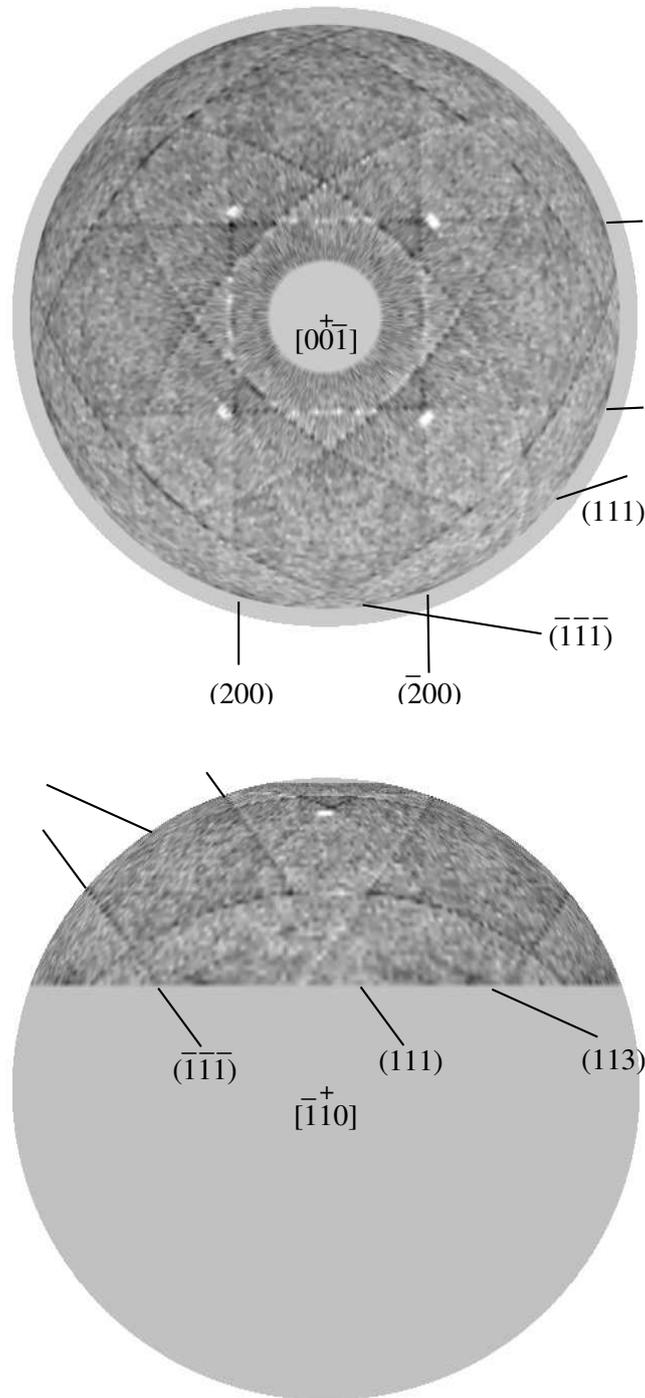


Abbildung 9.8: **Messung 2 mit SDD, Polardarstellung** - Die Kossellinien der Ordnungen (200), (111) und (311) sind deutlich erkennbar. *Oben:* Blickrichtung $[00\bar{1}]$. *Unten:* Blickrichtung $[\bar{1}10]$.

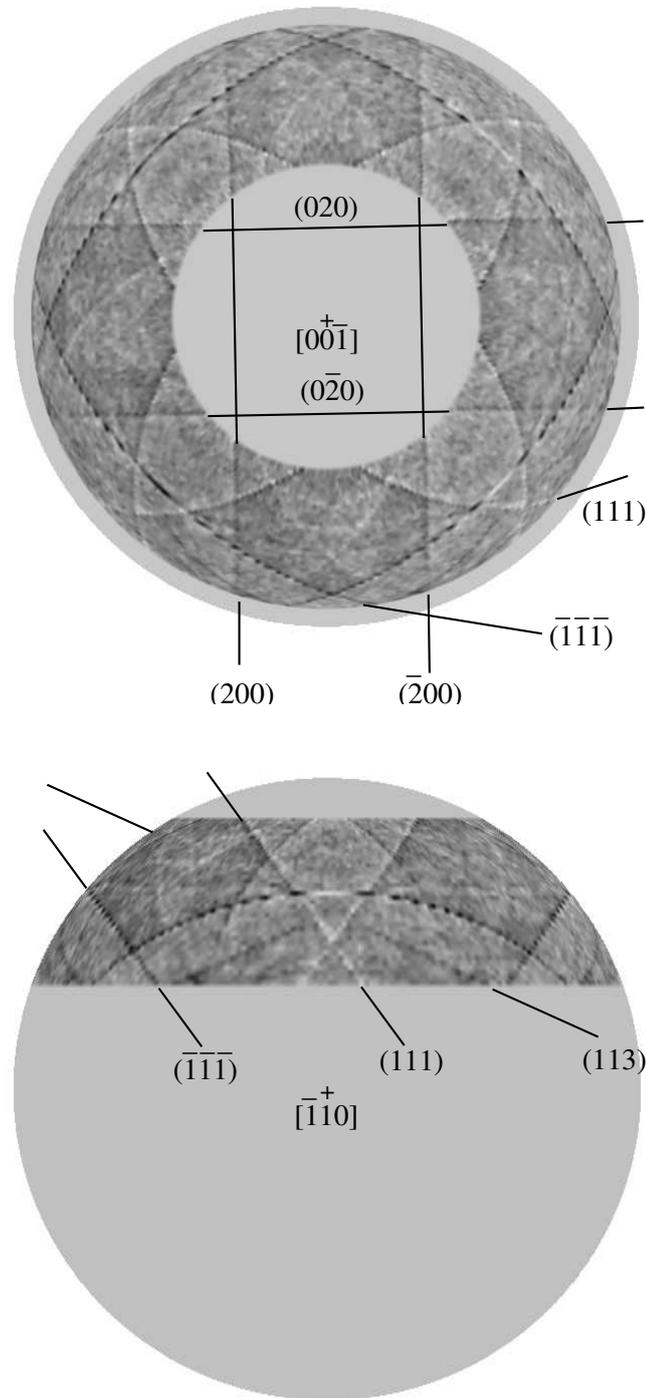


Abbildung 9.9: **Messung 3 mit Analysator und APD, Polardarstellung** - Die Kossellinien der Ordnungen (200), (111) und (311) sind deutlich erkennbar. *Oben:* Blickrichtung $[00\bar{1}]$. *Unten:* Blickrichtung $[\bar{1}\bar{1}0]^+$.

In der Messung 3 konnte der mittlere Messfehler $M(S)$, entsprechend der höheren insgesamt gezählten Photonenzahl $N_{\theta,\varphi}$ pro θ, φ -Wert, gegenüber der Messung 2 verbessert werden.

