Untersuchung von $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen und in-situ getemperten Silizium-Einkristallen als Monochromatoren für hochenergetische Synchrotronstrahlung

DISSERTATION
zur Erlangung des Doktorgrades
des Fachbereiches Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von
Steffen Keitel
aus Kiel

Hamburg
1999

Gutachter der Dissertation:	Prof. Dr. J.R. Schneider Prof. Dr. R.L. Johnson
Gutachter der Disputation:	Prof. Dr. J.R. Schneider Prof. Dr. B. Sonntag
Datum der Disputation:	20.08.1999
Dekan des Fachbereichs Physik und Vorsitzender des Promotionsausschusses:	Prof. Dr. F.W. Büßer

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung: Diffraktometrie mit hochenergetischer Synchrotronstrahlung 1

2. Das Dreikristall-Diffraktometer 3

2.1. Die Streugeometrie 4

2.2. Das Instrument an der Beamline BW5 7

2.3. Auflösungsvermögen des Dreikristall-Diffraktometers 9

3. Getemperte Siliziumkristalle 13

3.1. Sauerstoffpräzipitation 14

3.2. Diffuse Defektstreuung 15

3.3. Thermisch diffuse Streuung 18

3.4. Experimenteller Aufbau 20

3.4.1. Hochtemperatur-Ofen 20

3.5. Temperaturrampen zur Herstellung von Silizium-Monochromatoren 21

3.6. Einschub: Hochdotiertes Silizium 26

3.6.1. BMD-Test 28

3.6.2. Simulationsrechnungen 32

3.7. Zusammenfassung 34

4. $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle 37

4.1. Das $Si_{1-x}Ge_x$-System 37

4.2. Theorie 39

4.2.1. Dynamische Theorie 39

4.2.2. Dynamische Theorie für verzerrte Kristalle 45

4.2.3. Erzeugung neuer Wellenfelder 49
4.3. Experimentelle Ergebnisse 52
4.3.1. Die Probe 52
4.3.2. Messung des Gitterparameters und Bestimmung der Germaniumkonzentration 53
4.3.3. Bestimmung des Krümmungsradius 56
4.3.4. Messung der Reflektivität und der Halbwertsbreite 59
4.4. Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit der Theorie 63
4.4.1. Reflektivitätsmaxima 66
4.4.2. Zusammenfassung 68
4.5. Vergleich des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls mit anderen Kristallsystemen . . . 69
4.5.1. $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall / Silizium-Mosaikkristall 69
4.5.2. $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall / gebogener Siliziumkristall 72
4.5.3. $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall / Si-$TaSi_2$-Kristall 75
4.5.4. Experimentelle Anwendung: $La_{1.6-x}Nd_{0.4}Sr_xCuO_4$ 76
4.6. Zusammenfassung 78

5. Zusammenfassung **79**

A. Die verschiedenen $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle **83**
A.1. „SiGe 102“, Zuchtrichtung [111], $C_{Ge,0}$=5% 84
A.2. „SiGe 103“, Zuchtrichtung [100], $C_{Ge,0}$=5% 88
A.3. „SiGe 104“, Zuchtrichtung [110], $C_{Ge,0}$=5% 90
A.4. „SiGe 105“, Zuchtrichtung [110], $C_{Ge,0}$=3% 92
A.5. „SiGe 107“, Zuchtrichtung [100], $C_{Ge,0}$=7% 94
A.6. „SiGe 108“, Zuchtrichtung [110], $C_{Ge,0}$=7% 96
Danksagung 113

1 Einleitung: Diffraktometrie mit hochenergetischer Synchrotronstrahlung

Die Untersuchung von kristallinen Materialien mit einem Dreikristall-Diffraktometer für hochenergetische Synchrotronstrahlung kombiniert die große Eindringtiefe von Neutronen mit einem hohen Auflösungsvermögen im reziproken Raum. Die hohe Auflösung wird durch die Verwendung perfekter Siliziumkristalle als Monochromator bzw. Analysator erreicht. Bei Untersuchungen von sehr schwachen Überstrukturreflexen in Hoch-T_c-Supraleitermaterialien [ZVN98, NIF+99] oder in magnetischen Systemen [SBH+97] wird die experimentelle Auflösung des Dreikristall-Diffraktometers häufig jedoch nicht durch Monochromator und Analysator bestimmt, sondern ist durch die Probenqualität limitiert. In diesem Fall bedeutet die Verwendung perfekter Monochromator- und Analysatorkristalle lediglich eine Reduzierung der verfügbaren Primärintensität. Um die Zählzeiten bei diesen Experimenten möglichst gering zu halten, ist es wünschenswert, die Auflösung an die experimentellen Gegebenheiten der Probe anzupassen. Dazu ist es notwendig, Monochromatoren und Analysatoren mit einem breiteren Reflexprofil zu verwenden.

In dieser Arbeit werden zwei verschiedene Ansätze zur Herstellung von Kristallen mit breiteren Reflexprofilen vorgestellt: Die erste Methode geht von perfekten Silizium-Einkristallen aus und vergrößert deren durch die dynamische Theorie vorgegebene Breite des Reflexprofils durch eine gezielte Temperaturbehandlung. Dieser Ansatz ist nicht neu [SGR+88], die Behandlung wird jedoch im Rahmen dieser Arbeit erstmals zusammen mit einer gleichzeitigen Kontrolle der Reflexbreite durchgeführt. Die erreichbare Reflexbreite ist bei dieser Methode aber begrenzt: Es wird maximal das etwa 15fache der Ausgangsbreite erreicht.

Deutlich weiter reichen die $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle [KRN+98]. Wie gezeigt wird, bilden diese Kristalle mit ihren homogen gekrümmten Netzebenen ein Modellsystem für die dynamische Theorie. Dieser Theorie folgend, sind von $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen deutlich erhöhte Reflektivitäten zusammen mit Reflexbreiten zu erwarten, die bei Photonenenergien von 100 keV und höher im Bereich von 15 bis 70 Winkelsekunden liegen. Während die getemperten Siliziumkristalle etwa die 15fache Breite eines perfekten Siliziumkristalls erreichen, entsprechen die Reflexbreiten der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle dem bis zu 100fachen dieses Wertes.

Die beiden Ansätze werden nach einer kurzen, auf diese Einleitung folgenden Beschreibung des verwendeten Diffraktometers und der experimentellen Anordnung vorgestellt. Dabei wird in Kapitel 3 mit der Behandlung der getemperten Siliziumkristallen begonnen. Nach einer kurzen Einführung in die für das Verständnis wichtigen Grundlagen werden die verschie-

denen Versuche für eine optimierte Temperaturbehandlung von Siliziumkristallen aufgelistet. Ein kurzer Einschub zeigt die Wichtigkeit der in-situ-Meßergebnisse für die Halbleiterindustrie.

Kapitel 4 dient der Beschreibung der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle und beginnt mit der zugrunde liegenden dynamischen Beugungstheorie, deren Gültigkeit auf verzerrte Kristalle erweitert wird. Danach erfolgt eine Charakterisierung der untersuchten Probe, es werden Messungen der Germaniumkonzentration und der Krümmungsradien der Netzebenen vorgestellt. Dann werden die für die Verwendung als Monochromator besonders wichtigen Größen Reflektivität und Halbwertsbreite bestimmt und in einem separaten Abschnitt mit den theoretischen Werten verglichen. Den Abschluß des Kapitels bilden ein Vergleich der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle mit anderen Monochromator/Analysator-Systemen sowie erste experimentelle Ergebnisse von Messungen an Hoch-T_c-Supraleitermaterialien. In einem abschließenden Kapitel werden die Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefaßt.

Das Dreikristall-Diffraktometer 2

Die im Rahmen dieser Arbeit beschriebenen Messungen wurden mit dem Dreikristall-Diffraktometer an der Beamline BW5 des **Ha**mburger **Sy**nchrotronstrahlungs**lab**ors HASYLAB am **D**eutschen **E**lektronen**sy**nchrotron DESY durchgeführt. Die Beamline und das Instrument sind für Beugungsexperimente mit hochenergetischer Synchrotronstrahlung in einem Energiebereich um 100 keV ausgelegt. Diese hohen Energien ermöglichen die Untersuchung des Inneren von großen Einkristallen, wobei es das Dreikristall-Diffraktometer erlaubt, den reziproken Raum mit einer sehr hohen Auflösung abzurastern. Abbildung 2.1 zeigt eine Aufsicht auf das Instrument, wobei vorerst nur die wichtigsten Komponenten bezeichnet sind. Auf die technischen Einzelheiten wird später im Kapitel eingegangen, eine ausführliche Beschreibung findet man in [BHL+98].

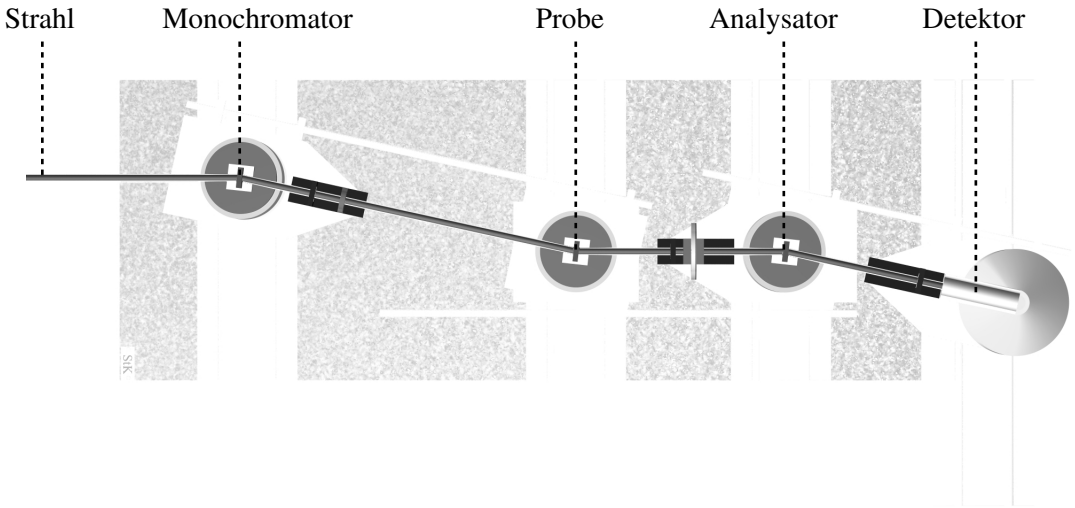


Abbildung 2.1.: *Aufsicht auf das Dreikristall-Diffraktometer an der Beamline BW5 des HASYLAB. Von links fällt die Synchrotronstrahlung auf den Monochromatorkristall, der aus dem weißen Spektrum ein Wellenlängenband selektiert. Der jetzt monochromatische Strahl trifft auf die Probe, wo er wieder reflektiert wird. Über entsprechende Drehungen von Proben- und Analysatorkristall kann der reziproke Raum in der Umgebung des Probenreflexes abgescant werden. Hinter dem Analysator wird die gestreute Intensität mit einem energieauflösenden Ge-Halbleiterdetektor gemessen.*

2.1. Die Streugeometrie

Bei Messungen mit monochromatischer Strahlung an Einkristallen gilt, daß ein Kristall nur dann reflektiert, wenn die Bragg-Bedingung erfüllt wird:

$$\vec{k}_2 - \vec{k}_1 = \vec{G}, \qquad \text{mit} \qquad |\vec{k}_1| = |\vec{k}_2| = \frac{2\pi}{\lambda} \tag{2.1}$$

d.h. die Differenz aus reflektiertem und einfallendem Wellenvektor $\vec{k}_2$ bzw. $\vec{k}_1$ muß gleich einem reziproken Gittervektor $\vec{G}$ sein. Abbildung 2.2 zeigt die Darstellung der Bragg-Bedingung in der Ewaldkonstruktion. In dieser Konstruktion legt man die Spitze des einfallenden Wellenvektors in einen Punkt des reziproken Gitters und zeichnet eine Kugel mit dem Radius $|\vec{k}| = 2\pi/\lambda$ um den Anfangspunkt des Wellenvektors. Alle reziproken Gitterpunkte, die auf der Kugelschale liegen, erfüllen jetzt die Bragg-Bedingung 2.1. In der Abbildung ist der reziproke Gittervektor $\vec{G}$, der von der Spitze des einfallenden Wellenvektors zu diesem zweiten reziproken Gitterpunkt zeigt, eingezeichnet.

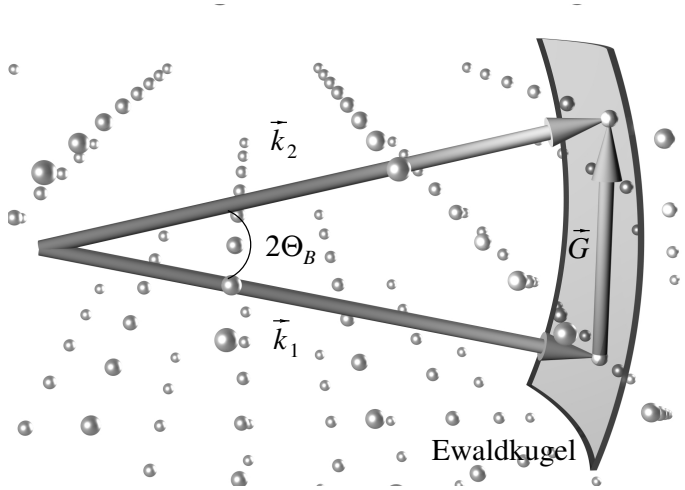


Abbildung 2.2.: *Dreidimensionale Veranschaulichung der Bragg-Bedingung durch die Ewaldkonstruktion. Die Spitze des einfallenden Wellenvektors $\vec{k}_1$ wird in einen der als Kugeln dargestellten reziproken Gitterpunkte gelegt. Um den Fußpunkt von $\vec{k}_1$ wird eine Kugel mit Radius $|\vec{k}|$ gezeichnet, von der hier nur ein kleiner Ausschnitt gezeigt wird. Alle reziproken Gitterpunkte, die auf der Kugelschale liegen, erfüllen die Bragg-Bedingung.*

Die Bragg-Bedingung muß für alle drei Kristalle des Dreikristall-Diffraktometers erfüllt sein. Im Falle des Monochromatorkristalls sind die Richtung des einfallenden Wellenvektors und der Betrag des reziproken Gittervektors vorgegeben. Daraus ergibt sich, daß der einzige freie Parameter in Gleichung 2.1 zur Auswahl des Betrages von $\vec{k}_1$ die Richtung von $\vec{G}$ ist. Im

realen Raum bedeutet dies, daß das gewünschte Wellenlängenband durch eine Drehung des Monochromatorkristalls auf den Bragg-Winkel Θ_B eingestellt wird. Der reziproke Gittervektor $\vec{G}$ definiert zusammen mit $\vec{k}_1$ die Beugungsebene des Instrumentes. Durch diese Einstellung ist der Wellenvektor der auf die Probe fallenden Strahlung in Betrag und Richtung festgelegt, in einem Experiment kann also nur die Lage des reziproken Gittervektors der Probe relativ zur feststehenden Ewaldkugel geändert werden.

Der Bragg-Bedingung folgend dürfte an der Position des reziproken Gitterpunktes nur ein mathematischer Punkt auf der Ewaldkugel zu der reflektierten Intensität beitragen. In der Realität jedoch sorgen die Divergenz der Synchrotronstrahlung, das durch den Monochromator festgelegte Wellenlängenband und die endliche Breite des Probenreflexes dafür, daß anstelle eines einzelnen Wellenvektors eine Schar von Wellenvektoren unterschiedlicher Richtung und Länge auf die Probe fällt, wo sie von einem ausgedehnten Streuvolumen reflektiert wird. Dies wird in Abbildung 2.3 durch einen Kegelmantel um den Wellenvektor $\vec{k}_2$ bzw. durch eine Kugelschale um die Spitze des reziproken Gittervektors veranschaulicht. Zu der abgebeugten Intensität trägt jetzt nicht nur ein einzelner Punkt bei, sondern die gesamte Schnittfläche von Probenvolumen und Ewaldkugel. Eine Rotation der Probe um eine Achse senkrecht zur Streuebene dreht den reziproken Gittervektor $\vec{G}$ und damit das Streuvolumen durch die Oberfläche der Ewaldkugel. Diese Drehung entspricht also einem Scan senkrecht zu $\vec{G}$ durch das Streuvolumen, da je nach Position des reziproken Gittervektors ein anderer Bereich des Streuvolumens zur reflektierten Intensität beiträgt.

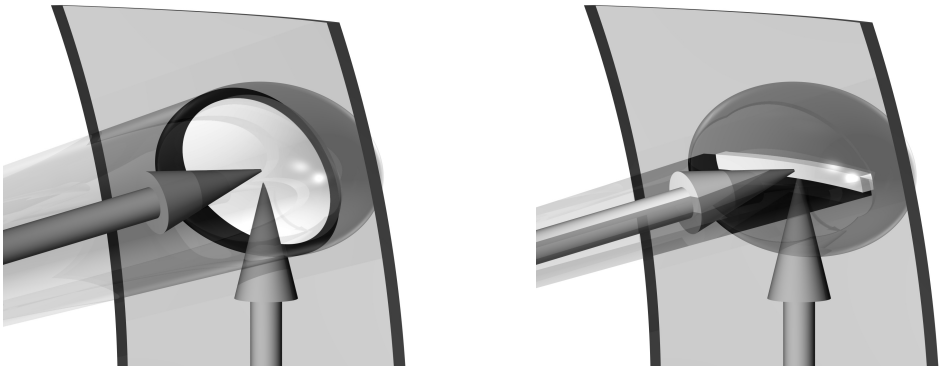


Abbildung 2.3.: *Ohne die Verwendung des Analysatorkristalls trägt die gesamte hell eingezeichnete Schnittfläche zwischen Streuvolumen und Ewaldkugel zur gestreuten Intensität bei (links). Der Analysatorkristall selektiert wie in der rechten Graphik dargestellt aus dem Divergenzkegel einen schmalen Fächer, so daß nur noch die durch das balkenförmige Volumenelement reflektierte Strahlung im Detektor gemessen wird.*

Die beiden Graphiken von Abbildung 2.3 verdeutlichen die Wirkungsweise des dritten Kristalls, des Analysators. Die linke Graphik zeigt die Beugung ohne Analysator: Das gesamte beleuchtete Streuvolumen, das auf der Oberfläche der Ewaldkugel liegt, trägt zu der

reflektierten Intensität bei. Dieses Volumenelement ist als helles Oval in der Zeichnung hervorgehoben. Der Analysatorkristall selektiert aus der gestreuten Schar von Wellenvektoren ein schmales Band heraus, so daß statt des Ovals nur noch ein balkenförmiges Volumenelement, wie in der rechten Skizze gezeigt, zu der gebeugten Intensität beiträgt. Durch eine Drehung des Analysators kann die Oberfläche der Ewaldkugel nahezu parallel zu $\vec{G}$ gescant werden. Dabei fällt ins Auge, daß der Analysatorkristall zwar die Auflösung in Richtung des reziproken Gittervektors erheblich verbessert, senkrecht zu der Beugungsebene aber keinen Einfluß auf diese hat.

Für Messungen im reziproken Raum ist es zweckmäßig, ein Koordinatensystem (q_x, q_y, q_z) in reziproken Längeneinheiten einzuführen und die Scanbewegungen aus dem Winkelraum der Kristalldrehungen in den $\vec{q}$-Raum zu transformieren. Die Abbildung 2.4 zeigt, wie das Koordinatensytem definiert wird: Sein Ursprung ist der Endpunkt des reziproken Gittervektors $\vec{G}$ der Probe, die q_x-Achse liegt parallel zu $\vec{G}$, die q_y-Achse verläuft senkrecht zum reziproken Gittervektor, während q_z als Oberflächennormale aus der Beugungsebene herausragt.

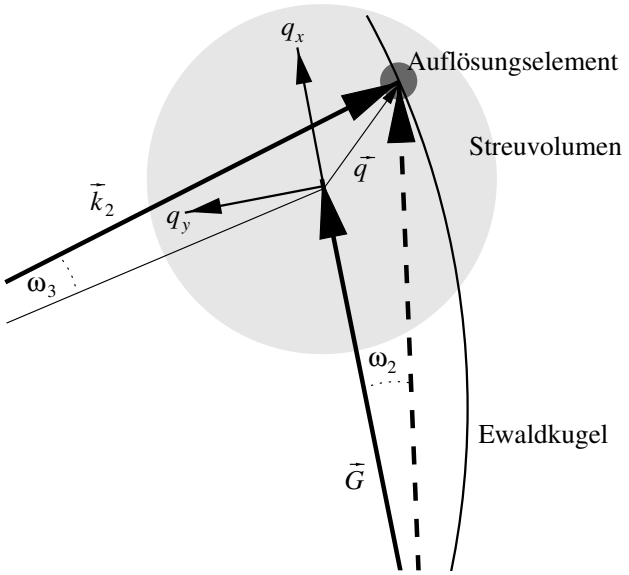


Abbildung 2.4.: *Das Koordinatensystem (q_x, q_y, q_z) im reziproken Raum hat seinen Ursprung in der Spitze des reziproken Gittervektors $\vec{G}$ der Probe. Durch Drehungen der Probe und des Analysators um ω_2 bzw. ω_3 kann jeder Punkt $\vec{q}$ in der (q_x, q_y)-Ebene des Streuvolumens angefahren werden.*

Außerdem ist in der Zeichnung zu erkennen, wie durch eine Drehung der Probe um den Winkel ω_2 bzw. des Analysators um den Winkel ω_3 das Streuvolumen der Probe gescant werden kann. In der dargestellten Winkelposition trägt nur der dunkelgrau eingezeichnete Anteil des Volumens zur reflektierten Intensität bei. Um gezielt Punkte $\vec{q}$ des reziproken Raumes anfahren zu können, ist es nötig, den Zusammenhang zwischen den Kristalldrehungen von Probe

und Analysator und der damit verbundenen Bewegung im $\vec{q}$-Raum zu kennen. Eine ausführliche Herleitung der Transformationsgleichungen zusammen mit einer Fehlerabschätzung der durchgeführten Näherungen findet sich in [Oes97]. Man erhält die Koordinaten im reziproken Raum folgendermaßen aus den Drehwinkeln der Kristalle:

$$\begin{aligned} q_x &= |\vec{k}| \cos\Theta_B \cdot \omega_3 \\ q_y &= |\vec{k}| \sin\Theta_B \cdot (\omega_3 - 2\omega_2) \\ q_z &= |\vec{k}| \cdot \omega_4 \end{aligned} \tag{2.2}$$

Durch eine Drehung um ω_2 wird die Streuverteilung senkrecht zu $\vec{G}$ in Richtung q_y gescant. Dieser ω_2- oder Transversalscan gibt Aufschluß über den Perfektionsgrad der Probe. Mit einem ω_3-Scan bewegt man sich nicht genau parallel zum reziproken Gittervektor. Die Bewegungsrichtung und der reziproke Gittervektor schließen den Bragg-Winkel ein. Mit einem sogenannten θ-2θ-Scan, einer kombinierten ω_2, ω_3-Bewegung in Richtung q_x, mißt man genau parallel zu $\vec{G}$ und kann so Längenänderungen des reziproken Gittervektors sehr genau bestimmen. Auf das Auflösungsvermögen bei Messungen in diesen Richtungen wird nach der Beschreibung des Dreikristall-Diffraktometers eingegangen.

2.2. Das Instrument an der Beamline BW5

Die Beamline BW5 befindet sich an dem Hochfeldwiggler HARWI II, der mit einer kritischen Energie von 26.5 keV zur Erzeugung hochenergetischer Synchrotronstrahlung dient. Der Strahl trifft in einer Entfernung von etwa 35 m zum Wiggler auf einen 1.5 mm dicken wassergekühlten Kupferabsorber, der nur Strahlung mit einer Energie oberhalb von 60 keV passieren läßt, um die Hitzelast auf dem Monochromatorkristall zu reduzieren. Hinter dem Absorber befindet sich eine Lochblende aus Wolfram, durch die der Strahlquerschnitt vor dem eigentlichen Instrument festgelegt wird. Weitere Strahlparameter finden sich in der Tabelle 2.1 [Rüt96].

horizontale	Größe der Quelle	3.14	mm
vertikale	Größe der Quelle	0.33	mm
horizontale	Strahldivergenz	37.0	Winkelsekunden
vertikale	Strahldivergenz	8.0	Winkelsekunden

Tabelle 2.1.: *Quellparameter der Beamline BW5 des HASYLAB. Es werden die 1σ-Werte angegeben.*

Das Dreikristall-Diffraktometer ist in Abbildung 2.5 dargestellt: Der von links einfallende weiße Strahl trifft auf den Monochromatorkristall, der ein Wellenlängenband selektiert. Danach durchläuft der jetzt monochromatische Strahl eine erste Blende und eine Si-PIN-Diode zur Messung der absoluten Primärintensität, bevor er auf den Probenkristall trifft. An der Probenposition ist der Übersichtlichkeit halber nur der Kristall eingezeichnet, es besteht jedoch die Möglichkeit, mit diversen Probenumgebungen zu arbeiten: Für Teile dieser Arbeit wurde ein Hochtemperaturofen verwendet, außerdem stehen unterschiedliche Kryostaten zur Verfügung.

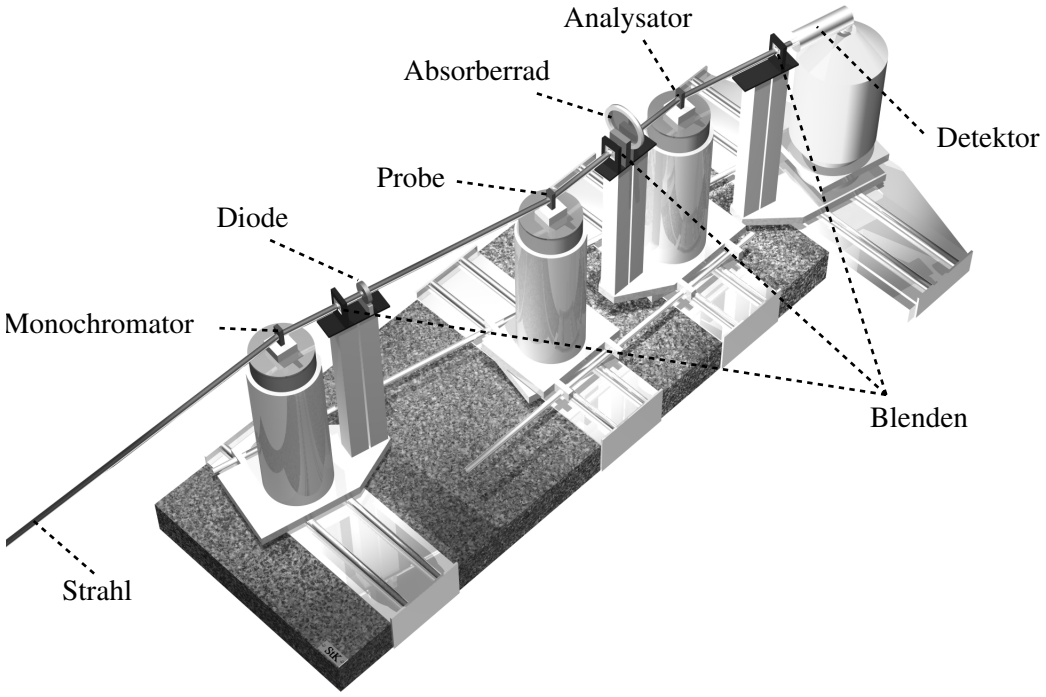


Abbildung 2.5.: *Das Dreikristall-Diffraktometer an der Beamline BW5. Die einzelnen Komponenten werden im Text beschrieben.*

Nach der Probe steht eine zweite Blende im Strahl, die von dem Absorberrad gefolgt wird. Mit diesem läßt sich die Intensität in definierter Weise abschwächen, so daß eine Überlastung des Detektors vermieden werden kann. Vor diesem befinden sich noch zwei weitere optische Elemente: der Analysatorkristall und ein drittes Blendensystem. Der Detektor selbst ist ein stickstoffgekühlter Ge-Halbleiterdetektor, der bei einer Photonenenergie von 100 keV eine Energieauflösung von etwa 1% erreicht.

Die vier Türme für die drei Kristalle und den Detektor stehen jeweils auf Translationstischen, mit denen sie senkrecht zum Strahl verfahren werden können. Auf den Türmen wiederum befinden sich Huber-Drehtische, mit denen die Kristalle präzise gedreht werden können: Die Drehtische erlauben bei Messungen eine Schrittweite von 0.1 Winkelsekunden. Die

Position des Analysatorkristalls wird zusätzlich noch über einen Heidenhain-Winkelencoder ausgelesen, der eine Auflösung von 0.04 Winkelsekunden erreicht. Oberhalb der Drehtische befinden sich Kreuzwiegen, mit denen die Kristalle korrekt zur Beugungsebene orientiert werden.

Für eine Messung werden die Türme zu den durch die Energie und die Bragg-Winkel definierten Positionen gefahren, danach werden die Kristalle über die Rotation auf den korrekten Bragg-Winkel gedreht, so daß sie Strahlung der vorher festgelegten Energie reflektieren. Die Abbildung zeigt die Positionen für einen „$+-+$"-Aufbau von Si-Kristallen, die an dem (220)-Reflex beugen. Die Bezeichnung „$+-+$" gibt dabei an, in welchem mathematischen Drehsinn der Strahl an dem jeweiligen Kristall reflektiert wird. Das Bild wurde aus Anschauungsgründen für niedrige Photonenenergien gerechnet, da bei einer Energie von 100 keV die Bragg-Winkel nur 1.85° betragen.

2.3. Auflösungsvermögen des Dreikristall-Diffraktometers

Das Auflösungsvermögen des Dreikristall-Diffraktometers ergibt sich für den dispersionsfreien Aufbau dreier perfekter Kristalle aus dem Korrelationsintegral der Reflexprofile der einzelnen Kristalle. Als Funktion der Drehwinkel von Probe und Analysator ω_2 bzw. ω_3 lautet es wie folgt:

$$\frac{I}{I_0} = \int_{-\infty}^{\infty} dx\, R(x) \cdot R(x-\omega_2) \cdot R(x-\omega_3) \tag{2.3}$$

Die Form der Reflexprofile wird durch die dynamische Theorie beschrieben, auf die später in dieser Arbeit eingegangen wird. Eine erschöpfende Herleitung findet sich z.B. in [BC64, Zac45], während das Auflösungsvermögen des Dreikristall-Diffraktometers ausführlich in [Neu94] beschrieben wird. Die folgende Formel gibt das Reflexprofil eines perfekten Kristalls an:

$$R(\eta) = \frac{\sin^2\left(A\sqrt{1+\eta^2}\right)}{1+\eta^2} \tag{2.4}$$

mit

$$A = \frac{r_e \lambda^2 |F_G|}{V_{EZ}} t_0 \tag{2.5}$$

Dabei ist r_e der klassische Elektronenradius, F_G der Strukturfaktor für den reziproken Gittervektor $\vec{G}$, V_{EZ} das Volumen der Elementarzelle und t_0 die Dicke des Kristalls. Der Wert von t_0 an der Stelle $A = 1$ definiert die Extinktionslänge t_{ext}. Für Kristalldicken deutlich größer als t_{ext} kann der $\sin^2$-Term durch seinen Mittelwert $1/2$ ersetzt werden. Mit dieser Vereinfachung erhält man eine Lorentzfunktion als Reflexprofil:

$$R(\eta) = \frac{1}{2} \cdot \frac{1}{1+\eta^2} \tag{2.6}$$

Die Größe η ist folgendermaßen mit ω verknüpft:

$$\eta = \frac{\pi V_{EZ} \sin(2\Theta_B)}{2 r_e \lambda^2 |F_G|} \cdot \omega = \frac{2}{FWHM_{dyn}} \cdot \omega \tag{2.7}$$

Setzt man die Beziehung 2.6 für die Reflexprofile in das Korrelationsintegral 2.3 ein, so kann das Integral analytisch gelöst werden und man erhält die folgende Gleichung [Sch95]:

$$\frac{I}{I_0} = \frac{\pi}{4\eta'} \cdot \frac{\eta'^2(\omega_2^2 - \omega_2\omega_3 + \omega_3^2) + 12}{(4+\eta'^2\omega_2^2)(4+\eta'^2\omega_3^2)(4+\eta'^2(\omega_2-\omega_3)^2)} \tag{2.8}$$

mit

$$\eta' = \frac{2}{FWHM_{dyn}} \tag{2.9}$$

Abbildung 2.6 zeigt Konturbilder der nach dieser Formel berechneten Intensitätsverteilung. Die dargestellte Verteilung ergibt sich für einen „$+-+$“-Aufbau dreier perfekter, in symmetrischer Lauegeometrie am Reflex (220) beugender Si-Kristalle bei einer Photonenenergie von 100 keV. In der oberen Graphik wurde die Intensitätsverteilung im Winkelraum berechnet, während die untere Graphik eine Transformation in den reziproken Raum darstellt. Die charakteristische Form der Verteilung wird in der Bildbeschriftung näher erklärt.

Als Auflösung wird das 50%-Niveau der Intensitätsverteilung 2.8 definiert. In Richtung von ω_2 und ω_3 erhält man für die Halbwertsbreite, also für das Auflösungsvermögen des Instrumentes in dieser Richtung, bei einer Photonenenergie von 100 keV am (220)-Siliziumreflex

$$FWHM_{Auflösung} = FWHM_{dyn} \cdot 2\sqrt{\frac{\sqrt{13}-2}{3}} = 0.540\,\text{Winkelsekunden.} \tag{2.10}$$

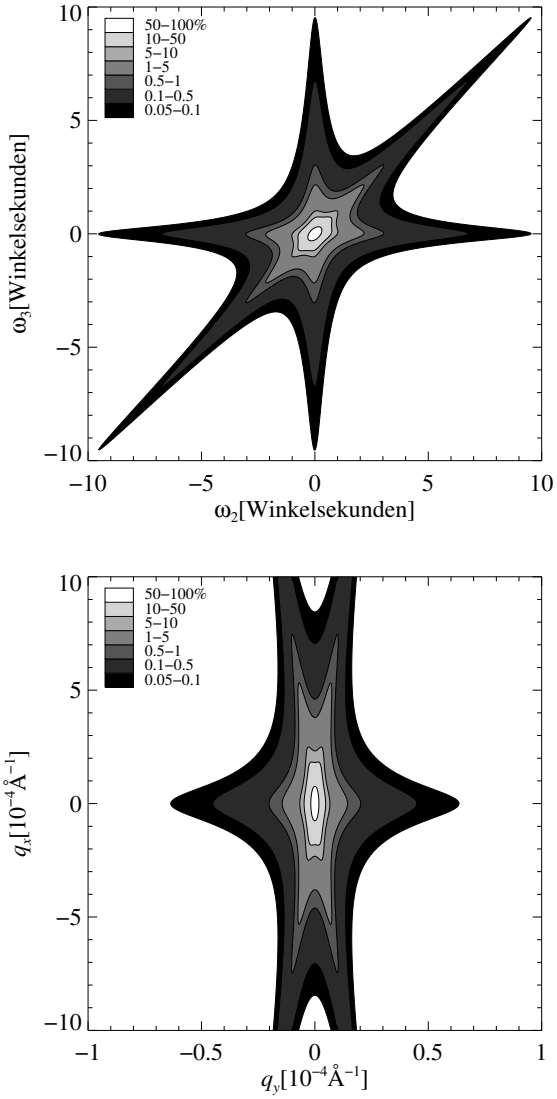


Abbildung 2.6.: *Konturbilder der nach Gleichung 2.8 berechneten Intensitätsverteilung. Die dargestellte Verteilung ergibt sich für einen „+ − +“-Aufbau dreier perfekter, in symmetrischer Lauegeometrie am Reflex (220) beugender Si-Kristalle bei einer Photonenenergie von 100* keV. *Für die obere Graphik wurde die Intensitätsverteilung im Winkelraum von Proben- bzw. Analysatordrehwinkel* ω_2 *und* ω_3 *berechnet, während die untere Graphik eine Transformation in den reziproken Raum darstellt. Die weiß eingezeichnete Kontur ist das 50%-Niveau, welches das Auflösungselement des Dreikristall-Diffraktometers definiert.*
Im Winkelraum wird der waagerecht verlaufende Ausläufer durch die Probe erzeugt, während der senkrechte Auflösungsausläufer auf den Analysator zurückzuführen ist. In der Diagonalen liegt der Monochromatorausläufer.
Im reziproken Raum ist zwischen den Ausläufern von Analysator und Monochromator der zweifache Bragg-Winkel eingeschlossen.

Rechnet man den Wert von 0.540 Winkelsekunden nach den Beziehungen 2.2 in den reziproken Raum um, so erhält man die maximal erreichbare Auflösung von

$$\begin{aligned} \Delta q_x &= 1.35 \cdot 10^{-4}\,\text{Å}^{-1}, \\ \Delta q_y &= 9.00 \cdot 10^{-6}\,\text{Å}^{-1}. \end{aligned} \tag{2.11}$$

Im Gegensatz zu diesem sehr hohen Auflösungsvermögen in der Streuebene steht das nur durch die Strahldivergenz und die Blendensysteme definierte Auflösungsvermögen senkrecht

zur Beugungsebene. Für Blendenöffnungen von 2x2 mm^2 erhält man am Meßplatz BW5 eine Auflösung in q_z-Richtung von

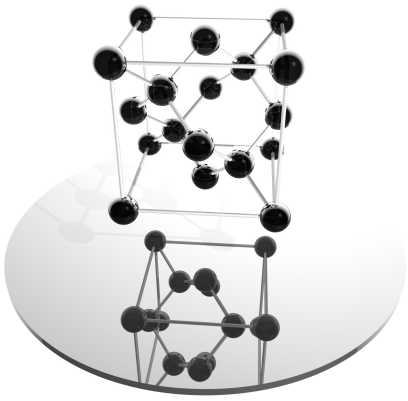
$$\Delta q_z = 1.0 \cdot 10^{-1}\,\text{Å}^{-1}. \tag{2.12}$$

Im Rahmen einer Diplomarbeit von Christian Oeser [Oes97] wurde ein vertikaler Analysatorkristall eingesetzt, um die Auflösung senkrecht zu der durch die anderen drei Kristalle aufgespannten Streuebene zu verbessern. Dabei erreichte man eine Steigerung der Auflösung um fast eine Größenordnung auf

$$\Delta q_z = 1.14 \cdot 10^{-2}\,\text{Å}^{-1}. \tag{2.13}$$

Mit dieser Verbesserung der Auflösung ging aber ein Intensitätsverlust um einen Faktor 30 einher; aus diesem Grunde ist die Verwendung des Vertikalanalysators nur an der Undulatorbeamline PETRA 2 sinnvoll. Hier steht bei deutlich geringerer Strahldivergenz eine um eine Größenordnung höhere Primärintensität zur Verfügung.

Die theoretisch erreichbare Auflösung ist jedoch nicht für alle Experimente erforderlich: Bei der Untersuchung von Überstrukturreflexen in supraleitenden oder magnetischen Systemen wird die Auflösung durch die Qualität der Probenkristalle limitiert [ZVN98, SBH+97]. Hier ist es wünschenswert, die Auflösung durch Monochromator und Analysator an die Probenqualität anzupassen, um einen möglichst hohen primären Photonenfluß zu erhalten. Mögliche Ansätze hierfür sind die Verwendung getemperter Siliziumkristalle [SGR+88], Si-$TaSi_2$-Kristalle [NSS+96] oder gebogener Kristalle [SLS97, Ret97]. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde neben den im folgenden Kapitel 3 beschriebenen getemperten Siliziumkristallen ein neuer Ansatz, die Nutzung struktureller $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle, untersucht, auf den im Kapitel 4 eingegangen wird.



3 Getemperte Siliziumkristalle

Aufgrund ihrer breiten Verwendung in der Halbleiterproduktion sind Siliziumkristalle höchster Qualität zu relativ geringen Preisen erhältlich. Durch ihren hohen Perfektionsgrad zusammen mit dem großen Ausmaß der Einkristalle bieten sich Siliziumkristalle für die Verwendung als Monochromator- und Analysatorkristalle in Röntgen-Beugungsexperimenten an. Da bei diesen Experimenten häufig Proben untersucht werden, die im Vergleich zu Silizium eine geringere kristallographische Qualität haben, ist es erstrebenswert, die instrumentelle Auflösung an die Probeneigenschaften anzupassen. Dazu ist es notwendig, die Reflexprofilbreite der Monochromatoren und Analysatoren entsprechend zu vergrößern. Neben anderen Ansätzen, die später in dieser Arbeit vorgestellt werden, ist es möglich, die normalerweise durch die dynamische Halbwertsbreite gegebene Reflexbreite von Silizium durch eine Temperaturbehandlung zu erhöhen. Im Verlauf dieser Temperaturbehandlung kondensiert der auf Zwischengitterplätzen befindliche Sauerstoff zu großen SiO_x-Präzipitaten. Da die SiO_x-Moleküle mehr Platz in der Gittermatrix einnehmen als die einzelnen Siliziumatome, kommt es zu einer Verspannung des Gitters, die ab einer gewissen Temperatur durch die Erzeugung von Gitterdefekten wie Stapelfehlern und Vollversetzungsschleifen abgebaut wird. Die durch diese Defekte erzeugten Verzerrungsfelder stören die Kristallstruktur und führen zu einer Verbreiterung des Reflexprofils. Die Verzerrungsfelder rufen im reziproken Raum typische Intensitätsverteilungen in der direkten Umgebung eines Bragg-Reflexes hervor, wo sie mit einem Dreikristall-Diffraktometer sehr genau vermessen werden können.

Hochenergetische Synchrotronstrahlung bietet die einzigartige Möglichkeit, die Entstehung und zeitliche Entwicklung dieser Verzerrungsfelder zusammen mit der damit verbundenen Verbreiterung des Bragg-Reflexes in-situ, d.h. während des Durchlaufens einer Temperaturrampe, zu beobachten. Ermöglicht wird dies durch das hohe Eindringvermögen von Photonen mit einer Energie von 100 keV, das die Verwendung eines fensterlosen Ofens während der Messungen auf dem Dreikristall-Diffraktometer erlaubt. Diese in-situ-Messungen eröffnen die Gelegenheit, die Verbreiterung des Reflexes zu kontrollieren und in einem gewissen Rahmen auf gezielte Werte einzustellen. Diese Methode wurde verwendet, um im Verlauf einer Versuchsreihe verschiedene, in-situ-kontrollierte Temperaturrampen zur Herstellung eines Silizium-Mosaikkristalls zu testen. Dabei konnte erstmals die Entwicklung des Reflexprofils während einer Temperaturbehandlung systematisch beobachtet werden.

3.1. Sauerstoffpräzipitation

Sauerstoff ist in Czochralski-gezogenem Silizium das mit Abstand am häufigsten auftretende Fremdelement. Dies liegt an der Verwendung von SiO_2 als Tiegelmaterial für die Kristallschmelze [BPS+95]. Flüssiges Silizium ist extrem reaktiv und baut jedes bekannte Tiegelmaterial mit einer Erosionsrate von mindestens einigen μm/h ab. Dadurch wird an der Grenzschicht Tiegel/Schmelze Sauerstoff frei, der zu 99 % über die Schmelzen-Oberfläche in den Raum der Kristallzüchtungsapparatur verdampft, während das verbleibende Prozent auf Zwischengitterplätzen in den Kristall eingebaut wird. Da der Sauerstoff bei Temperaturen von etwa 1400° C aufgenommen wird, liegt er unterhalb dieser Temperatur in übersättigter Lösung vor. Der Gleichgewichtszustand des Silizium-Sauerstoffsystems wird dann durch eine Phasenseparation in Silizium und Siliziumoxid erreicht, d.h. durch die Bildung von SiO_x-Sauerstoffpräzipitaten. Wird der Kristall nach dem Ziehen weiteren Temperaturbehandlungen unterworfen, so läßt sich die typische Entwicklung der Präzipitate grob in zwei Temperaturbereiche unterteilen. Zwischen 600 und 900° C bilden sich neue Präzipitate, die bei Temperaturen zwischen 1000 und 1200° C als Nukleationskeime für den noch nicht präzipitierten Sauerstoff dienen. Oberhalb von 1000° C entwickeln sich also kaum neue Präzipitate, sondern bestehende Präzipitate werden größer, sofern ihr Radius einen kritischen Wert r_c überschreitet. Neuen Forschungsergebnissen zufolge liegt der Sauerstoff innerhalb der Präzipitate nicht, wie vordem angenommen, in der Form SiO_2 vor, sondern tritt hauptsächlich als SiO auf [VEO+98]. Da ein SiO-Molekül 2.2fach größer als ein Silizium-Gitteratom ist, führt die Bildung von Präzipitaten zu Spannungen in dem umgebenden Gitter. Diese Spannungen bestimmen die Form der Präzipitate: Unterhalb von 900° C sind die Präzipitate scheibenförmig und minimieren so die Gitterspannung. Oberhalb von 900° C können die Verspannungen durch die Bildung von Versetzungsschleifen verringert werden, so daß die Präzipitate die Form der niedrigsten Oberflächenenergie annehmen können. Aufgrund der Anisotropie der Oberflächenenergie ist die bevorzugte Form ein Oktaeder mit {111}-Oberflächen, wobei die Oktaeder bis 1200° C noch gekappte Ecken besitzen [VEO+98]. Ab einer Temperatur oberhalb von 1000° C ist neben den Versetzungsschleifen die Bildung von Stapelfehlern zu beobachten. Abweichungen von diesem typischen Verlauf können bei extremen Randbedingungen wie sehr hoher Sauerstoffkonzentration beobachtet werden. Messungen mit Neutronen-Kleinwinkelstreuung ergaben beispielsweise schon für eine Temperatur von 750° C oktaederförmige Präzipitate, nachdem die Probe 216 h getempert wurde [BSG+95].

Früher wurde die Existenz eines Tieftemperaturstadiums zwischen 400 und 650° C angenommen (z.B. [VC87, VC92]), in dem sich nadelförmige Präzipitate aus der SiO_2-Hochdruckform Coesit bilden sollten. Jetzt setzt sich jedoch die Ansicht durch, daß es sich bei den nadelförmigen Ausscheidungen nicht um Coesit, sondern um interstitielles Silizium handelt [BV88, VEO+98].

Die Ausbildungskinetik und Morphologie der Präzipitate hängt neben der aktuellen Temperatur in komplexer Form von einer Reihe von Parametern ab. Der Wichtigkeit nach geordnet

sind dies die Ausgangskonzentration des Sauerstoffes O_i, die thermische Vergangenheit („thermal history“) des Kristalls und der Dotierungsgrad. Der Zusammenhang zwischen dem Anteil des in Präzipitaten kondensierten Sauerstoffes ΔO_i und der Ausgangskonzentration O_i ist verhältnismäßig einfach: Unterhalb einer Konzentration von $6 \cdot 10^{17}\mathrm{cm}^{-3}$ findet praktisch keine Präzipitation statt, während in einem Konzentrationsbereich von 6-8$\cdot 10^{17}\mathrm{cm}^{-3}$ der Anteil des präzipitierten Sauerstoffs proportional zu O_i ist. Oberhalb dieses Bereiches geht ΔO_i in die Sättigung. Unter der thermischen Vergangenheit eines Kristalls versteht man den Temperaturverlauf beim Abkühlen des fertig gezogenen Kristalls. Je nach Abkühlgeschwindigkeit bilden sich mehr oder weniger Nukleationskeime, an denen dann später die Sauerstoffatome kondensieren. Der Dotierungsgrad, der in der Halbleiterindustrie durch Angabe des spezifischen Widerstandes ρ in $\Omega \cdot \mathrm{cm}$ angegeben wird, spielt in gängigen Kristallen keine entscheidende Rolle. Normaldotierte Kristalle weisen spezifische Widerstände von mehr als 1 Ωcm auf, während in neuen hochdotierten Materialien Werte kleiner als 10 mΩcm erreicht werden [Dor97]. In diesen Materialien wird bei Bordotierung die Präzipitation dadurch merklich verstärkt, daß Boratome in die Präzipitate eingebaut werden und dabei die Gitterverspannungen herabsetzen [TAH$^+$98].

Prinzipiell sind die Mechanismen der Sauerstoffpräzipitation in Silizium gut verstanden und können durch Computermodelle simuliert werden [SEH95, ESS$^+$96]. In der Praxis ist es während der Temperaturbehandlung eines Kristalls aufgrund der Vielzahl von Parametern jedoch schwierig, Vorhersagen über das Ausmaß der Präzipitation und die damit verbundene Defektbildung zu treffen. Größter Unsicherheitsfaktor ist dabei die meist unbekannte thermische Vergangenheit des Kristalls. Bei der Herstellung von Silizium-Mosaikkristallen für die Verwendung als Monochromatoren bieten die in-situ-Messungen mit hochenergetischer Synchrotronstrahlung die Möglichkeit einer kontrollierten Prozeßführung. Bevor auf derartige Messungen eingegangen wird, werden kurz die Grundlagen der diffusen Defektstreuung und die Behandlung des thermischen Untergrundes während solcher Messungen beschrieben.

3.2. Diffuse Defektstreuung

In diesem Unterabschnitt wird die Theorie der diffusen Streuung aufgrund von Gitterdefekten kurz zusammengefaßt. Die Grundlagen dieser Theorie schufen Stokes und Wilson sowie Huang [SW44, Hua47]. Auf deren Grundlagen bauten dann Dederichs [Ded70, Ded71, Ded73] und Trinkaus [Tri71, Tri72a, Tri72b] auf. Ausführliche Darstellungen für die Defektstreuung von Stapelfehlern und Vollversetzungsschleifen finden sich schon in den Dissertationen von R. Bouchard [Bou93] und T. Schmidt [Sch95], so daß an dieser Stelle nur die wesentlichen Ergebnisse wiederholt werden sollen.

Gitterdefekte führen zu einer statischen Auslenkung $\vec{u}$ der einzelnen Atome von den idealen Gitterplätzen. In aller Regel wird die gemittelte Auslenkung $\langle\vec{u}\rangle$ aller Gitteratome ungleich 0 sein, so daß auch der gemittelte reziproke Gittervektor $\langle\vec{G}\rangle$ nicht mit dem des perfekten Kri-

stalls übereinstimmt. Mittelt man über alle möglichen Defektkonfigurationen, so erhält man unter der Annahme kleiner Defektkonzentrationen c_D für die Streuintensität [Ded71]:

$$I_{Def}(\vec{q}) = Nc_D \exp\left(-2L_{\langle G\rangle}\right) |F_{D,\langle G\rangle}(\vec{q})|^2 \tag{3.1}$$

wobei N die Anzahl der Streuzentren, $\exp\left(-2L_{\langle G\rangle}\right)$ der statische Debye-Waller-Faktor und $F_{D,\langle G\rangle}$ der Defektstrukturfaktor sind. Der Defektstrukturfaktor besteht aus zwei Summanden, die für die sogenannte Laue-Streuung an Atomen innerhalb eines Defektes und für die Streuung an Atomen in der verzerrten Kristallmatrix in der Umgebung eines Defektes stehen:

$$F_{D,\langle G\rangle}(\vec{q}) = f_{D,\langle G\rangle} \cdot \tilde{\rho}(\vec{q}) + f_{\langle G\rangle} \cdot g_{\langle G\rangle}(\vec{q}) \tag{3.2}$$

Da sowohl die Atome innerhalb des Defektes als auch in der Matrix Siliziumatome sind, ist der Formfaktor $f_{\langle G\rangle}$ für beide Summanden gleich und kann vor die Summe gezogen werden. $\tilde{\rho}(\vec{q})$ ist die Fouriertransformierte der Gestaltsfunktion des Defektclusters $\rho(\vec{r})$:

$$\tilde{\rho}(\vec{q}) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\mathrm{d}^3 r}{V_{EZ}}\, \rho(\vec{r}) \cdot \exp\left(i\vec{q}\cdot\vec{r}\right) \tag{3.3}$$

Der auf die verzerrte Matrix zurückzuführende Anteil des Defektstrukturfaktors läßt sich in einen symmetrischen und einen antisymmetrischen Anteil zerlegen und dann in niedrigster Ordnung berechnen. Dabei findet man heraus, daß der antisymmetrische Anteil in erster Ordnung durch das Skalarprodukt von reziprokem Gittervektor $\langle\vec{G}\rangle$ und Fouriertransformierten des Verzerrungsfeldes $\tilde{\vec{u}}$ gegeben ist, während der symmetrische Anteil proportional zum Argument $-L_{\langle G\rangle}$ des statischen Debye-Waller-Faktors ist [Ded73, LS80]. Damit erhält man:

$$g_{\langle G\rangle}(\vec{q}) = -\frac{L_{\langle G\rangle}}{c_D} - \langle\vec{G}\rangle \cdot \tilde{\vec{u}}(\vec{q}) \tag{3.4}$$

Faßt man die Formeln 3.1, 3.2 und 3.4 zusammen, so beschreibt man die Huang-Streuung von Defektclustern mit Formel 3.1, wobei für den Defektstrukturfaktor folgende Gleichung gilt:

$$F_{D,\langle G\rangle}(\vec{q}) = f_{\langle G\rangle} \cdot \left[\tilde{\rho}(\vec{q}) - \left(\langle\vec{G}\rangle \cdot \tilde{\vec{u}}(\vec{q}) + \frac{L_{\langle G\rangle}}{c_D}\right)\right] \tag{3.5}$$

Nach [Sch95] dominiert der Streubeitrag des Verzerrungsfeldes $\vec{u}(\vec{r})$ die diffuse Defektstreuung. Nach einem Ansatz von Larson und Schmatz [LS80] ergibt sich das Verzerrungsfeld aus der Faltung der Kraftdichte $\vec{K}(\vec{r})$ mit dem Greentensor $\hat{G}(\vec{r})$ des elastischen Mediums.

Nach dem Faltungssatz kann die Faltung durch das Produkt der Fouriertransformierten ersetzt werden:

$$\tilde{\vec{u}}(\vec{q}) = \tilde{\hat{G}}(\vec{q}) \cdot \tilde{\vec{K}}(\vec{q}) \tag{3.6}$$

$\tilde{\hat{G}}(\vec{q})$ wird ausschließlich über die elastischen Konstanten c_{ij} der Siliziummatrix gegeben und beschreibt somit die elastischen Eigenschaften des Kristallgitters, während die Komponenten der Kraftdichte über die Defekteigenschaften bestimmt werden, da sie durch den Burgersvektor $\vec{b}$, den Radius R_D und den Flächennormalen-Vektor $\vec{n}$ des als kreisförmig angenommenen Defekts ausgedrückt werden:

$$\tilde{K}_h(\vec{q}) = \frac{1}{V_{EZ}} \cdot b_l \cdot C_{hmlj} \cdot q_m \cdot n_j \cdot \frac{2J_1(Q \cdot R_D)}{Q \cdot R_D} \tag{3.7}$$

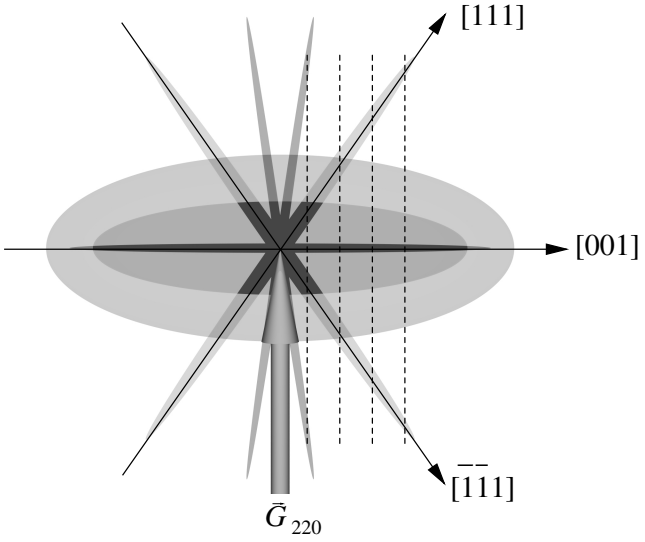


Abbildung 3.1.: *Schematische Darstellung der diffusen Streubeiträge in der q_x, q_y-Ebene um den (220)-Reflex von Silizium. Die Stapelfehler auf {111}-Ebenen führen zu schmalen Ausläufern entlang der <111>-Richtungen, während sich in Richtung [001] die relativ breiten Beiträge von TDS (hell) und Vollversetzungschleifen (dunkel) mit dem schmalen Auflösungsausläufer der Probe überlagern. Die Auflösungsausläufer von Monochromator und Analysator liegen nahezu parallel zum reziproken Gittervektor. Die gestrichelten Linien veranschaulichen die Position der q_x-Scans, mit denen die diffuse Streuung untersucht wird. Das Ergebnis einer Beispielmessung zeigt die rechte Abbildung 3.2. Hier sind bis auf den Auflösungsausläufer alle diffusen Streubeiträge zu beobachten.*

In dieser Gleichung gilt die Einsteinsche Summenkonvention. $J_1(QR_D)$ ist die Bessel-Funktion 1. Ordnung, wobei Q durch die Projektion des Streuvektors $\vec{q}$ auf die Fläche des Defekts gebildet wird. C_{hmlj} ist der Tensor der elastischen Konstanten.

Die Vollversetzungsschleifen und Stapelfehler führen zu der in Abbildung 3.1 dargestellten diffusen Intensitätsverteilung in der Umgebung des untersuchten (220)-Reflexes von Silizium. Zusätzlich sind noch die Ausläufer des in Abschnitt 2.3 beschriebenen Auflösungselementes und der Beitrag des thermischen Untergrundes eingezeichnet. Auf diesen wird in dem nächsten Unterabschnitt eingegangen.

3.3. Thermisch diffuse Streuung

Die immer vorhandene thermische Bewegung der Atome in einem Kristall führt zu einer Änderung der Intensitätsverteilung, die bei der Untersuchung von diffuser Defektstreuung berücksichtigt werden muß. Dabei reduziert die unkorrelierte Bewegung der Atome die Intensität des Bragg-Reflexes. Dieser Effekt wird über den Debye-Waller-Faktor quantifiziert. Im Gegensatz dazu erzeugt eine korrelierte Bewegung der Gitteratome, die durch Phononen beschriebene Gitterschwingung, den zusätzlichen Streubeitrag der **t**hermisch **d**iffusen **S**treuung (TDS). Die TDS muß bei Beugungsexperimenten als Untergrund abgezogen werden.

Auf eine Herleitung der mathematischen Formulierung wird hier verzichtet. Eine ausführliche Beschreibung findet sich in [WP75], eine Zusammenfassung der für das Dreikristall-Diffraktometer an der Beamline BW5 relevanten Ergebnisse gibt [SWK+98]. An dieser Darstellung orientiert sich auch der folgende Abschnitt.

Bei hohen Temperaturen T kann die durchschnittliche Energie der einzelnen Phononenmoden als k_BT angenommen werden. Damit wird der Debye-Waller-Faktor zu

$$\exp(-2W_H) \quad \text{mit} \quad W_H = |\vec{G}^2| \cdot \frac{3\hbar^2}{mk_B\Theta_D^2} \cdot T, \tag{3.8}$$

wobei Θ_D=645 K die Debye-Temperatur ist. Betrachtet man ausschließlich Ein-Phonon-Prozesse und berücksichtigt nur die akustischen Phononen-Moden, dann wird die TDS durch die folgende Gleichung beschrieben:

$$I_{TDS}(\vec{q}) = Nf_G^2 \cdot \exp(-2W_H) \cdot \frac{k_BT}{mq^2} \cdot \sum_{j=1}^{3} \frac{1}{v_j^2} \cdot |(\vec{G}+\vec{q})\vec{e}_j(\vec{q})|^2 \tag{3.9}$$

mit N der Anzahl der Streuzentren. Die Vernachlässigung von Mehr-Phononen-Prozessen und den optischen Moden führt dabei zu sehr geringen Fehlern [Woo96]. Interessant ist das Verhal-

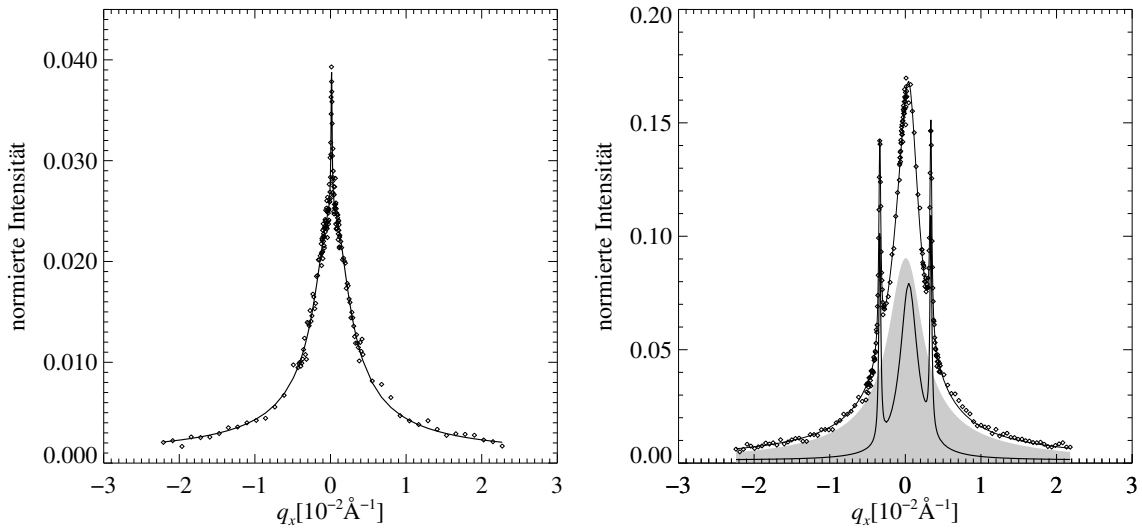


Abbildung 3.2.: *Zwei q_x-Scans derselben Probe an der Position $q_y = 2.4 \cdot 10^{-3}$ Å^{-1}, links bei Zimmertemperatur zu Beginn einer Temperaturrampe, rechts nach mehrstündigen Tempern bei einer Temperatur von 1100° C gemessen. Die linke Messung erfüllt die Aufgabe der Referenzmessung zur Bestimmung des Skalenfaktors für die TDS. Die durchgezogene Linie stellt den im Text beschriebenen Fit an TDS und Auflösungsausläufer dar. Der Skalenfaktor diente dazu, im rechten Bild den dunkel unterlegten Anteil der TDS zu berechnen und abzuziehen. Die dicke durchgezogene Linie zeigt eine Anpassung an die diffuse Defektstreuung. Der breite, zentrale Beitrag ist auf Vollversetzungschleifen zurückzuführen, während die schmalen Peaks durch Stapelfehler hervorgerufen werden. Die dünne Linie gibt die Summe aus TDS und Fit wieder.*

ten der TDS als Funktion von der Koordinate q_y des reziproken Raums und von der Temperatur T:

$$I_{TDS}^{max}(\vec{q}) = const \cdot \frac{1}{|\vec{q}|^2} \qquad \text{und} \qquad I_{TDS}^{max}(T) \propto T \cdot \exp(-const \cdot T) \tag{3.10}$$

Eine Darstellung der räumlichen Verteilung der TDS findet sich in [Oes97]. Bei Messungen der diffusen Streuung wird die Beziehung 3.9 dazu verwendet, die TDS zu berechnen und als Untergrund von der gemessenen Intensität abzuziehen. Da in der Gleichung die Anzahl der Streuzentren unbekannt ist, wird eine Referenzmessung an einem perfekten Siliziumeinkristall durchgeführt. Bei dieser Messung sind nur Beiträge von TDS und von der Auflösungsfunktion zu beobachten, so daß an die Ergebnisse eine Kurve nach den Gleichungen 3.9 und 2.8 angepaßt werden kann, um den gesuchten Skalenfaktor zu bestimmen. Auf diese Art und Weise ist der Streubeitrag der TDS vollständig beschrieben. Die Entwicklung und Durchführung dieses Verfahrens ist in [Sch95] beschrieben. Ein Beispiel für dieses Verfahren zeigt Abbildung 3.2.

In der linken Graphik ist das Ergebnis der oben besprochenen Referenzmessung zu sehen, während das rechte Bild einen Scan bei einer Temperatur von 1100° C darstellt. Mit dem aus der Referenzmessung bestimmten Skalenfaktor der TDS wird der als dunkel unterlegte Fläche gezeigte Anteil der thermisch diffusen Streuung berechnet und abgezogen, danach kann die diffuse Defektstreuung angepaßt werden.

3.4. Experimenteller Aufbau

Alle in diesem Kapitel geschilderten Messungen fanden bei einer Photonenenergie von 100 keV auf dem in Abschnitt 2 beschriebenen Dreikristall-Diffraktometer statt. Die diffuse Defektstreuung wurde, wie in Abbildung 3.1 dargestellt, in der unmittelbaren Umgebung des Silizium-(220)-Reflexes mit θ-2θ-Scans in q_x-Richtung untersucht. Durch eine Kombination mehrerer dieser Scans an verschiedenen q_y-Positionen läßt sich die $\vec{q}$-Abhängigkeit der einzelnen Streubeiträge vermessen. Außerdem wurde die Halbwertsbreite des Braggreflexes im Zweikristall-Aufbau durch ω_2-Scans beobachtet.

3.4.1. Hochtemperatur-Ofen

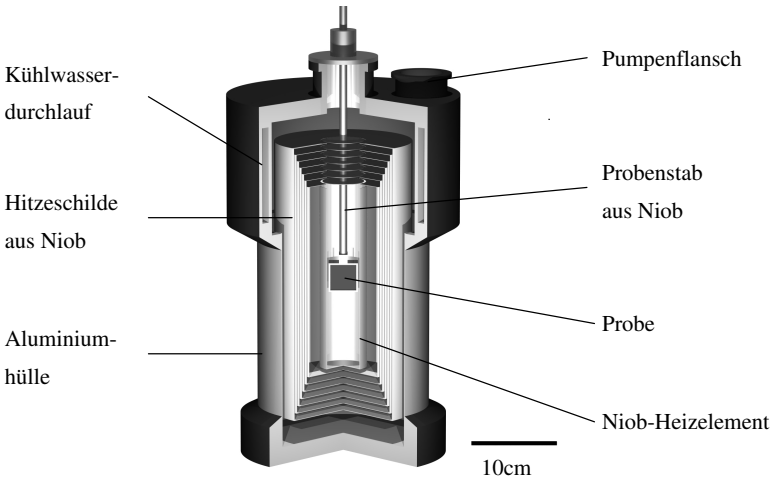


Abbildung 3.3.: *Der ILL-Hochtemperaturofen für Temperaturen bis 1800° C. Er hat bei einer Höhe von 45* cm *einen Durchmesser von 27* cm. *Weitere Erläuterungen finden sich im Text.*

Für die in-situ-Messungen wurde ein nach Plänen des **I**nstituts **L**aue-**L**angevin (ILL) von der Firma AS Scientific gebauter Hochtemperatur-Ofen verwendet. Eine schematische Darstellung dieses Ofens zeigt Abbildung 3.3. Dank der verwendeten hochenergetischen Synchrotronstrahlung benötigt der Ofen keine Fenster. Er besteht aus einer wassergekühlten Aluminiumhülle, in deren Innerem sich eine Reihe von Hitzeschilden befindet. Sie isolieren die äußere

Hülle gegenüber dem Widerstands-Heizelement aus Niob im Zentrum des Ofens. Zusätzlich wird das gesamte Volumen mit einer Turbopumpe bis auf einen Druck von etwa $5 \cdot 10^{-6}$ mbar evakuiert. Die Heizung erlaubt bei einer maximalen Leistung von 2 kW Höchsttemperaturen von 1800° C. Bei einem freien Innendurchmesser des Heizelements von 45 mm können in einem aus massiven Niob gefertigten Probenhalter Siliziumproben bis zu 30 x 30 x 10 mm^3 Größe untersucht werden. Die große Dicke der Proben hat während der Messungen zwei Vorteile: Erstens ist der Streubeitrag von oberflächennahen Bereichen vernachlässigbar klein, so daß eine aufwendige Präparation der Probenkristalle entfallen kann. Zweitens wird durch den Dickeneffekt der kinematische Streubeitrag der Defektstreuung gegenüber dem sich in der Sättigung befindenden dynamischen Beitrag des Bragg-Reflexes verstärkt. Die Temperatur der Probe wird mittels zweier Pt/PtRh-Thermoelemente überwacht.

3.5. Temperaturrampen zur Herstellung von Silizium-Monochromatoren

Für den von U. Rütt durchgeführten Aufbau eines Diffraktometers an der **A**dvanced **P**hoton **S**ource (APS) wurden Monochromatorkristalle einer Halbwertsbreite von 6-8 Winkelsekunden bei einer Photonenenergie von 100 keV benötigt. Im Rahmen einer Meßzeit von S. Keitel, U. Rütt und M. Beno an der Beamline BW5 des HASYLAB wurde nach der optimalen Temperaturrampe zum Erreichen dieser Halbwertsbreite gesucht [KRB+99].

Der Monochromator soll in Bragg-Geometrie beugen und muß aufgrund der kleinen Bragg-Winkel entsprechend groß sein. Bei der Firma Wacker Siltronic wurde deshalb ein über 30 cm langer Abschnitt eines Czochralski-gezogenen Einkristalls gekauft. Er hatte laut Herstellerangaben einen Sauerstoffgehalt O_i zwischen 8.22 und $8.45 \cdot 10^{17}$ cm^{-3} und war Antimon-dotiert. Von beiden Enden des Kristalls wurde jeweils eine 1 cm dicke Scheibe abgesägt, aus der eine Reihe von 10 x 10 x 10 mm^3 großen Proben präpariert wurde. Während der Temperaturrampen wurden jeweils Proben aus beiden Scheiben getempert, um kontrollieren zu können, ob sich der Kristall über seine ganze Länge homogen verhält.

Um eine Verbreiterung des Reflexprofils eines Siliziumkristalls zu erreichen, müssen in großem Umfang Defekte in dem Kristall erzeugt werden. Nach den Ausführungen in Abschnitt 3.1 ist dazu eine mindestens zweistufige Temperaturbehandlung notwendig. In einem ersten Schritt in dem Temperaturbereich zwischen 600 und 900° C werden die Nukleationskeime erzeugt, während in einem zweiten Schritt bei Temperaturen von 1000-1200° C die Präzipitate von diesen Keimen ausgehend wachsen und Gitterdefekte erzeugen. Nach [BPS+95] ergibt sich für eine Sauerstoffkonzentration zwischen 8 und $9 \cdot 10^{17}$ cm^{-3} eine maximale Nukleationsrate bei einer Temperatur von 750° C. Die Dauer dieses Schrittes sollte zwischen 5 und 10 h liegen. Längere Nukleationsschritte führen nicht mehr zu einer merklichen Erhöhung der Präzipitatdichte. Für den Hochtemperaturschritt haben Messungen von T. Schmidt

gezeigt, daß die optimale Temperatur zur Erzeugung von Versetzungsschleifen zwischen 1050 und 1100° C liegt [Sch95].

Insgesamt wurden in fünf Temperaturzyklen verschiedene Kombinationen von unterschiedlich langen Nukleationsschritten bei 750° C und Hochtemperaturschritten untersucht. Diese Zyklen sind in Tabelle 3.1 aufgelistet, die Ergebnisse der einzelnen Zyklen sind in [KRB+99] dargestellt. Als optimaler Zyklus erwies sich eine Zweistufen-Temperaturrampe mit einem Nukleationsschritt von mindestens 5 h Länge, der von einem mehr als 30 h dauerndem Temperaturschritt bei 1050° C gefolgt wird. Nach diesem Schritt wird der Ofen abgeschaltet. Das langsame Rampen zwischen den einzelnen Temperaturschritten zeigte keine Wirkung auf die erreichbare Halbwertsbreite.

Zyklus	Temperaturverlauf			
(1)	10 h @ 750° C	30.5 h @ 1050° C		
(2)	9.5 h @ 750° C	21 h @ 1100° C	3 h @ 1150° C	
(3)	5 h @ 750° C	36 h @ 1050° C		
(4)	7 h @ 750° C	24 h @ 1100° C		
(5)	6 h @ 750° C	2 h @ 750-1050° C	16 h @ 1050° C	7.5 h @ 1200° C

Tabelle 3.1.: *Liste der getesteten Temperaturzyklen.*

Als Beispiel für eine optimale Temperaturrampe werden hier die Ergebnisse von Zyklus (3) diskutiert. Abbildung 3.4 stellt die Entwicklung der im nichtdispersiven Zweikristall-Aufbau gemessenen Halbwertsbreite für zwei Proben von den beiden Kristallenden dar. Probe „1“ (Quadrate) wurde an der dem Keimkristall zugewandten Seite entnommen, Probe „2“ (Raute) stammt dementsprechend von der näher am Ende des ursprünglichen Kristalls liegenden Seite. Die dünnen Linien zeigen Arkustangensfunktionen und sollen das Auge leiten. Die dicke Linie kennzeichnet den Temperaturverlauf. Man erkennt, daß nach einer Dauer von 30 h die Breite des Reflexprofils nur noch langsam ansteigt und bei einer Halbwertsbreite von 11 Winkelsekunden (Probe „2“) bzw. 9 Winkelsekunden (Probe „1“) in die Sättigung geht. Bei Probe „2“ konnte nach dem Abkühlen der Probe ein Anstieg der Halbwertsbreite auf 11.85 Winkelsekunden beobachtet werden. Dies entspricht dem 16.5fachen der Halbwertsbreite eines perfekten Siliziumkristalls im nichtdispersiven Zweikristall-Aufbau bei 100 keV Photonenenergie. Sehr auffällig ist der Unterschied in der maximal erreichbaren Halbwertsbreite. Obwohl beide Proben aus demselben Kristall stammen, differieren die Werte um annähernd zwei Winkelsekunden. Diese Tatsache unterstreicht den Einfluß der Ausgangskonzentration des Sauerstoffs O_i auf die Defektbildung. Nach der oben angeführten Herstellerangabe lag O_i in Probe „2“ um $0.23 \cdot 10^{17}$ cm^{-3} höher als in Probe „1“.

Über die Verwendbarkeit eines Kristalls als Monochromator entscheidet neben der Halbwertsbreite auch noch die Reflexform. Dabei strebt man möglichst rechteckförmige Profile hoher Reflektivität an, um in einem definierten Winkelbereich maximale Intensität zu erhalten, während außerhalb dieses Bereiches der Untergrund möglichst gering bleiben soll. Abbildung

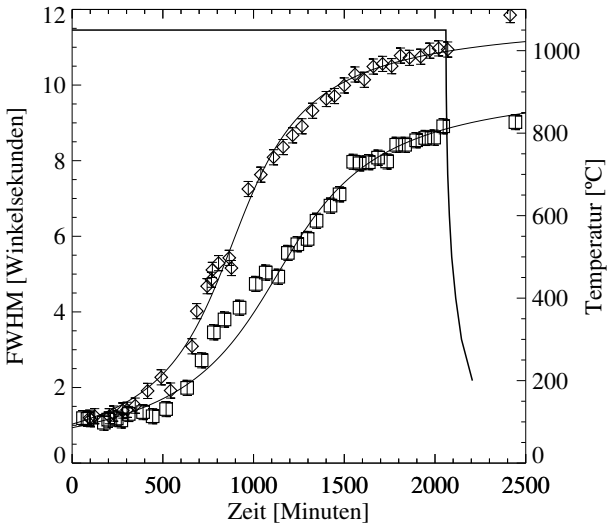


Abbildung 3.4.: *Entwicklung der im nichtdispersiven Zweikristall-Aufbau gemessenen Halbwertsbreite der Proben „2“ (Rauten) und „1“ (Quadrate) während des Temperzyklus (3). Die dicke durchgezogene Linie zeigt die Dauer des 1050° C-Schritts an, während die dünnen Linien das Auge leiten sollen.*

3.5 zeigt die Entwicklung der im Zweikristall-Aufbau gemessenen Reflexprofile von Probe „2“ im Verlauf von Zyklus (3). Der Reflex ändert seine Form nicht wie erwartet direkt von einer lorentz- zu einer voigtförmigen Kurve, sondern durchläuft zusätzlich ein Zwischenstadium, währenddessen sich die Kurvenform durch eine Exponentialfunktion beschreiben läßt:

$$I(\omega_2) = I_0 \cdot \exp\left(-\frac{\sqrt{2}}{FWHM} \cdot |\omega_2 - \omega_{2,0}|\right) \tag{3.11}$$

Dabei sind I_0 und $\omega_{2,0}$ die Reflexhöhe bzw. die Reflexposition. Für die zeitliche Entwicklung der Reflexform bedeutet dies, daß zuerst die Ausläufer der Kurve anwachsen, bevor sich der eigentliche Reflex verbreitert. Die exponentielle Form ist für eine Verwendung als Monochromator- und Analysatorkristall verhältnismäßig ungeeignet. Dieses Zwischenstadium wurde bei allen bereits beschriebenen Temperaturzyklen sowie bei später folgenden Messungen beobachtet. Um die rein empirisch erhaltene Kurvenform theoretisch zu erklären, ist es in der Zukunft notwendig, verschiedene Wachstumsmodelle für den Übergang von einem perfekten Kristall zu einem Mosaik-Kristall zu untersuchen und mit den experimentellen Ergebnissen zu vergleichen.