Die empirische Varianz spiegelt nicht unbedingt die tatsächliche Qualität des Signals wieder. So bleiben systematische Fehler, die in allen bearbeiteten Datensätzen einer Messung immer wieder gleich auftreten, unberücksichtigt. Dennoch ist die Angabe der empirischen Varianz als Maß für die Reproduzierbarkeit der Einzelmessung sinnvoll.

Da die korrigierten Daten erst nach der Normierung durch das Ionisationskammersignal und den weiteren Bearbeitungsschritten zur Berechnung von S^2 verwendet werden, gehen auch ungleiche Behandlungen der einzelnen Datensätze sowie der Fehler auf dem Signal der Ionisationskammer in die empirische Varianz ein. Man besitzt somit eine gute Kontrollmöglichkeit, ob z.B. eine Totzeitkorrektur tatsächlich eine Verbesserung der Datensätze bewirkt hat und ob das Ionisationskammersignal ausreichend genau ist.

In der Tabelle ist auch die über alle θ, φ -Werte gemittelte Amplitude des holographischen Signals $M(|\bar{\chi}|)$ angegeben. Für Messung 4 konnte wegen der starken Artefakte im Signal kein Wert bestimmt werden. Für alle anderen Messungen erkennt man, dass die mittlere Signalamplitude von ähnlicher Größe wie der mittlere Messfehler ist. Das Signal liegt also im Mittel im oder unter dem Rauschsignal. Für Kristalle ist allerdings auch nur an wenigen θ, φ -Positionen eine deutliche Signalamplitude zu erwarten (vergl. Anhang 8.5.2). Daher sind in einigen Bereichen der Daten deutliche Strukturen zu erkennen (an den Kossellinien), während die Bereiche dazwischen stark verrauscht sind.

9.6 Rekonstruktion der Messdaten

Die gemessenen Daten, der mit SD-Detektor durchgeführten Messung 2 und der mit Analysator und APD-Detektor durchgeführten Messung 3, wurden rekonstruiert und sind in Abb. 9.10 und Abb. 9.11 dargestellt. Als Rekonstruktionsebenen wurde die zur (001)-Richtung parallele Ebene des Detektoratoms ($z=0$) und die um eine halbe Gitterkonstante versetzte Ebene ($z=a/2$) gewählt. Die zu erwartenden Positionen von Streuatomen wurden schon im Anhang 9.2 beschrieben und sind in den Rekonstruktionen, ebenso wie die Einheitszelle von Cu_3Au , gestrichelt eingezeichnet.

Die Rekonstruktionen wurden nach dem Algorithmus von Barton (8.17) für eine Wellenzahl k durchgeführt. Die Darstellung des rekonstruierten $U_k(\vec{r})$ erfolgt hier wie bei [Len97] durch die Ausgabe von $|U_k(\vec{r})|^2 \cdot r^2$ mit einer zusätzlichen Wichtung durch den Abstand zum Ursprung r .

Die Abbildungen enthalten zusätzlich zu den einfachen Rekonstruktionen auch 4-fach symmetrisierte Darstellungen. Hier wurde die bekannte Symmetrie der

Probe zur φ -Achse bzw. (001)-Richtung genutzt und die Rekonstruktionen $U_k(\vec{r})$ für die vier äquivalenten Orientierungen addiert. Die Darstellungen der ($z=0$)-Ebene weisen bereits vor der 4-fach Symmetrisierung 2-zählige Symmetrie auf, da die Rekonstruktion, wie in Abschnitt 8.5.1 gezeigt, zentrosymmetrisch ist.

In der Messung 2 erkennt man deutlich, dass Oszillationen der Periode $\lambda/2$ (Wellenlänge bei Photonenenergie $E_{ph} = 10,655\text{keV}$ ist $\lambda = \frac{12,398}{10,655}\text{\AA} = 1,164\text{\AA}$) in zwei Kegeln vom Ursprung auslaufen. Derartige Oszillationen entstehen durch einen sinusförmigen Untergrund auf den Messdaten, wie er durch eine nicht vollständig parallel zur Drehachse orientierte Oberflächennormale der Probe verursacht wird. Durch die 4-fache Symmetrisierung wird der sinusförmige Untergrund aber vollständig unterdrückt.

Im Vergleich der Rekonstruktion der Messung 3 (mit Analysator) mit der Messung 2 (SD-Detektor) erkennt man die mit dem Analysator erreichten viel deutlicheren Konturen. Dies ist auf die höhere Zahl gemessener Photonen zurückzuführen, die eine annähernde Halbierung der Streuung S des Messsignals der Messung 3 gegenüber der Streuung S in Messung 2 bewirkte.

In der symmetrisierten Rekonstruktion der Messung 2 lassen sich fast keine Strukturen erkennen. Dagegen scheinen in der Messung 3 die Atome bei $(\pm a, \pm a, 0)$ deutlich erkennbar zu sein. Die anderen Atompositionen dieser Ebene zeigen ein etwas weniger starkes Signal. In der ($z=a/2$)-Ebene erkennt man ein deutliches Signal in der Nähe der inneren vier Atomposition. Diese scheinen, wie auch die Atome in der ($z=0$)-Ebene, leicht nach außen verschoben zu sein. Dieser Effekt kann durch die Vernachlässigung der Nahfeldeffekte bei der Rekonstruktion entstanden sein.

Es ist allerdings fraglich, ob das rekonstruierte $|U_k(\vec{r})|^2 \cdot r^2$ überhaupt die Maxima der Ladungsdichte zeigen kann. Es wurde hier an einem kristallinen System gemessen, das für die Röntgenholographie nicht gut geeignet ist. Die Datennahme erfolgte zudem nicht über den vollen Raumwinkel. Trotz dieser Einschränkungen sind in den Rekonstruktionen Gitterpositionen und Symmetrierichtungen des Probenkristalls teilweise sehr deutlich zu erkennen. Dies lässt sich erklären, da die in den Daten vorhandenen Kossellinien die Symmetrie und die Periodizität des Gitters widerspiegeln.

Die Rekonstruktionen in dieser Arbeit können also nicht mit der Ladungsdichteverteilung des Probenkristalls verglichen werden. Da die Struktur der Probe aber bekannt ist, können die hier gemessenen Hologramme und Rekonstruktionen mit simulierten Daten verglichen werden. Nur so lässt sich zeigen, dass diese die richtige Strukturinformation enthalten. Simulationen wurden im Rahmen dieser Arbeit aber noch nicht durchgeführt.