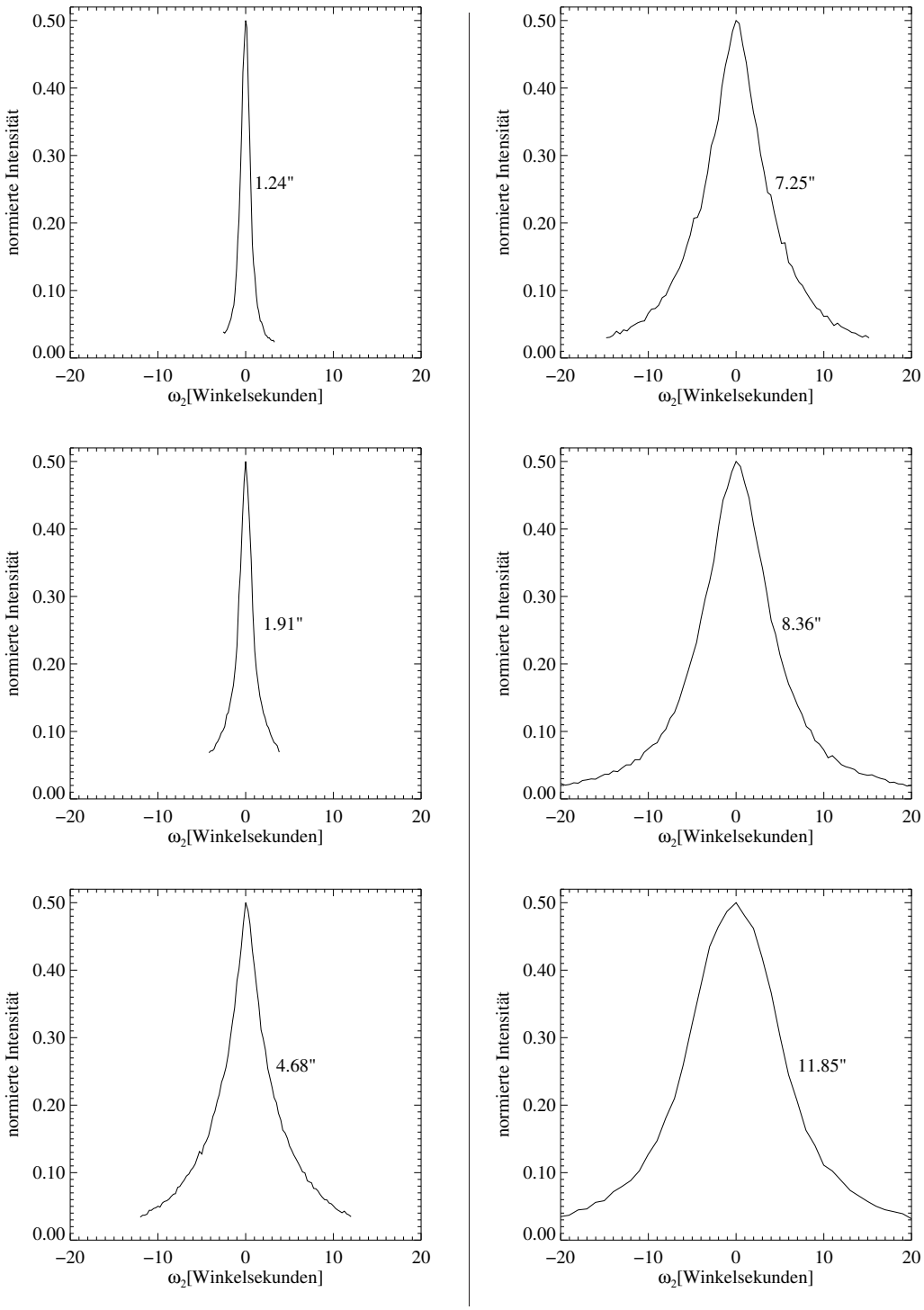


Abbildung 3.5.: *Entwicklung der Reflexprofile der Probe „2“ im Verlauf von Zyklus (3). Die Messungen wurden nach 205, 416, 744, 971, 1163 Minuten bei 1050°* C *und nach Ende der Rampe durchgeführt. Die Zahlen neben den Kurven geben die Halbwertsbreite in Winkelsekunden an, die Höhe der einzelnen Kurven wurde auf 0.5 normiert.*

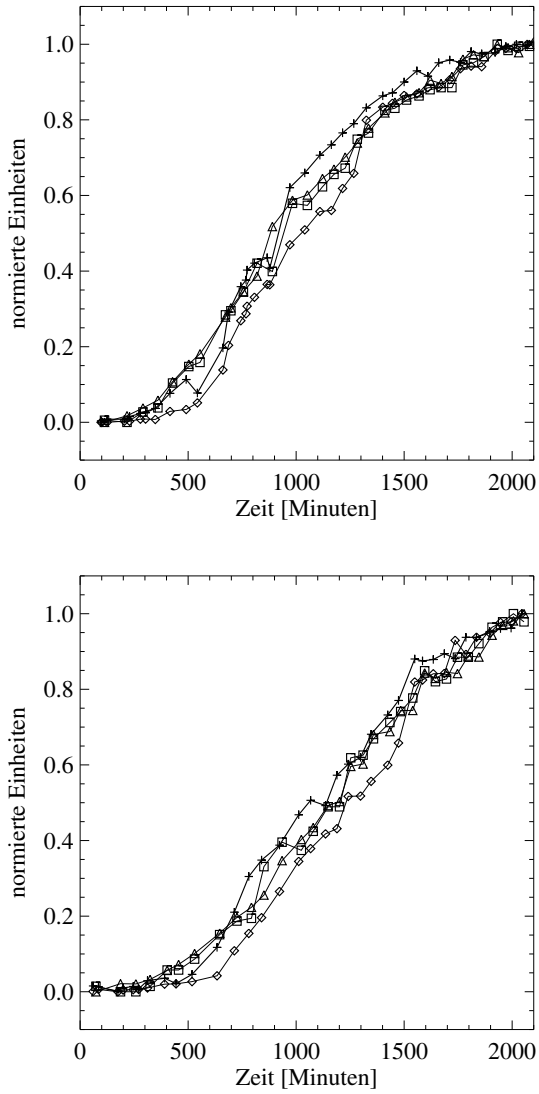


Abbildung 3.6.: *Ergebnisse des Temperzyklus (3). Die obere Graphik stellt die Meßergebnisse von Probe „2“ dar, während die untere Graphik die an Probe „1“ gewonnenen Daten zeigt. Die Linie mit den Plussymbolen stellt die Temperaturentwicklung der Halbwertsbreite des Bragg-Reflexes dar, während die Rauten das Integral des Bragg-Reflexes angeben. Die Dreiecke und Quadrate stehen für die Peakintensität und das Integral der diffusen Streubeiträge der Vollversetzungsschleifen. Alle Kurven wurden auf 1 normiert, nachdem der Untergrund abgezogen worden war.*

Neben der Halbwertsbreite des Bragg-Reflexes wurde im Verlauf der Temperaturzyklen noch die diffuse Defektstreuung untersucht. Dabei konnten nur Streubeiträge von TDS und Vollversetzungsschleifen beobachtet werden, Stapelfehler traten nicht auf. Die Ergebnisse der Messungen des Bragg-Reflexes und der diffusen Streuung werden für die Proben „1“ und „2“ in Abbildung 3.6 gezeigt. Neben der Halbwertsbreite des Bragg-Reflexes („+“-Symbol) sind das Integral des Bragg-Reflexes (Rauten), die Peak-Intensität der diffusen Streuung der Vollversetzungsschleifen (Dreiecke) und das Integral dieses Streubeitrages (Quadrate) in normierten Einheiten aufgetragen. Alle Beiträge wurden auf 1 normiert, nachdem der Untergrund abgezogen worden war. Es fällt auf, daß Bragg-Reflex und diffuse Defektstreuung sich sehr ähnlich verhalten: Alle Kurven beginnen zum gleichen Zeitpunkt anzusteigen, verlaufen dann parallel, bis sie in die Sättigung gehen. Da die diffuse Defektstreuung direkt von der Präzipitatbildung abhängt, weist dieser Kurvenverlauf auf einen Zusammenhang zwischen dem Anteil des präzipitierten Sauerstoffs ΔO_i auf der einen Seite und der integralen Intensität des Bragg-Reflexes auf der anderen Seite hin. Ein direkter Zusammenhang dieser Größen würde es erlauben, aus einer einfach durchführbaren Messung der integralen Intensität den Wert von ΔO_i zu bestimmen. Dies ist speziell bei der Verarbeitung hochdotierter Materialien von sehr großem Interesse für die Halbleiterindustrie.

3.6. Einschub: Hochdotiertes Silizium

Um über Prozesse wie z.B. internes Gettern Silizium-Wafer mit maßgeschneiderten Eigenschaften herstellen zu können, ist es besonders wichtig, den Ausgangssauerstoffgehalt O_i bestimmen zu können. Bei den bisher für die Produktion von Halbleiterbausteinen verwendeten Materialien mit einer Dotierung von mehr als 1 Ωcm [Dor97] wurde dies mittels Fourier-Infrarot-Spektroskopie (**F**ourier **T**ransform **I**nfra**r**ed spectroscopy FTIR) durchgeführt [BPS+95]. Neue hochdotierte Siliziumkristalle weisen Dotierungen im Bereich von 10 mΩcm auf und sind aufgrund einer hohen Dichte von freien Ladungsträgern im Infrarot-Bereich undurchsichtig. Damit sind sie für die üblichen FTIR-Messungen nicht mehr zugänglich. Bei der Entwicklung von alternativen Untersuchungsmethoden treten eine Reihe von Problemen auf. Bei der **G**as-**F**usions-**A**nalyse (GFA) wird das Silizium über den Schmelzpunkt hinaus auf Temperaturen bis zu 1700° C erhitzt und der dabei freiwerdende Sauerstoff wird nachgewiesen [BPS+95]. Dabei wird jedoch der gesamte in dem Kristall befindliche Sauerstoff gemessen und es wird nicht zwischen interstitiellem und präzipitiertem Sauerstoff unterschieden, so daß eine Messung der wichtigen Größe ΔO_i mit der GFA nicht möglich ist. In einem anderen Ansatz werden Proben so dünn hergestellt, daß sie im Infraroten wieder durchsichtig werden und mit konventioneller FTIR untersucht werden können [GCR+98]. Da es sich dabei jedoch um Probendicken im Bereich von 20 μm handelt und die Messungen vorzugsweise bei Temperaturen von 5 K durchgeführt werden, ist diese Methode zu aufwendig, um in der Wafer-Produktion im großen Maßstab Verwendung finden zu können.

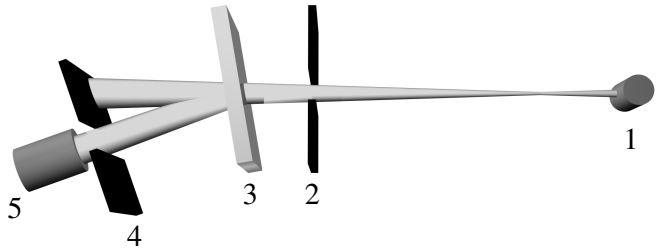


Abbildung 3.7.: *Versuchsaufbau nach [TMU+95, THU+96]. 1 Röntgenröhre, 2 Blende, 3 Probe, 4 Blende, 5 Szintillationszähler*

Sehr erfolgversprechend ist der empirische Ansatz von Takeno *et al.* [TMU+95, THU+96]. Sie messen in einem einfachen Röntgenbeugungsexperiment die integrale reflektierte Intensität einer Siliziumprobe und beobachten einen Zusammenhang zwischen integraler Intensität und präzipitiertem Sauerstoff ΔO_i. Der Versuchsaufbau ist in Abbildung 3.7 dargestellt: Mit einer Röntgenröhre (1) wird $MoK_{\alpha 1}$-Strahlung erzeugt, die durch eine Blende (2) auf die Probe (3) fällt. Diese ist so gedreht, daß für den gewünschten Reflex die Bragg-Bedingung erfüllt ist. Der reflektierte Strahl trifft nach einer weiteren Blende (4) auf einen Szintillationszähler (5). Die Ergebnisse von Messungen an den Reflexen (220), (440), (660) und (880) werden in Abbildung 3.8 gezeigt.

An einer Reihe von Kristallen mit unterschiedlichen O_i wurde die integrale Intensität vor (I_b) und nach (I_a) einer Temperaturbehandlung gemessen. Außerdem wurde jeweils vor und nach der Temperaturbehandlung mittels FTIR die Konzentration von interstitiellem Sauerstoff gemessen und so ΔO_i bestimmt. In Abbildung 3.8 ist das Verhältnis I_a/I_b über ΔO_i aufgetragen. Man erkennt einen sehr klaren linearen Zusammenhang

$$I_a/I_b = A \cdot \Delta O_i + 1 \tag{3.12}$$

zwischen diesen Größen, so daß aus Messungen des Intensitätsverhältnisses eine Bestimmung von ΔO_i möglich ist. Der große Vorteil dieses Verfahrens liegt in der einfachen Durchführung der Messungen. Man benötigt lediglich eine konventionelle Röntgenröhre, mit der in einem einfachen Beugungsexperiment Wafer direkt untersucht werden können. In einem industriellen Prozeß würde man mit Referenzmessungen die Intensität I_b und die Korrelationskonstante A aus Beziehung 3.12 festlegen, um dann während der Produktion über eine einzige Messung von I_a die Größe ΔO_i bestimmen zu können [THU+96]. Eine theoretische Grundlage für diese Methode bieten eventuell die Arbeiten einer Gruppe am Institut für Halbleiter der Ukrainischen Akademie der Wissenschaften. Dort wurde im Rahmen der dynamischen Theorie das integrale Reflexionsvermögen von Siliziumkristallen (**t**otal **i**ntegrated **r**eflective **p**ower TIRP) unter Berücksichtigung der diffusen Streuung berechnet und ein Zusammenhang zwischen Perfektionsgrad des Kristalls und TIRP entdeckt (englischsprachige Veröffentlichungen

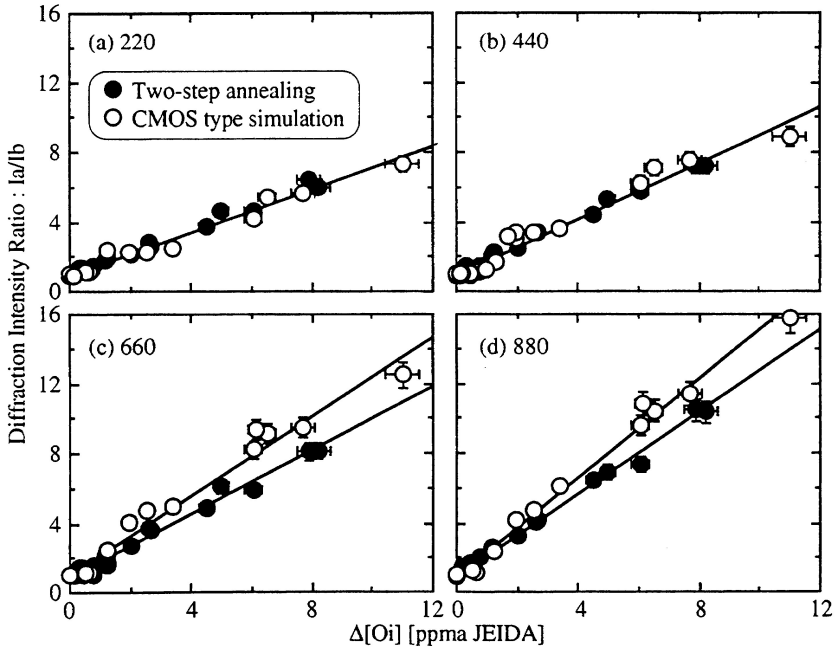


Abbildung 3.8.: *Kopie einer Abbildung aus [TMU+95]. Die integrale reflektierte Intensität nach einer Temperaturbehandlung I_a wird auf den Wert vor der Behandlung I_b normiert und über ΔO_i aufgetragen. ΔO_i ist in **p**arts **p**er **m**illion **a**toms* (ppma) *dargestellt. 1* ppma *entspricht in Silizium einer Konzentration von $0.5{\cdot}10^{17}\mathrm{cm}^{-3}$. Die Bezeichnung „JEIDA“ gibt an, mit welchem Kalibrationsfaktor bei den FTIR-Messungen gearbeitet wurde. Der JEIDA-Wert beträgt $3.03{\cdot}10^{17}\mathrm{cm}^{-2}$, der DIN 50 438/1-Standard liegt bei $2.45{\cdot}10^{17}\mathrm{cm}^{-2}$ [BPS+95].*

[MOO+85, BKL+91, NMO+91]). Durch eine Reihe von TIRP-Messungen bei unterschiedlichen Photonenenergien oder Probendicken lassen sich die Parameter der Defektstreuung bestimmen. Diese Messungen werden ähnlich wie das Verfahren von [THU+96] mit einem einfachen Einkristall-Diffraktometer durchgeführt. Die Meßmethode wurde 1986 zum Patent angemeldet [DGK+86]. Durch diese Arbeiten wird ein Zusammenhang zwischen Defektbildung und integraler Intensität des Bragg-Reflexes hergestellt. Auf der anderen Seite ist es im Rahmen von Simulationsrechnungen [SEH95, ESS+96] möglich, die Präzipitatbildung und in gewissen Grenzen die Defektbildung zu berechnen, so daß sich durch eine Verbindung beider Ansätze eine theoretische Erklärung für die Resultate von Takeno *et al.* ergeben kann.

3.6.1. BMD-Test

Die Ergebnisse der am HASYLAB durchgeführten Messungen (Abb. 3.6, S. 25) bestätigen den Zusammenhang zwischen präzipitiertem Sauerstoff und integraler Intensität des Bragg-Reflexes, da die beobachtete diffuse Defektstreuung eine direkte Folge des Wachstums der

Sauerstoffpräzipitate ist. Diese Tatsache, zusammen mit dem großen Interesse an einer Meßmethode, die verläßliche Messungen auch bei hochdotiertem Silizium zuläßt, motivierte die Wacker Siltronic AG, Burghausen, im Rahmen einer bestehenden Koorperation Testmessungen durchführen zu lassen. Dazu wurde aus drei Kristallen mit unterschiedlichen Sauerstoffkonzentrationen (s. Tabelle 3.2) jeweils eine 30 x 30 x 10 mm^3 große Probe einem sogenannten **b**ulk **m**icro **d**efects- (BMD)-Test unterworfen. Darunter versteht man eine Standard-Temperaturrampe von 3 h bei 780° C und 16 h bei 1000° C. Vor und nach dieser Rampe wurden Halbwertsbreite und Integral des (220)-Reflexes gemessen, während der Temperaturrampe wurde in-situ neben diesen Größen die diffuse Defektstreuung beobachtet.

Probe	O_i [10^{17}cm^{-3}]	ρ [Ωcm]	C [10^{15}cm^{-3}]	Ziehgeschwindigkeit [mm/min]
(1)	8.2	5	≤ 5	≤ 0.5
(2)	7.4-7.2	4	≤ 5	0.9
(3)	6.5	6	≤ 5	0.8

Tabelle 3.2.: *Liste der untersuchten Proben. Neben der Ausgangskonzentration des Sauerstoffs O_i ist der spezifische Widerstand* ρ *angegeben, der ein Maß für den Dotierungsgrad ist. Kohlenstoff (C) ist neben Sauerstoff die am häufigsten auftretende Verunreinigung. Bei den hier untersuchten Proben liegt die Kohlenstoffkonzentration jedoch unter dem Nachweislimit von $5{\cdot}10^{15}$*cm^{-3}.

Abbildung 3.9 zeigt die Ergebnisse des BMD-Tests für die Proben (1) und (2). Die Daten wurden wie für Abbildung 3.6 auf Seite 25 nach Abzug des Untergrundes auf 1 normiert. Man erkennt einen unterschiedlich einsetzenden Anstieg der einzelnen Streubeiträge: Die Streubeiträge der diffusen Defektstreuung (Dreiecke und Quadrate) wachsen deutlich früher an als die Halbwertsbreite und das Integral des Bragg-Reflexes (Plus und Rauten). Aufgrund der nicht eintretenden Sättigung kann nicht gesagt werden, ob die einzelnen Kurven eventuell parallel verlaufen und nur auf der Zeitachse verschoben sind. Bei Probe (3) war aufgrund der niedrigen Sauerstoff-Ausgangskonzentration praktisch keine Veränderung des Beugungsverhaltens zu beobachten, deshalb sind die Ergebnisse dieser Messung in Abbildung 3.9 nicht aufgetragen.

Die untere Graphik von Abbildung 3.9 stellt am Beispiel des Integrals des Bragg-Reflexes die Entwicklung der einzelnen Proben während des BMD-Tests gegenüber. Die durchgezogenen Linien sind das Ergebnis eines linearen Fits. Als Steigungen ergaben sich jeweils in Winkelsekunden/min für Probe (1) $18.41(\pm 0.39)\cdot 10^{-3}$, für Probe (2) $4.05(\pm 0.20)\cdot 10^{-3}$ und für Probe (3) $-0.46(\pm 0.02)\cdot 10^{-3}$. Die Differenz zwischen den Steigungen ist nur in erster Näherung proportional zu der Differenz zwischen den Sauerstoff-Ausgangskonzentrationen der Proben. Wenn man die drei möglichen Differenzen der Steigungen mit den entsprechenden Werten der Konzentration vergleicht, so erhält man den folgenden Zusammenhang, wobei das „″“-Zeichen die Einheit Winkelsekunden abkürzt, während in den eckigen Klammern hier

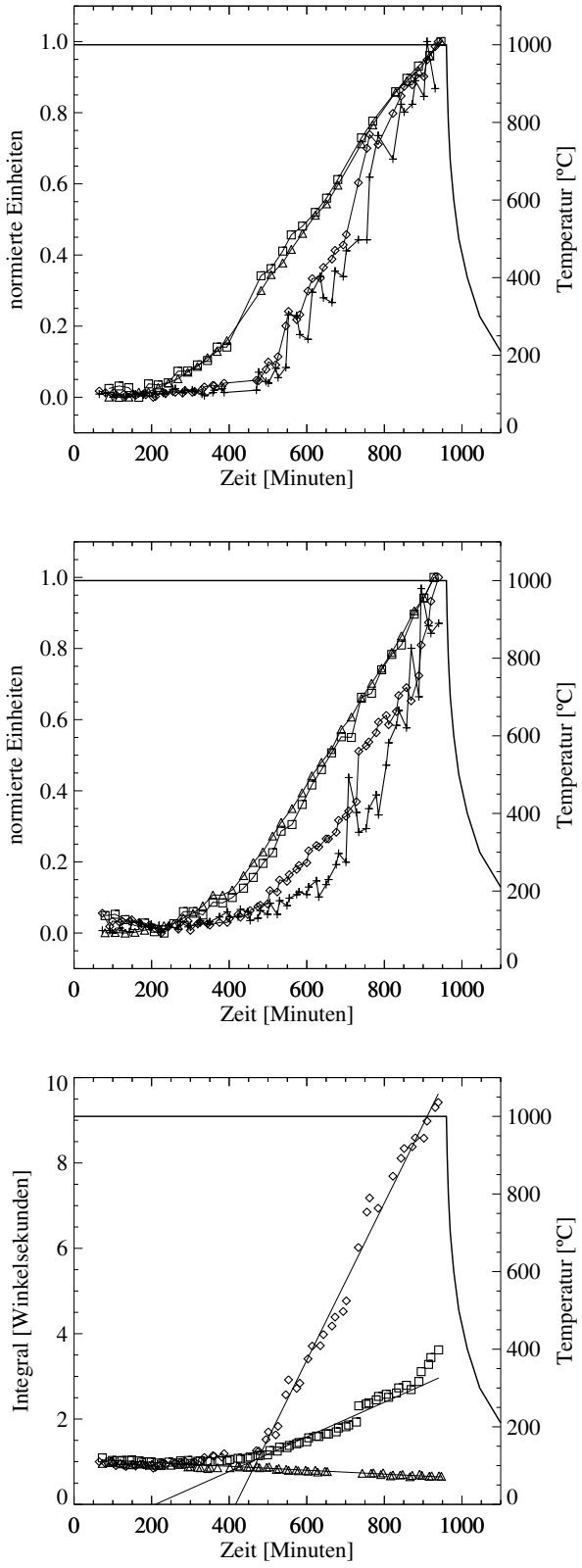


Abbildung 3.9.: *Ergebnis des BMD-Tests. Die obere Abbildung zeigt die Ergebnisse der in-situ-Messung für Probe (1), während in der mittleren Graphik die Ergebnisse für Probe (2) aufgetragen sind. Die durchgezogene Linie mit den Plussymbolen stellt die Entwicklung der Halbwertsbreite des Bragg-Reflexes dar, während die Rauten das Integral des Bragg-Reflexes angeben. Die Dreiecke und Quadrate stehen für die Intensität und das Integral der diffusen Streubeiträge der Versetzungsschleifen. Alle Beiträge wurden nach Abzug des Untergrundes auf 1 normiert. Bei Probe (3) konnte praktisch keine Änderung des Streubildes beobachtet werden, deshalb werden die Daten an dieser Stelle nicht dargestellt. Die dicke durchgezogene Linie gibt für alle Graphiken den Temperaturverlauf an.*
Die untere Graphik vergleicht am Beispiel des Integrals des Bragg-Reflexes die Entwicklung der einzelnen Proben im Verlauf des BMD-Tests. Probe (1) (Rauten) hat dem hohen Sauerstoffgehalt entsprechend den stärksten Anstieg zu verzeichnen, während bei Probe (3) (Dreiecke) überhaupt kein Anstieg zu beobachten ist. Der leichte Abfall der Daten ist nicht verstanden. Die Ergebnisse von Probe (2) (Quadrate) liegen, wie aufgrund des Sauerstoffgehalts zu erwarten war, zwischen denen der beiden anderen Proben. Die durchgezogenen Linien sind das Ergebnis eines linearen Fits.

wie in den folgenden Formeln die Einheit der vorstehenden Größe angegeben wird:

$$\text{Steigung}\left[\frac{''}{\text{min}}\right] = 10.9(\pm 5.2)\cdot 10^{-20}\frac{''\cdot \text{cm}^3}{\text{min}}\cdot O_i[\text{cm}^{-3}] \tag{3.13}$$

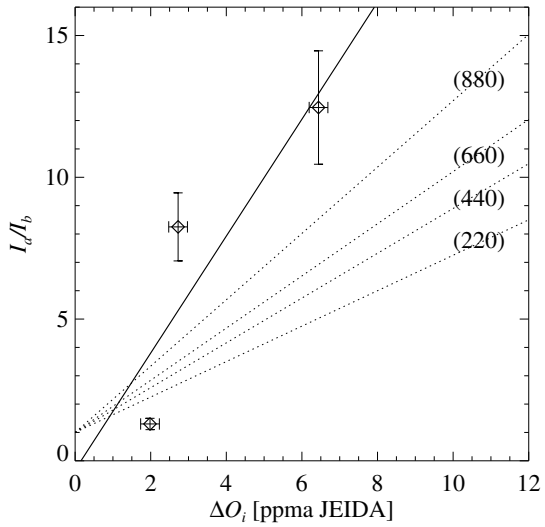


Abbildung 3.10.: *Ergebnis des BMD-Tests. Die Datenpunkte stellen für die drei untersuchten Proben das Verhältnis I_a/I_b in Abhängigkeit von ΔO_i dar. Die durchgezogene Linie ist das Ergebnis eines linearen Fits, die gestrichelten Linien sind die aus Abbildung 3.8 abgelesenen Ergebnisse von Takeno et al. [TMU+95].*

Für einen direkten Vergleich mit den Ergebnissen von [TMU+95] wurde durch die Wacker Siltronic AG die Konzentration des interstitiellen Sauerstoffs in den temperaturbehandelten Proben bestimmt, um so die Größe ΔO_i zu erhalten. Über diesen Werten wurde dann das Verhältnis der integralen Intensitäten des Bragg-Reflexes vor I_b und nach I_a dem BMD-Test aufgetragen. Diese Daten werden in Abbildung 3.10 gezeigt. Die durchgezogene Linie stellt das Ergebnis eines linearen Fits an die Daten dar. Man erhält den Zusammenhang

$$\frac{I_a}{I_b} = 2.96(\pm 0.43)\frac{1}{\text{ppma JEIDA}}\cdot \Delta O_i[\text{ppma JEIDA}] - 4.46(\pm 0.91), \tag{3.14}$$

wobei das χ^2=16.4 beträgt. Die gestrichelten Linien geben die aus Abbildung 3.8 abgelesenen Kurven wieder. Man erkennt, daß die Steigung der am HASYLAB gemessenen Kurve deutlich größer als die Werte aus [TMU+95] ist. Dies kann ein Effekt der Probendicke sein. In Proben, die sehr viel dicker als eine Extinktionslänge t_{ext} sind, kommt es zu einer relativen Verstärkung der diffusen Defektstreuung gegenüber dem Bragg-Reflex. Dies ist darauf

zurückzuführen, daß sich die Intensität des Bragg-Reflexes der dynamischen Theorie folgend bei Kristalldicken größer als t_{ext} in der Sättigung befindet, während die durch die kinematische Theorie beschriebene diffuse Streuung proportional zu der Probendicke bleibt. Bei den am HASYLAB untersuchten Proben mit einer Dicke t_0 von 10 mm und einer Extinktionslänge $t_{ext} \approx 0.1$ mm führt das zu einer relativen Verstärkung um zwei Größenordnungen. Dieser Effekt wird durch eine Normierung auf die Intensität I_b nicht beeinflußt. Aus diesem Grunde beobachtet man bei Messungen an dicken Proben einen erhöhten Anteil der diffusen Defektstreuung und ist deshalb sensitiver auf Gitterstörungen.

3.6.2. Simulationsrechnungen

Insgesamt läßt sich aus den Messungen an den Proben (1)-(3) keine absolute Aussage zu der Methode von Takeno *et al.* ableiten. Bis jetzt führten die Ergebnisse der Messungen nicht zu einer eindeutigen Bestätigung, sie widerlegen den Ansatz jedoch auch nicht. Bei den in-situ-Messungen liegt dies an der kurzen Dauer des BMD-Tests, die keine eindeutige Skalierung der einzelnen Streubeiträge erlaubt. Die Messung der integralen Reflektivitäten ist mit einer zu großen Unsicherheit, die sich in dem hohen χ^2 von 16.4 ausdrückt, behaftet. Ein deutlicheres Bild ergibt sich, wenn man die Meßergebnisse mit Simulationsrechnungen für ΔO_i vergleicht. In Abbildung 3.11 wird in der oberen Graphik diese Gegenüberstellung für Probe (1) gezeigt.

Die Simulationen wurden von J. Esfandyari von der Wacker Siltronic AG durchgeführt [Esf99]. Dabei werden in einem kombinierten Ansatz für kleine Präzipitate diskrete Ratengleichungen gelöst, während für große Präzipitate, wo eine numerische Behandlung der diskreten Ratengleichungen nicht mehr möglich ist, eine Fokker-Planck-Gleichung verwendet wird. Auf die Methode dieser Rechnungen soll an dieser Stelle nicht weiter eingegangen werden, ausführliche Darstellungen finden sich in [SEH95, ESS$^+$96]. Abbildung 3.11 zeigt aus Gründen der Übersichtlichkeit nur die Integrale der jeweiligen Messungen. Man erkennt, daß sowohl die diffuse Defektstreuung als auch das Integral des Bragg-Reflexes bis auf einen Zeitversatz einen linearen Verlauf wie das ΔO_i aufweisen. Es ist also innerhalb des linearen Teils der Kurven möglich, aus den Werten des Integrals des Bragg-Reflexes das ΔO_i zu bestimmen. Die linearen Fits an die Kurven von ΔO_i und das Integral des Bragg-Reflexes ergeben:

$$\Delta O_i[10^{16}\,\mathrm{cm}^{-3}] = 6.39(\pm 0.02)\cdot 10^{13}\,\frac{\mathrm{cm}^{-3}}{\mathrm{min}}\cdot t[\mathrm{min}] + 0.74(\pm 0.01)\cdot 10^{16}\mathrm{cm}^{-3} \quad (3.15)$$

und

$$\mathrm{Integral}[''] = 0.018(\pm 0.001)\,\frac{''}{\mathrm{min}}\cdot t[\mathrm{min}] - 7.67(\pm 0.28)'' \quad (3.16)$$

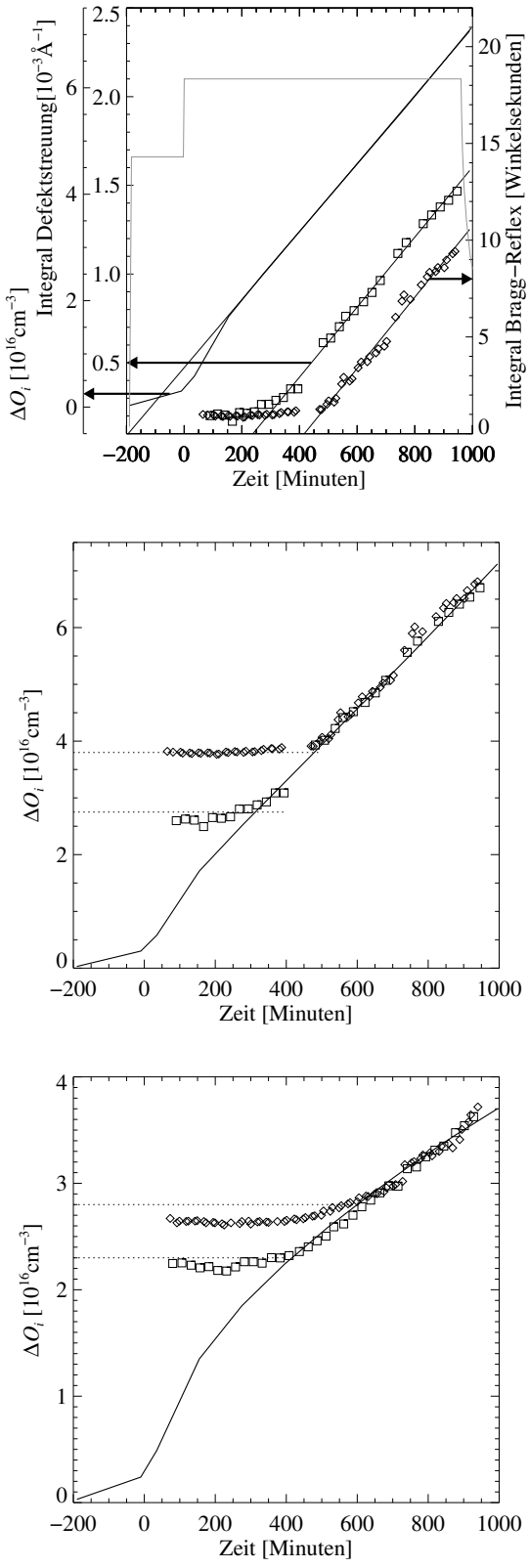


Abbildung 3.11.: *Obere Graphik: Ergebnis der Simulationsrechnungen von J. Esfandyari für Probe (1) [Esf99]. Für einen direkten Vergleich sind hier die unskalierten Daten jeweils in einem eigenen Koordinatensystem über der Zeit aufgetragen, wobei die Pfeile die zugehörigen y-Achsen kennzeichnen. Die dicke durchgezogene Linie zeigt das ΔO_i aus der Simulationsrechnung, die Quadrate geben die Werte des Integrals der diffusen Defektstreuung an, die Rauten stellen die Daten des Integrals des Bragg-Reflexes dar. Die dünnen Linien zeigen das Ergebnis eines linearen Fits, während die gepunktete Linie den Temperaturverlauf skizziert.*
Mittlere Graphik: Vergleich der nach Gleichung 3.17 aus dem Integral des Bragg-Reflexes berechneten Werte von ΔO_i (Rauten) mit den Simulationsergebnissen von J. Esfandyari für Probe (1). Die Quadrate geben die entsprechenden Werte für die diffuse Defektstreuung an.
Untere Graphik: Die gleiche Darstellung wie in der mittleren Graphik, diesmal jedoch für Probe (2). Auch hier reproduzieren die aus den Meßdaten bestimmten Werte für ΔO_i gut die Simulationsergebnisse. Im Vergleich mit der mittleren Graphik erhält man ein ähnliches Detektionslimit.
In der Praxis würde man anstelle der Simulationsrechnungen Referenzmessungen durchführen, um den quantitativen Zusammenhang zwischen ΔO_i und dem Integral der Defektstreuung bzw. des Bragg-Reflexes zu erhalten.

wobei t die Zeit in Minuten ist und „″“ die Einheit Winkelsekunden abkürzt. Setzt man diese beiden Gleichungen ineinander ein, so erhält man einen direkten Zusammenhang zwischen dem Integral des Bragg-Reflexes und ΔO_i:

$$\Delta O_i[10^{16}\,\mathrm{cm}^{-3}] = 3.55 \cdot 10^{15}\,\frac{\mathrm{cm}^{-3}}{''} \cdot \left(\mathrm{Integral}[''] - 7.67''\right) + 0.74 \cdot 10^{16}\mathrm{cm}^{-3} \quad (3.17)$$

Eine entsprechende Beziehung läßt sich zwischen ΔO_i und dem Integral der diffusen Defektstreuung aufstellen. Berechnet man aus diesen Beziehungen das ΔO_i, so erhält man die in der mittleren Graphik von Abbildung 3.11 dargestellten Werte. In dem Bereich, in dem die Integralwerte linear ansteigen, reproduzieren die aus den Meßdaten berechneten Werte die Simulationsergebnisse sehr gut. Man erkennt einen deutlich Unterschied in der Empfindlichkeit der beiden Meßkurven, die aus dem zeitlich versetzten Anstieg der Streubeiträge resultiert. Mit der diffusen Defektstreuung lassen sich für Probe (1) ΔO_i-Werte ab $2.75{\cdot}10^{16}\mathrm{cm}^{-3}$ nachweisen, während die Streuung des Bragg-Reflexes erst ab $3.8{\cdot}10^{16}\mathrm{cm}^{-3}$ verläßliche Werte liefert. Die gleiche Auswertung ergibt für Probe (2) den folgenden funktionalen Zusammenhang zwischen dem Integral des Bragg-Reflexes und ΔO_i:

$$\Delta O_i[10^{16}\,\mathrm{cm}^{-3}] = 4.14 \cdot 10^{15}\,\frac{\mathrm{cm}^{-3}}{''} \cdot \left(\mathrm{Integral}[''] - 2.51''\right) + 1.22 \cdot 10^{16}\mathrm{cm}^{-3} \quad (3.18)$$

Die untere Graphik von Abbildung 3.11 zeigt die mit dieser Formel berechneten ΔO_i-Werte. Wie bei Probe (1) werden die Simulationsergebnisse gut reproduziert. Vergleicht man die Gleichungen 3.17 und 3.18 miteinander, so fallen besonders die relativ ähnlichen Werte von $3.55 \cdot 10^{15}\,\mathrm{cm}^{-3}/''$ und $4.14 \cdot 10^{15}\,\mathrm{cm}^{-3}/''$ für die Steigung ins Auge.

Abbildung 3.11 beweist, daß für ein bekanntes Siliziummaterial die Berechnung von ΔO_i aus den Meßwerten des Bragg-Reflexes bzw. der diffusen Defektstreuung mit hoher Genauigkeit möglich ist. Diese Ergebnisse unterstützen also den Ansatz von Takeno *et al.* Das zu unterschiedlichen Zeiten einsetzende Anwachsen der Streubeiträge in den Messungen der verschiedenen Proben „1“ und „2“ bzw. (1)-(3) verdeutlicht jedoch die Notwendigkeit, für unterschiedliche Materialien Referenzmessungen durchzuführen.

Für die Zukunft sind Messungen an einer deutlich größeren Anzahl von Proben geplant, um die Punktdichte in Abbildung 3.10 zu erhöhen und so zu einem aussagekräftigen Ergebnis dieser Messung zu kommen.

3.7. Zusammenfassung

Die in diesem Kapitel vorgestellten Messungen haben gezeigt, daß es in einem bestimmten Rahmen möglich ist, Silizium-Mosaikkristalle mit einer gewünschten Halbwertsbreite des Reflexprofils herzustellen. Da die Sauerstoffpräzipitation und damit die Defektbildung in komplexer Weise von Parametern wie Sauerstoff-Ausgangskonzentration, thermischer Geschichte

und Dotierung abhängt, ist es schwierig, das Verhalten eines Siliziumkristalls während einer Temperaturbehandlung vorherzusagen. Aus diesem Grunde empfehlen sich zwei Vorgehensweisen zur Herstellung von Silizium-Mosaikkristallen, die in den beiden folgenden Absätzen beschrieben werden:

Auf in-situ-Messungen kann verzichtet werden, wenn man einen Mosaikkristall mit größtmöglicher Reflexbreite herstellen möchte. Dazu benötigt man einen Czochralski-gezogenen Siliziumkristall mit einem Sauerstoffgehalt, der auf jeden Fall oberhalb von $O_i = 7{\cdot}10^{17}\,\mathrm{cm}^{-3}$ liegt. Bei niedrigeren Konzentrationen tritt kaum eine Verbreiterung des Reflexes auf, während in dem Konzentrationsbereich $7 \cdot 10^{17}\,\mathrm{cm}^{-3} \leq O_i \leq 8.5{\cdot}10^{17}\,\mathrm{cm}^{-3}$ der zu erwartende Effekt etwa linear mit der Konzentration geht. Die Art der Dotierung spielt bei normal dotierten Kristallen ($\rho > 1\Omega\mathrm{cm}$) nur eine vernachlässigbare Rolle. Diesen Kristall unterzieht man dann einem Zweistufen-Temperaturzyklus, wobei zuerst ein Nukleationsschritt von 7 h Dauer bei einer Temperatur von 750° C durchgeführt wird, der dann von einem 36 h dauernden Schritt bei 1050° C gefolgt wird. Auf diese Art und Weise sind bei einer Photonenenergie von 100 keV im nichtdispersiven Zweikristall-Aufbau gemessene Halbwertsbreiten des (220)-Reflexes von etwa 12 Winkelsekunden erreichbar.

Möchte man Monochromatorkristalle einer bestimmten Halbwertsbreite herstellen, so muß man die Temperaturbehandlung während einer in-situ-Messung durchführen. Dabei gelten die gleichen Anforderungen an den Ausgangskristall wie im vorherigen Absatz. Zusätzlich müssen noch zwei Faktoren berücksichtigt werden: Erstens muß bis zu einer Halbwertsbreite, die etwa dem 10fachen der im nichtdispersiven Zweikristall-Aufbau gemessenen Breite des perfekten Kristalls entspricht, mit einem für Monochromatorkristalle ungünstigen exponentialförmigen Reflexprofil gerechnet werden. Zweitens wird die Halbwertsbreite nach dem Abschalten des Ofens noch um etwa 1 Winkelsekunde zunehmen.

Bei der Verwendung als Monochromatoren für hochenergetische Synchrotronstrahlung sind Silizium-Mosaikkristalle auf maximale Halbwertbreiten von etwas mehr als 10 Winkelsekunden limitiert, was gegenüber den typischen Halbwertsbreiten von Hoch-T_c-Supraleitermaterialien oder magnetischen Systemen immer noch vergleichsweise gering ist. Dazu kommt, daß die Breite der Monochromatoren und Analysatoren nicht dynamisch an die experimentellen Erfordernisse angepaßt werden kann. Für die Verwendung von Silizium-Mosaikkristallen spricht deren hohe Verfügbarkeit, bzw. ihre einfache Herstellung zusammen mit der leichten Handhabung im experimentellen Betrieb. Einen Vergleich verschiedener Monochromator/Analysator-Systeme findet man in Abschnitt 4.5 auf Seite 69ff. Die in dem folgenden Kapitel vorgestellten $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle kombinieren die einfache Handhabung mit einer in einem Bereich zwischen 15 und 70 Winkelsekunden frei einstellbaren Halbwertsbreite.

$Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle 4

4.1. Das $Si_{1-x}Ge_x$-System

Gradientenkristalle sind für die Verwendung als Monochromatoren für Beugungsexperimente von besonderem Interesse, da sie aufgrund ihres kontinuierlich variierenden Gitterparameters ein großes Wellenlängenband reflektieren können, ohne dabei die Divergenz des Strahles zu verschlechtern. Der Gradient kann auf verschiedene Art und Weise erzeugt werden, wobei an dieser Stelle nur auf Legierungsgradienten in Silizium-Germanium-Mischkristallen eingegangen werden soll. Die Idee, derartige Gradientenkristalle zu verwenden, ist nicht neu [MR68]. Als grundlegendes Problem erwies es sich dabei, Kristalle von ausreichender Qualität und Größe herzustellen. Lange Zeit galt es aufgrund technischer Schwierigkeiten als unmöglich, $Si_{1-x}Ge_x$-Mischkristalle aus der Schmelze zu ziehen, so daß Kristalle dieser Art unter anderem durch chemische Gasphasenepitaxie gezüchtet wurden [Liß94]. Diese Kristalle erreichten jedoch bei einem Substratdurchmesser von 10 cm eine Dicke in der Größenordnung von 1 mm und waren deshalb für die Nutzung als Monochromatorkristalle zu klein. Mit der zunehmenden Bedeutung von Silizium-Germanium-Multilayersystemen für die Halbleiterindustrie stieg das Interesse an $Si_{1-x}Ge_x$-Mischkristallen mit einem konstanten Germaniumgehalt. An diesen Kristallen sollten die grundlegenden Eigenschaften von Silizium-Germanium-Legierungen erforscht werden, außerdem war man auf der Suche nach geeigneten Substratmaterialien für die Multilayersysteme [RV93]. Bei neuen Versuchen, $Si_{1-x}Ge_x$-Einkristalle im Czochralski- oder Floatzone-Verfahren zu ziehen, erwies es sich als sehr schwierig, Kristalle mit einem konstanten Germaniumanteil x zu ziehen, da der Segregationskoeffizient k von Germanium in Silizium deutlich kleiner als 1 ist [ARA+96]. Dieser Koeffizient beschreibt das Verhältnis zwischen den Germaniumkonzentrationen in der Schmelze $C_{l,Ge}$ und im Kristall $C_{s,Ge}$:

$$C_{s,Ge} = k \cdot C_{l,Ge} \tag{4.1}$$

Für Germanium in Silizium variiert dieser Wert abhängig von der Zusammensetzung der Schmelze etwa in einem Bereich $0.3 \leq k \leq 0.4$. Die höhere Löslichkeit von Germanium in der Schmelze hat den Effekt, daß mit fortschreitender Kristallisation die Germaniumkonzentration in dem geschmolzenen Ausgangsmaterial ansteigt, was wiederum zu einem erhöhten Germaniumgehalt in dem Kristall führt. Als Ergebnis erhält man den in Abbildung 4.1 dargestellten Verlauf der Germaniumkonzentration. Diese wird in Abhängigkeit des Anteils $g = M_s/M_0$

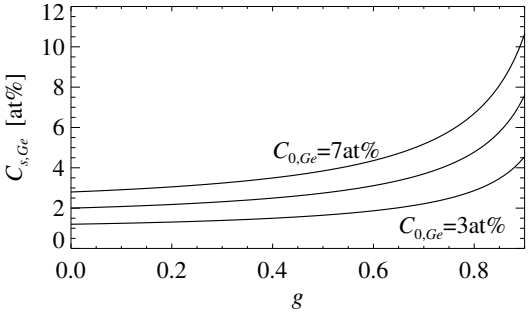


Abbildung 4.1.: *Der Verlauf der Germaniumkonzentration $C_{s,Ge}$ in einem $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall nach [ARA+96, Pfa78] für drei unterschiedliche Werte von $C_{0,Ge} = 3$, 5 und 7* at%.

Abbildung 4.2.: *Zwei mögliche Wachstumsmodelle für Gradientenkristalle: Links ist das inkohärente Wachstum dargestellt, bei dem die einzelnen Netzebenen plan sind. Im Gegensatz dazu sind bei kohärent gewachsenen Kristallen die Netzebenen gekrümmt.*

des bereits kristallisierten Materials M_s an der Ausgangsmasse der Schmelze M_0 aufgetragen. In Bereichen konstanten Kristalldurchmessers ist g direkt proportional zu der Kristallänge. Die Kurvenform verdeutlicht die Schwierigkeit, einen Kristall mit einem konstanten Germanium-Gehalt zu ziehen: Es gibt bestenfalls Kristallbereiche mit geringen Konzentrationsänderungen, der Konzentrationsgradient wird jedoch mit fortschreitender Kristallisation größer. Anstelle eines $Si_{1-x}Ge_x$-Kristalls mit einem konstanten Germaniumanteil x erhält man also $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle mit einer kontinuierlich variierenden Germaniumkonzentration. Mathematisch wird der Zusammenhang zwischen g und der Germaniumkonzentration im Kristall $C_{s,Ge}$ durch die Beziehung 4.1 dargestellt, wobei für die Germaniumkonzentration in der Schmelze $C_{l,Ge}$ die sog. Scheil-Pfann-Relation gilt [Pfa78]:

$$C_{l,Ge} = C_{0,Ge}(1-g)^{k-1} \tag{4.2}$$

$C_{0,Ge}$ ist dabei die Ausgangs-Germaniumkonzentration in der Schmelze. Abbildung 4.1 zeigt die nach der Scheil-Pfann-Relation berechnete Germaniumkonzentration für drei unterschiedliche Werte von $C_{0,Ge} = 3$, 5 und 7 at%. Mitte der neunziger Jahre gelang es am Berliner **I**nstitut für **K**ristall**z**üchtung (IKZ), große Einkristalle dieser Art zu ziehen. Sie erreichten bei einer Länge von etwa 120 mm einen Durchmesser von über 30 mm [WSS96, ARA+96]. Bei ersten Messungen wurden diese Kristalle auf ihre Eignung als Monochromatorkristalle für hochenergetische Synchrotronstrahlung hin untersucht. Die dabei untersuchten Proben waren

jedoch im Vergleich zu Silizium-Einkristallen relativ inhomogen und entsprachen nicht den hohen Erwartungen [Ret97, RKS+98]. Im Rahmen dieser Doktorarbeit folgten dann weitere Messungen an Proben, die speziell für eine Verwendung als Monochromator gezogen worden waren. Dabei erwies sich ein bisher nicht beachteter Aspekt der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle als sehr wichtig: Da der Gitterparameter von Germanium mit $a_{Ge} = 5.66\,\text{Å}$ etwas größer ist als der von Silizium mit $a_{Si} = 5.43\,\text{Å}$, führt der Gradient der Germaniumkonzentration zu einer Variation des Gitterparameters des Mischkristalls, der mit zunehmendem Germaniumgehalt größer wird. Für die Anordnung der Netzebenen in einem solchen Kristall gibt es zwei Wachstumsmodelle, die in Abbildung 4.2 schematisch dargestellt werden. Kohärent gewachsene Gradientenkristalle sind aufgrund der kontinuierlichen Krümmung ihrer Netzebenen ein ideales Modellsystem für die im Rahmen der dynamischen Theorie entwickelten Beschreibung von verzerrten Kristallen. Sie besagt, daß man von den Gradientenkristallen auch dann Reflektivitäten von bis zu 100 % und stark verbreiterte Reflexkurven erwarten kann, wenn man in Laue-Geometrie senkrecht zum Gradienten beugt.

4.2. Theorie

In dem folgenden Abschnitt wird die Theorie für die Beschreibung verzerrter Kristalle zusammengefaßt. Dabei wird zuerst auf die zugrunde liegende dynamische Theorie der Röntgenbeugung nach der Beschreibung von [BC64] eingegangen. Daran anschließend folgt die Erweiterung der dynamischen Theorie auf das System schwach gestörter Kristalle [PP61]. Den Abschluß bildet die Beschreibung stark verzerrter Kristalle [Tak62, Tak69]. Die hier vorgestellten Ansätze finden sich auch zusammengefaßt in [AM98, KMN+99].

4.2.1. Dynamische Theorie

Wenn man die Beugung von Röntgenstrahlung an perfekten Einkristallen beschreiben will, muß hierfür die dynamische Theorie verwendet werden. Im Gegensatz zu der kinematischen Theorie berücksichtigt sie unter Beachtung des Energieerhaltungssatzes die Wechselwirkung zwischen einfallender und abgebeugter Welle. Die dynamische Theorie löst die Maxwell-Gleichungen

$$\begin{aligned} \nabla \times \vec{\mathcal{E}} &= -\frac{\partial \vec{\mathcal{B}}}{\partial t} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{\mathcal{H}}}{\partial t}, \\ \nabla \times \vec{\mathcal{H}} &= \frac{\partial \vec{\mathcal{D}}}{\partial t} = \varepsilon_0 \frac{\partial (\kappa \vec{\mathcal{E}})}{\partial t} \end{aligned} \tag{4.3}$$

in einem periodischen Medium. Die Größen $\vec{\mathcal{E}}$, $\vec{\mathcal{D}}$, $\vec{\mathcal{H}}$ und $\vec{\mathcal{B}}$ sind das elektrische Feld, die elektrische Verschiebungsdichte, das magnetische Feld und die magnetische Flußdichte. Die Gleichungen gelten für die Randbedingungen $\sigma = 0$, $\mu = \mu_0$, wobei σ die Leitfähigkeit des Kristalls ist. Der Kristall wird durch eine komplexe, periodische Dielektrizitätskonstante κ beschrieben, die direkt mit der Elektronendichte $\rho(\vec{r})$ des Kristalls verknüpft ist:

$$\kappa(\vec{r}) = 1 - \frac{r_e \lambda^2}{\pi} \rho(\vec{r}) \tag{4.4}$$

Die Elektronendichte läßt sich als Fourier-Reihe über das reziproke Gitter ausdrücken, die Summation läuft dabei über alle möglichen Werte des reziproken Gittervektors $\vec{G}$:

$$\rho(\vec{r}) = \frac{1}{V_{EZ}} \sum_{\vec{G}} F_G \exp(-2\pi i \vec{G} \cdot \vec{r}) \tag{4.5}$$

Faßt man die beiden Beziehungen 4.4 und 4.5 zusammen, so ergibt sich für die Dielektrizitätskonstante die folgende Gleichung:

$$\kappa(\vec{r}) = 1 - \Gamma \sum_{\vec{G}} F_G \exp(-2\pi i \vec{G} \cdot \vec{r}) \tag{4.6}$$

mit

$$\Gamma = \frac{r_e \lambda^2}{\pi V_{EZ}} \tag{4.7}$$

Der Strukturfaktor F_G spielt in dieser Darstellung eine wichtige Rolle, da durch ihn die Resonanz- und Absorptionseigenschaften des System berücksichtigt werden. Bei der Betrachtung der Wellenvektoren innerhalb des Kristalls $\vec{K}$ muß mit einem um den mittleren Brechungsindex n korrigierten Betrag des Vakuumwertes $\vec{k}$ gerechnet werden. Dabei gilt:

$$|\vec{k}|n = |\vec{k}|\sqrt{\kappa} = |\vec{k}| \left(1 - \frac{1}{2}\Gamma F_0\right) \tag{4.8}$$

Abbildung 4.3 verdeutlicht den Effekt dieser Korrektur. Zeichnet man um den Fuß- und den Endpunkt von $\vec{G}$ Kreise mit dem Radius k, so schneiden sie sich im sogenannten Laue-Punkt L. Innerhalb des Kristalls verringert sich der Radius auf $k(1 - 1/2\Gamma F_0)$, so daß der Schnittpunkt der beiden Kreise jetzt im Lorentz-Punkt Q liegt. In den weiteren Ausführungen wird gezeigt, daß die Wellenvektoren $\vec{K}$ innerhalb des Kristalls nicht direkt in Q beginnen,

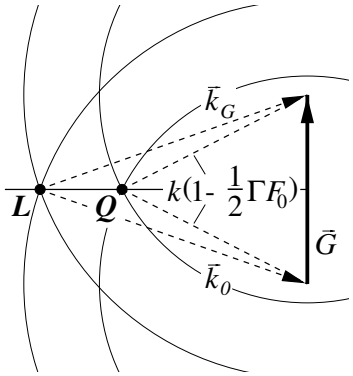


Abbildung 4.3.: *Die Betragskorrektur des Wellenvektors $\vec{k}$ um den mittleren Brechungsindex $1-1/2\Gamma F_0$ führt dazu, daß die Wellenvektoren $\vec{K}$ innerhalb des Kristalls nicht im Laue-Punkt L beginnen, sondern in der Nähe des Lorentz-Punktes Q. Da der Brechungsindex im Fall von Röntgenstrahlung nur sehr geringfügig kleiner ist als 1, wird der Abstand zwischen L und Q hier stark übertrieben dargestellt.*

sondern auf Dispersionsflächen in der unmittelbaren Umgebung dieses Punktes. Innerhalb des Kristalls schreibt sich die Bragg-Bedingung also folgendermaßen:

$$\vec{K}_G - \vec{K}_0 = \vec{G} \tag{4.9}$$

Um ein Wellenfeld zu erhalten, das sowohl die Maxwell-Gleichungen 4.3 als auch die Bragg-Beziehung 4.9 erfüllt, wird für $\vec{\mathcal{E}}$, $\vec{\mathcal{D}}$ und $\vec{\mathcal{H}}$ ein Blochwellenansatz gewählt. Als Vereinfachung wird der Zweistrahlfall angenommen, d. h. daß außer dem Ursprung nur ein weiterer reziproker Gitterpunkt auf der Ewald-Kugel liegt. Aus diesen Annahmen erhält man für jeden Polarisationszustand folgendes Gleichungssystem für die Amplituden E_0 bzw. E_G der einfallenden bzw. abgebeugten Welle:

$$\begin{aligned} \left[\vec{k}^2(1-\Gamma F_0) - (\vec{K}_0 \cdot \vec{K}_0)\right] E_0 - \vec{k}^2 P \Gamma F_G E_G &= 0 \\ -\vec{k}^2 P \Gamma F_G E_0 + \left[\vec{k}^2(1-\Gamma F_0) - (\vec{K}_G \cdot \vec{K}_G)\right] E_G &= 0 \end{aligned} \tag{4.10}$$

Die beiden Polarisationszustände werden über den Parameter P berücksichtigt. Dieser ist für σ (π)-Polarisation gleich 1 ($\cos 2\Theta$). Für nicht-triviale Lösungen dieses Systems muß die Determinante 0 werden:

$$\begin{vmatrix} \vec{k}^2(1-\Gamma F_0) - (\vec{K}_0 \cdot \vec{K}_0) & -\vec{k}^2 P \Gamma F_G \\ -\vec{k}^2 P \Gamma F_G & \vec{k}^2(1-\Gamma F_0) - (\vec{K}_G \cdot \vec{K}_G) \end{vmatrix} = 0 \tag{4.11}$$

Als nächster Schritt werden die Parameter ξ_0, ξ_G eingeführt. Sie sind ein Maß für die Differenz zwischen den Wellenvektoren $\vec{K}_0, \vec{K}_G$ innerhalb des Kristalls und dem, um den mittleren Brechungsindex korrigierten, Wellenvektor $\vec{k}$ des Vakuums:

$$\begin{aligned} 2|\vec{k}|\xi_0 &\equiv \vec{K}_0 \cdot \vec{K}_0 - \vec{k}^2(1-\Gamma F_0) \\ 2|\vec{k}|\xi_G &\equiv \vec{K}_G \cdot \vec{K}_G - \vec{k}^2(1-\Gamma F_0) \end{aligned} \tag{4.12}$$

Nur für Werte $\xi \neq 0$ existieren nicht-triviale Lösungen von 4.11. Diese Gleichung wird unter Verwendung der Beziehungen 4.12 zu:

$$\xi_0 \xi_G = \frac{1}{4}\vec{k}^2 P^2 \Gamma^2 F_G F_{\bar{G}} \tag{4.13}$$

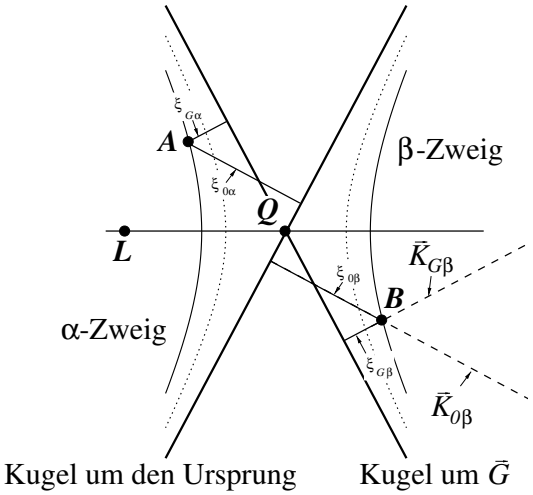


Abbildung 4.4.: *Die Grafik zeigt einen vergrößerten Ausschnitt aus Abbildung 4.3. Die Kugelschalen mit dem Radius $k(1-1/2\Gamma F_0)$ können in der Nähe des Lorentz-Punktes Q als Ebenen angesehen werden. Diese Ebenen bilden die Asymptoten für die durch Gleichung 4.13 beschriebenen, hyperbelförmigen Dispersionsflächen. Die gestrichelten Linien geben die Lösung für die π-Polarisation an, während die zum σ-Polarisationszustand gehörenden Dispersionsflächen als durchgezogene Linien dargestellt sind.*

Gleichung 4.13 beschreibt eine Dispersionsfläche, d. h. alle von einem Punkt auf dieser Fläche beginnenden Wellenvektor-Paare $\vec{K}_0, \vec{K}_G$ sind gültige Lösungen der Gleichung. Dieses Ergebnis wird in Abbildung 4.4 veranschaulicht. Die Graphik zeigt einen Ausschnitt aus Abbildung 4.3. Da die Wellenvektoren im Vergleich zu dem Abstand zwischen Laue- und Lorentz-Punkt sehr groß sind, können die Kugelschalen in der Nähe des Schnittpunktes als Ebenen angesehen werden. Diese Ebenen bilden die Asymptoten für die durch Gleichung 4.13 beschriebenen, hyperbelförmigen Dispersionsflächen. Es sind die Lösungen für beide Polarisationszustände eingezeichnet, die Lösungszweige werden gemäß ihrer Lage zum Laue-Punkt

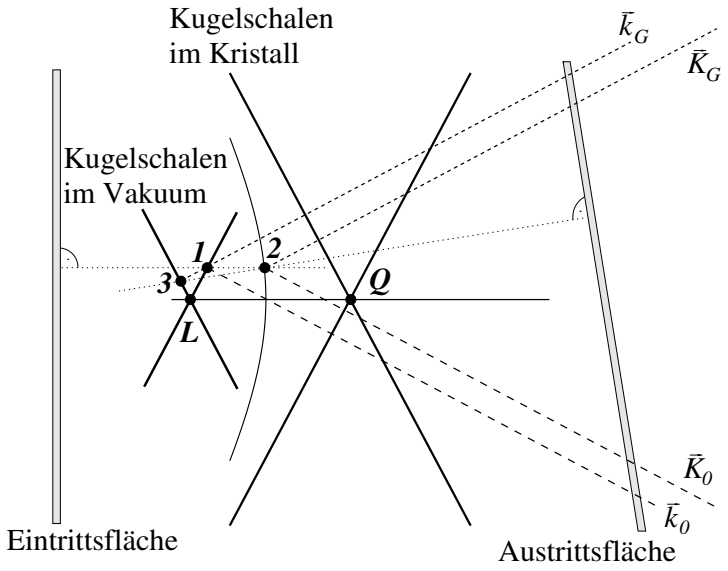


Abbildung 4.5.: *Auswahl der Anregungspunkte: Die Abbildung stellt die Beugung in Laue-Geometrie dar, wobei die Ein- und Austrittsfläche des Kristalls nicht parallel zueinander sind. Der Übersichtlichkeit halber ist nur der* α*-Zweig eines Polarisationszustandes eingezeichnet. Weitere Erläuterungen sind im Text zu finden.*

L als α- bzw. β-Zweig bezeichnet. Alle Fußpunkte erlaubter Wellenvektor-Paare liegen auf den Hyperbelflächen. Zwei dieser Punkte sind als A und B in die Graphik eingezeichnet. In dieser Darstellung wird auch die Bedeutung der Parameter ξ deutlich: Sie bilden den Abstand zwischen den Kugelschalen durch Q und den Fußpunkten A, B der Wellenvektoren $\vec{K}$, was wie schon weiter oben erwähnt der Differenz $K - k(1 - 1/2\,\Gamma F_0)$ entspricht. Von B ausgehend verlaufen zwei gestrichelt eingezeichnete Wellenvektoren $\vec{K}_{G\beta}$ und $\vec{K}_{0\beta}$ zum Endpunkt bzw. zum Ursprung des reziproken Gittervektors $\vec{G}$.

Aus der Schar der möglichen Wellenvektoren werden durch die experimentellen Gegebenheiten nur wenige ausgewählt. Die entscheidenden Randbedingungen sind dabei die Orientierung der Kristalloberflächen zu den beugenden Netzebenen und die Differenz $\Delta\Theta$ zwischen Einfallswinkel und Bragg-Winkel. In Abbildung 4.5 wird gezeigt, wie durch die Randbedingungen bestimmte Anregungspunkte ausgewählt werden: Der Abstand zwischen dem Fußpunkt *1* des einfallenden Wellenvektors $\vec{k}_0$ und dem Laue-Punkt ist direkt proportional zu $\Delta\Theta$. Um bei dem Durchgang durch die Kristalloberfläche die Wellenfronten der ebenen Wellen zu erhalten, muß die tangentiale Komponente der Wellenvektoren außer- und innerhalb des Kristalls gleich sein. Für die Fußpunkte der Wellenvektoren bedeutet dies, daß sie auf derselben Oberflächen-Normalen der Eintrittsfläche liegen müssen. Diese Bedingung führt zur Selektion des Anregungspunktes *2* für das Wellenvektor-Paar $\vec{K}_0, \vec{K}_G$. An der Austrittsfläche gilt die gleiche Kontinuitätsbedingung, so daß sich Punkt *3* als Fußpunkt für den gebeugten Wellenvektor

$\vec{k}_G$ außerhalb des Kristalls ergibt.

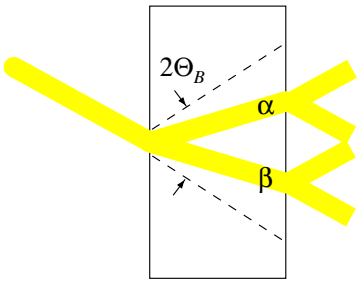


Abbildung 4.6.: *Richtung des Energietransportes für den symmetrischen Lauefall. Der Einfallswinkel des von links kommenden Strahles weicht etwas vom Bragg-Winkel ab. Für die beiden Anregungspunkte auf dem α- bzw. β-Zweig der Dispersionsfläche existieren zwei entsprechend gekennzeichnete Wellenfelder, die sich bei Austritt aus dem Kristall in den reflektierten und den transmittierten oder vorwärts gebeugten Strahl aufspalten.*

Direkt mit der Lage der Anregungspunkte auf der Dispersionsfläche ist die Richtung des Energieflusses in dem Kristall verknüpft: Kato bewies, daß der Poynting-Vektor $\vec{S}$ eines zu einem Anregungspunkt A gehörenden Wellenfeldes in Richtung der Oberflächennormalen der Dispersionsfläche am Punkte A zeigt [Kat58]. Die daraus resultierenden Energieflüsse in einem Kristall sind für den symmetrischen Lauefall in Abbildung 4.6 dargestellt. Der Einfallswinkel des von links kommenden Strahles weicht etwas vom Bragg-Winkel ab, so daß die Anregungspunkte auf den Dispersionsflächen des α- bzw. β-Zweiges in der Nähe der Scheitelpunkte liegen. Den zwei Anregungspunkten entsprechend existieren zwei Wellenfelder α bzw. β, deren Poynting-Vektoren in Richtung ober- bzw. unterhalb der beugenden Netzebenen zeigen. Wenn der Einfallswinkel gleich dem Bragg-Winkel ist, entsprechen die beiden Anregungspunkte den Scheitelpunkten der Dispersionsflächen. In diesem Fall zeigen die beiden Poynting-Vektoren in die gleiche Richtung, der gesamte Energiefluß findet parallel zu den beugenden Netzebenen statt. Von Interesse ist nun noch das Verhältnis zwischen vorwärts gebeugtem bzw. reflektiertem Feld. Die Lage der Anregungspunkte bestimmt beim Eintritt des Strahles in den Kristall das Intensitätsverhältnis zwischen den Wellenfeldern α bzw. β. Im symmetrischen Laue-Fall gelten die Beziehungen [PP61]

$$I_\alpha = \frac{1}{1+\xi_{0\alpha}^2}\cdot I_0 \quad \text{, bzw.} \quad I_\beta = \frac{1}{1+\xi_{0\beta}^2}\cdot I_0 \quad \text{mit} \quad \xi_{0\alpha}\cdot\xi_{0\beta} = 1. \tag{4.14}$$

Beim Austritt aus dem Kristall teilen sich die Wellenfelder in den vorwärts gebeugten und den reflektierten Strahl I_t und I_r auf. Auch dieses Intensitätsverhältnis wird für jedes Wellenfeld durch die Position der Anregungspunkte bestimmt:

$$I_t = \frac{1}{1+\xi_0^2}\cdot I_{\alpha,\beta} \quad \text{, bzw.} \quad I_r = \frac{\xi_0^2}{1+\xi_0^2}\cdot I_{\alpha,\beta}\,, \tag{4.15}$$

wobei für ξ_0 der Wert des jeweiligen Wellenfeldes eingesetzt wird. Qualitativ kann man sagen, daß beim Eintritt in den Kristall das Wellenfeld, dessen Poynting-Vektor mehr in die Richtung

von $\vec{k}_0$ zeigt, eine höhere Intensität hat. Eine äquivalente Aussage läßt sich für die Aufspaltung des Wellenfeldes beim Austritt aus dem Kristall treffen: Die Intensität des reflektierten (vorwärts gebeugten) Strahles ist umso höher, je mehr sein Poynting-Vektor in Richtung von $\vec{k}_G$ ($\vec{k}_0$) zeigt. Für die weiteren Betrachtungen werden die Einheitsvektoren $\vec{s}_G$ und $\vec{s}_0$ eingeführt, die in Richtung des reflektierten bzw. vorwärts gebeugten Strahls weisen. Wenn der Einfallswinkel sich deutlich vom Bragg-Winkel unterscheidet, dann liegen die Anregungspunkte auf den Hyperbelästen der Dispersionsflächen weit von den Scheitelpunkten entfernt. Unter dieser Bedingung ist der Poynting-Vektor z. B. des α-Wellenfeldes nahezu parallel zu $\vec{s}_0$, während dann der Poynting-Vektor des β-Feldes in Richtung $\vec{s}_G$ zeigt. Das bedeutet, daß die gesamte Energie der einfallenden Strahlung in das α-Wellenfeld übergeht und an der Austrittsfläche komplett in den vorwärts gebeugten Strahl reflektiert wird. Man erhält also das intuitiv erwartete Ergebnis, daß für deutlich vom Bragg-Winkel verschiedene Einfallswinkel die gesamte Intensität in den transmittierten Strahl geht. Für Einfallswinkel in der Nähe des Bragg-Winkels ergibt sich unter Annahme eines schwach absorbierenden Kristalles, d.h. $\mu_0 t \ll 1$, aus den obigen Beziehungen direkt die bekannte Lorentz-Form für die winkelabhängige Reflexform $R(\eta)$ der reflektierten Intensität I_r:

$$R(\eta) = \frac{I_r(\alpha+\beta)}{I_0} = \frac{1}{2}\frac{1}{1+\eta^2} \quad \text{mit} \quad \eta = \frac{2}{FWHM_{dyn}} \cdot \Delta\Theta, \tag{4.16}$$

wobei jeweils ein Polarisationszustand betrachtet wird. η ist dabei eine dimensionslose Winkelgröße, die sich mit der obigen Beziehung in beliebige Winkelskalen umrechnen läßt.

4.2.2. Dynamische Theorie für verzerrte Kristalle

Die in dem vorangegangenen Abschnitt vorgestellte dynamische Theorie ist in dieser Form nicht auf gebogenene Kristalle anwendbar. Eine Theorie zur Beschreibung dieses Systems wurde unabhängig voneinander durch P. Penning und D. Polder sowie durch N. Kato entwickelt [PP61, Kat63, Kat64a, Kat64b]. Sie gingen dabei von den Voraussetzungen aus, daß sich ein gekrümmter Kristall in einem kleinen Bereich wie ein perfekter Kristall durch die dynamische Theorie beschreiben läßt und daß die Änderung zwischen diesen Bereichen hinreichend gering sind. Dieser, im folgenden PPK-Theorie genannte, Ansatz zeigt, daß sich die Wellenfelder in gekrümmten Kristallen nicht mehr geradlinig ausbreiten, sondern gebogenen Strahlwegen folgen.

Die PPK-Theorie läßt sich in Analogie zur Lichtoptik verstehen: Wenn dort ein Wellenpaket einen Bereich mit variierendem Brechungsindex n durchläuft, dann ändert sich der Wellenvektor dieses Wellenpaketes mit

$$\delta\vec{k} \propto \vec{\nabla} n \tag{4.17}$$

so, daß die Ausbreitungsrichtung senkrecht zu Isoflächen des Brechungsindexes zeigt. Eine zu Beziehung 4.17 äquivalente Formulierung für den Fall von Röntgenstrahlung in verzerrten Kristallen ergibt [AM98]:

$$\delta\vec{K}_0 \propto \vec{\nabla}(\delta\vec{G} \cdot \vec{K}_G) \tag{4.18}$$

$$\delta\vec{G} = -\vec{\nabla}\left[\vec{G} \cdot \vec{u}(\vec{r})\right] \tag{4.19}$$

Die lokale Variation des reziproken Gittervektors $\delta\vec{G}$ hängt direkt von dem lokalen Verzerrungsfeld $\vec{u}(\vec{r})$ ab. Über diese Größen wird in der PPK-Theorie der Verzerrungsgradient (vom englischen „strain gradient“) $\tilde{\beta}$ definiert, der ein Maß für die effektive Deformation eines Kristall bildet:

$$\tilde{\beta} \equiv \frac{\Lambda_L}{\cos^2(\Theta_B)}\delta\vec{K}_0 \cdot \vec{s}_0 = \frac{\Lambda_L}{\cos^2(\Theta_B)}\frac{\partial^2}{\partial s_0 \partial s_G}(\vec{G} \cdot \vec{u}) \tag{4.20}$$

s_0 und s_G sind die Koordinaten in Richtung des einfallenden und des reflektierten Strahls, während Λ_L der inverse Abstand der Dispersionsflächen ist. Für den symmetrischen Laue-Fall wird Λ_L durch den folgenden Ausdruck beschrieben:

$$\Lambda_L = \frac{\pi V_{EZ}\cos(\Theta_B)}{r_e\lambda|P|\sqrt{F_G F_{\bar{G}}}} \tag{4.21}$$

Die Relationen 4.20 und 4.21 zeigen, daß die effektive Verzerrung $\tilde{\beta}$ des Kristalls umgekehrt proportional zu der Wellenlänge λ und zum Strukturfaktor F_G ist. Das bedeutet, daß ein Kristall umso verzerrter wirkt, je geringer die verwendete Wellenlänge oder je höher die Ordnung der untersuchten Reflexion ist.

Der physikalisch wichtigste Effekt von Gleichung 4.18 liegt in der Auswirkung auf die Lage der Anregungspunkte: Mit Durchgang durch den Kristall wandern die Anregungspunkte wie in Abbildung 4.7 dargestellt über die Hyperbeläste. Die Lage der Startpunkte A bzw. B ergibt sich, wie in dem vorherigen Abschnitt 4.2.1 beschrieben, aus den experimentellen Randbedingungen, während die Position der Endpunkte A' bzw. B' über den Verzerrungsgradienten und die Kristalldicke bestimmt wird. Das Wandern der Anregungspunkte auf den Hyperbelästen bedeutet eine Richtungsänderung des jeweiligen Poynting-Vektors, also eine Änderung der Ausbreitungsrichtung des Wellenfeldes. Als Folge der Verzerrung beobachtet man deshalb gekrümmte Strahlwege. Mit zunehmendem $\tilde{\beta}$ wird, wie am Beispiel der gestrichelten Kurve in Abbildung 4.7 gezeigt, der Abstand der Scheitelpunkte der beiden Hyperbeläste kleiner. Damit stimmen die Richtungen der zu den Anregungspunkten gehörenden Poynting-Vektoren über weite Winkelbereiche nahezu mit den Richtungen der Vektoren $\vec{s}_0$ oder $\vec{s}_G$ überein.