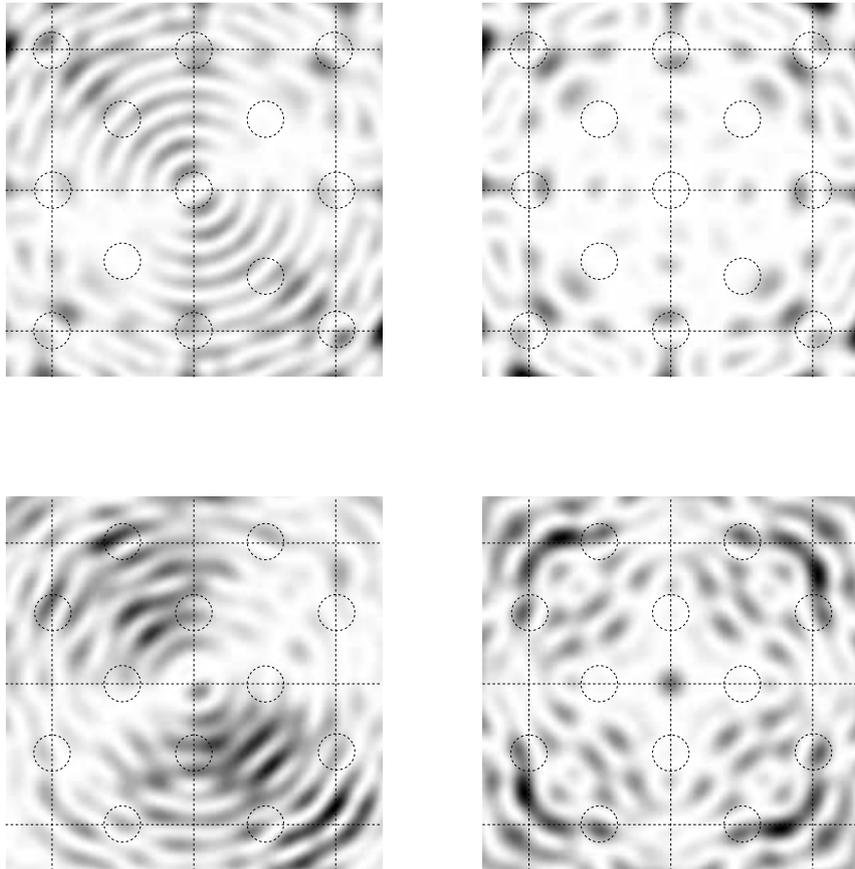


Abbildung 9.10: **Rekonstruktion der Messung 2 mit SD-Detektor** - *Oben, links*: Rekonstruktion der ($z=0$)-Ebene. *Unten, links* Rekonstruktion der ($z=a/2$)-Ebene. *Rechts*: 4-fach symmetrisierte Darstellung der jeweiligen Rekonstruktion. Die Einheitszelle von Cu_3Au ist eingezeichnet. Die Kantenlänge der Darstellungen beträgt 10\AA .

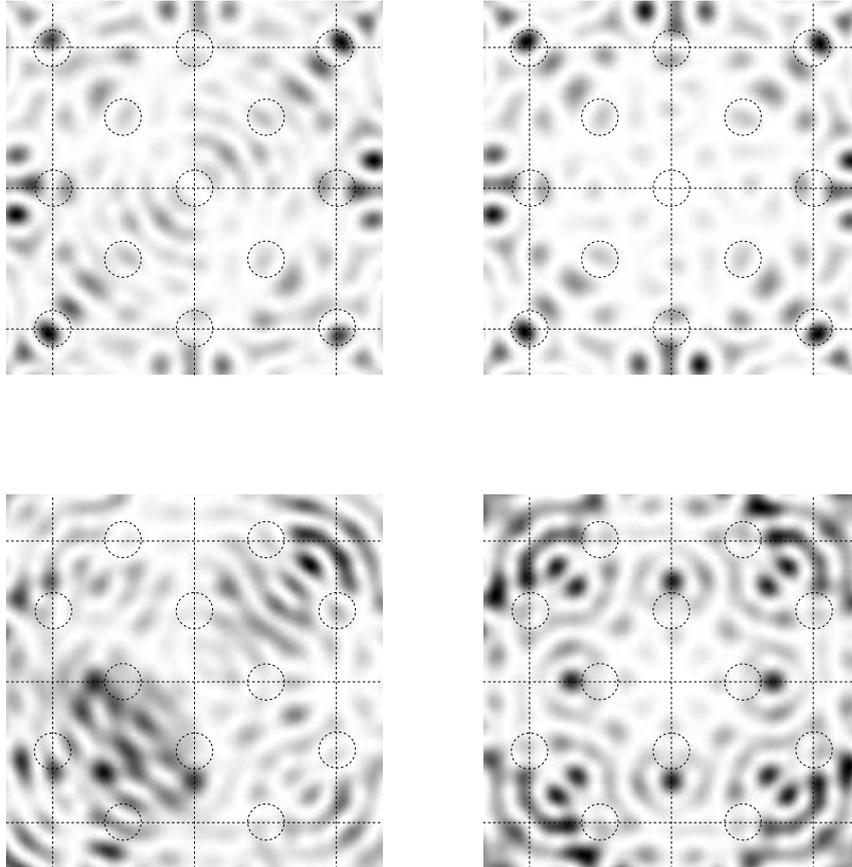


Abbildung 9.11: **Rekonstruktion der Messung 3 mit Analysator und APD-Detektor** - *Oben, links*: Rekonstruktion der $(z=0)$ -Ebene. *Unten, links*: Rekonstruktion der $(z=a/2)$ -Ebene. *Rechts*: 4-fach symmetrisierte Darstellung der jeweiligen Rekonstruktion. Die Einheitszelle von Cu_3Au ist eingezeichnet. Die Kantenlänge der Darstellungen beträgt 10\AA .

Kapitel 10

Zusammenfassung - Ausblick

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde ein aus gebogenen LiF-Kristallen bestehender Röntgenanalysator geplant, gebaut und umfassend charakterisiert. Dazu wurden Kristallplättchen gebogen und auf Aluminiumträger gepresst. Auch die Eigenschaften der einzelnen gebogenen Kristallplättchen wurden dabei bestimmt. Der Analysator wurde in Messungen an einer bekannten Cu_3Au -Probe auf seine Eignung für den Einsatz in der reziproken Röntgenholographie (MEXH) getestet. Um dabei noch stärker von den Vorteilen der Messung mit einem Fluoreszenzanalysator profitieren zu können wurde bei einem hohen einfallenden Photonfluss von im Mittel $3 \cdot 10^{11}$ Photonen/s/mm² gearbeitet. Dieser konnte am Strahl CEMO bei HASYLAB durch den Einsatz eines aus Multilayern aufgebauten Monochromators erreicht werden. Der Aufbau dieses Monochromators war ebenfalls Teil dieser Arbeit. Es wurden erstmals holographische Datensätze mit dem Spektrum eines Multilayer-Monochromators der hohen Spektralbreite von $\Delta E/E \approx 2\%$ aufgenommen. Aus diesen Datensätzen wurde die holographische Information extrahiert und mit dem Bartonschen Algorithmus rekonstruiert.