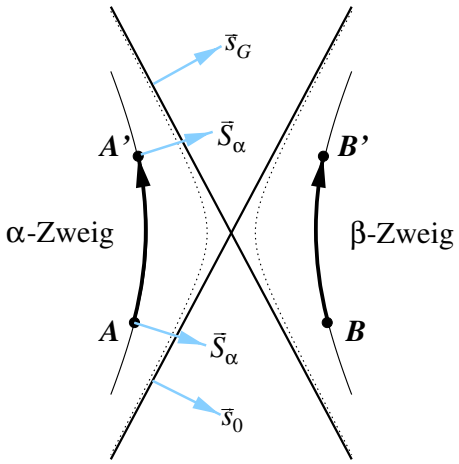


Abbildung 4.7.: *Bei Durchlaufen eines gekrümmten Kristalls wandern die Anregungspunkte auf den Dispersionsflächen von A, B nach A′, B′. Mit zunehmendem* $\tilde{\beta}$ *wird der Abstand der Scheitelpunkte geringer (gestrichelte Linie) und die Dispersionsflächen unterscheiden sich nur noch in einem kleinen Bereich deutlich von den Asymptoten. In großen Winkelbereichen fällt also die Richtung der Poynting-Vektoren* $\vec{S}$ *der Wellenfelder entweder mit der Richtung von* $\vec{s}_0$ *oder* $\vec{s}_G$ *zusammen. Dies führt im Vergleich zu perfekten Kristallen zu einer stark erhöhten Reflektivität: Bei Eintritt in den Kristall geht die gesamte Intensität in das* α*-Wellenfeld, dessen Poynting-Vektor* $\vec{S}_\alpha$ *parallel zu* $\vec{s}_0$ *liegt. Nach Durchlaufen des Kristalls zeigt der Poynting-Vektor in Richtung* $\vec{s}_G$*, so daß die gesamte Intensität in den reflektierten Strahl transferiert wird.*

Dies hat interessante Auswirkungen auf die reflektierten Intensitäten: Nach den im vorherigen Unterabschnitt beschriebenen Kriterien geht bei Eintritt des Strahles in den Kristall die Intensität in das Wellenfeld, dessen Poynting-Vektor parallel zu $\vec{s}_0$ liegt. Dies ist in Bild 4.7 für das Wellenfeld des α-Zweiges der Fall. Nach Durchlaufen des Kristalls ist der Anregungspunkt zu seiner Endposition A' gewandert, der Poynting-Vektor des α-Wellenfeldes zeigt nun also in Richtung von $\vec{s}_G$. Bei der Aufspaltung des Wellenfeldes in vorwärts gebeugten bzw. reflektierten Strahl wird deshalb die gesamte Intensität in den reflektierten Strahl übertragen. Der reflektierte Strahl transportiert also bis auf Absorptionseffekte die gesamte Primärintensität.

Für einen konstanten Verzerrungsgradienten läßt sich der Strahlweg als Funktion der Ortskoordinaten x, z mit den Parametern $\tilde{\beta}$ und $\xi_{0,i}$ ausdrücken [PP61]. Der Index i kennzeichnet Werte beim Eintritt in den Kristall:

$$\left[\frac{2\tilde{\beta}x}{\tan\Theta_B}+\xi_{0,i}+\frac{1}{\xi_{0,i}}\right]^2-\left[2\tilde{\beta}z+\xi_{0,i}-\frac{1}{\xi_{0,i}}\right]^2=4 \tag{4.22}$$

Abbildung 4.8 zeigt nach dieser Formel berechnete Strahlwege in einem schematisch dargestellten Kristall. z ist die Koordinate senkrecht zur Kristalloberfläche und zeigt in die Horizontale, während die x-Achse senkrecht nach oben weist. Die einzelnen Kurven sind für unterschiedliche Werte des Verzerrungsgradienten gerechnet, wobei die effektive Verzerrung nach hinten zunimmt. Wie bei den Dispersionsflächen kann man zwei Effekte des steigenden $\tilde{\beta}$ erkennen: Erstens nimmt die Krümmung des Strahlweges zu und zweitens konzentriert sich der Knick in der Kurve immer stärker auf einen bestimmten Bereich. Dieser Knick liegt bei $z(\xi_0 = -1)$. ξ_0 läßt sich durch die Winkelvariable η ersetzen:

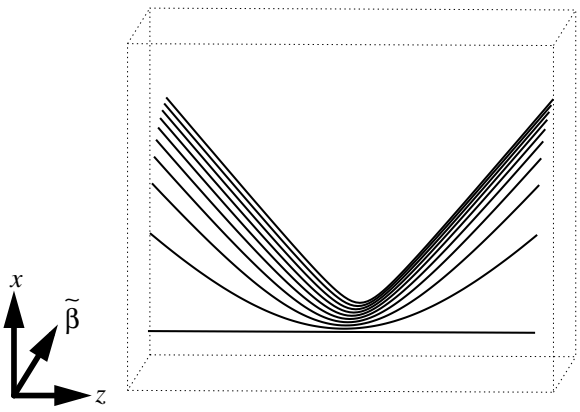


Abbildung 4.8.: *Mit zunehmender Biegung der Netzebenen, ausgedrückt durch ein ansteigendes $\tilde{\beta}$, wird der Strahlweg stärker gekrümmt. Außerdem konzentriert sich die Krümmung des Strahlweges immer mehr auf einen bestimmten Bereich. In dem schematisch dargestellten Kristall (gestrichelte Linie) wird in die Papierebene hinein der Verzerrungsgradient $\tilde{\beta}$ immer größer. Dadurch sind die als durchgezogene Linien eingezeichneten Strahlwege immer stärker gekrümmt.*

$$2\eta(z) = \xi_0 - \frac{\xi_0}{1} = \xi_{0,i} - \frac{\xi_{0,i}}{1} + 2\tilde{\beta}z = 2\eta_i + 2\tilde{\beta}z \tag{4.23}$$

Damit liegt der Knick des Strahlweges an der Stelle $z(\eta = 0)$. Beim Durchlaufen des Kristalls variiert $\eta(z)$ in dem Intervall $\eta_i \leq \eta(z) \leq \eta_i + \tilde{\beta}t_0$, wobei t_0 die Kristalldicke ist. Daraus folgt, daß für alle η_i in einem Bereich von $-\tilde{\beta}t_0 < \eta_i < 0$ der Strahlweg einen Knick aufweist und für genügend große $\tilde{\beta}$ die komplette Primärintensität in den reflektierten Strahl transferiert wird. Für die Extremwerte $\eta_i = -\tilde{\beta}t_0$ und $\eta_i = 0$ beträgt die Reflektivität nur 50%, da für den ersten Fall zwar die komplette einfallende Intensität in das Wellenfeld α übergeht, dafür aber beim Austritt aus dem Kristall die Intensität des Wellenfeldes zu gleichen Teilen in reflektierten und vorwärts gebeugten Strahl aufgeteilt wird. Für den Fall $\eta_i = 0$ wird die Primärintensität jeweils zur Hälfte auf die beiden Wellenfelder übertragen. Beim Austritt aus dem Kristall geht dann die Intensität jedes Wellenfeldes jeweils komplett entweder in den reflektierten oder vorwärts gebeugten Strahl über. Auf der Skala der dimensionslosen Größe η definiert der Abstand $|\tilde{\beta}|t_0$ also die Halbwertsbreite des Reflexprofils. Nach Beziehung 4.16 kann dieser Wert in den Winkelraum umgerechnet werden:

$$FWHM(\text{Winkeleinheiten}) = \frac{FWHM_{dyn}}{2} \cdot |\tilde{\beta}|t_0 \tag{4.24}$$

Die hier vorgestellten Überlegungen gelten nur unter der zu Beginn des Abschnittes gemachten Annahme, daß die Änderungen zwischen den als perfekt beschriebenen Kristallbereichen hinreichend klein sind. Ab einem gewissen Maß der Verzerrung, also ab einem Verzerrungsgradienten größer als ein Grenzwert $\tilde{\beta}_c$, trifft diese Annahme mit Sicherheit nicht mehr zu. Auf diesen Fall wird im nächsten Abschnitt eingegangen.

4.2.3. Erzeugung neuer Wellenfelder

1970 haben Authier und Balibar gezeigt, daß die Wellenfelder in einem Kristall nicht mehr durch die PPK-Theorie beschrieben werden können, wenn sich die Richtung des beugenden reziproken Gittervektors $\vec{G}$ innerhalb einer Extinktionslänge t_{ext} um mehr als die dynamische Halbwertsbreite ändert [AB70]. Die Felder müssen dann durch einen anderen Ansatz der dynamischen Theorie beschrieben werden, wie er z.B. durch Takagi und Taupin entwickelt wurde [Tak62, Tak69, Tau64]. Dieser Ansatz verallgemeinert die dynamische Theorie auf jede Form von einfallender Welle und Deformation. Das Wellenfeld $\vec{E}$ wird dazu als Summe von modulierten Blochwellen geschrieben:

$$\vec{E}(\vec{r}) = E_0(\vec{r})\exp(-2\pi i\vec{k}_0\cdot\vec{r}) + E_G(\vec{r})\exp(-2\pi i\vec{k}_G\cdot\vec{r}) \tag{4.25}$$

Die Amplituden $E_0(\vec{r})$ und $E_G(\vec{r})$ sind Funktionen des Ortes, wobei von einer langsamen Modulation ausgegangen wird. Sie sind Lösungen eines Systems vom linearen partiellen Differentialgleichungen

$$\begin{aligned}\frac{\partial E_0}{\partial s_0} &= -i\pi kP\chi_{\bar{G}}E_G,\\ \frac{\partial E_G}{\partial s_G} &= -i\pi kP\chi_G E_0 + 2i\pi k\tilde{\beta}E_G,\end{aligned} \tag{4.26}$$

welches äquivalent zu zwei partiellen Differentialgleichungen zweiter Ordnung ist:

$$\begin{aligned}&\frac{\partial^2}{\partial s_0\partial s_G}E_0(\vec{r}) - 2\pi ik\tilde{\beta}\frac{\partial}{\partial s_0}E_0(\vec{r}) + \pi^2k^2P^2\chi_G\chi_{\bar{G}}E_0(\vec{r}) = 0\\ &\frac{\partial^2}{\partial s_0\partial s_G}E_G(\vec{r}) - 2\pi ik\tilde{\beta}\frac{\partial}{\partial s_0}E_G(\vec{r}) + \left(\pi^2k^2P^2\chi_G\chi_{\bar{G}} - 2\pi ik\frac{\partial}{\partial s_0}\tilde{\beta}\right)E_0(\vec{r}) = 0\end{aligned} \tag{4.27}$$

Dabei sind $\chi_G\chi_{\bar{G}}$ die Fourierkoeffizienten der dielektrischen Suszeptibilität. Für diese Gleichungen bestehen keine allgemeinen analytischen Lösungen, diese sind nur für einfache Fälle wie perfekte Kristalle und eine einfallende ebene oder sphärische Welle zu finden. Für andere Fälle müssen die Gleichungen numerisch gelöst werden. Numerische Simulationen haben gezeigt, daß es bei Verzerrungen mit einem

$$|\tilde{\beta}| > \tilde{\beta}_c \equiv \frac{\pi}{2\Lambda_L} \tag{4.28}$$

an der Stelle $z(\eta = 0)$ der stärksten Krümmung des Strahlweges durch sog. „interbranch scattering“ zu der Erzeugung eines neuen Wellenfeldes kommt [BEM75]. Dies ist in den Abbildungen 4.9 und 4.10 dargestellt. Die erste Abbildung zeigt den Weg der Anregungspunkte auf den Dispersionflächen: Am Punkt *A* geht die gesamte einfallende Intensität in das Wellenfeld des α-Zweiges über. Beim weiteren Durchlaufen des Kristalls wandert der Anregungspunkt die Hyperbel weiter hinauf, bis er deren Scheitelpunkt und damit den Ort maximaler Krümmung erreicht. Hier kommt es zum Übersprechen der Wellenfelder, so daß ein Teil der Intensität auf das β-Wellenfeld übertragen wird. An den Punkten A' (B') wird die gesamte Intensität des α-(β-)Wellenfeldes in den reflektierten (vorwärts gebeugten) Strahl transferiert. Die Anregung des neuen Wellenfeldes führt also zu einer Verringerung der Reflektivität des Kristalls.

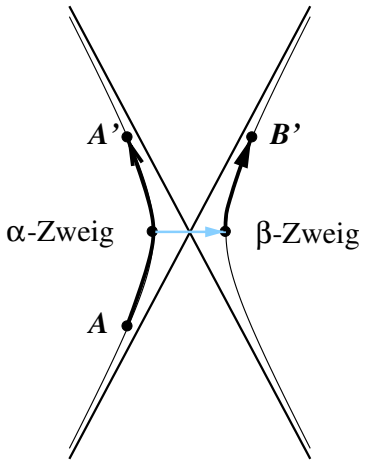


Abbildung 4.9.: *Übersteigt der Verzerrungsgradient* $\tilde{\beta}$ *einen Grenzwert, kommt es zu „interbranch scattering“: Bei Eintritt des Strahles in den Kristall geht die gesamte Primärintensität in das* α*-Wellenfeld über, dies entspricht dem Anregungspunkt A. An der Stelle mit der stärksten Krümmung der Hyperbelzweige kommt es zu einem Übersprechen der Wellenfelder, ein Teil der Intensität wird in das* β*-Wellenfeld transferiert. Die Richtung des Poynting-Vektor dieses Feldes stimmt hier mit der von* $\vec{s}_0$ *überein. Der Strahlweg des* β*-Feldes geht also, wie in der folgenden Abbildung 4.10 dargestellt, in Richtung des vorwärts gebeugten Strahles. Auf diese Weise wird die Intensität des reflektierten Strahles abgeschwächt.*

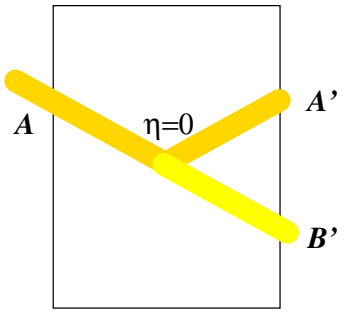


Abbildung 4.10.: *Strahlwege in einem stark verzerrten Kristall: Die Buchstaben entsprechen den Anregungspunkten aus Abbildung 4.9. Bei Eintritt in den Kristall wird über den Punkt A nur das* α*-Wellenfeld angeregt. An der Stelle* $z(\eta = 0)$ *tritt der Knick im Strahlweg auf, es kommt zum „interbranch scattering“. Im weiteren Verlauf existieren zwei Wellenfelder. Das* α*-Feld verläuft in Richtung* $\vec{s}_G$*, am Punkt* A' *wird seine gesamte Intensität in den reflektierten Strahl übergehen. Die Intensität des heller eingezeichneten* β*-Feldes geht bei* B' *in den transmittierten Strahl, da es sich in Richtung* $\vec{s}_0$ *ausbreitet.*

In Abbildung 4.10 ist schematisch der Strahlweg der beiden Wellenfelder dargestellt. Nach Eintritt in den Kristall am Punkt *A* existiert nur das α-Wellenfeld, das sich in Richtung $\vec{s}_0$

ausbreitet. An der Stelle $z(\eta = 0)$ tritt der Knick im Strahlweg auf und das neue Wellenfeld wird generiert. Danach breitet sich das β-Feld weiter in Richtung $\vec{s}_0$ aus, während das α-Feld in Richtung $\vec{s}_G$ abgelenkt wird.

Das Intensitätsverhältnis zwischen dem ursprünglichen und dem neu generierten Wellenfeld wurde unter Annahme eines konstanten Verzerrungsgradienten für den Laue-Fall von Balibar *et al.* und für den Bragg-Fall von Chukhovskii *et al.* analytisch bestimmt [BCM83, CM89]. In beiden Fällen erhielt man das gleiche Ergebnis:

$$\frac{I_{neu}}{I_0} = \exp\left(-2\pi\frac{\tilde{\beta}_c}{|\tilde{\beta}|}\right) \tag{4.29}$$

Wenn man diese Beziehung als Funktion von Wellenlänge und Strukturfaktor ausdrückt, bekommt man die folgende Relation

$$\frac{\tilde{\beta}_c}{|\tilde{\beta}|} \propto \frac{1}{\Lambda_L^2} \propto \lambda^2 F_G F_{\bar{G}}, \tag{4.30}$$

d.h. der Anteil des neuen Wellenfeldes nimmt sehr stark mit abnehmender Wellenlänge oder höheren Reflexordnungen zu. Später konnte die Gültigkeit von Gleichung 4.29 auch für den Fall eines variablen Verzerrungsgradienten gezeigt werden. Dabei muß für $|\tilde{\beta}|$ der Wert am Ort der Erzeugung des neuen Wellenfeldes genommen werden [GM84a, GM84b].

Mit dem erweiterten Modell der dynamischen Theorie für verzerrte Kristalle lassen sich $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle vollständig beschreiben: Aus der PPK-Theorie erhält man den Zusammenhang zwischen der Halbwertsbreite und dem Verzerrungsgradienten, während die Berücksichtigung der Erzeugung des neuen Wellenfeldes eine exakte Vorhersage der zu erwartenden Reflektivität erlaubt. In dem folgenden Abschnitt werden die Messungen an einer der am IKZ Berlin gezogenen Proben vorgestellt und deren Ergebnisse mit der hier präsentierten Theorie verglichen.

4.3. Experimentelle Ergebnisse

4.3.1. Die Probe

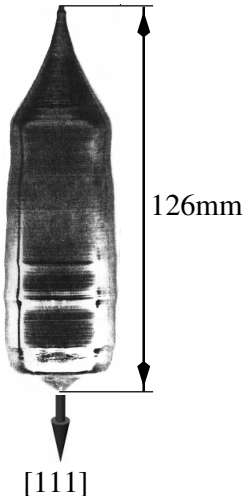


Abbildung 4.11.: *Der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall „SiGe 102“. Bei diesem Rohling handelt es sich um einen am IKZ Berlin im Czochralski-Verfahren gezogenen $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall. Er wurde nach Angaben des IKZ mit einer Germanium-Ausgangskonzentration $C_{0,Ge}$ von 5* at% *in Richtung [111] gezogen und erreichte bei einem maximalen Durchmesser von 33* mm *eine Länge von 126* mm.

Die im folgenden Abschnitt vorgestellten Messungen wurden alle an dem in Abbildung 4.11 dargestellten Kristall durchgeführt. Bei diesem Rohling handelt es sich um einen am IKZ im Czochralski-Verfahren gezogenen $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall mit der Bezeichnung „SiGe 102“. Er wurde nach Angaben des IKZ mit einer Germanium-Ausgangskonzentration $C_{0,Ge}$ von 5 at% in Richtung [111] gezogen und erreichte bei einem maximalen Durchmesser von 33 mm eine Länge von 126 mm. Für die Messungen wurde der Kristall in eine Reihe von kleineren Teilen zerschnitten. Die im linken Teil von Abbildung 4.12 dargestellte zentrale Probe wurde dabei so aus dem zylindrischen Teil des Rohlings geschnitten, daß sie eine möglichst große Fläche besitzt und bei einer Dicke von 7 mm sowohl die Untersuchung des Kern- als auch der Randbereiche des ursprünglichen Kristalls erlaubt. In der Abbildung sind neben den Dimensionen der Probe auch die Orientierungen angegeben. Sie machen in Laue-Geometrie neben dem (111)- auch den (220)-Reflex einfach zugänglich. Oberhalb und unterhalb der Probe wurden noch 500 μm dicke Querschnitte aus dem Zylinder geschnitten, außerdem wurde parallel zu der $(22\bar{4})$-Fläche eine ebenfalls 500 μm dicke Scheibe entnommen. Von diesen dünnen Schnitten wurden am IKZ in Berlin Topogramme aufgenommen, deren Ergebnisse im rechten Teil von Abbildung 4.12 und vollständig in Anhang A zu sehen sind. An dieser Probe wurden eine Reihe von Messungen durchgeführt, deren Ergebnisse in dem folgenden Abschnitt präsentiert werden sollen. Dabei wird erst eine Charakterisierung des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls vorgenommen, d. h. der Verlauf der Germaniumkonzentration und die damit verbundene Krümmung der Netzebenen werden untersucht. Danach werden die für eine Verwendung als Monochromator relevanten Größen Reflektivität und Halbwertsbreite der Reflexkurve bestimmt. In den einzelnen Unterabschnitten wird erst das Prinzip der jeweiligen

Messung erläutert, bevor die Ergebnisse präsentiert und diskutiert werden. Ein Vergleich mit der Theorie findet im darauf folgenden Abschnitt 4.4 statt.

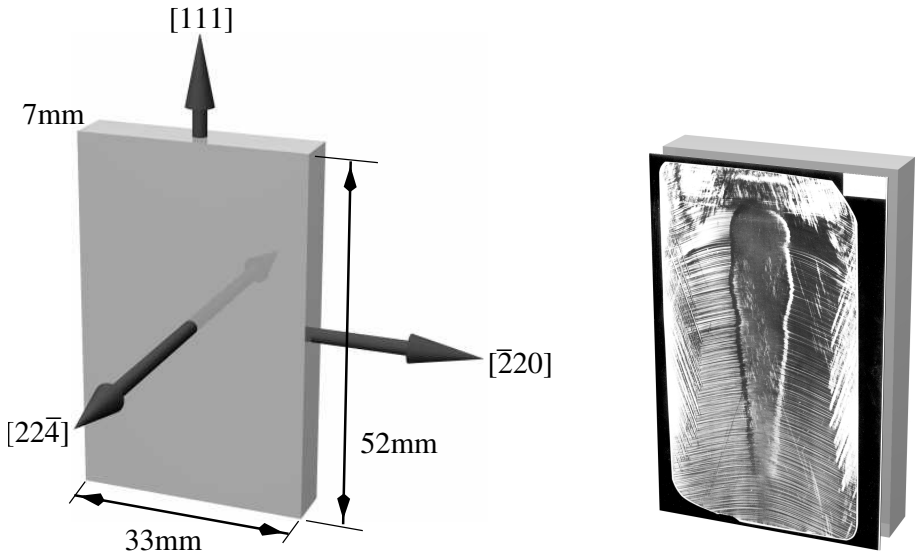


Abbildung 4.12.: *Die aus dem Kristall „SiGe 102“ geschnittene Probe (links) zusammen mit dem Ergebnis der Topographie (rechts). Die Zahlen an den Pfeilen geben die kristallographischen Orientierungen der Probe an. Sie wurde so geschnitten, daß ein möglichst großer Bereich des Gradientenkristalls systematisch untersucht werden kann. Das im rechten Bild dargestellte Topogramm zeigt, daß der Kristall über weite Bereiche versetzungsarm ist und über einen ausgeprägten Kernbereich verfügt. Die hohe Versetzungsdichte am oberen Rand der Aufnahme wird durch den thermischen Schock am Ende des Zuchtprozesses erzeugt [Abr98b].*

4.3.2. Messung des Gitterparameters und Bestimmung der Germaniumkonzentration

L. Vegard hat 1921 entdeckt, daß bei Mischkristallen $A_{1-x}B_x$ aus ineinander löslichen Atomsorten A und B der Gitterparameter linear mit dem Mischungsverhältnis x zwischen den Werten der elementaren Gitterparameter a_A bzw. a_B variiert [Veg21]. Für einen $Si_{1-x}Ge_x$-Mischkristall ergäbe sich also ein effektiver Gitterparameter von

$$a_0 = (1-x)\cdot a_{Si} + x \cdot a_{Ge}. \tag{4.31}$$

Im Verlauf der Zeit zeigte sich, daß für viele Systeme leichte Abweichungen von dem Vegardschen Gesetz existieren [GV62]. Für das Silizium-Germanium-System wurde der Zusammenhang zwischen dem Germaniumgehalt und dem Gitterparameter 1964 experimentell

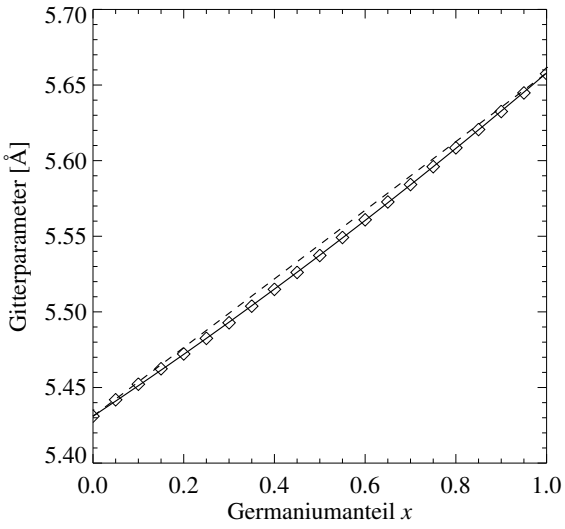


Abbildung 4.13.: *Der Zusammenhang zwischen Germaniumkonzentration und Gitterparameter in $Si_{1-x}Ge_x$-Mischkristallen. Die gestrichelte Linie zeigt die lineare Abhängigkeit des Vegardschen Gesetzes [Veg21], die Datenpunkte wurden von Dismukes* et al. *gemessen [DEP64]. An diese Daten haben Windl* et al. *die durchgezogene Linie nach Beziehung 4.32 angepaßt [WSM98, ANS94].*

von Dismukes *et al.* untersucht [DEP64]. Das Ergebnis dieser Messung ist in Abbildung 4.13 als Rauten dargestellt. Die gestrichelte Linie zeigt zum Vergleich den linearen Zusammenhang des Vegardschen Gesetzes, während die durchgezogene Linie eine Anpassung nach der folgenden Beziehung an die Daten wiedergibt [WSM98]:

$$a_0 = (1-x)\cdot a_{Si} + x\cdot a_{Ge} + \theta\cdot x(1-x) \tag{4.32}$$

Dabei ist der Krümmungsparameter $\theta = -0.028$ [ANS94] ein Maß für die Abweichung vom linearen Verlauf. Mit Hilfe der Beziehung 4.32 ist es möglich, direkt zwischen Gitterparameter und Germaniumkonzentration umzurechnen. Mit dem Dreikristall-Diffraktometer kann eine relative Änderung des reziproken Gittervektors $|\vec{G}| = 2\pi/a\cdot(h^2+k^2+l^2)^{1/2}$ und damit des Gitterparameters a sehr genau gemessen werden. Um jedoch einen absoluten Wert für $\vec{G}$ zu erhalten, muß dieser im Vergleich zu einer bekannten Referenz vermessen werden. Aus diesem Grund wurde bei den Messungen hinter dem $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall ein perfekter Silizium-Einkristall auf dem Diffraktometer gehaltert und durch θ-2θ-Scans die Differenz zwischen dem bekannten reziproken Gittervektor des Siliziums und dem $\vec{G}$ des Gradientenkristalls gemessen.

Abbildung 4.15 stellt die Ergebnisse dieser Messung dar. Die gefüllten Symbole geben die Werte für den reziproken Gittervektor in der oberen (Quadrate), der mittleren (Dreiecke) und

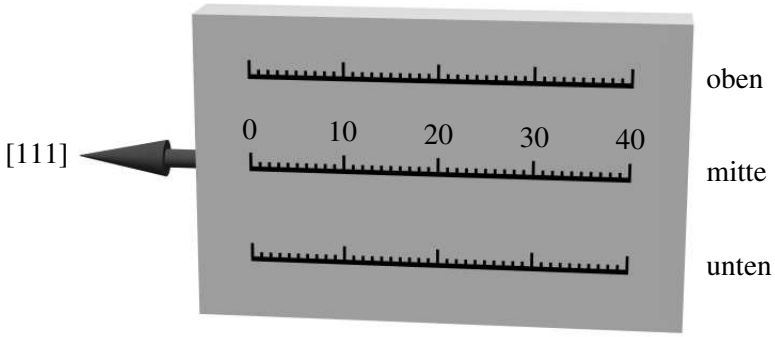


Abbildung 4.14.: *Die Positionen der einzelnen Meßpunkte auf der aus dem $Si_{1-x}Ge_x$-Kristall 102 geschnittenen Probe: Gemessen wurde in drei Reihen jeweils an den Positionen l=0* mm*, 10* mm*, 20* mm*, 30* mm *und 40* mm*. Der Pfeil zeigt in Zuchtrichtung [111].*

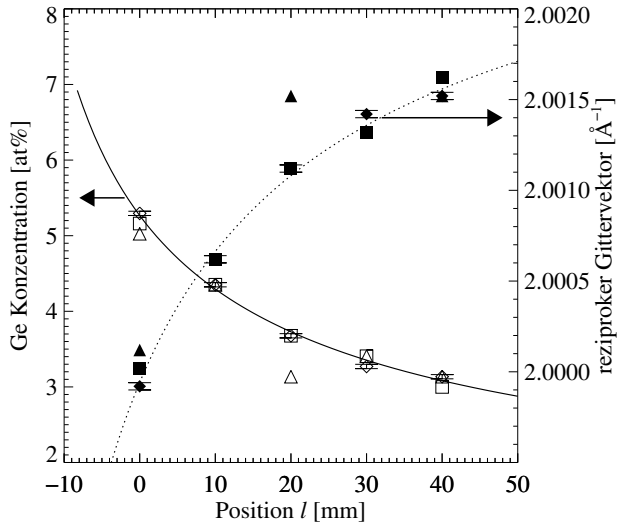


Abbildung 4.15.: *Der Verlauf der Germaniumkonzentration in dem $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall als Funktion der Position l. Die gefüllten Symbole geben die Werte für den reziproken Gittervektor in der oberen (Quadrate), der mittleren (Dreiecke) und unteren Reihe (Rauten) aus Abbildung 4.14 wieder. Die offenen Symbole geben die berechnete Germaniumkonzentration an denselben Positionen an. Für die durchgezogene Linie wurden die Konzentrationswerte nach Gleichung 4.2 angepaßt. Eine Umrechnung dieser Kurve nach Gleichung 4.32 ergibt den gepunkteten Graphen.*

unteren Reihe (Rauten) aus Abbildung 4.14 wieder. Die Fehlerbalken ergeben sich aus der Auslesegenauigkeit des Winkelencoders am Analysatorkristall. Aus den Daten wurden nach Beziehung 4.32 die als offenen Symbole dargestellten Werte für die Germaniumkonzentration

berechnet. Sie variiert zwischen 3.0 at% und 5.3 at% Germanium. Um die durchgezogene Linie zu erhalten, wurden die Konzentrationswerte nach Gleichung 4.2 angepaßt. Als Startwerte wurden dabei $C_{0,Ge} = 5$ at% und $0.3 \leq k \leq 0.4$ angenommen [Abr98a, ARA+96]. Als Resultat ergab sich für den Fit eine Güte von $\chi^2 = 1.12$. Man erkennt, daß der Verlauf der Germaniumkonzentration in Zuchtrichtung sehr gut durch die Scheil-Pfann-Relation beschrieben wird. Senkrecht zur Zuchtrichtung zeigt die Probe ein relativ homogenes Verhalten, die Streuung der einzelnen Werte ist bis auf eine Ausnahme eher gering. Eine Umrechnung des Fitergebnisses nach Gleichung 4.32 ergibt den gepunkteten Graphen.

4.3.3. Bestimmung des Krümmungsradius

Im Rahmen dieser Meßreihe wurde der Krümmungsradius der Netzebenen an verschiedenen Stellen der Probe vermessen. Die Ergebnisse des Experimentes geben Aufschluß darüber, ob der Gradientenkristall vollständig kohärent gewachsen ist und wie homogen die Krümmung der Netzebenen ist. Zu diesem Zweck wurde die Energieverteilung in dem Borrmann-Fächer der $Si_{1-x}Ge_x$-Probe vermessen. Unter dem Borrmann-Fächer versteht man die in Abbildung 4.16 dargestellte, von der Dicke t_0 der Probe abhängige Aufweitung eines in Laue-Geometrie gebeugten Strahles.

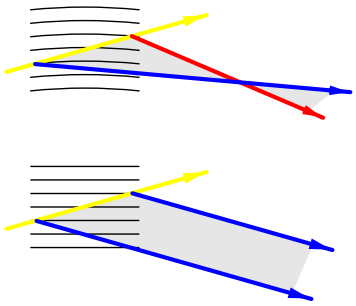


Abbildung 4.16.: *Borrmann-Fächer: In der im unteren Bild dargestellten Beugung an einem ebenen Kristall werden Anteile des einfallenden weißen Strahls zu Beginn und am Ende der Probe unter dem gleichen Bragg-Winkel reflektiert und besitzen beide die gleiche Energie und Richtung. In der oberen Darstellung wird die Beugung an einem gebogenen Kristall gezeigt. Hier trifft der Strahl zu Beginn des Kristalls unter einem geringeren Bragg-Winkel auf die Netzebenen als am Ende der Probe, so daß die am Anfang reflektierten Anteile des weißen Strahles eine höhere Photonenenergie aufweisen als die später reflektierten. Außerdem wirken die gekrümmten Netzebenen fokussierend.*

Der untere Teil der Abbildung zeigt die Beugung an einem ebenen Kristall: Von links fällt ein sehr schmaler Strahl auf die Netzebenen der Probe. Auf dem gesamten Strahlweg durch den Kristall werden Anteile des einfallenden Strahls reflektiert, so daß der reflektierte Strahl, der in der Abbildung grau unterlegt dargestellt ist, deutlich aufgeweitet wird. Für den symmetrischen Laue-Fall läßt sich die Aufweitung durch

$$\Delta b \approx 2 t_0 \tan(\Theta_B) \tag{4.33}$$

ausdrücken. Für einen 7 mm dicken Kristall, der bei einer Photonenenergie von 100 keV am Reflex (111) beugt, ergibt sich beispielsweise eine Aufweitung von Δb=0.28 mm. Bei einem ebenen Kristall trifft der einfallende Strahl immer unter dem gleichen Bragg-Winkel auf die Netzebenen. Im Falle eines weißes Strahls wird aufgrund der Bragg-Bedingung nur Strahlung einer Wellenlänge abgebeugt, der reflektierte Strahl ist also monochromatisch. Im Gegensatz dazu reflektiert ein gekrümmter Kristall ein Energiespektrum. Wie in dem oberen Teil von Abbildung 4.16 dargestellt, trifft der einfallende Strahl unter einem kontinuierlich zunehmenden Bragg-Winkel auf die Probe. Dadurch tritt in dem abgebeugten Strahl eine eindeutige Energieverteilung auf. Auf die Abbildung bezogen heißt das, je weiter oben im Bild man den Borrmann-Fächer betrachtet, desto später wurde der Strahl im Kristall abgebeugt und desto geringer ist die Photonenenergie. Außerdem hat der Kristall einen fokussierenden Effekt auf den abgebeugten Strahl. Bei in umgekehrter Richtung gekrümmten Netzebenen würde eine Defokussierung des Strahls beobachtet werden.

Auf den Fall eines Mosaik-Kristalls wird in Abbildung 4.16 nicht eingegangen. In diesem Kristalltyp werden auch Photonen verschiedener Energien abgebeugt. Da dies jedoch aufgrund der statistisch verteilten Kristallite geschieht, tritt in dem Borrmann-Fächer keine definierte Energieverteilung auf, sondern die Energien sind zufällig verteilt. Durch Messen der Energieverteilung im Borrmann-Fächer kann also zwischen einem homogen gekrümmten und einem Mosaik-Kristall unterschieden werden. Außerdem ist es möglich, aus der Differenz zwischen den Bragg-Winkeln der beiden dick eingezeichneten Randstrahlen direkt den Krümmungsradius r der Netzebenen zu berechnen:

$$r = \frac{t_0}{\Delta\Theta_B} \tag{4.34}$$

Für die Durchführung des Experimentes wurde der Monochromatorkristall des Dreikristall-Diffraktometers aus dem Strahl gefahren, so daß der weiße Strahl auf die Probe fiel. An der Position der ersten Blende wurde ein Spalt mit einer Breite von 20 μm senkrecht zur Beugungsebene aufgestellt, um einen möglichst schmalen Strahl zu präparieren. Hinter der Probe befand sich ein zweiter 20 μm breiter Spalt auf einem Translationsschlitten, der es nach Herstellerangaben ermöglichte, das Spaltsystem mit einer Auflösung von 0.1 μm senkrecht zum Strahl zu verfahren. Im Verlauf einer Meßreihe wurde das zweite Spaltsystem in 50 μm-Schritten durch den Borrmann-Fächer der Probe gefahren. An diesen Positionen wurde dann über zwei Analysator-Scans mit einem perfekten Silizium-Kristall im „+−“- bzw. „++“-Aufbau der zweifache Bragg-Winkel gemessen und so die Energie mit einer Genauigkeit besser als 100 eV bestimmt. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abbildung 4.17 oben gezeigt.

In den Einzelmessungen kann man erkennen, daß innerhalb des Borrmann-Fächers eine eindeutige Energieverteilung vorliegt. An die Daten wurde eine Gerade angefittet. Bei der Annahme eines linearen Verlaufes der Energieverteilung wurden folgende Näherungen gemacht: Die Änderung des Bragg-Winkels ist proportional zu der Steigung der Netzebenen. Wenn

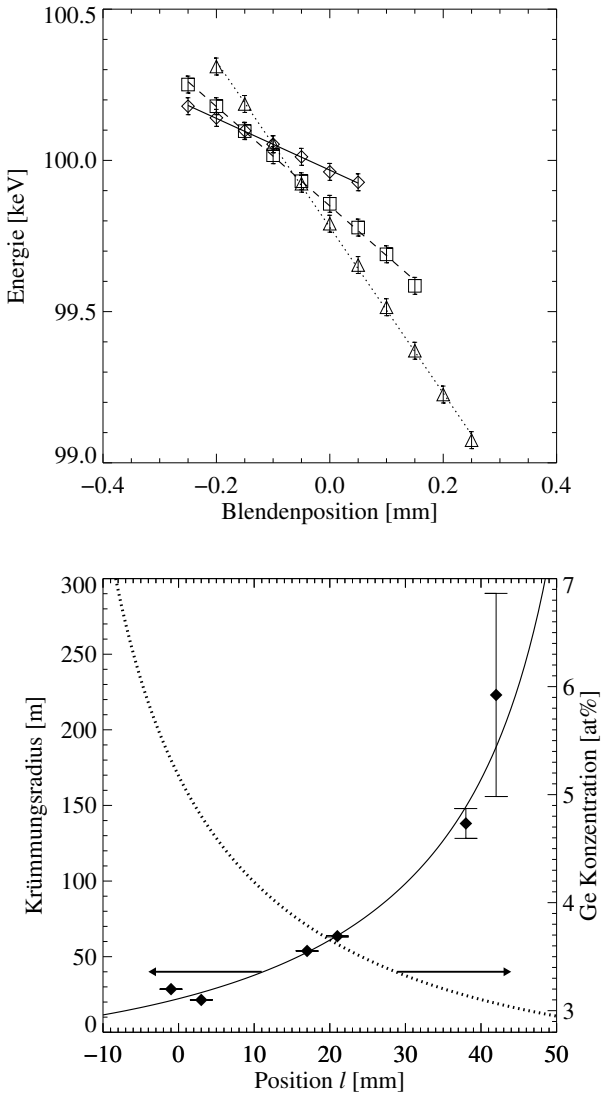


Abbildung 4.17.: *Energieabhängigkeit in dem Borrmann-Fächer des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls in Abhängigkeit von der Blendenposition (oben). Die Messungen wurden in der mittleren Reihe aus Abbildung 4.14 an den Positionen l= -1* mm *(Dreiecke), 21* mm *(Quadrate) und 38* mm *(Rauten) durchgeführt. Die Linien stellen lineare Fits an die Daten dar. Die untere Graphik zeigt die aus den Energieverteilungen im Borrmann-Fächer ausgerechneten Krümmungsradien des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls als Funktion der Probenposition l. Die getrichelte Linie zeigt den Verlauf der Germaniumkonzentration in der Probe. Durch eine Spiegelung dieser Kurve erhält man die durchgezogene Linie.*

man die Form der Netzebenen durch einen Kreis beschreibt, erhält man die Steigung der Ebenen durch die Ableitung der Kreisgleichung. Für ein Kreisbogenstück, das klein gegenüber dem Kreisradius r ist, ist die Ableitung annähernd eine Gerade. Als erste Näherung wurde also eine lineare Änderung des Bragg-Winkels angenommen. Weiterhin gilt für die Photonenenergie $E \propto 1/\sin\Theta_B$. Für genügend kleine Bragg-Winkel kann „$\sin\Theta_B$“ durch „Θ_B“ ersetzt werden, als zweite Annahme wurde also eine lineare Abhängigkeit der Photonenenergie vom Bragg-Winkel angenommen. Der durch diese beiden Näherungen gemachte Fehler ist vernachlässigbar, da in dem vorliegenden Fall ein Kreisbogen mit einer Länge von 7 mm einem Radius von mindestens 22000 mm gegenübersteht, bzw. Bragg-Winkel von etwa 1.5° auftreten. Dies wird durch die hervorragende Übereinstimmung zwischen Fitergebnis und Meßdaten bestätigt. Wenn man die Einzelmessungen miteinander vergleicht, stellt man fest, daß sich mit zunehmender Germaniumkonzentration die Steigung der Energieverteilung vergrößert, der Kristall also stärker gekrümmt ist. Außerdem wird durch den breiter werdenden Borrmann-Fächer gezeigt, daß der $Si_{1-x}Ge_x$-Kristall den Strahl defokussiert. Auf Messungen, für die der Kristall um 180° gedreht wurde, so daß er den gebeugten Strahl fokussierte, wird an dieser Stelle nicht weiter eingegangen. Sie bestätigen das Bild eines homogen gekrümmten Kristalls. Abbildung 4.17 unten zeigt die nach Beziehung 4.34 aus den Energieverteilungen berechneten Krümmungsradien des Gradientenkristalls als Rauten. Dabei wurden auch die Daten der Messung in fokussierender Kristallstellung verwendet. Die gestrichelte Linie zeigt den Verlauf der Germaniumkonzentration in dem $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall aus Abbildung 4.15. Eine einfachen Spiegelung dieser Kurve ergibt die durchgezogene Linie, welche den Verlauf des Krümmungsradius sehr gut reproduziert. Der Krümmungsradius folgt also als Funktion der Position einer der Scheil-Pfann-Gleichung 4.2 ähnlichen Gesetzmäßigkeit. Daraus ergibt sich eine hyperbelartige Abhängigkeit des Radius von der Germaniumkonzentration.

4.3.4. Messung der Reflektivität und der Halbwertsbreite

Die wichtigsten Eigenschaften bei der Verwendung eines Kristalls als Monochromator bzw. Analysator sind die Reflektivität R^{max} und die Halbwertsbreite $FWHM$, da diese Größen darüber entscheiden, wie groß die in einem Experiment zur Verfügung stehende Primärintensität ist. Zur Messung dieser Größen wurde der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall im nichtdispersiven Zweikristall-Aufbau untersucht. Als Monochromator diente ein jeweils am gleichen Reflex beugender perfekter Silizium-Kristall.

Abbildung 4.18 zeigt den prinzipiellen Versuchsaufbau und die einzelnen bei dieser Messung auftretenden Größen: Im linken Teil der Graphik ist schematisch die an dem (111)-Reflex beugende Probe dargestellt. Durch eine Drehung um ω_2 wird der Probenreflex gescant. Dabei wird die auf die Probe fallende Primärintensität I_0 in die transmittierte bzw. reflektierte Intensität $I_t(\omega_2)$ bzw. $I_r(\omega_2)$ aufgeteilt. Wie im rechten Teil der Abbildung gezeigt, ist bei Winkelpositionen weit außerhalb des Reflexes die als Linie dargestellte reflektierte Intensität $I_r(\omega_2)$ gleich 0, während die grau unterlegt gezeigte transmittierte Intensität $I_t(\omega_2)$ gleich der

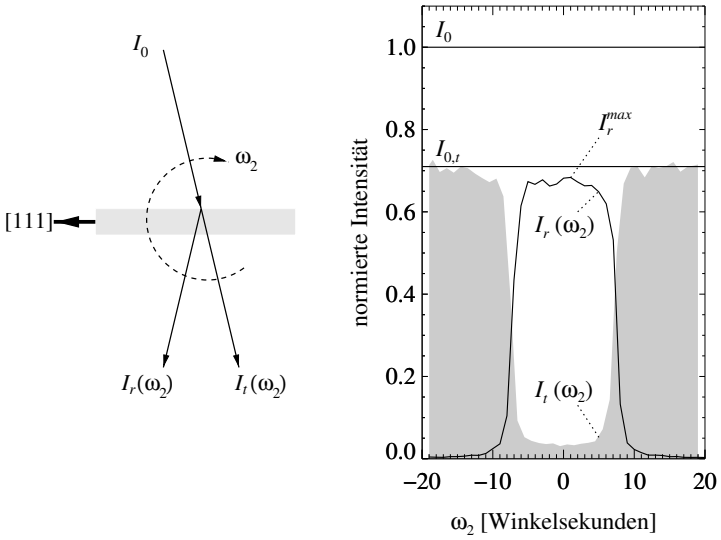


Abbildung 4.18.: *Prinzipieller Aufbau bei der Messung von Reflektivität und Halbwertsbreite. In der linken Graphik ist schematisch die an dem (111)-Reflex beugende Probe dargestellt. Durch eine Drehung um ω_2 wird der Probenreflex gescant. Dabei wird die auf die Probe fallende Primärintensität I_0 in die transmittierte bzw. reflektierte Intensität $I_t(\omega_2)$ bzw. $I_r(\omega_2)$ aufgeteilt. Das Ergebnis eines Beispielscans wird in der rechten Abbildung gezeigt. Eine Erläuterung der einzelnen Größen findet sich im Text.*

um die normale Absorption verringerten Primärintensität ist:

$$I_0 \cdot \exp\left(-\mu t_0 / \cos(\Theta_B)\right) \equiv I_{0,t} \tag{4.35}$$

Dabei sind μ der Absorptionskoeffizient und t_0 die Kristalldicke. Bei Winkelpositionen innerhalb des Reflexes wird die transmittierte Intensität um den reflektierten Anteil reduziert, $I_t(\omega_2) = I_{0,t} - I_r(\omega_2)$. Mit diesen Größen wird die Peak-Reflektivität R^{max} als der Quotient aus maximal reflektierter Intensität I_r^{max} und $I_{0,t}$ definiert:

$$R^{max} \equiv \frac{I_r^{max}}{I_{0,t}} \tag{4.36}$$

Um einen systematischen Vergleich mit der Theorie zu ermöglichen und die Verwendbarkeit des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls als Monochromator in einem weiten Bereich zu überprüfen, wurden die Reflektivität und Halbwertsbreite bei verschiedenen Energien und an zwei Reflexen untersucht. Abbildung 4.19 zeigt die Ergebnisse der Messungen. Diese wurden an den Positionen l=0 mm (5.2 at% Ge), 10 mm (4.3 at% Ge), 20 mm (3.7 at% Ge) und 30 mm (3.3 at% Ge) in der mittleren Reihe aus Abbildung 4.14 durchgeführt. Dabei wurde

mit Photonen der Energien 100 keV, 120 keV, 160 keV und 200 keV an den Reflexen (111) und (333) gebeugt. Die Daten zeigen eine klare Systematik: Mit zunehmendem Germaniumgehalt vergrößert sich die $FWHM$ der Reflexprofile, während die Reflektivität abnimmt. Eine Abnahme der Reflektivität wird auch bei zunehmender Photonenenergie beobachtet, jedoch bleibt in diesem Fall die Halbwertsbreite konstant. Diese Systematik tritt bei beiden Reflexen auf, wobei die Werte des (111)-Reflexes generell über denen des (333)-Reflexes liegen. Eine Auflistung der Ergebnisse findet sich in Tabelle A.1 auf Seite 86 in Anhang A. Noch interessanter als diese Tendenzen sind die absoluten Werte: Bei Reflex (111) und 100 keV variiert die Reflektivität zwischen 0.97 und 0.74 bei einer Halbwertsbreite im Bereich von 14.6 bis 70.3 Winkelsekunden. Zum Vergleich: Ein perfekter, in Laue-Geometrie beugender Siliziumkristall hat im Zweikristall-Aufbau bei 100 keV eine Halbwertsbreite von 0.54 Winkelsekunden und eine Reflektivität von 0.5.

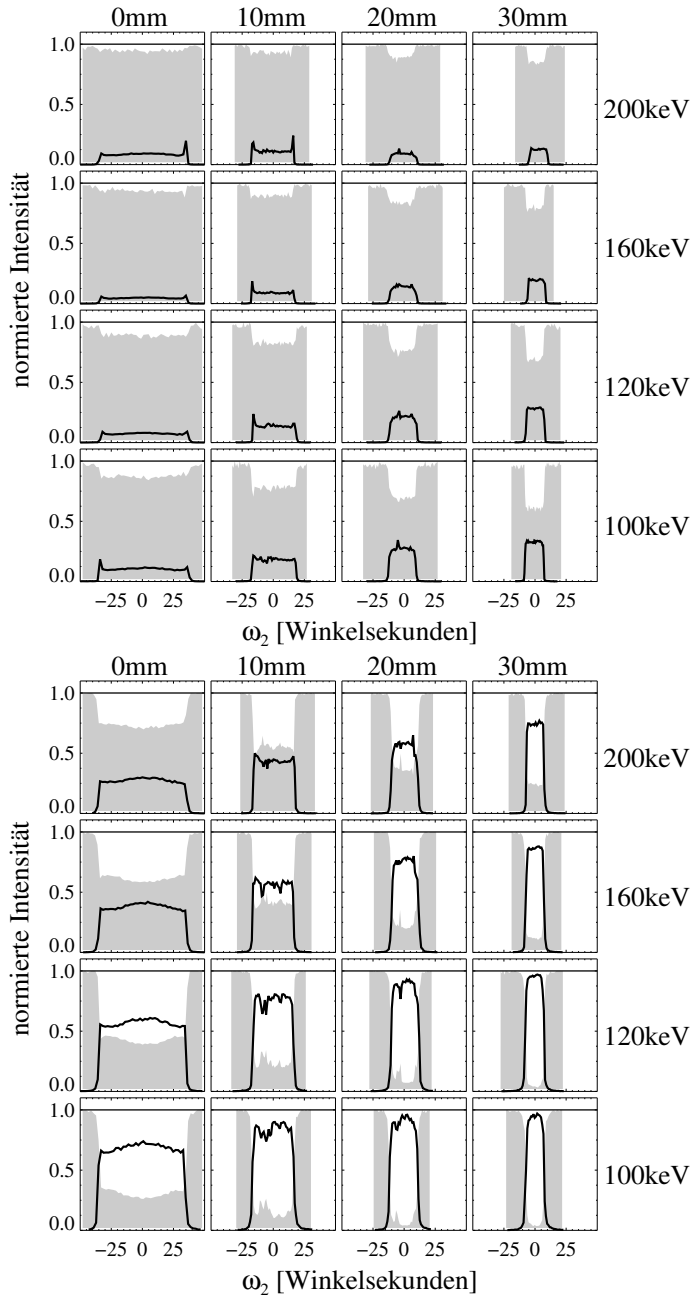


Abbildung 4.19.: *Reflektivität und Halbwertsbreite des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls als Funktionen des Drehwinkels ω_2. Gezeigt werden Messungen für verschiedene Positionen im Kristall und unterschiedliche Photonenenergien an den Reflexen (111) und (333). Die unterlegt dargestellten Daten wurden in Transmissionsgeometrie gemessen, die durchgezogenen Linien geben die Ergebnisse der Messungen in Reflexionsgeometrie wieder. Das Maximum der transmittierten Intensität $I_{0,t}$ wurde auf 1 normiert.*

4.4. Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit der Theorie

In diesem Abschnitt werden die experimentellen Ergebnisse mit den theoretisch zu erwartenden Werten verglichen. Dazu wird zunächst aus den gemessenen Halbwertsbreiten der jeweilige Verzerrungsgradient berechnet, im weiteren Verlauf werden über die berechneten Werte von $|\tilde{\beta}|$ und $\tilde{\beta}_c$ die Reflektivitäten bestimmt und mit den gemessenen Größen verglichen. Diese Rechnungen wurden von C. Malgrange durchgeführt [KMN$^+$99].

Das Verhältnis zwischen gemessener Halbwertsbreite $FWHM$ und dem Verzerrungsgradienten $|\tilde{\beta}|$ ergibt sich aus der Formel 4.24, wobei für kleine Bragg-Winkel in sehr guter Näherung gilt:

$$FWHM(\text{Winkeleinheiten}) = \frac{FWHM_{dyn}}{2} \cdot |\tilde{\beta}| t_0 \approx \frac{\partial^2}{\partial z^2}(\vec{G} \cdot \vec{u}) \cdot d_{hkl} t_0 \tag{4.37}$$

Da $|\vec{G}| = 2\pi/d_{hkl}$ ist, hängt die Halbwertsbreite nur von der Verzerrung $\vec{u}$ der Probe ab und sollte unabhängig von Photonenenergie und Reflexordnung sein. Mittelt man für eine Position auf der Probe die gemessenen Halbwertsbreiten aus allen acht Messungen, so findet man eine gute Bestätigung dieser Vermutung. Die in der zweiten Spalte von Tabelle 4.1 aufgelisteten Werte der gemittelten Halbwertsbreiten weisen nur geringe Standardabweichungen auf.

Position	$\langle FWHM \rangle$ [Winkelsekunden]	$r_{calc.}$ [m]	$r_{exp.}$ [m]
0 mm	70.86($\pm$0.83)	20.4	22($\pm$2)
10 mm	34.16($\pm$1.03)	42.2	37($\pm$2)
20 mm	21.43($\pm$0.98)	67.5	60($\pm$3)
30 mm	14.60($\pm$0.46)	98.9	98($\pm$5)

Tabelle 4.1.: *Über alle acht Messungen gemittelte Halbwertsbreite $\langle FWHM \rangle$ und Vergleich der berechneten und gemessenen Krümmungsradien $r_{calc.}$, bzw. $r_{exp.}$.*

Im Verlauf der Berechnungen wurden auch die Krümmungsradien $r_{calc.}$ an den verschiedenen Positionen ermittelt, so daß sie mit Meßwerten $r_{exp.}$ verglichen werden können. Da aufgrund der Aufwendigkeit der Messung der Krümmungsradius nicht an allen Positionen untersucht wurde, werden die experimentellen Werte aus Abbildung 4.17 auf Seite 58 entnommen. Die dritte und die vierte Spalte von Tabelle 4.1 stellen diese beiden Werte gegenüber. Auch hier kann eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment beobachtet werden.

Um nach Formel 4.24 aus den Halbwertsbreiten den Betrag des Verzerrungsgradienten $|\tilde{\beta}|$ ausrechnen zu können, benötigt man die Strukturfaktoren F_G und $F_{\bar{G}}$. Da aus den Messungen der Germaniumkonzentration das Verhältnis Silizium/Germanium an den Meßpunk-

ten bekannt ist, können die Strukturfaktoren $F_G = 4\sqrt{2}\langle f \rangle$ unter Annahme eines gemittelten Formfaktors

$$\langle f \rangle = x \cdot f_{Ge} + (1-x) \cdot f_{Si} \tag{4.38}$$

bestimmt werden. Die Formfaktoren f_{Ge}=27.64 (15.47) und f_{Si}=10.66 (5.835) für Reflexion (111) ((333)) wurden Pendellösungs-Messungen von Deutsch *et al.* sowie von Teworte und Bonse entnommen [DHC90, TB84]. Die damit berechneten Werte des Verzerrungsgradienten $|\tilde{\beta}|$, des kritischen Wertes $\tilde{\beta}_c$ sowie das Verhältnis $|\tilde{\beta}|/\tilde{\beta}_c$ sind in der Tabelle 4.2 aufgelistet. Aus diesem Verhältnis ergibt sich die maximale Peak-Reflektivität $R^{max}_{calc.}$, der in der letzten Spalte der Tabelle der gemessene Wert $R^{max}_{exp.}$ gegenübergestellt wird. Man erkennt das erwartete Verhalten: Die effektive Verzerrung des Kristalls nimmt mit steigender Photonenenergie bzw. höherer Reflexordnung zu, entsprechend stark nimmt der Anteil des neuen Wellenfeldes zu. Die Übereinstimmung zwischen den berechneten und experimentellen Werten der Reflektivität R^{max} ist hervorragend. Dies wird auch in Abbildung 4.20 deutlich, in der die Ergebnisse graphisch dargestellt sind.

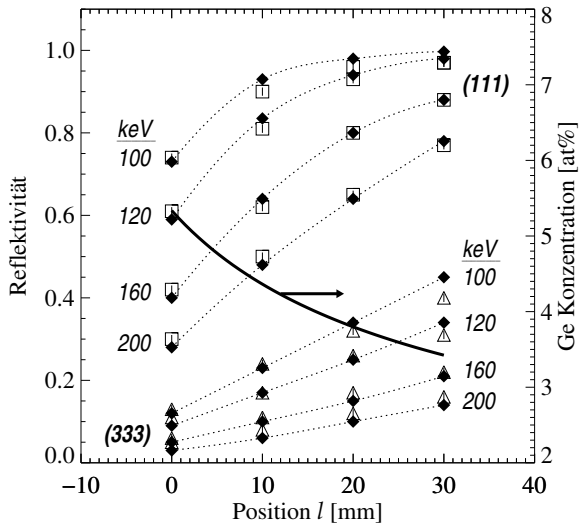


Abbildung 4.20.: *Vergleich zwischen experimentellen und theoretischen Reflektivitäten. Die berechneten Werte $R^{max}_{calc.}$ werden als gefüllte Rauten dargestellt und durch Splines verbunden. Im Vergleich dazu sind die gemessenen Reflektivitäten $R^{max}_{exp.}$ für den (111)-Reflex als offene Quadrate und für den (333)-Reflex als offene Dreiecke eingezeichnet. Die dicke durchgezogene Linie gibt den Verlauf der Germaniumkonzentration an.*

Energie	Position	$\lvert\tilde{\beta}\rvert$ 1/mm	$\tilde{\beta}_c$ 1/mm	$\lvert\tilde{\beta}\rvert/\tilde{\beta}_c$	$R^{max}_{calc.}$	$R^{max}_{exp.}$
100 keV	0 mm	34.43	7.15	4.82	0.73	0.74
	10 mm	16.86	7.03	2.40	0.93	0.90
	20 mm	10.63	6.97	1.53	0.98	0.96
	30 mm	7.29	6.93	1.052	0.997	0.97
120 keV	0 mm	41.50	5.94	6.99	0.59	0.61
	10 mm	20.33	5.84	3.48	0.835	0.81
	20 mm	12.81	5.79	2.21	0.94	0.93
	30 mm	8.76	5.76	1.52	0.98	0.97
160 keV	0 mm	55.02	4.47	12.31	0.40	0.42
	10 mm	26.96	4.39	6.14	0.64	0.62
	20 mm	17.01	4.36	3.90	0.80	0.80
	30 mm	11.65	4.33	2.69	0.90	0.88
200 keV	0 mm	68.86	3.57	19.29	0.28	0.30
	10 mm	33.66	3.52	9.56	0.48	0.50
	20 mm	21.26	3.49	6.09	0.64	0.65
	30 mm	14.59	3.47	4.20	0.78	0.77

Energie	Position	$\lvert\tilde{\beta}\rvert$ 1/mm	$\tilde{\beta}_c$ 1/mm	$\lvert\tilde{\beta}\rvert/\tilde{\beta}_c$	$R^{max}_{calc.}$	$R^{max}_{exp.}$
100 keV	0 mm	188.16	3.92	48.00	0.12	0.13
	10 mm	92.08	3.86	23.85	0.23	0.24
	20 mm	58.31	3.82	15.26	0.34	0.32
	30 mm	39.88	3.80	10.49	0.45	0.40
120 keV	0 mm	226.46	3.26	69.47	0.09	0.11
	10 mm	110.91	3.21	34.55	0.17	0.17
	20 mm	70.22	3.17	22.15	0.25	0.26
	30 mm	48.06	3.16	15.21	0.34	0.31
160 keV	0 mm	301.28	2.45	122.97	0.05	0.06
	10 mm	147.43	2.41	61.17	0.10	0.11
	20 mm	93.34	2.39	39.05	0.15	0.17
	30 mm	63.98	2.38	26.88	0.21	0.22
200 keV	0 mm	377.72	1.96	192.71	0.03	0.05
	10 mm	184.15	1.93	95.41	0.06	0.08
	20 mm	116.85	1.91	61.18	0.10	0.12
	30 mm	79.20	1.90	41.48	0.14	0.16

Tabelle 4.2.: *Die obere Tabelle gibt die Parameter für Reflex (111) an, während in der unteren die Werte für Reflex (333) aufgelistet sind.*

4.4.1. Reflektivitätsmaxima

Ein noch nicht vollständig verstandenes Phänomen ist das Auftreten sehr scharfer, an den Kanten der Reflexprofile lokalisierter Maxima. Diese sind in Abbildung 4.19 bei den Ergebnissen des (333)-Reflexes an den Positionen l=0 und 10 mm zu beobachten. Die Messungen waren mit einer der Halbwertsbreite des Probenreflexes angepaßten Schrittweite von 1, bzw. 2 Winkelsekunden durchgeführt worden, so daß die Punktdichte für eine genaue Untersuchung dieser Erscheinung leider recht gering ist.

Einen möglichen Erklärungsansatz bietet nach C. Malgrange [Mal99] die stark lokalisierte Erzeugung des neuen Wellenfeldes (s. Abschnitt 4.2.3 auf S. 49ff). Die Halbwertsbreite des Reflexprofils ergibt sich, der PPK-Theorie folgend, aus dem Intervall $-\tilde{\beta}t_0 < \eta_i < 0$, wobei die Intensität an den Randpunkten des Intervalls 0.5 beträgt. In Abbildung 4.21 sind zwei berechnete Reflexprofile für einen verzerrten Kristall dargestellt, für die der Wert $-\tilde{\beta}t_0$ auf -10 gesetzt wurde.

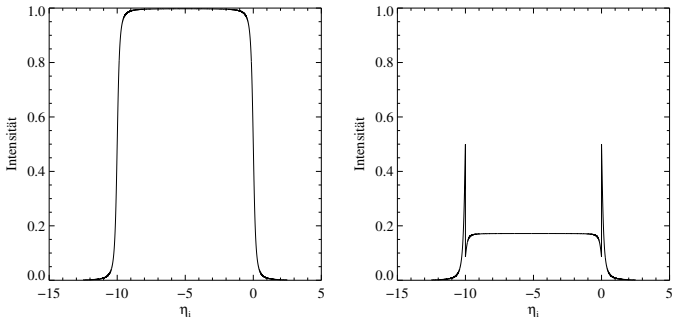


Abbildung 4.21.: *Zwei nach den Formeln 4.14, 4.15, 4.29 berechnete Reflexprofile verzerrter Kristalle, links mit* $|\tilde{\beta}| < \tilde{\beta}_c$*, rechts mit* $|\tilde{\beta}| > \tilde{\beta}_c$*. Der Wert* $-\tilde{\beta}t_0$ *wurde auf -10 gesetzt.*

In der linken Abbildung gilt $|\tilde{\beta}| < \tilde{\beta}_c$, während in der rechten Abbildung der Verzerrungsgradient größer als der kritische Wert $|\tilde{\beta}| > \tilde{\beta}_c$ angenommen wurde. Dies führt zu der Erzeugung eines neuen Wellenfeldes, durch das die Intensität des reflektierten Strahles abgeschwächt wird. Dieser Effekt tritt jedoch nur innerhalb des Intervalls $-\tilde{\beta}t_0 < \eta_i < 0$ auf, so daß die Kurvenform außerhalb dieses Bereiches nicht verändert wird. Dadurch treten scharfe Maxima mit einer Höhe von 0.5 auf. Um diese mit den gemessenen Reflektivitätsmaxima vergleichen zu können, muß die Kurve noch mit dem Reflexprofil des Monochromatorkristalls gefaltet werden. Die Ergebnisse dieser Rechnung sind in Abbildung 4.22 dargestellt. Die rechte Spalte zeigt den relevanten Ausschnitt des theoretischen Profils als dünne Linie, während die dicke Linie das Ergebnis der Faltung präsentiert. Dieses Ergebnis ist in der linken Spalte zusammen mit den Meßdaten dargestellt. Man erkennt, daß die Intensität der scharfen Maxima zwar durch die Faltung mit dem Monochromatorprofil stark reduziert wird, aber dennoch ausreicht, um den beobachteten Effekt zu reproduzieren. Die Übereinstimmung zwischen berechneter Kurve und Meßdaten wird mit abnehmender Photonenenergie schlechter.

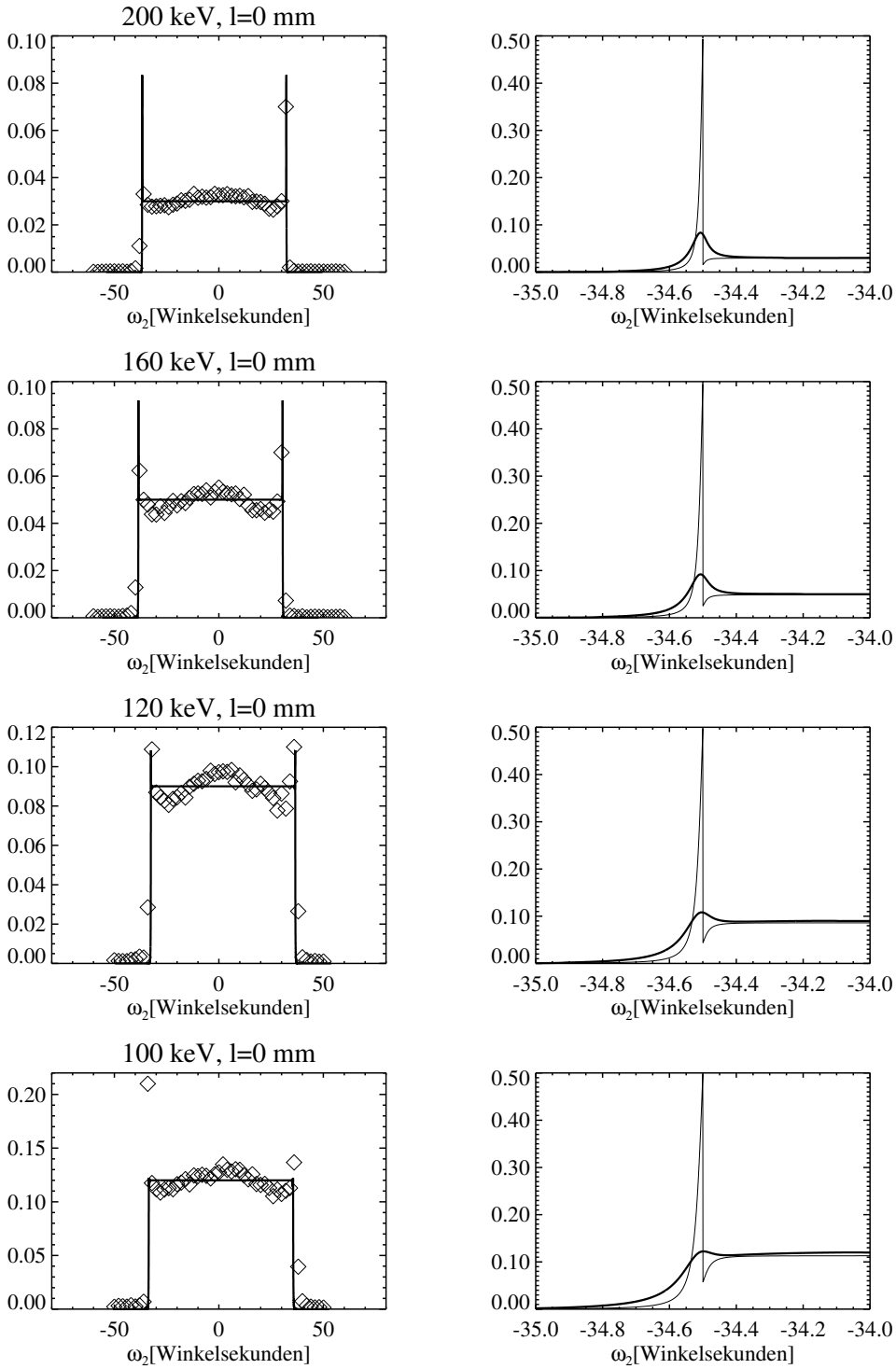


Abbildung 4.22.: *Die linke Spalte zeigt die an der Position l=0* mm *gemessenen Daten des (333)-Reflexes für die unterschiedlichen Photonenenergien zusammen mit der jeweiligen Theoriekurve. Diese ergibt sich wie rechts dargestellt aus der Faltung der angenommenen Kurve (dünne Linie) mit dem Reflexprofil des Monochromators. Die dicke Linie zeigt das Ergebnis dieser Faltung.*

Der Ansatz von C. Malgrange erklärt, weshalb die Reflektivitätsmaxima nur bei hohen Energien zu beobachten sind und am (111)-Reflex überhaupt nicht auftreten: Damit nach der Faltung mit dem Monochromatorprofil noch nennenswerte Beiträge der scharfen Maxima übrigbleiben, muß daß Plateau zwischen den Maxima sehr viel niedriger sein als 0.5. Dies ist besonders bei hohen Photonenenergien und hohen Reflexordnungen der Fall. Zusätzlich ist das Monochromatorprofil des (111)-Reflexes deutlich breiter als das des (333)-Reflexes, so daß die Auflösung der Messungen am (333)-Reflex besser ist.

Um einen abschließenden Vergleich zwischen Theoriekurve und experimentellen Ergebnissen ziehen zu können, muß die Auflösung der Daten jedoch entscheidend verbessert werden. Bei den bisherigen Messungen war die Punktdichte so gering, daß nie mehr als ein Punkt im Bereich eines Reflektivitätsmaximums lag. Deshalb werden in einer zukünftigen Meßreihe die Reflexprofile der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle mit deutlich erhöhter Punktdichte gemessen, um zuverlässige Aussagen über Form und Höhe dieser Maxima treffen zu können.

4.4.2. Zusammenfassung

Die $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle werden vollständig durch die erweiterte PPK-Theorie beschreiben, wenn im Fall starker Verzerrung die Erzeugung neuer Wellenfelder berücksichtigt wird: Die Vorhersage, daß die beobachtete Breite der Reflexprofile unabhängig von der Photonenenergie und der Reflexordnung ist, wird sehr gut bestätigt. Der aus den gemessenen Halbwertsbreiten berechnete Verzerrungsgradient $\tilde{\beta}$ zeigt die erwartete Abhängigkeit von Photonenenergie und Reflexordnung, außerdem werden die aus diesen $\tilde{\beta}$-Werten bestimmten Reflektivitäten sehr gut von den Meßwerten reproduziert. Auch die theoretischen Werte für die Krümmungsradien befinden sich in guter Übereinstimmung mit den Meßwerten.

4.5. Vergleich des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls mit anderen Kristallsystemen

Nachdem in Abschnitt 4.4 gezeigt werden konnte, daß sich $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle hervorragend durch die dynamische Theorie für stark verzerrte Kristalle beschreiben lassen, soll in diesem Abschnitt die Eignung dieser Kristalle als Monochromator- und Analysatorkristalle untersucht werden. Dafür wird in Teil 4.5.1 das Auflösungsvermögen eines Monochromator/Analysator-Paares von Gradientenkristallen mit entsprechenden Paaren von perfekten und getemperten Siliziumkristallen verglichen. Danach findet ein Vergleich mit zwei Kristallsystemen statt, die in ähnlicher Weise wie die $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle durch eine Variation der Halbwertsbreite eine Anpassung der Auflösung an die experimentellen Anforderungen erlauben. Dabei handelt es sich um gebogene Laue-Monochromatoren und um Si-$TaSi_2$-Kristalle. In dem letzten Teilabschnitt werden Messungen von ordnenden Ladungsstreifen in dem Hoch-T_c-Supraleitermaterial $La_{1.6-x}Nd_{0.4}Sr_xCuO_4$ vorgestellt, die von T. Niemöller jeweils einmal mit Si-$TaSi_2$-Kristallen und mit $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen durchgeführt wurden [NIF+99].

Um für diese Messungen ein Paar von $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen verwenden zu können, wurde parallel zu der in Abbildung 4.12 auf Seite 53 dargestellten Probe eine zweite Scheibe aus dem Rohling geschnitten. Diese besitzt bei sonst vergleichbaren Dimensionen eine Dicke von 5 mm anstelle von 7 mm. Die an dieser zweiten Probe gemessenen Reflektivitäten liegen etwa 10 % unter den Werten der ersten Probe. Dies erklärt sich durch einen Blick auf das Topogramm der Probe „SiGe 102“: Die hohen Reflektivitäten wurden in dem ungestörten Kernbereich gemessen. Die zweite Probe ist nicht aus dem zentralen Bereich des Rohlings geschnitten worden und weist somit einen deutlich kleineren Anteil des Kernbereiches auf.

4.5.1. $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall / Silizium-Mosaikkristall

In einer ersten Messung wurde das Auflösungsvermögen der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle mit Monochromator/Analysator-Paaren von perfekten (111)-Siliziumkristallen und von getemperten (111)-Silizium-Mosaikkristallen verglichen. Die getemperten Kristalle weisen bei einer Photonenenergie von 100 keV im Zweikristall-Aufbau eine Halbwertsbreite von 5.6 Winkelsekunden auf. Ein Mosaikkristall derselben Reihe wurde außerdem bei allen drei Messungen als Probe verwendet. Die $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle wurden mit einer Halbwertsbreite von 40 Winkelsekunden verwendet. Für einen am (111)-Reflex beugenden perfekten Siliziumkristall erhält man nach Formel 2.7 bei einer Photonenenergie von 100 keV eine dynamische Halbwertsbreite von $FWHM_{dyn} = 0.539$ Winkelsekunden. Dies entspricht nach Formel 2.10 bei einer Kombination von dreien dieser Kristalle einem Auflösungsvermögen von $FWHM_{Auflösung}$ =0.789 Winkelsekunden. Über die Beziehung 2.2 kann man daraus die Größe des Auflösungselementes im reziproken Raum bestimmen:

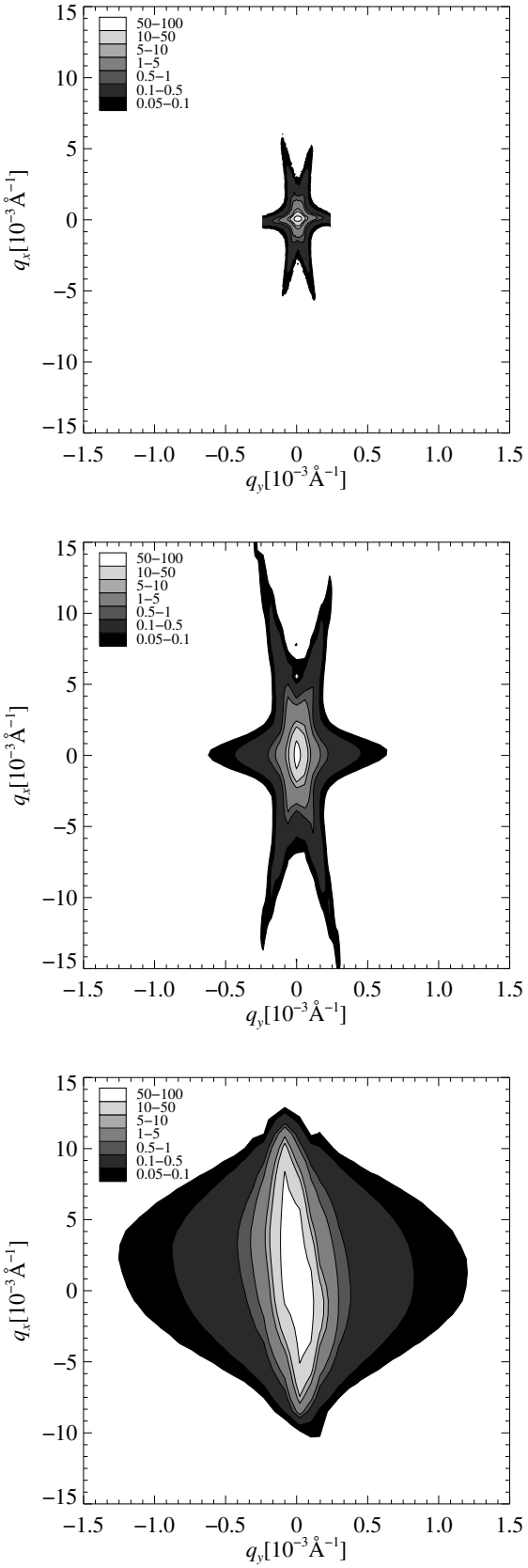


Abbildung 4.23.: *Auflösungsfunktionen für verschiedene Paare von Monochromator- und Analysatorkristallen zusammen mit einer imperfekten Siliziumprobe, die eine Halbwertsbreite von 5.6* Winkelsekunden *aufweist. Für die Bedeutung der einzelnen Ausläufer siehe Seite 11. Von oben nach unten sind die Ergebnisse der Messungen mit perfekten Siliziumkristallen, Silizium-Mosaikkristallen und $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen mit einer Reflexbreite von 40 Winkelsekunden dargestellt. Das Auflösungsvermögen entspricht der Ausdehnung der zentralen, weißen 50 %-Kontur. Die Ausdehnungen der Auflösungselemente in q_x- und q_y-Richtung für die einzelnen Messungen sind in der folgenden Tabelle aufgelistet:*

	$\Delta q_x[10^{-4}$ Å$^{-1}]$	$\Delta q_y[10^{-5}$ Å$^{-1}]$
Si	3.18	5.15
Si-Mosaik	17.40	6.03
$Si_{1-x}Ge_x$	109.09	22.50

Wie zu erwarten war, wird durch die deutlich breiteren Reflexprofile der Gradientenkristalle das Bild der $Si_{1-x}Ge_x$-Kristalle von den Ausläufern des Monochromators bzw. Analysators dominiert. Diese sind so stark ausgeprägt, daß sie im Bild nicht mehr zu trennen sind. Auffallend ist auch der steile Abfall in Richtung q_x, der auf die nahezu rechteckige Form der Reflexprofile der Gradientenkristalle zurückzuführen ist.

$$\Delta q_x = 1.94 \cdot 10^{-4}\,\text{Å}^{-1},$$
$$\Delta q_y = 7.66 \cdot 10^{-6}\,\text{Å}^{-1}. \tag{4.39}$$

Die Ergebnisse der Messungen sind in Abbildung 4.23 dargestellt. Im Vergleich zu den Messungen mit den Siliziumkristallen ist das Auflösungsbild der Gradientenkristalle wie zu erwarten sehr viel stärker von den Auflösungsausläufern von Monochromator bzw. Analysator dominiert. Ein wichtiges Merkmal des Konturbildes ist dabei der sehr steile Abfall in Richtung von q_x, der auf die nahezu rechteckförmigen Reflexprofile der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle zurückzuführen ist. Eine Gegenüberstellung der experimentellen Eigenschaften ist schwierig, da die getemperten Siliziumkristalle, wie in Kapitel 3 gezeigt wird, bei einer theoretisch erreichbaren Reflektivität von $R^{max} = 0.5$ nur Halbwertsbreiten in der Größenordnung von 10 Winkelsekunden erreichen. Dies verdeutlicht sich, wenn man für jedes Kristallsystem den Flächeninhalt eines ω_2-Scans aufsummiert. Die Integrale von $Si_{1-x}Ge_x$-, Mosaik- und perfekten Kristall zeigen das Verhältnis 1/0.16/0.02 zueinander, wobei auf den Wert der Gradientenkristalle normiert wurde. In den beiden folgenden Teilabschnitten folgt deshalb eine Gegenüberstellung mit direkter vergleichbaren Systemen, wobei zunächst auf gebogene Laue-Kristalle eingegangen wird.