Mit dem Fluoreszenzanalysator und einem APD-Detektor konnte die Detektorzählrate, gegenüber der Messung mit dem bisher verwendeten energieauflösenden SD-Detektor deutlich gesteigert werden. Die mit dem SD-Detektor maximal erreichbare mittlere Detektorzählrate beträgt $\sim 20.000 \text{ s}^{-1}$. In den an einem Cu_3Au -Einkristall durchgeführten Holographiemessungen wurden mit dem neuen Detektorsystem mittlere Detektorzählraten von bis zu 800.000 s^{-1} erreicht. Es konnte somit etwa die für das Signal-/Rauschverhältnis optimale Detektorzählrate erreicht werden. Diese beträgt für Photonenzähler an gepulsten Quellen $\sim 20\%$, wie die Herleitung in Abschnitt 5.3 zeigt. Um den Analysator bei noch höheren Zählraten einsetzen zu können, kann an Stelle eines Photonenzähl-detektors ein integrierender Detektor eingesetzt werden. Der Einsatz eines solchen Detektors ist aber erst bei Zählraten von deutlich über 10^6 Photonen/s möglich.

Desweiteren konnte die effektive Unterdrückung des Strahlungsuntergrundes durch den Fluoreszenzanalysator demonstriert werden. Verglichen mit der gemessenen Cu-Fluoreszenzlinie wurde der Anteil gestreuter Strahlung im Detek-

tor, bei der Messung an Cu_3Au , auf weniger als 0,2% reduziert. Die Unterdrückung der Strahlung in der Umgebung der Cu-K_α -Fluoreszenzlinie auf etwa 0,2% wurde gezeigt. Die für den Fluoreszenzanalysator gemessene absolute Effizienz $\epsilon_{\text{spiral}} = 1,83 \cdot 10^{-3}$ bleibt allerdings deutlich hinter unserer Erwartung zurück. Die Ursache hierfür, die ungleichmäßige Biegung der LiF-Kristalle, wurde identifiziert und charakterisiert. Es konnte weiter gezeigt werden, dass es prinzipiell möglich ist, LiF-Kristalle mit den gewünschten Biegeradien und Reflektivitäten zu erhalten, weil Bereiche mit den gewünschten Parametern auf den Kristallen existieren.

Beim erneuten Bau eines Fluoreszenzanalysators sollten LiF-Kristalle, die vor dem Biegen eine größere Mosaizität als die jetzt verwendeten Kristalle aufweisen, getestet werden. Diese könnten sich auf Grund der Zusammensetzung aus kleineren Kristalliten gleichmäßiger biegen lassen.

Die Verwendung des neuen Multilayer-Monochromators hat bei der jetzigen Raumwinkelauflösung keinen negativen Einfluss auf die in der Röntgenholographie gemessenen Daten. Die Interpretation, der aus den Messungen des kristallinen Cu_3Au gewonnenen holographischen Rekonstruktionen, ist nicht ohne weiteres möglich. Holographische Messungen an besser geeigneten, verdünnten Proben, für die der Einsatz eines Analysators extreme Vorteile bieten würde, sind auf Grund der hohen benötigten Zählrate derzeit auch mit einem optimal funktionierenden Analysator nicht möglich.

Für die Messung an einer Probe mit niedriger Konzentration der fluoreszierenden Atome ist der Zählratengewinn durch den Einsatz eines Analysators viel größer als für die hier exemplarisch durchgeführten Messungen an einer Cu_3Au -Probe mit hoher Konzentration der Cu-Fluoreszenzatom. In diesen konnte nur ein verschwindend geringer Strahlungsuntergrund hinter dem Analysator festgestellt werden. Bei der Messung an verdünnten Systemen ist der Strahlungsuntergrund relativ zum gemessenen Fluoreszenzsignal deutlich stärker. Es ist daher empfehlenswert, den vorgestellten Fluoreszenzanalysator in Kombination mit einem energieauflösenden Detektor zu betreiben. Für verdünnte Proben mit geringer Zählrate des Fluoreszenzsignals stellt dies keine Einschränkung dar, da die maximale Detektorzählrate nicht erreicht wird. Der geringe, auch durch den Analysator nicht zu unterdrückende Strahlungsuntergrund, kann so identifiziert werden und es wird möglich, das Fluoreszenzsignal verdünnter Proben mit hoher Reinheit bei hoher Zählrate zu messen.

Neben dem Einsatz in der Holographie ist ein, wie der von uns gebaute, element-spezifische Fluoreszenzanalysator in Form einer logarithmischen Spirale auch für andere Anwendungen geeignet. Dabei kann er die Messung niedrig konzentrierter Proben ermöglichen bzw. eine Verkürzung der Messzeit bewirken.

Insbesondere wäre die Anwendung des Analysators sinnvoll für

1.) Fluoreszenz-XAFS-Messungen (*Fluorescence X-Ray Absorption Fine Struc-*

ture). Ein Beispiel wären die in [KGH⁺01] mit einem 7-zelligen Detektor untersuchten Cu-haltigen Proben.

2.) XSW-Messungen (*X-Ray Standing Waves*), wie schon in Abschnitt 8.5.2 erwähnt.

3.) ortsaufgelösten XRF-Messungen (*X-Ray Fluorescence Analysis* = Röntgenfluoreszenzanalyse).

4.) elektronenholographischen Messungen an Oberflächen mit Detektion des Fluoreszenzsignals.

Anhang A

Messdaten-Überblick

	Messung			
	1	2 vor / nach Serviceweche	3	4
Name der Messung	cu3au_2_akt2001	cu3au_2_cont_akt2001	cu3au_spiral_cont_akt2001	cu3au_spiral_high_statistics_cont_akt2001
Detektor	SDD		Analysator mit APD	
φ -Werte	$0^\circ, 1^\circ, \dots, 360^\circ$		$0^\circ, 1^\circ, \dots, 360^\circ$	
θ -Werte	$20^\circ, 21^\circ, \dots, 79^\circ$		$20^\circ, 21^\circ, \dots, 60^\circ$	
kont. in. φ	nein	ja	ja	ja
Strahlgröße $B \times H$ [mm²]	$0,2 \times 0,05$	$0,2 \times 0,05$	$0,2 \times 0,1$	$0,2 \times 0,2$
Ioni-Strom [A]	$5,9 \cdot 10^{-9}$	$5,9 \cdot 10^{-9}$	$1,4 \cdot 10^{-8}$	$3,86 \cdot 10^{-8}$
Intensität I_0 [Photonen/s]	$2,55 \cdot 10^9$	$2,55 \cdot 10^9$	$6,06 \cdot 10^9$	$1,67 \cdot 10^{10}$
t_{meas} [s]	1,0 s	0,88/0,66 s	0,66 s	0,66 s
Datensätze	2	17 (4/13)	7	1
Zählrate [1/s]	26.317	26.464/25.758	243.706	780.845
$M(N_{\theta,\varphi})$	52.634	314.152	1.125.922	488.958
$M(1/\sqrt{N_{\theta,\varphi}})$	0,0044	0,00182	0,00095	0,0014
$M(S(\bar{\chi}_{\theta,\varphi}))$	-	0,00181	0,000915	-
$M(\chi)$	0.0032	0,00173	0,00106	-

Tabelle A.1: Hologramm-messungen der Messzeit Oktober 2001.

Der Mittelwert über alle Datensätze ist durch einen Balken über dem Parameter (z.B. $\bar{X}_{\theta,\varphi}$) dargestellt. Der Mittelwert über alle θ, φ -Positionen ist durch $M(X)$ bezeichnet, mit $M(X_{\theta,\varphi}) = \sum_{\theta,\varphi} X_{\theta,\varphi} / \sum_{\theta,\varphi} 1$.

Anhang B

Zählstatistik

B.1 Binominalverteilung

Es wird ein Versuch n mal wiederholt, wobei die Einzelversuche voneinander unabhängig sind. In jedem der Versuche kann ein gewisses Ereignis A eintreten oder nicht eintreten und die Wahrscheinlichkeit für das Eintreten von A im Einzelversuch sei gleich p . Sei X^n die Häufigkeit des Auftretens von A in n Versuchen mit möglichen Werten $X^n = 0, 1, 2, \dots$. Für die Wahrscheinlichkeit, das A in n Versuchen gerade k mal eintritt gilt:

$$P(X^n = k) = P_k^n = \binom{n}{k} p^k (1-p)^{n-k} \quad (\text{B.1})$$

Nimmt eine Zufallsgröße die Werte $k = 0, 1, \dots, n$ mit der Wahrscheinlichkeit P_k^n an, dann heißt sie *binominalverteilt mit den Parametern n und p* .

B.2 Poissonverteilung

Eine Zufallsgröße heißt *poissonverteilt*, wenn sie die Werte $k = 0, 1, 2, \dots$ mit den Wahrscheinlichkeiten

$$P_k = \frac{(\mu)^k}{k!} e^{-\mu} \quad (\text{B.2})$$

annimmt. μ heißt der Parameter der Verteilung.

Die Poissonverteilung kann als gute Näherung für die Binominalverteilung benutzt werden, wenn n groß und p klein ist. Als Parameter muß dann $\mu = np$ verwendet werden.

B.3 Momente einer Verteilung

Von den Momenten einer Verteilung sind das erste Moment und das zweite zentrale Moment von besonderer Bedeutung. Sei X die Zufallsgröße mit den möglichen

Werten x_1, x_2, \dots

Das erste Moment gibt gerade den *Erwartungswert* EX der Verteilung, definiert durch:

$$EX = \sum_k x_k p_k \quad (\text{B.3})$$

Das zweite zentrale Moment ist die *Varianz*, definiert als:

$$\sigma^2 = \sum_k (x_k - EX)^2 p_k \quad (\text{B.4})$$

Die Wurzel der Varianz wird als die *Standardabweichung* oder *Streuung* σ bezeichnet.

Für die Binominalverteilung ergeben sich:

$$EX = \sum_{k=0}^n k P_k^n = np \quad (\text{B.5})$$

$$\sigma^2 = \sum_k (k - np)^2 P_k^n = npq \quad (\text{B.6})$$

Für die Poissonverteilung ergeben sich:

$$EX = \sum_{k=0}^{\infty} k P_k = \mu \quad (\text{B.7})$$

$$\sigma^2 = \sum_{k=0}^{\infty} (k - \mu)^2 P_k = \mu \quad (\text{B.8})$$

B.4 Mittelwert und empirische Varianz

Häufig möchte man aus einer Stichprobe (X_1, X_2, \dots, X_n) auf die Parameter der der Stichprobe zu Grunde liegenden Verteilung zurückschließen.

Gehorcht die Verteilung der Messwerte einer Poisson- oder Gaußverteilung und wurden die Einzelmessungen X_1, X_2, \dots, X_n unter identischen Bedingungen gewonnen, d.h. alle X_i werden gleich gewichtet, dann ist das *arithmetische Mittel* (*Mittelwert*), definiert als

$$\bar{X} = \frac{1}{n} \sum_{i=0}^n X_i, \quad (\text{B.9})$$

die beste Näherung an den Erwartungswert EX der Verteilung [DH88].

Als Maß für die Messgenauigkeit einer einzelnen Messungen kann die *empirische Varianz*, definiert als

$$S^2(X) = \frac{1}{n-1} \sum_{i=0}^n (X_i - \bar{X})^2, \quad (\text{B.10})$$

angegeben werden. Für Poisson- oder Gauß-Verteilungen, im Falle großer Stichproben $X = X_1, X_2, \dots, X_n$ ($n \gg 1$) konvergiert S^2 gegen die Varianz σ^2 der Verteilung.

Die *empirische Varianz des Mittelwertes* $S^2(\bar{X})$ aus n Messungen ist kleiner als die empirische Varianz der aus Stichproben von Einzelmessungen. Im Fall großer Stichproben X, \bar{X} gilt:

$$S^2(\bar{X}) = \frac{S^2(X)}{n} = \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=0}^n (X_i - \bar{X})^2. \quad (\text{B.11})$$

Durch zusätzliche Messungen verringert sich also die Varianz des gemessenen mittleren Signals mit $S^2 \propto 1/n$ bzw. die Streuung mit $\sigma \propto 1/\sqrt{n}$.

Die Bestimmung der empirischen Varianz ist nur für eine ausreichend große Stichprobe sinnvoll. Erst für große n konvergiert der Mittelwert gegen den Erwartungswert der Verteilung. Gleiches gilt für die empirische Varianz, die erst dann gegen die Varianz der Verteilung konvergiert.

B.5 Fehlerfortpflanzung

Die Betrachtung der sog. Fehlerfortpflanzung ist erforderlich, wenn die Varianz einer aus den Messgrößen z_1, z_2, \dots abgeleiteten Größe $F(z_1, z_2, \dots)$ berechnet werden soll. Seien Z_i die gemessenen Stichproben, \bar{z}_i die Mittelwerte.

Man überträgt die Fehlerfortpflanzung für bekannte Verteilungen nach Gauss auf Stichproben aus Messungen und erhält:

$$S^2(F) = \sum_i \left(\frac{\delta F}{\delta z_i} \right)_{z_i=\bar{z}_i}^2 S^2(Z_i) \quad (\text{B.12})$$

Diese Gleichung gilt nur, wenn die Z_i unabhängige Zufallsereignisse sind und eigentlich nur für Gaußsche Verteilungen. Sie wird aber häufig auch als Näherung für andere Verteilungen genutzt.

Anhang C

Multilayer-Monochromator

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen, wurden Multilayer als Monochromatoren verwendet (Hersteller: Fraunhofer Institut für Werkstoff- und Strahltechnik in Dresden, Kontakt: Thomas Holz).