4.5.2. $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall / gebogener Siliziumkristall

Gebogene Siliziumkristalle finden als Monochromatoren Anwendung bei Experimenten mit hochenergetischer Synchrotronstrahlung. Eine Übersicht zu diesem Thema mit zahlreichen Quell-Verweisen findet man in dem Artikel von P. Suortti *et al.* [SLS97]. Gebogene Kristalle werden durch die gleiche Theorie beschrieben wie $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle. In diesem Abschnitt werden für eine Photonenenergie von 100 keV die Eigenschaften eines gebogenen, in Laue-Geometrie am (111)-Reflex beugenden, perfekten Siliziumkristalls denen eines am gleichen Reflex beugenden Gradientenkristalls gegenübergestellt. Dabei kann im Fall des gebogenen Kristalls nicht auf experimentelle Daten zurückgegriffen werden, anstelle dessen werden Ergebnisse des Berechnungsprogrammes „PEPO“ von C. Schulze verwendet . Dieses Programm berechnet nach der Theorie von Penning und Polder [PP61] unter der Berücksichtigung der Erzeugung neuer Wellenfelder (s. Abschnitt 4.2.3, S. 49) die Reflexprofile gebogener Laue-Monochromatoren, die durch Testmessungen verifiziert wurden [SC95]. Die Ergebnisse dieser Berechnungen sind in Abbildung 4.24 und in Tabelle 4.3, oben, dargestellt. Die Tabelle enthält zusätzlich die in die Berechnungen eingegangenen Parameter wie die Kristalldicke, den Asymmetrie-Winkel χ und den Biegeradius. Im Vergleich dazu zeigen Abbildung 4.25 und Tabelle 4.3, unten, die Ergebnisse von Messungen an der Probe „SiGe 102“, die bereits auf Seite 59 ausführlich vorgestellt wurden. Die in der Tabelle angegebenen Krümmungsradien wurden der Abbildung 4.17 entnommen.

Die Abbildungen geben für die gebogenen Kristalle die laut [SC95] bereits absorptionskorrigierte Reflektivität $R^{\prime max}$ an, die für die Gradientenkristalle mit der in dieser Arbeit verwendete Reflektivität R^{max} zu vergleichen ist. Man erkennt, daß im Fall der gebogenen Kristalle aufgrund der anormalen Transmission nur sehr geringe Absorptionsverluste auftreten. Dieser Effekt konnte bei den Messungen an den $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen nicht beobachtet werden. Abgesehen davon fällt auf, daß beide Kristallsysteme über sehr ähnliche Charakteristika verfügen, wenn man das Verhältnis von Biegeradius zu Reflexbreite betrachtet.

Dicke [mm]	χ [Grad]	Biegeradius [m]	$R^{\prime max}$	$FWHM$ [Winkels.]	R^{int} [Winkels.]
7	20	100	0.96	13.7	13.2
7	20	60	0.93	22.9	21.2
7	20	40	0.87	34.4	29.7
7	20	25	0.74	54.9	40.4
Dicke [mm]		r [m]	R^{max}	$FWHM$ [Winkels.]	R^{int} [Winkels.]
7		98($\pm$5)	0.97	14.6	14.6
7		60($\pm$3)	0.96	22.8	21.1
7		37($\pm$2)	0.90	33.9	28.8
7		22($\pm$2)	0.74	70.3	48.9

Tabelle 4.3.: *Ergebnisse der „PEPO“-Berechnungen und der Messungen an „SiGe 102“.*

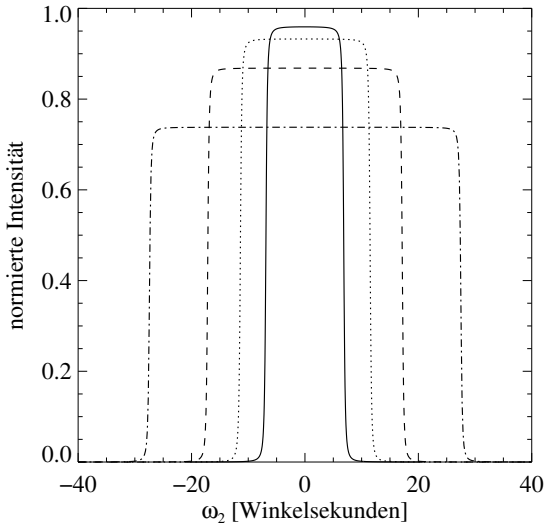


Abbildung 4.24.: *Mit dem Programm „*PEPO*“ berechnete Reflexprofile eines bei einer Photonenenergie von 100* keV *am (111)-Reflex beugenden gebogenen Laue-Monochromators. Die Kurven wurden für Krümmungsradien von 100* m *(durchgezogen), 60* m *(gepunktet), 40* m *(gestrichelt) und 25* m *(Strichpunkte) kalkuliert. Die übrigen Parameter sind in Tabelle 4.3 aufgeführt.*

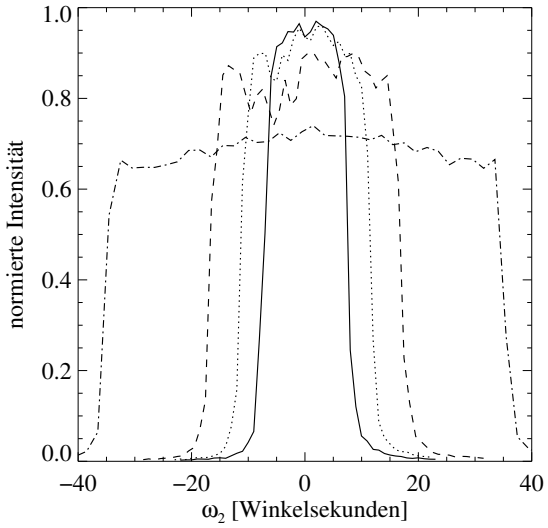


Abbildung 4.25.: *Bei einer Photonenenergie von 100* keV *gemessene Reflexprofile der am (111)-Reflex beugenden Probe „SiGe 102“. Die Kurven entsprechen Krümmungsradien von 98(±5)* m *(durchgezogen), 60(±3)* m *(gepunktet), 37(±2)* m *(gestrichelt) und 22(±2)* m *(Strichpunkte).*

Bei vergleichbaren Reflexionseigenschaften liegt der Vorteil der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle in der deutlich einfacheren Handhabung während des experimentellen Betriebes. Um dies zu veranschaulichen, ist in Abbildung 4.26 ein Ausschnitt eines Aufbaus von zwei Kristallbiegern abgebildet. Mit diesem Aufbau von zwei gebogenen Laue-Monochromatoren wurde an der Beamline BM5 der **E**uropean **S**ynchrotron **R**adiation **F**acility (ESRF) bei einer Photonenernergie von 70 keV ein Breitbandmonochromator getestet, der die effektive Quellgröße nicht verbreitert. Der Aufbau eines Kristallbiegers ist aufwendiger, anfälliger für Vibrationen und muß bei jeder Halterung eines anderen Kristalls neu kalibriert werden. Im Gegensatz dazu können bei einem einmal vermessenen $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall die Positionen mit dem gewünschten Krümmungsradius der Netzebenen sehr reproduzierbar angefahren werden und es gibt keinerlei Probleme mit der Langzeitstabilität des Aufbaus. Speziell für Synchrotron-Experimente mit vielen externen Nutzern ist diese einfache Bedienbarkeit von Vorteil.

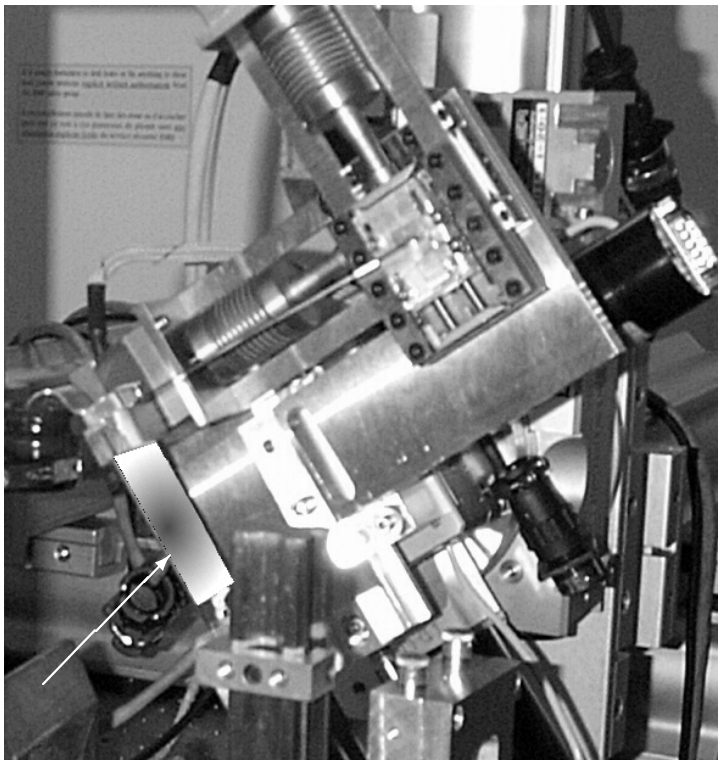


Abbildung 4.26.: *Testaufbau eines Kristallbiegers: Mit einem Aufbau von zwei dieser gebogenen Laue-Monochromatoren wurde an der Beamline BM5 der ESRF bei einer Photonenenergie von 70 keV ein Breitbandmonochromator getestet, der die effektive Quellgröße nicht verbreitert. Der Pfeil zeigt auf den gehalterten Monochromatorkristall. Dieses Experiment wurde Ende September 1998 von U. Lienert unter Mitwirkung von C. Schulze, E. Lauridsen und S. Keitel durchgeführt.*

4.5.3. $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall / Si-$TaSi_2$-Kristall

Seit 1995 finden Si-$TaSi_2$-Kristalle an der Beamline BW5 Verwendung als Monochromator- und Analysatorkristall, wenn ein hoher Primärfluß bei mittlerer Auflösung benötigt wird. Bei diesen Kristallen handelt es sich um in [111]-Richtung gezogene Siliziumeinkristalle, in deren Matrix in Zuchtrichtung zeigende $TaSi_2$-Metallstäbe eingebunden sind. Diese erreichen typischerweise eine Dichte von etwa $1.6 \cdot 10^6$ Stäben pro cm^2. Die $TaSi_2$-Stäbe verzerren die umgebende Matrix, was zu deutlich verbreiterten Reflexprofilen führt. Eine ausführliche Charakterisierung der Kristalle findet man in [NSS+96]. Bei späteren Messungen wurde herausgefunden, daß die Breite des Reflexprofils von dem Einfallswinkel der Strahlung abhängig ist [SN98]. Dreht man den Kristall um die Achse des reziproken Gittervektors, an dem gebeugt wird, dann nimmt mit zunehmender effektiver Dicke die Breite der Reflexprofile zu. Gleichzeitig verstärken sich durch die größer werdende Dicke die Absorptionsverluste. In Abbildung 4.27 werden die integralen Reflektivitäten von Si-$TaSi_2$-Kristallen (Dreiecke) denen von $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen (Rauten) in Abhängigkeit von der Halbwertsbreite gegenübergestellt. Die offenen Symbole geben die integralen Reflektivitäten ohne Berücksichtigung von Absorptionseffekten an, während die gefüllten Symbole die korrigierten Werte darstellen. Man erkennt, daß die Si-$TaSi_2$-Kristalle größere Halbwertsbreiten aufweisen, wobei die integrale Reflektivität durch die hohe Absorption deutlich geringer als bei den Gradientenkristallen ausfällt.

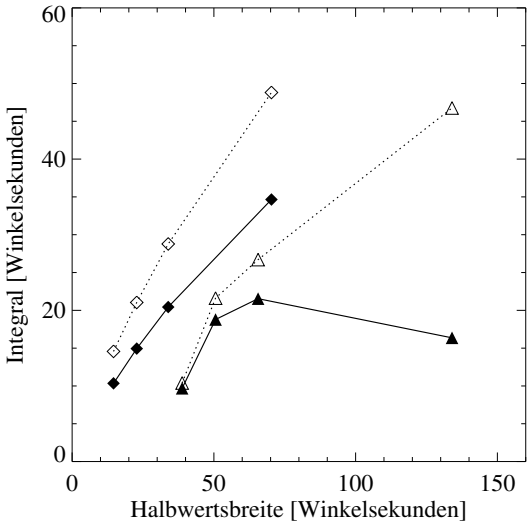


Abbildung 4.27.: *Vergleich zwischen den integralen Reflektivitäten der Si-$TaSi_2$-Kristalle (Dreiecke) und der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle (Rauten) in Abhängigkeit von der Halbwertsbreite. Die offenen Symbole geben die integralen Reflektivitäten ohne Berücksichtigung von Absorptionseffekten an, während die gefüllten Symbole die korrigierten Werte darstellen.*

Ein weiterer Unterschied fällt besonders dann ins Auge, wenn man die Reflexprofile der Kristalle wie in Abbildung 4.28 logarithmisch aufträgt: Im Gegensatz zu den Gradientenkristallen mit ihrer nahezu rechteckigen Reflexform sind die Kurven der Si-$TaSi_2$-Kristalle eher lorentzförmig, was zu sehr viel weiterreichenden Ausläufern führt. Dies ist besonders dann nachteilig, wenn in der Nähe des Hauptreflexes sehr viel schwächere Überstrukturreflexe untersucht werden sollen. Außerdem kann man dem Bild entnehmen, daß die Kombination zweier Gradientenkristalle im Vergleich zu dem Si-$TaSi_2$-Paar zu einer um mehr als eine Größenordnung höheren Primärintensität führt. Dies ist besonders bei Messungen sehr schwacher Überstrukturreflexe von Vorteil, weil sich dadurch die Meßzeiten pro Datenpunkt signifikant verkürzen lassen. Dies wird in dem folgenden Abschnitt am Beispiel eines Hoch-T_c-Supraleiters gezeigt.

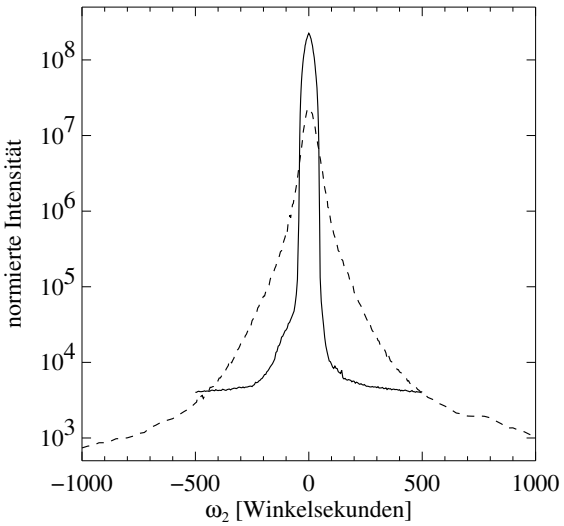


Abbildung 4.28.: *Vergleich zwischen Si-$TaSi_2$- und $Si_{1-x}Ge_x$-Kristallen. Die beiden Kurven stellen Messungen im nichtdispersiven Zweikristall-Aufbau am (111)-Reflex bei einer Photonenenergie von 100* keV *dar. Die Daten der durchgezogene Linie wurde unter Verwendung der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle als Monochromator und Probe gemessen, während die gestrichelte Linie die Daten des Si-$TaSi_2$-Kristallpaares zeigt.*

4.5.4. Ordnende Ladungsstreifen in $La_{1.6-x}Nd_{0.4}Sr_xCuO_4$

Im Rahmen von Messungen am Hoch-T_c-Supraleitermaterial $La_{1.48}Nd_{0.4}Sr_{0.12}CuO_4$ wurde die Ladungsstreifen-Ordnung untersucht [ZVN98]. Dabei werden die Temperaturabhängigkeiten extrem schwacher Überstrukturreflexe beobachtet, so daß man auf möglichst hohe Primärintensitäten angewiesen ist, um die Zählzeiten pro Datenpunkt und damit die Dauer der Messung in einem erträglichen Maß zu halten.

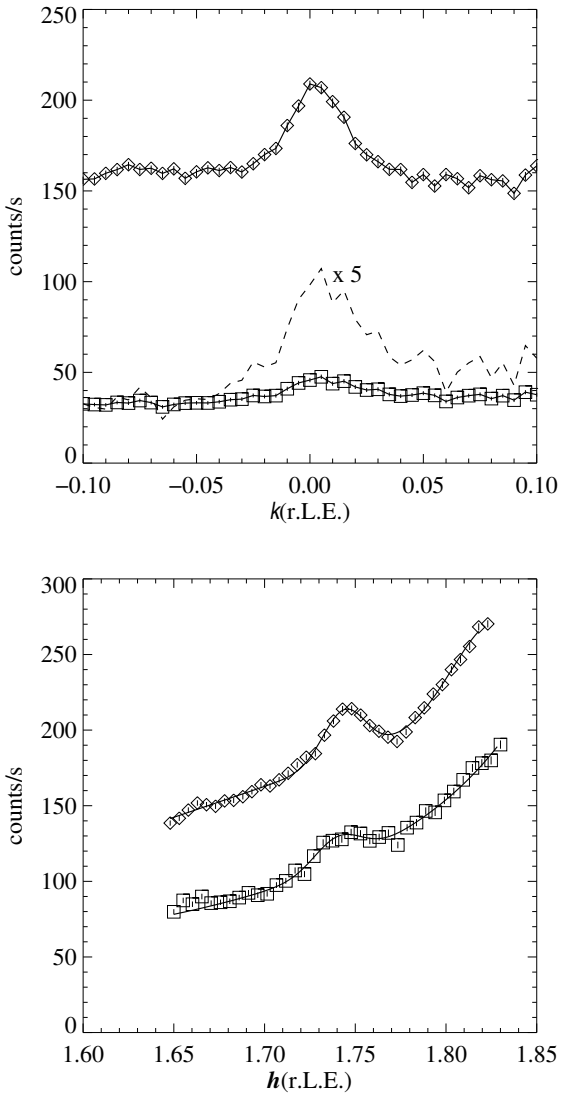


Abbildung 4.29.: *oben: Zwei äquivalente k-Scans an $La_{1.48}Nd_{0.4}Sr_{0.12}CuO_4$ [NIF+99]. Sie zeigen die auf Ladungsstreifenordnung zurückzuführenden Überstrukturreflexe (2-2ε 0 -2.5) (oben) und (2-2ε 0 -0.5) (unten). Die Daten der oberen Linie wurden mit $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen als Monochromator- und Analysatorkristall aufgenommen, die Messung der als Quadrate dargestellten Datenreihe erfolgte mit Si-$TaSi_2$-Kristallen. Eine fünffache Überhöhung dieser Daten ergibt die gestrichelte Linie.*
unten: Zwei h-Scans an $La_{1.45}Nd_{0.4}Sr_{0.15}CuO_4$ [NIF+99]. Sie zeigen den auf Ladungsstreifenordnung zurückzuführenden Überstrukturreflex (2-2ε 0 0.5). Die Daten der oberen Linie wurden mit $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen als Monochromator- und Analysatorkristall aufgenommen, die Messung der als Quadrate dargestellten Datenreihe erfolgte mit Si-$TaSi_2$-Kristallen.

Da die Kristallqualität der Hoch-T_c-Supraleiter nicht die von perfekten Silizium-Einkristallen erreicht, kann auf eine hohe Auflösung verzichtet werden. Aus diesen Gründen wurden in der Vergangenheit Si-$TaSi_2$-Kristalle als Monochromator und Analysator eingesetzt. Kürzlich wurden dann erstmals $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle eingesetzt [NIF+99], so daß ein direkter Vergleich zwischen den experimentellen Anwendungen beider Systeme möglich wurde. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abbildung 4.29 dargestellt. Die obere Graphik zeigt zwei äquivalente *k*-Scans. Die mit den $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen gemessene Intensität liegt um einen Faktor 4.5 höher als bei den mit den Si-$TaSi_2$-Kristallen erzielten Ergebnissen. Dabei ändert sich jedoch das Verhältnis Peak/Untergrund nicht. Außer einem Anstieg der Intensität wurde gleichzeitig noch eine Verbesserung der Auflösung um 13% beobachtet. Bei Scans parallel zum reziproken Gittervektor sank mit der Verwendung der $Si_{1-x}Ge_x$-Kristalle die Halbwertsbreite des (200)-Reflexes von 85.3 Winkelsekunden auf 74.2 Winkelsekunden. Die untere Graphik zeigt zwei *h*-Scans. Hier sind die Intensitäten jedoch nicht direkt vergleichbar, da bei den Messungen mit den Gradientenkristallen der Strahlquerschnitt zur Erhöhung der räumlichen Auflösung halbiert worden war.

4.6. Zusammenfassung

In diesem Kapitel konnte gezeigt werden, daß $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle aufgrund ihres mit der Germaniumkonzentration ansteigenden Gitterparameters und eines kohärenten Wachstums des Kristallgitters über gleichförmig gekrümmte Netzebenen verfügen. Dadurch bilden sie einerseits ein Modellsystem für die dynamische Theorie verzerrter Kristalle und sind andererseits aufgrund der damit verbundenen Eigenschaften hervorragend für die Verwendung als Monochromator und Analysator in einem Beugungsexperiment mit hochenergetischer Synchrotronstrahlung geeignet. Die an der Beamline BW5 des HASYLAB erhaltenen Ergebnisse befinden sich in sehr guter Übereinstimmung mit den Vorhersagen der von Penning, Polder und Kato weiter entwickelten dynamischen Theorie, wenn man im Falle stark verzerrter Kristalle die Erzeugung neuer Wellenfelder berücksichtigt. Die aus den gemessenen Halbwertsbreiten berechneten Reflektivitäten werden in weiten Bereichen der untersuchten Wellenlängen und Reflexe experimentell bestätigt. Die $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle verfügen in dem für Beugungsexperimente mit hochenergetischer Synchrotronstrahlung besonders interessanten Photonenenergiebereich um 100 keV über Reflektivitäten zwischen 0.61 und 0.97 bei Halbwertsbreiten zwischen 70.3 und 14.6 Winkelsekunden. Damit eignen sich diese Kristalle besonders dann für die Verwendung als Monochromator- und Analysatorkristalle, wenn aufgrund von Proben mit vergleichsweise schlechter kristallographischer Qualität auf hohe Auflösung verzichtet werden kann. Unter diesen Bedingungen bieten die $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle im Vergleich mit anderen Monochromator/Analysator-Systemen wie Si-$TaSi_2$-Kristallen und gebogenen Laue-Monochromatoren höhere Primärintensitäten und Halbwertsbreiten bei einer sehr einfachen Handhabung im experimentellen Betrieb.

5 Zusammenfassung

Thema dieser Arbeit war die Untersuchung zweier verschiedener Monochromator- und Analysatorsysteme, deren Verwendung bei Beugungsexperimenten mit hochenergetischer Synchrotronstrahlung durch eine Reduzierung der instrumentellen Auflösung zu einer Erhöhung der verfügbaren Primärintensität führen sollte. Bei den beiden Systemen handelte es sich um temperaturbehandelte Siliziumkristalle und um $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle.

Bei der Temperaturbehandlung von Czochralski-gezogenen Silizium-Einkristallen konnte gezeigt werden, daß es die Methode der in-situ-Beobachtung von Bragg-Reflex und diffuser Defektstreuung erlaubt, gezielt Monochromatorkristalle mit einer gewünschten Halbwertsbreite herzustellen. Die Möglichkeit der in-situ-Messungen ist dabei deshalb so wichtig, weil das Verhalten von Siliziumkristallen während einer Temperaturbehandlung nur sehr schwierig genau vorherzusagen ist. Dies liegt an der komplexen Abhängigkeit des Präzipitationsverhaltens des Sauerstoffs von einer Reihe, teilweise bei der Temperung der Kristalle unbekannter Parameter wie Ausgangs-Sauerstoffkonzentration, thermische Geschichte und Dotierung des Kristalls. Die Empfindlichkeit auf kleinste Variationen dieser Parameter zeigte eine parallele Messung an zwei Proben von unterschiedlichen Enden eines 30 cm langen Einkristalls. Obwohl beide Proben aus demselben Kristall stammen und derselben Temperaturbehandlung unterworfen wurden, differierten die Halbwertsbreiten aufgrund der geringfügigen Variation der Sauerstoffkonzentration um 15 %. Neben diesen Unwägbarkeiten ist eine in-situ-Kontrolle des Reflexes auch wegen der, in dieser Arbeit erstmals systematisch beobachteten, zeitlichen Entwicklung des Reflexprofils wichtig. Dieses durchläuft ein Stadium, in dem der Bragg-Reflex eine für die Verwendung als Monochromator ungeeignete, durch eine Exponentialfunktion beschreibbare Kurvenform annimmt. Die Form wurde bis zu einer Halbwertsbreite beobachtet, die etwa dem 10fachen der im dispersionsfreien Zweikristall-Aufbau gemessenen Breite eines perfekten Kristalls entspricht. Nach Durchlaufen dieses Stadiums kann die Halbwertsbreite auf die 10 bis 15fache Breite des perfekten Ausgangskristalls eingestellt werden. Um Silizium-Mosaikristalle mit einer möglichst großen Breite des Reflexprofils zu erzeugen, wurde eine optimierte Zweistufen-Temperaturrampe von 7 h bei 750° C und 36 h bei 1050° C vorgeschlagen.

In einem Einschub wurde auf die Bedeutung der in-situ-Meßergebnisse für die Halbleiterindustrie hingewiesen. Bei der oben beschriebenen Herstellung von Mosaikkristallen war während der Temperaturbehandlung ein paralleler Verlauf von diffuser Defektstreuung auf der einen Seite und integraler Intensität des Bragg-Reflexes auf der anderen Seite beobachtet wor-

den. Da die Defektstreuung direkt von der Bildung der Sauerstoffpräzipitate und damit von dem Anteil des präzipitierten Sauerstoffs ΔO_i abhängt, ist dies ein Hinweis auf einen Zusammenhang zwischen ΔO_i und integraler Intensität des Bragg-Reflexes. Diese Beobachtung unterstützt einen Ansatz von Takeno *et al.* [TMU+95], die in einem einfachen Experiment über die Messung des integralen Reflexionsvermögens eines Kristalls ΔO_i bestimmt haben. Für die Halbleiterindustrie ist der einfache Zugang zu dieser Größe deshalb so wichtig, weil bei neueren, hochdotierten Silizium-Materialien aufgrund der hohen Dichte von freien Ladungsträgern die konventionelle Methode der Fourier-Infrarot-Spektroskopie nicht mehr anwendbar ist. Im Auftrag der Firma Wacker Siltronic AG durchgeführte Testmessungen ergaben keinen abschließenden Beweis für die Richtigkeit dieses Ansatzes. Da dies jedoch hauptsächlich auf die geringe Zahl der untersuchten Proben zurückzuführen ist, sollen weitere Messungen mit deutlich höherer Probenanzahl vorgenommen werden.

Getemperte Siliziumkristalle sind auf einfache Weise herzustellen und robust in der experimentellen Handhabung als Monochromator und Analysator, decken jedoch nur ein relativ schmales Band von Reflexbreiten ab. Bei einer für Experimente mit hochenergetischen Synchrotronstrahlung typischen Photonenenergie von 100 keV lassen sich Halbwertsbreiten von etwa 12 Winkelsekunden erreichen. Im Vergleich dazu sollen an Hoch-T_c-Supraleitermaterialien Reflexe mit Halbwertsbreiten von bis zu 100 Winkelsekunden untersucht werden. Die Silizium- Mosaikkristalle steigern im Vergleich zu perfekten Siliziumkristallen die verfügbare Primärintensität, erreichen aber das erklärte Ziel einer an die experimentellen Gegebenheiten angepaßten Auflösung nicht wirklich.

Im Gegensatz dazu bieten $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle bei einer ähnlich einfachen Handhabung eine einstellbare Halbwertsbreite zwischen 14.6 und 70.3 Winkelsekunden in Verbindung mit einer Reflektivität zwischen 0.61 und 0.97. Diese hohen Reflektivitäten sind deshalb so bemerkenswert, weil an den $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen in Laue-Geometrie gebeugt wird. Normale Siliziumkristalle sind in dieser Geometrie, der dynamischen Theorie folgend, auf eine Reflektivität von 0.5 beschränkt. In Messungen konnte gezeigt werden, daß die Germaniumkonzentration in Wachstumsrichtung einem durch die Scheil-Pfann-Relation vorgegebenen Verlauf folgt. Der zunehmende Anteil von Germanium führt zu einer Vergrößerung des Gitterparameters, aus der wiederum eine homogene, mit zunehmendem Germaniumanteil stärker werdende Krümmung der Netzebenen resultiert.

Durch ihre homogene Krümmung der Netzebenen sind die $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle ein Modellsystem für eine erweiterte dynamische Theorie zur Beschreibung von verzerrten Kristallen. Aus den an der Probe „SiGe 102“ gemessenen Halbwertsbreiten konnte der Verzerrungsgradient des Kristalls bestimmt werden. Die aus diesen Daten berechneten Werte für die Krümmungsradien der Netzebenen und die Reflektivitäten befinden sich in hervorragender Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Größen. Der einzige noch nicht vollständig verstandene Aspekt ist das Auftreten scharfer Intensitätsmaxima an den Rändern der Reflexkurve. Hier sind in Zukunft weitere Messungen nötig, um einen vorhandenen Erklärungsansatz untermauern zu können.

Den Abschluß der Arbeit bildete ein Vergleich der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle mit anderen Monochromator/Analysator-Systemen. Dabei konnte gezeigt werden, daß die Gradientenkristalle gegenüber Si-$TaSi_2$-Kristallen oder gebogenen Laue-Monochromatoren eine erhöhte Primärintensität auf der Probe bieten.

$Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle sind also einerseits ein interessantes Modellsystem für die dynamische Theorie, andererseits eignen sie sich aufgrund der damit verbundenen Eigenschaften, wie eine über einen weiten Bereich durchstimmbare Halbwertsbreite und hohe Reflektivität, hervorragend als Monochromator- und Analysatorkristalle für Beugungsexperimente mit hochenergetischer Synchrotronstrahlung.

Die verschiedenen $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle

A

Während in Kapitel 4 nur auf die Messungen an einer Probe des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls „SiGe 102“ eingegangen wurde, sollen an dieser Stelle die Ergebnisse aller untersuchten Proben kurz präsentiert werden. Die kristallographische Qualität der Proben schwankt aufgrund des schwierigen Zuchtprozesses stark, wobei jedoch keine andere Probe die Güte der bereits vorgestellten Probe „SiGe 102“ erreicht. Die folgenden Seiten dieses Kapitels folgen alle einer bestimmten Systematik: In einer Graphik werden zuerst die Ergebnisse der an der Beamline BW5 durchgeführten Messungen gezeigt. Alle Proben wiesen eine ähnliche Geometrie wie in Abbildung 4.12 auf Seite 53 dargestellt auf, wobei die kristallographischen Orientierungen je nach Zuchtrichtung der Probe abweichen. Die Abbildungen der jeweils folgenden Seiten sind Reproduktionen von Topogrammen, die mit Lang-Transmissionstopographie am Institut für Kristallzüchtung in Berlin durchgeführt wurden [AAR97]. Das große Photo zeigt einen Längsschnitt parallel zu der untersuchten Probe, wobei der obere Teil des Bildes dem Beginn des Zuchtprozesses entspricht. Am unteren Rand des Topogrammes sind häufig hohe Dichten von Versetzungen zu erkennen, die durch den thermischen Schock beim Herausziehen des fertigen Kristalls aus der Restschmelze entstanden sind. Die kleineren Topogramme zeigen Aufnahmen von Querschnitten zu Beginn (links) und am Ende (rechts) des Kristalls. Die Kommentare zu den Bildern lehnen sich an zusätzliche Informationen an, die N. V. Abrosimov diesen Aufnahmen freundlicherweise beigefügt hat.

A.1. „SiGe 102“, Zuchtrichtung [111], $C_{Ge,0}$=5%

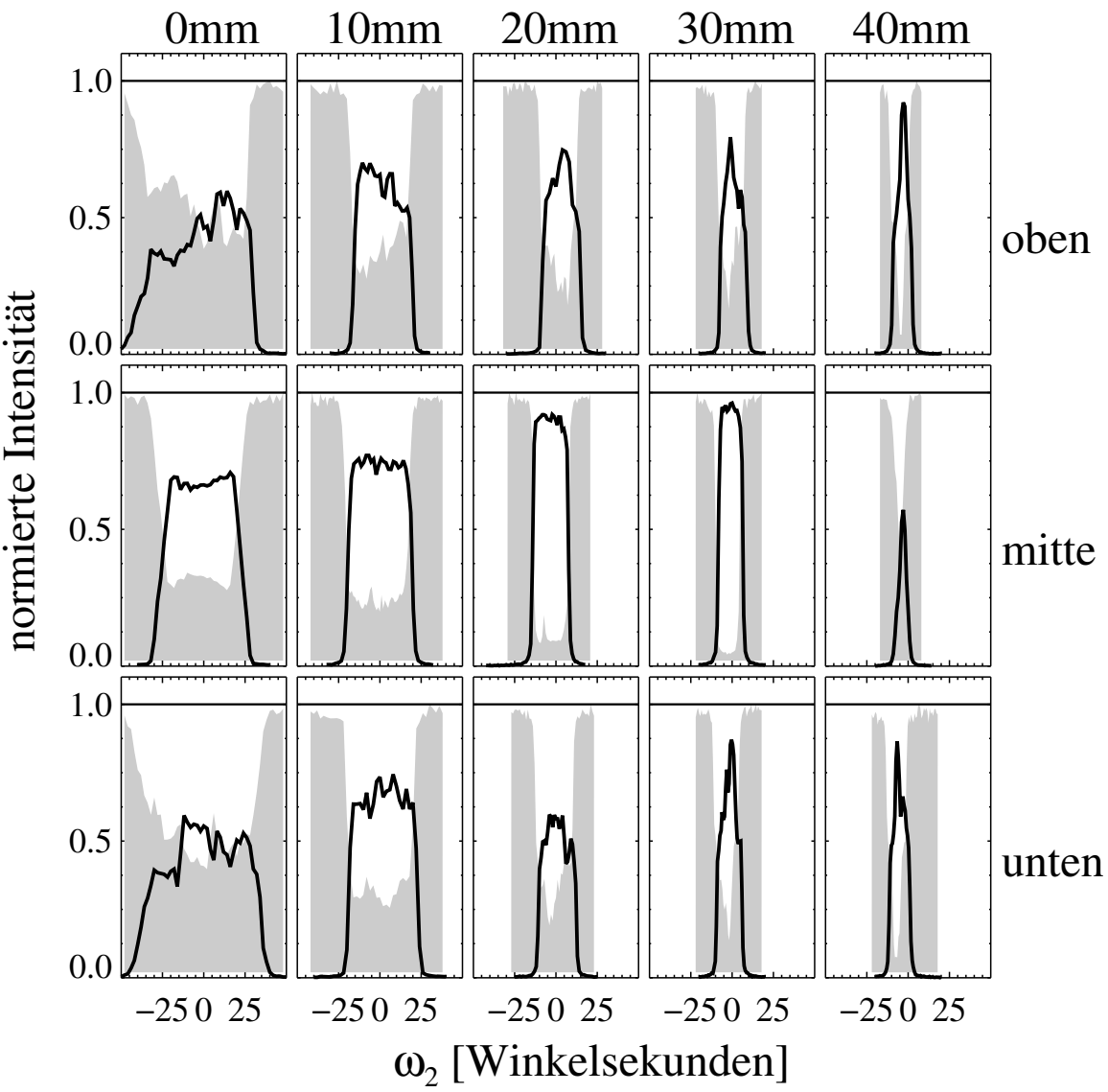


Abbildung A.1.: *Untersuchter Reflex: (111), Photonenenergie: 120* keV

Dieser Kristall weist einen in dem Längsschnitt klar erkennbaren ausgeprägten Kernbereich auf. Die Messungen zeigen, daß der Kristall in diesem Bereich homogen gebogen ist und hohe Reflektivitäten besitzt. Außerhalb des Kernbereiches sinkt die Reflektivität deutlich ab und die Form der Reflexkurven ist nicht mehr so rechteckförmig. Zusätzlich ist in dem Längsschnitt noch zu beobachten, daß der Kristall bis auf die Randbereiche nur wenige Versetzungen aufweist.