Es handelt sich um Mo/C-Schichtsysteme, mit den vom Hersteller folgendermaßen spezifizierten Kennwerten:

- Periodendicke $d = d_{Mo} + d_C = (3.70 \pm 0.03)\text{nm}$, $\Delta d/d < 1\%$
- Periodenzahl $N=100$
- Reflektivität $R(\text{Cu } K_\alpha) > 65\%$
- Relative Absorberdicke $\Gamma = d_{Mo}/d = 0.45 \pm 0.05$
- Auflösungsvermögen $\Delta E/E < 3\%$
- Substrat: Si(100), 4"-Wafer, gesägt
- Größe (L x B x H): 60,0 x 15,0 x 0,515 mm³

Für einen der beiden Multilayer haben wir am Strahl CEMO Reflexionskurven bei Photonenenergien von $E_{ph} = 10, 12, 14, 16\text{keV}$ aufgenommen. Aus den in Abb. C.1 gezeigten Messungen lässt sich die Reflektivität des jeweils ersten Bragg-Maximums ablesen. Für $E_{ph} = 10\text{keV}$ erhält man eine Reflektivität von $R \approx 65\%$.

Beim Test der Multilayer stellte sich heraus, dass deren Oberfläche nicht völlig plan ist. Zusätzliche Hitzelast wird zu weiteren Verspannungen führen. Ein Schwachpunkt dieser Multilayer ist sicherlich das mit $515\mu\text{m}$ recht dünne und somit flexible Siliziumsubstrat.

Bei der für die Holographiemessungen benutzten Photonenenergie von $E=10,655\text{keV}$, beträgt der Bragg-Winkel für einen dieser Multilayer mit $d=3,7\text{nm}$ nur $\theta = 0,901^\circ$. Unter diesem flachen Winkel reicht die Länge der Multilayer von

60,0mm, um $\sin \theta \cdot 60,0\text{mm} = 0,94\text{mm}$ der Höhe des einfallenden Strahls abzudecken. Ebenso ist der ausfallende Strahl somit maximal 0,94mm hoch.

Bedingt durch den kleinen Bragg-Winkel reagieren die Multilayer auf kleinste Änderungen des Einfallswinkels sehr empfindlich. Eine geringe Verbiegung wirkt sich daher schnell aus. Bereits eine Verbiegung um $2\% \cdot \theta \approx 0,02^\circ \approx 0,3\text{mrad}$ bewirkt nach $\Delta\theta/\theta = \Delta E/E$ eine Verschiebung des Maximums des Energiespektrums um $\Delta E/E = 2\%$. Für den Aufbau des Monochromators in der +/-Anordnung bedeutet eine solche Verbiegung neben der Energieverschiebung des Maximums bereits eine deutliche Intensitätsabnahme.

Die Länge der Multilayer ist daher für die experimentelle Durchführung ein entscheidender Parameter. Je länger die Multilayer sind, desto einfacher sind sie zu handhaben, insbesondere was die Justierung anbelangt. Die Länge von 60mm war für unsere Zwecke ausreichend.

Die Multilayer wurden in den Monochromatortank auf speziellen Cu-Halterungen am Strahl CEMO wie normale Kristalle eingebaut.

Die Holographiemessungen wurden nur bei einer Energie durchgeführt. Das in Abb. C.2 dargestellte Spektrum wurde vor dem Beginn der Messungen mit einem Ge(111)-Kristall vermessen. Dazu wurde der Ge-Kristall auf dem Diffraktometer montiert und mit einer Ioni-Kammer in einem $\theta - 2\theta$ -Scan das erste und das zweite Bragg-Maximum abgefahren. Aus den Messungen und der bekannten Gitterkonstanten von Ge wurde auf die absolute Energie zurückgerechnet.

Man erkennt die Nebenmaxima, wie sie an einem Multilayer auftreten sollten, nur schwach. Dies ist durch die leichte Verbiegung der Multilayer zu erklären.

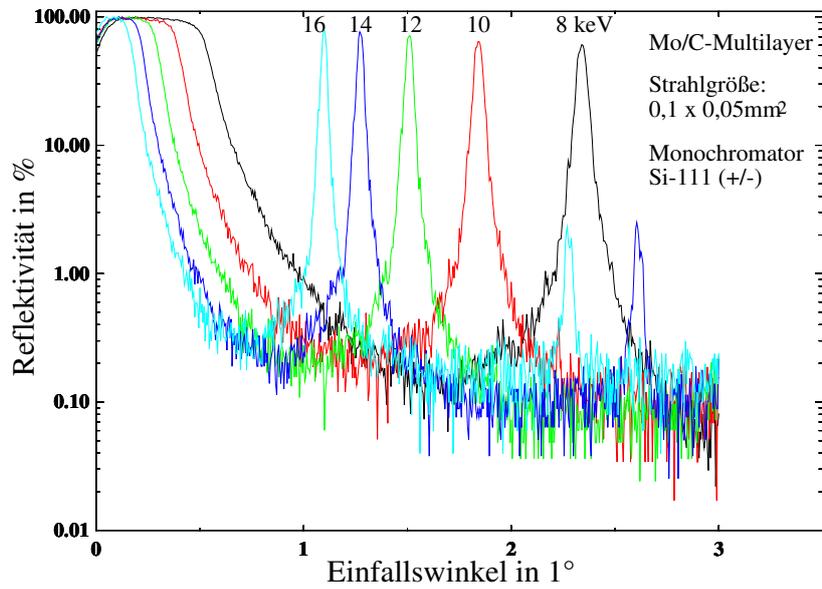


Abbildung C.1: Reflexionskurven von einem der Multilayer.

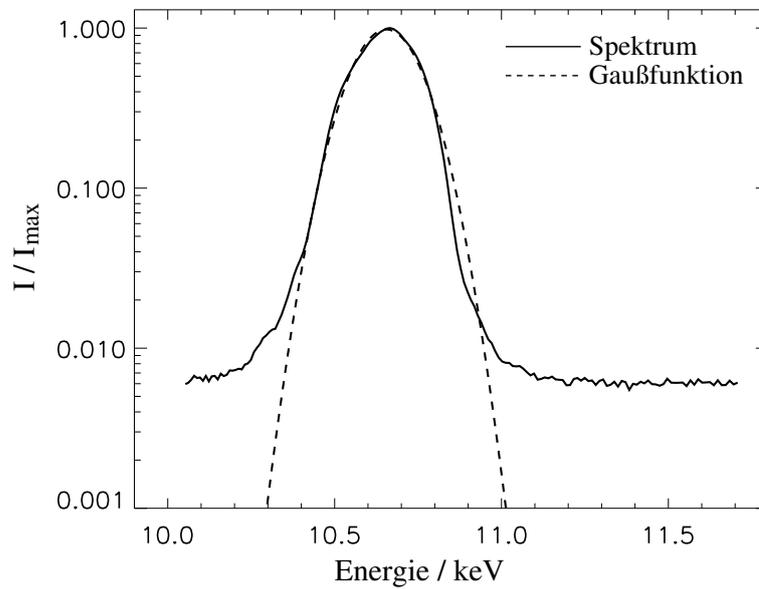
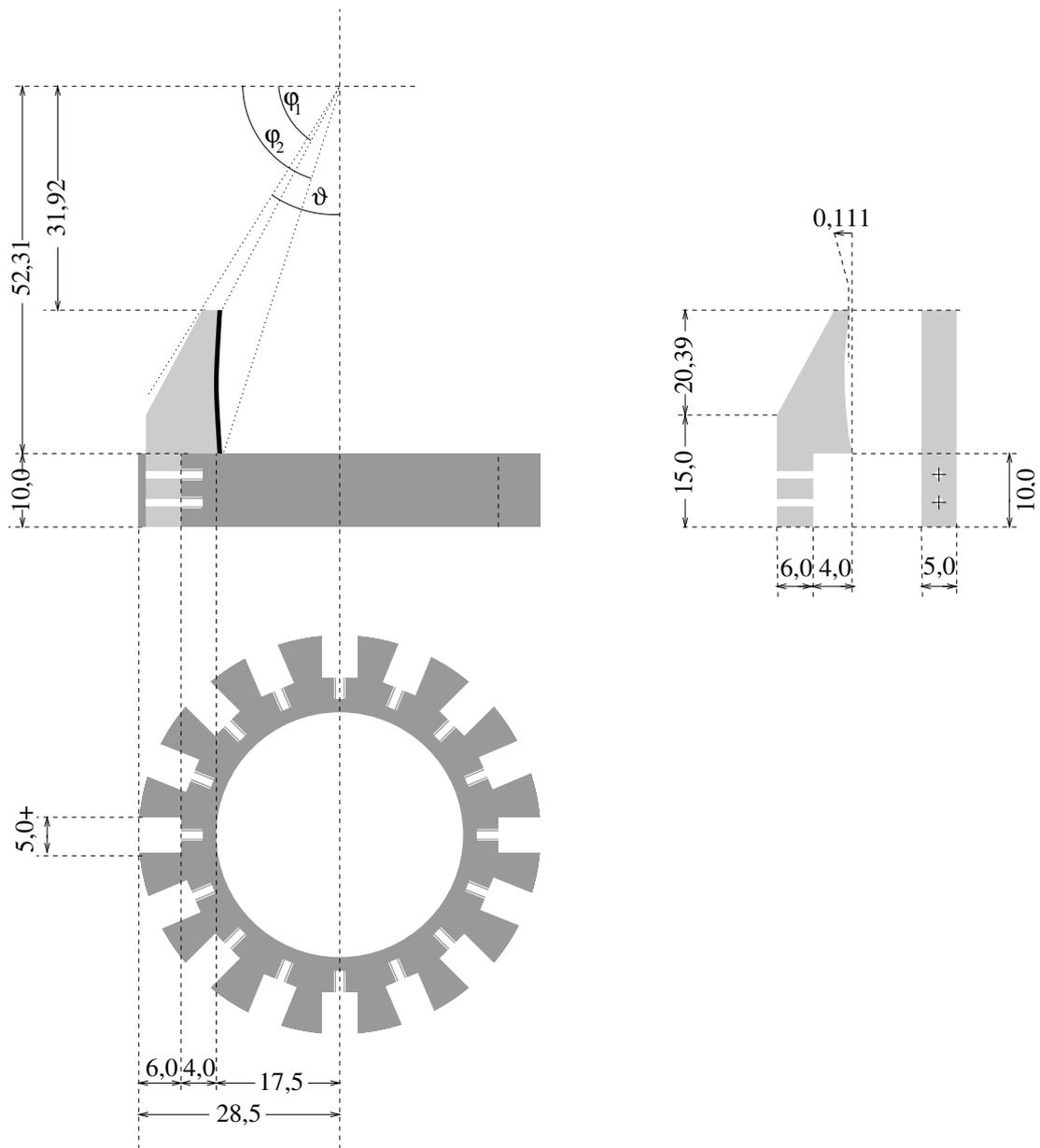


Abbildung C.2: Energiespektrum hinter dem Multilayer-Monochromator. Das Maximum liegt bei $E_{max}=10,655\text{keV}$ und besitzt eine Halbwertsbreite von $\Delta E_{FWHM} = 0,277\text{keV} = 2,60\% E_{max}$.

Anhang D

Analysator für Cu-K_α-Strahlung, Konstruktionszeichnung



Sechzehn Kristallhalter, verschraubt mit der ringförmigen tragenden Struktur, bilden den gesamten Analysator. Alle Teile wurden aus Aluminium gefertigt. Die LiF-Kristalle wurden auf die Kristallhalter geklebt und diese mit der tragenden Struktur verschraubt. Eine nicht dargestellte Bleibleuchte wurde in der Mitte des Analysators befestigt.

Anhang E

Fundamentale Konstanten

Größe	Variable, Erklärung	Wert und Einheit
Elementarladung	e	$1,602 \times 10^{-19} \text{ C}$
Elektronen-Masse	m_0	$9,110 \times 10^{-28} \text{ g}$
Lichtgeschwindigkeit	c	$2,998 \times 10^8 \text{ ms}^{-1}$
Plancksches Wirkungsquantum	h	$6,62620 \times 10^{-34} \text{ Js}$
Klassischer Elektronenradius, Thomson-Streulänge	$r_0 = e^2/m_e c^2$	$2,818 \times 10^{-5} \text{ m}$

Danksagung

Im Folgenden möchte ich allen denen danken, die zum erfolgreichen Abschluß meiner Diplomarbeit und meines Studiums beigetragen haben.

Mein Dank gilt Herrn Prof. Dr. Gerhard Materlik, der mir die Möglichkeit zur Durchführung dieser Diplomarbeit in seiner Gruppe am HASYLAB gegeben hat sowie Herrn Prof. Dr. Bernd Sonntag für die Erstellung des Zweitgutachtens und motivierende Vorlesungen im ersten Semester.

Insbesondere bedanken muss ich mich bei Dr. Dmitri Novikov, der viele, viele Fragen beantwortete, mir nicht nur den Messplatz geduldig erklärte und von dem nicht zuletzt die Idee für den gebauten Fluoreszenzanalysator stammt. Zudem gilt mein Dank den Herren Dr. Horst Schulte-Schrepping, Dr. Wolfgang Drube und Dr. Felix Beckmann für deren gute Hinweise und angeregte Diskussionen.

Herrn Hans-Georg Schmidt und Herrn Jens Brehling (stellvertretend für das Personal der mechanischen Werkstatt) danke ich für die Ausführung und die umfangreiche Unterstützung bei der Planung der mechanischen Arbeiten.

Für die freundliche und hilfsbereite Atmosphäre in der Arbeitsgruppe sowie am gesamten HASYLAB sei allen gedankt, die dazu beigetragen haben und beitragen.

Zum Schluß und ganz herzlich möchte ich meiner Familie danken, die mich moralisch und finanziell während meines Studiums unterstützt hat. Beides war nötig.

Danke !

Literaturverzeichnis

- [ANHM98] B. Adams, D. V. Novikov, T. Hiort, and G. Materlik. Atomic Holography with X-rays. *Phys. Rev. B*, 57(13):7526–7534, 1998.
- [ANM01] J. Als-Nielsen and D. McMorrow. *Elements of Modern X-Ray Physics*. John Wiley & Sons Ltd, 2001.
- [Aut01] A. Authier. *Dynamical Theory of X-Ray Diffraction*. Oxford Univ. Press, 2001.
- [Bar88] J.J. Barton. Photoelectron Holography. *Phys. Rev. Lett.*, 61(12):1356–1359, 1988.
- [Bar91] J.J. Barton. Removing Multiple Scattering and Twin Images from Holographic Images. *Phys. Rev. Lett.*, 67(22):3106–3109, 1991.
- [BCF⁺84] W. Bambynek, B. Crasemann, R.W. Fink, H.-U. Freund, H. Mark, C.D. Swift, R.E. Price, and P.V. Rao. Internal Report GE-R-RN-18-84 (Central Bureau of Nuclear Measurements, Geel, Belgium). 1984.
- [BD00] A.S. Bakulin and S.M. Durbin. High-efficiency logarithmic spiral monochromator for X-ray fluorescence. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A*, 441:558–564, 2000.
- [BPS] S.G. Bompadre, T. W. Petersen, and L. B. Sorensen. Tabletop Bremsstrahlung X-ray Holography: Making Multiwavelength X-ray Holograms. Preprint.
- [BRS86] J.J. Barton, S. W. Robey, and D. A. Shirley. Theory of angle-resolved photoemission extended fine structure. *Phys. Rev. B*, 34(2):778–791, 1986.
- [BS91] I.N. Bronstein and K.A. Semendjajew. *Taschenbuch der Mathematik*, volume 25. B.G. Teubner Verlagsgesellschaft, 1991.
- [DH88] K. Debertin and R.G. Helmer. *Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. Elsevier Science Publishers B.V., 1988.

- [Don00] S. Donati. *Photodetectors - Devices, Circuits and Applications*. Prentice Hall PTR, 2000.
- [FNSM] S. Fanchenko, D.V. Novikov, A. Schley, and G. Materlik. On X-ray Atomic Holography in Crystals. To be published.
- [Gab48] D. Gabor. A New Microscopic Principle. *Nature*, (4098):777–778, 1948.
- [Hio00] T.C. Hiort. *X-Ray Fluorescence Holography and Multiple Energy X-Ray Holography: A Comparative Study*. Dissertation, Fachbereich Physik der Universität Hamburg, 2000.
- [HMT⁺01] K. Hayashi, M. Miyake, T. Tobioka, Y. Awakura, M. Suzuki, and S. Hayakawa. Development of apparatus for multiple energy X-ray holography at SPring-8. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A*, 467-468:1241–1244, 2001.
- [HNKM00] T. Hiort, D.V. Novikov, E. Kossel, and G. Materlik. Quantitative assessment of x-ray fluorescence holography for bcc Fe as a test case. *Phys. Rev. B*, 61(2):R830–R833, January 2000.
- [HT00] K. Hansen and L. Tröger. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 47:2748, 2000.
- [KGH⁺01] P. Kappen, J.-D. Grunwaldt, i B.S. Hammershø, L. Tröger, and B.S. Clausen. The State of Cu Promoter Atoms in High-Temperature Shift Catalysts-An in Situ Fluorescence XAFS Study. *J. Catal.*, 198(1):56–65, 2001.
- [KLV35] W. Kossel, H. Loeck, and H. Voges. Die Richtungsverteilung der in einem Kristall entstandenen charakteristischen Röntgenstrahlung. *Z. Physik*, 94(139), 1935.
- [KM01] P. Korecki and G. Materlik. Real-Space Imaging of Atomic Structure with White X Rays. *Phys. Rev. Lett.*, 86(11), March 2001.
- [Kno79] Glenn F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, 1979.
- [Koc91] E.-E. Koch. volume 3 of *Handbook on Synchrotron Radiation*. Elsevier Science Publishers B.V., 1991.
- [Len97] P.M. Len. *Atomic Holography with Electrons and X-rays: Theoretical and Experimental Studies*. Ph.D. Thesis, Ernest Orlando Lawrence Berkeley National Laboratory, 1997.

- [LGN⁺97] P.M. Len, T. Gog, D. Novikov, R.A. Eisenhower, G. Materlik, and C.S. Fadley. Multiple Energy X-ray Holography: Incident-radiation Polarization Effects. *Phys. Rev. B*, 56(3):1529–1539, 1997.
- [Mar00] S. Marchesini. *X-Ray Fluorescence Holography*. Dissertation, Université Joseph Fourier - Grenoble I, 2000.
- [Max99] Max Born and Emil Wolf. *Principles of Optics: Electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*. Cambridge Univ. Pr., 7th edition, 1999.
- [MS97] Gerald A. Miller and Larry B. Sorensen. Quantum Electrodynamics of the Internal Source X-ray Holographies: Bremsstrahlung, Fluorescence, and Multiple-energy X-ray Holography. *Phys., Rev. B*, 56(5):2399–2416, 1997.
- [nob] Nobel price laureates.
<http://www.nobel.se/physics/laureates/1971/index.html>.
- [Pea00] Pease, D. et al. Log Spiral of Revolution HOPG Monochromator for Fluorescence X-Ray Absorption Edge Fine Structure. *Rev. Sci. Instr.*, 71:3267–3273, 2000.
- [phy] A Picture Gallery of Famous Physicists.
<http://www.th.physik.uni-frankfurt.de/~jr/physlist.html>.
- [Sab88] T.M. Sabine. A Reconciliation of Extinction Theories. *Acta Cryst. A*, 44:368–373, 1988.
- [Szö86] A. Szöke. X-ray and Electron Holography using a Local Reference Beam. (147), 1986. AIP Conf. Proceedings.
- [Sze85] S.M. Sze. *Semiconductor Devices, Physics and Technology*. John Wiley & Sons, 1985.
- [TLH91] S. Y. Tong, H. Li, and H. Huang. Energy Extension in Three-dimensional Atomic Imaging by Electron-emission Holography. *Phys. Rev. Lett.*, 67(22):3102, 1991.
- [Vau86] D. Vaughan, editor. *X-Ray Data Booklet*. Lawrence Berkeley Laboratory, Center for X-Ray Optics, April 1986.
- [Wil92] A. J. C. Wilson, editor. *International Tables for Crystallography*, volume C. Kluwer Academic Publishers, 1992.
- [Zeg93] J. Zegenhagen. Surface structure determination with x-ray standing waves. *Surface Science Reports*, pages 199 – 269, 1993.

- [Zel96] Zellner, J. Optimierung der Datenerfassung für Kristallstrukturuntersuchungen mit Synchrotronstrahlung durch Einsatz schneller Plastikszintillatoren. Diplomarbeit, Institut für Kristallographie, Universität Karlsruhe (TH), 1996.