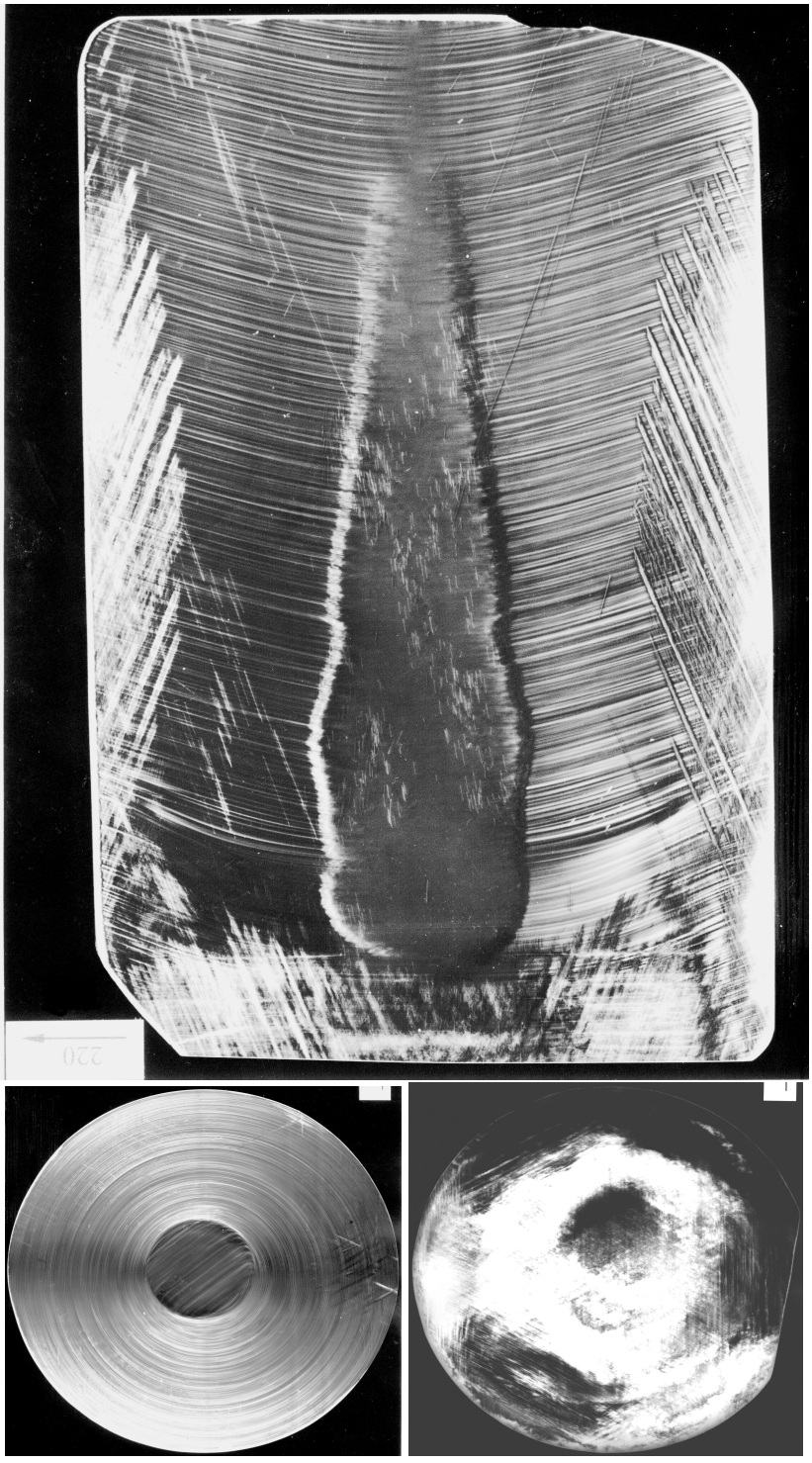


Abbildung A.2.: *Topogramme der Probe „SiGe 102“*

111		0mm	10mm	20mm	30mm
200 keV	$FWHM$	70.5	33.8	21.2	14.2
	$R^{max}_{exp.}$	0.30	0.50	0.65	0.77
	$R^{max}_{calc.}$	0.28	0.48	0.64	0.78
160 keV	$FWHM$	70.4	32.9	21.4	14.5
	$R^{max}_{exp.}$	0.42	0.62	0.80	0.88
	$R^{max}_{calc.}$	0.40	0.64	0.80	0.90
120 keV	$FWHM$	70.2	32.7	22.4	15.2
	$R^{max}_{exp.}$	0.61	0.81	0.93	0.97
	$R^{max}_{calc.}$	0.59	0.835	0.94	0.98
100 keV	$FWHM$	70.3	33.9	22.8	14.6
	$R^{max}_{exp.}$	0.74	0.90	0.96	0.97
	$R^{max}_{calc.}$	0.73	0.93	0.98	0.997
333		0mm	10mm	20mm	30mm
200 keV	$FWHM$	70.9	34.5	19.6	14.4
	$R^{max}_{exp.}$	0.05	0.08	0.12	0.16
	$R^{max}_{calc.}$	0.03	0.06	0.10	0.14
160 keV	$FWHM$	70.7	34.7	20.8	13.9
	$R^{max}_{exp.}$	0.06	0.11	0.17	0.22
	$R^{max}_{calc.}$	0.05	0.10	0.15	0.21
120 keV	$FWHM$	71.0	35.2	21.5	14.8
	$R^{max}_{exp.}$	0.11	0.17	0.26	0.31
	$R^{max}_{calc.}$	0.09	0.17	0.25	0.34
100 keV	$FWHM$	72.8	35.6	21.7	15.2
	$R^{max}_{exp.}$	0.13	0.24	0.32	0.40
	$R^{max}_{calc.}$	0.12	0.23	0.34	0.45
<$FWHM$>		70.86($\pm$0.83)	34.16($\pm$1.03)	21.43($\pm$0.98)	14.60($\pm$0.46)

Tabelle A.1.: *Ergebnisse der Messungen an dem Gradientenkristall 102: Aufgelistet sind die Halbwertsbreite FWHM, die gemessene Reflektivität $R^{max}_{exp.}$ und die berechnete Reflektivität $R^{max}_{calc.}$ für die verschiedenen Messungen, die in Abbildung 4.19 auf Seite 62 dargestellt sind. Die letzte Zeile gibt den Mittelwert mit der Standardabweichung der Halbwertsbreite an.*

A.2. „SiGe 103“, Zuchtrichtung [100], $C_{Ge,0}$=5%

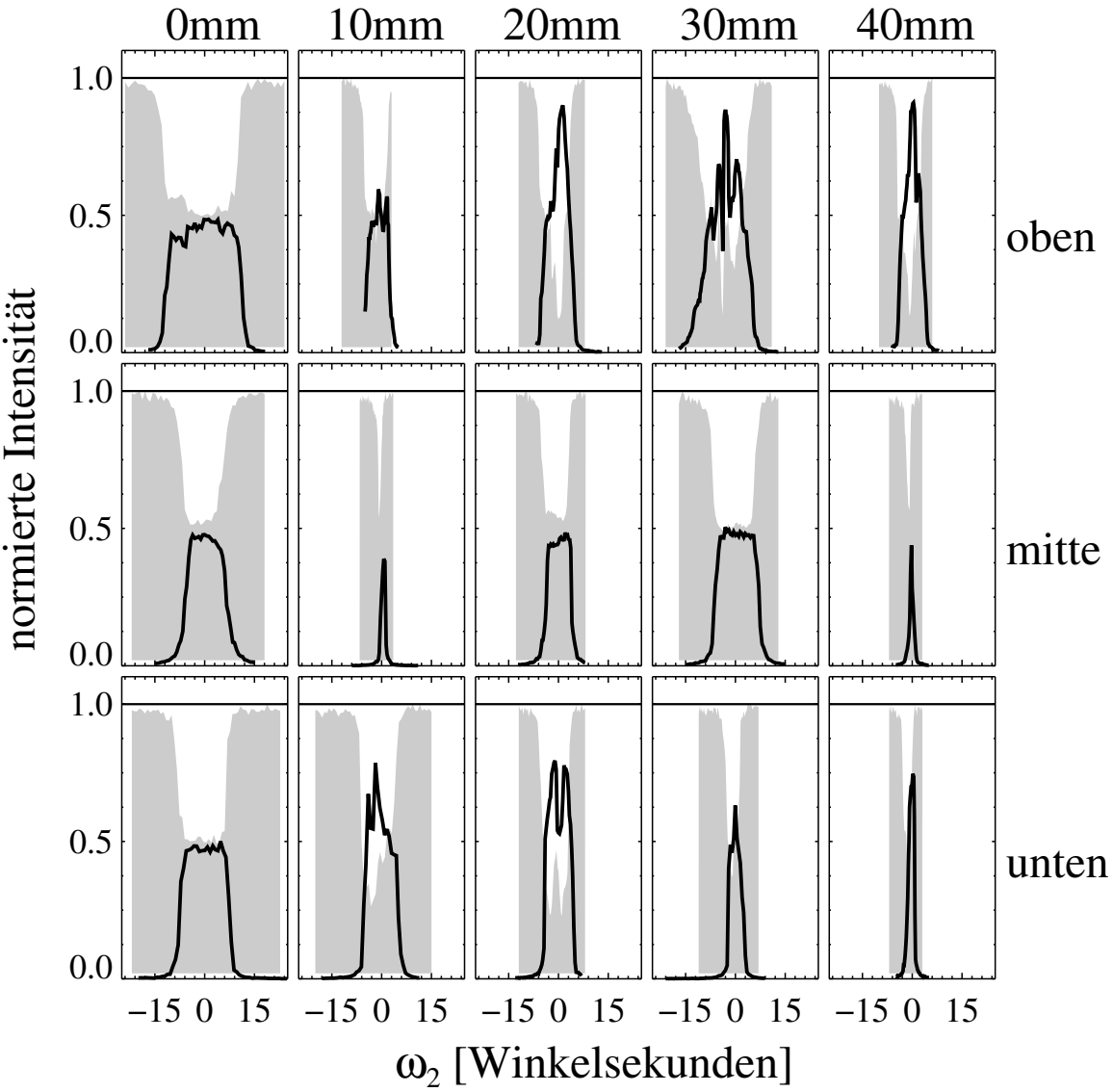


Abbildung A.3.: *Untersuchter Reflex: (220), Photonenenergie: 120* keV

Im Gegensatz zu Probe „SiGe 102“ besitzt dieser Kristall keinen Kernbereich. Die relativ hohe Dichte an Versetzungsschleifen scheint eine homogene Krümmung der Netzebenen zu verhindern, so daß die Meßergebnisse keine klare Systematik aufweisen. Es gibt zwar Bereiche mit erhöhter Reflektivität, diese stimmen jedoch nicht mit den Positionen überein, an denen rechteckige Reflexprofile zu beobachten sind.

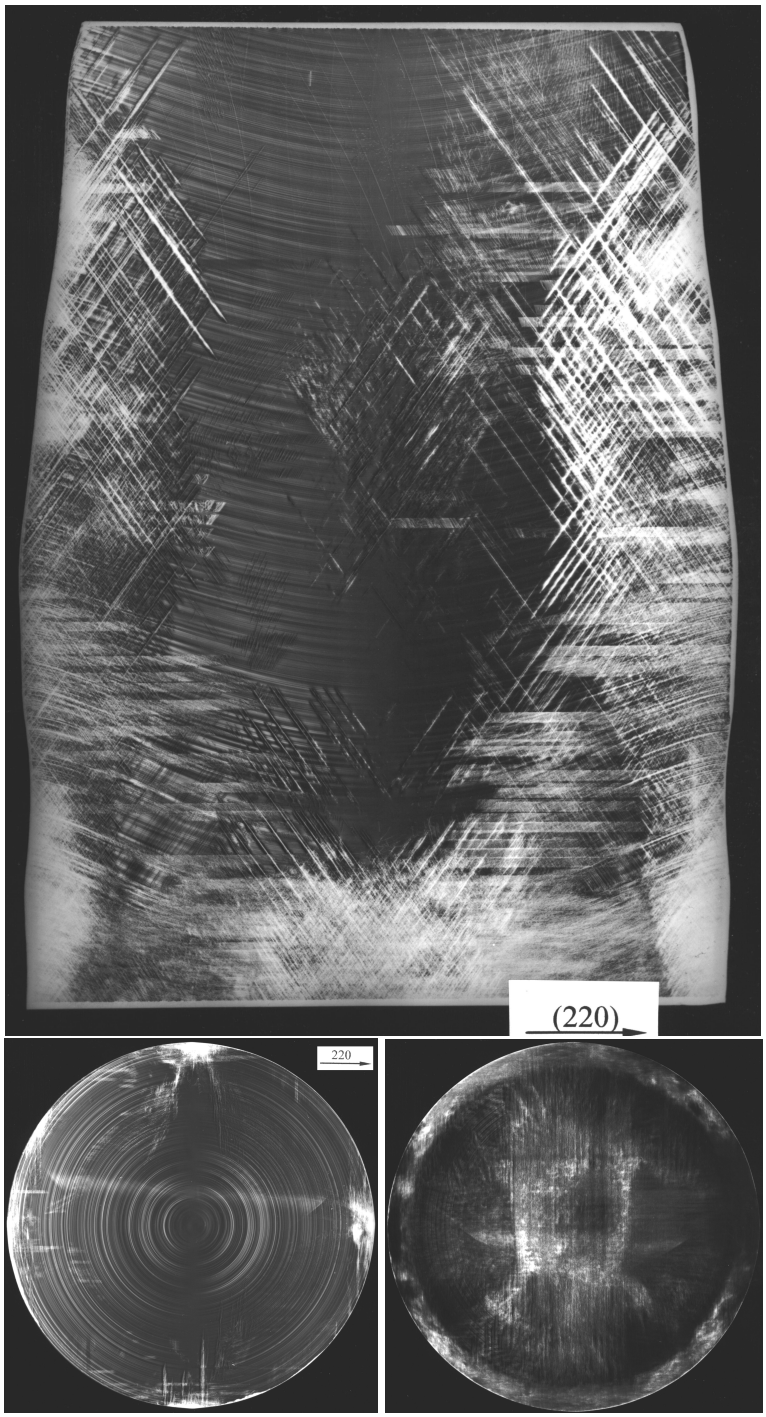


Abbildung A.4.: *Topogramme der Probe „SiGe 103“*

A.3. „SiGe 104“, Zuchtrichtung [110], $C_{Ge,0}$=5%

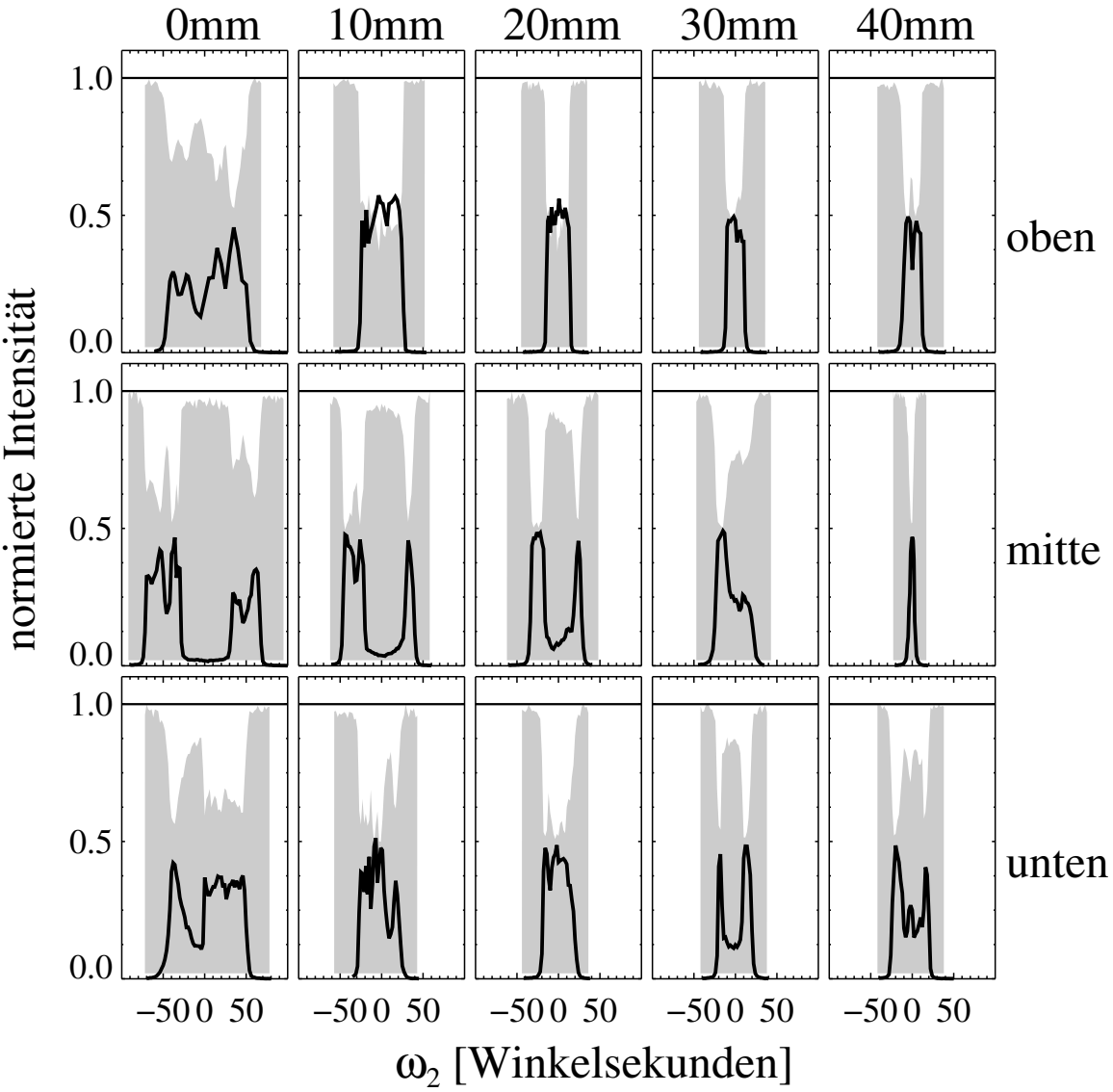


Abbildung A.5.: *Untersuchter Reflex: (220), Photonenenergie: 120* keV

Kristall „SiGe 104“ besteht aus mehr als einem Kristallit, was sich in der vielfach aufgespaltenen Form der Reflexkurven manifestiert. Insgesamt verhindert die schlechte Kristallqualität jede homogenen Krümmung des Kristalls, so daß dieser eher wie ein Mosaikkristall mit einer maximal erreichbaren Reflektivität von 0.5 erscheint.

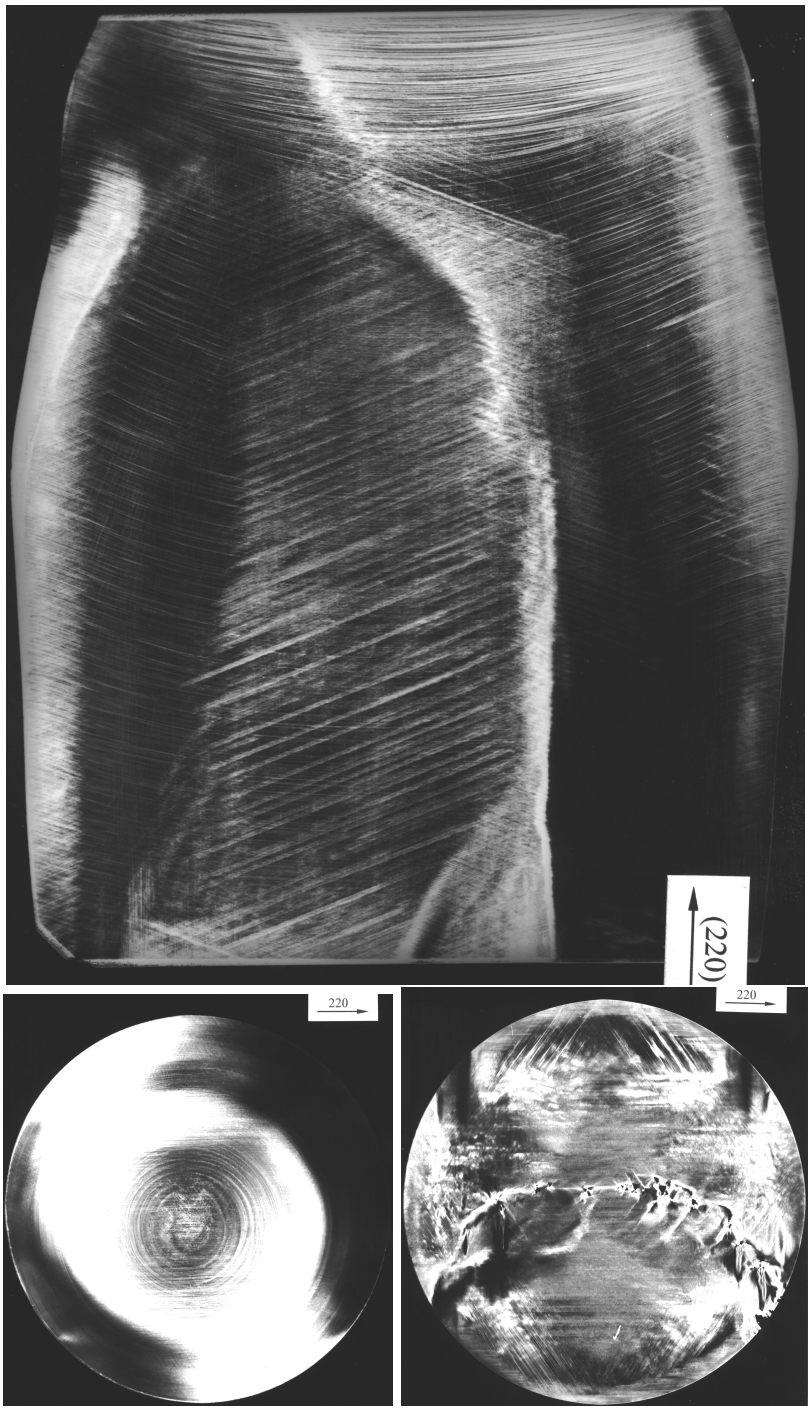


Abbildung A.6.: *Topogramme der Probe „SiGe 104“*

A.4. „SiGe 105“, Zuchtrichtung [110], $C_{Ge,0}$=3%

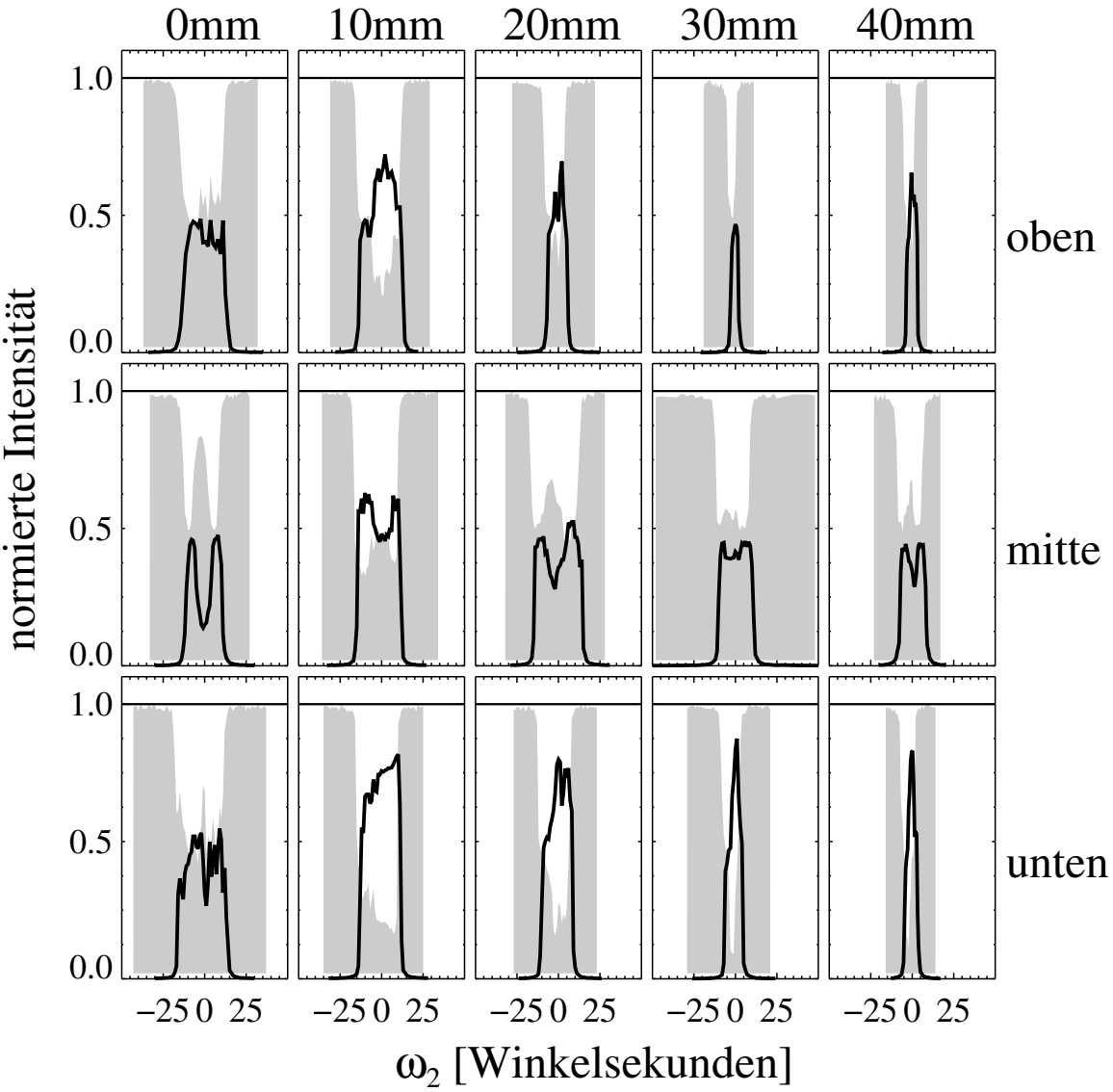


Abbildung A.7.: *Untersuchter Reflex: (220), Photonenenergie: 120* keV

Die im Vergleich zu den Randbereichen niedrigeren Reflektivitäten und die Aufspaltung der Reflexe in der zentralen Reihe lassen sich über die von dem Keimling aus in Richtung [110] durch den gesamten Kristall wachsenden Versetzungen erklären. Diese sind sehr schön in der Mitte der beiden Querschnitte zu erkennen. Insgesamt weist der Längsschnitt eine hohe Dichte an Versetzungen nach.

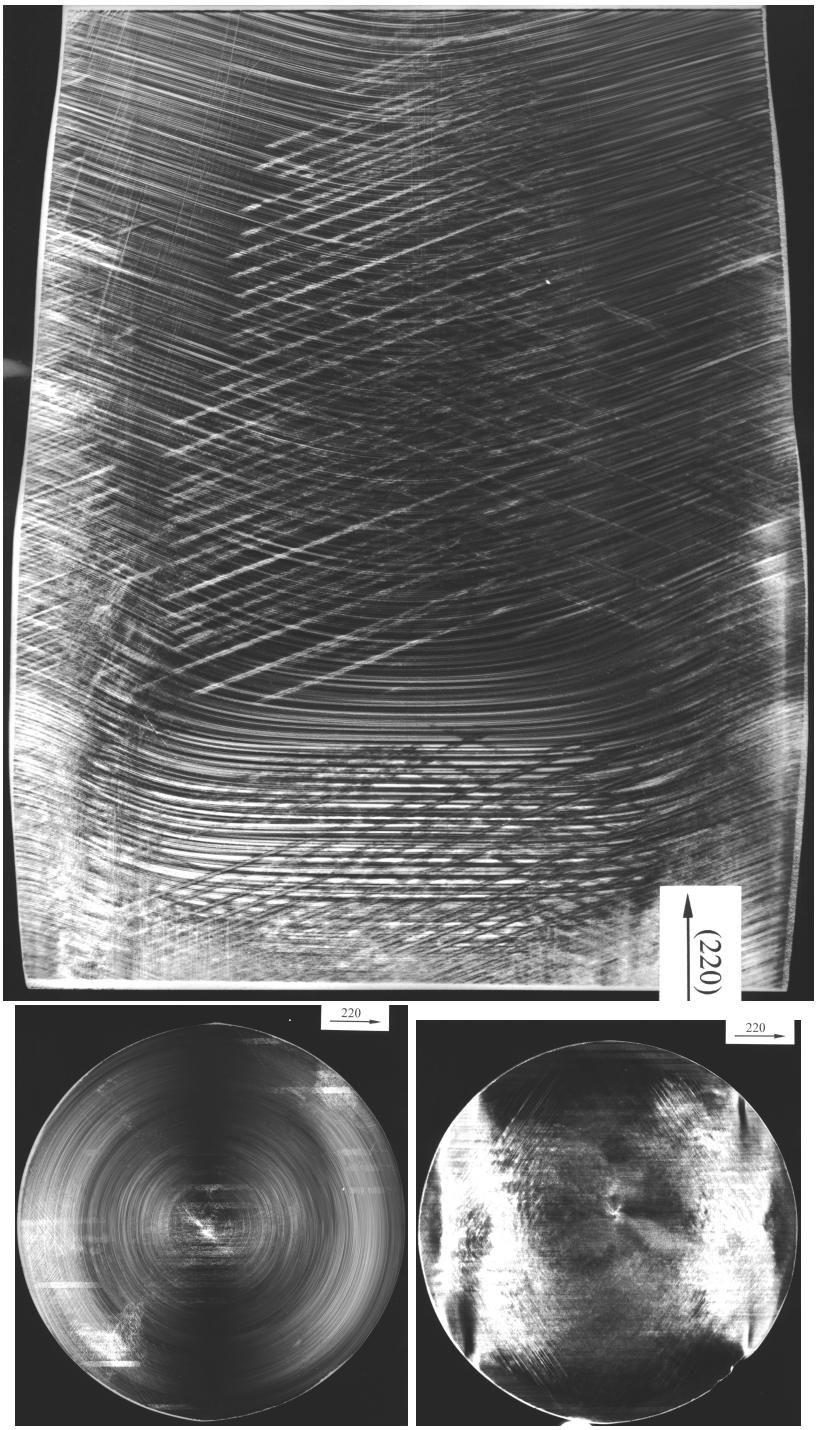


Abbildung A.8.: *Topogramme der Probe „SiGe 105“*

A.5. „SiGe 107“, Zuchtrichtung [100], $C_{Ge,0}$=7%

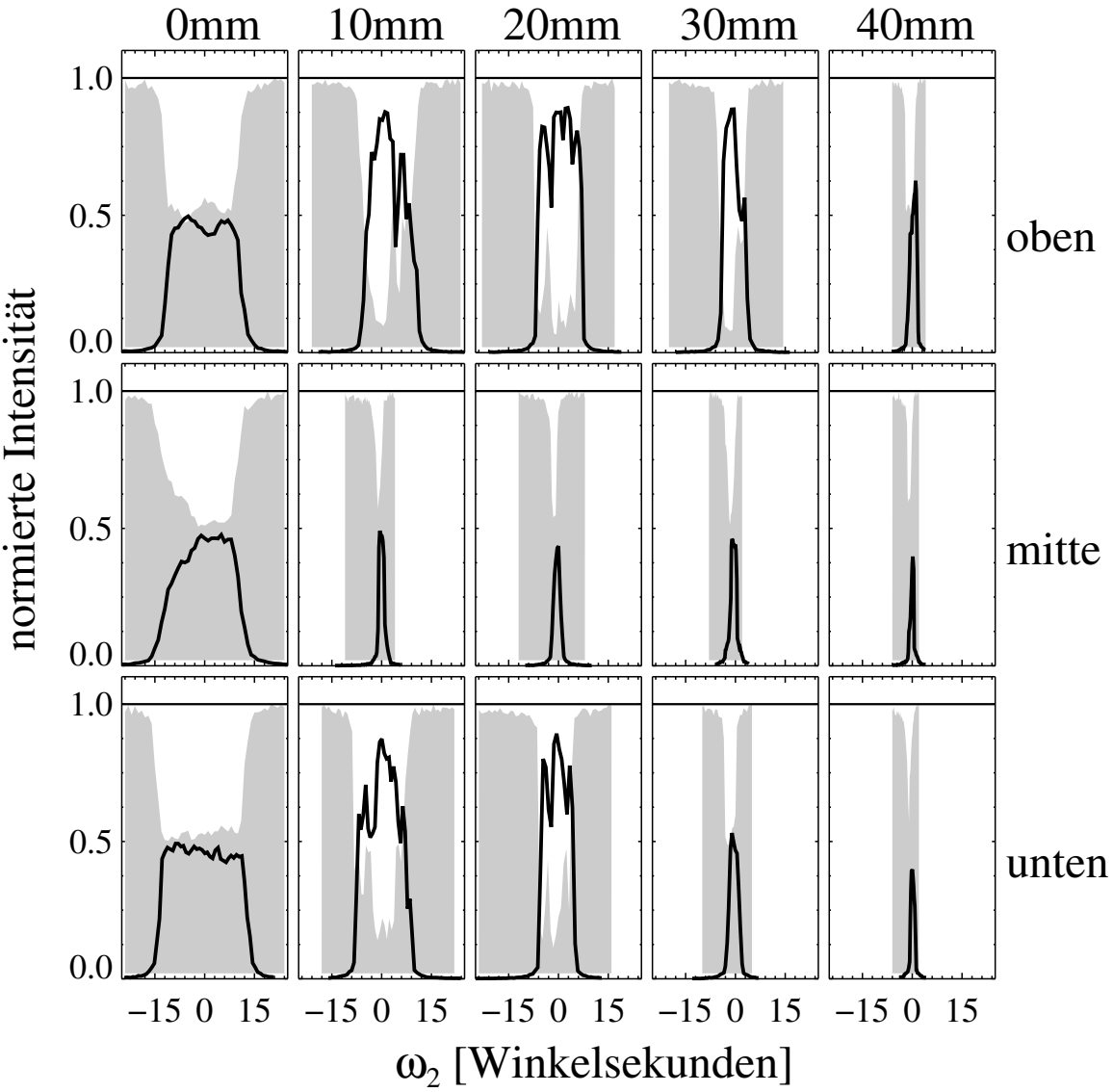


Abbildung A.9.: *Untersuchter Reflex: (220), Photonenenergie: 120* keV

Die Topogramme dieser Probe sind nur schwer zu interpretieren: Der Längsschnitt ist nicht ausreichend poliert und wird durch Sägespuren dominiert. Der Querschnitt zu Beginn des Zuchtprozesses zeigt keine Auffälligkeiten, während der Schnitt am Ende des Kristalls eigentlich nur mit einem vollkommen zerstörten Gefüge zu erklären ware, was jedoch im Widerspruch zu den an dieser Position beobachteten Reflexprofilen steht.

Abbildung A.10.: *Topogramme der Probe „SiGe 107“*

A.6. „SiGe 108“, Zuchtrichtung [110], $C_{Ge,0}$=7%

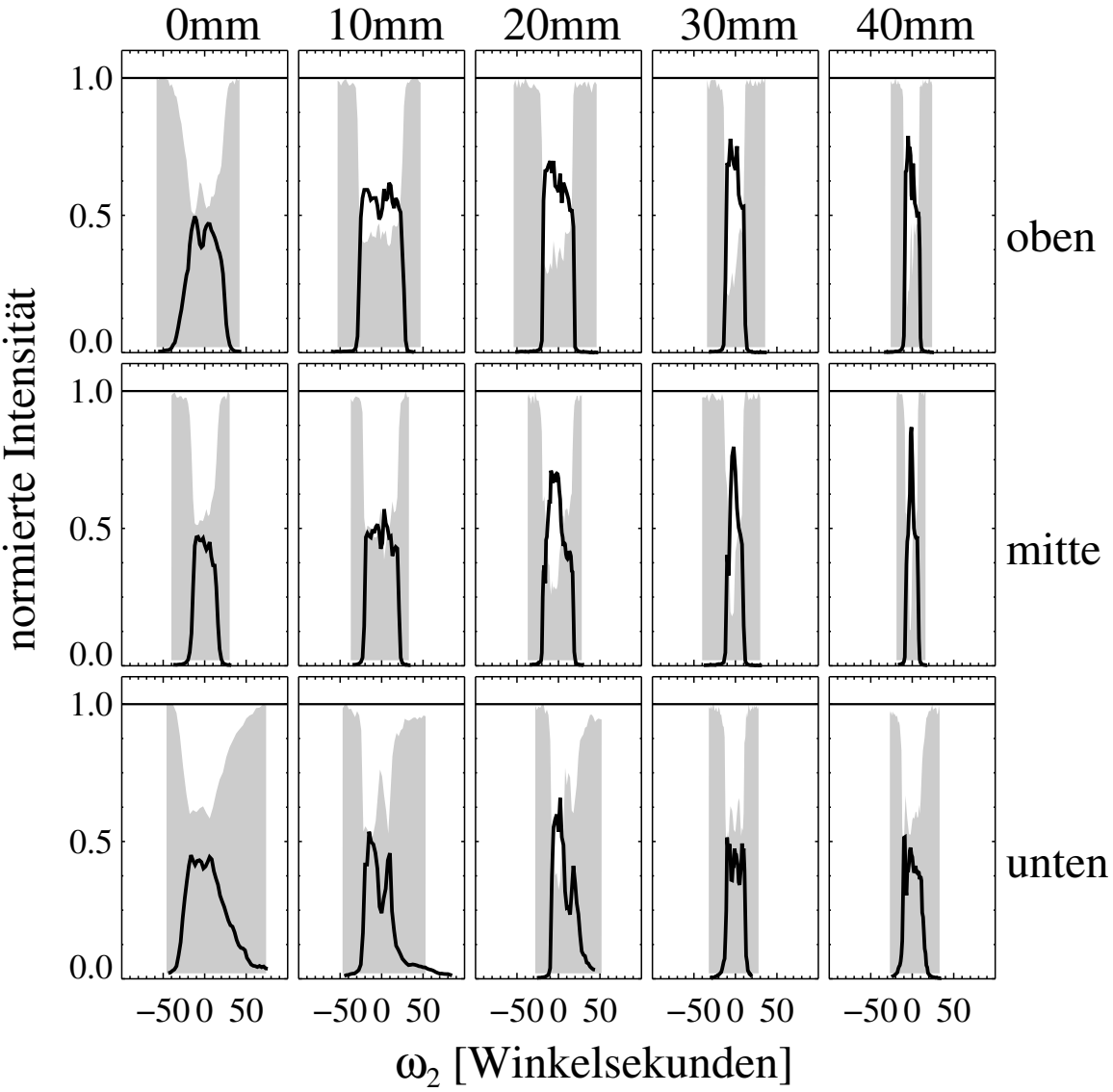


Abbildung A.11.: *Untersuchter Reflex: (220), Photonenenergie: 120* keV

Dieser Kristall zerfällt in zwei Bereiche: Im Längsschnitt ist rechts ein Bereich zu erkennen, in dem die Kristallstruktur vollkommen zerstört ist, während der linke Teil der Probe eine hohe Kristallqualität mit geringer Versetzungsdichte aufweist. Diese Systematik tritt auch bei den Reflexprofilen auf. Die obere Reihe zeigt verhältnismäßig hohe Reflektivitäten bei rechteckiger Reflexform, während die untere Reihe auf eine stark gestörte Kristallstruktur hinweist.

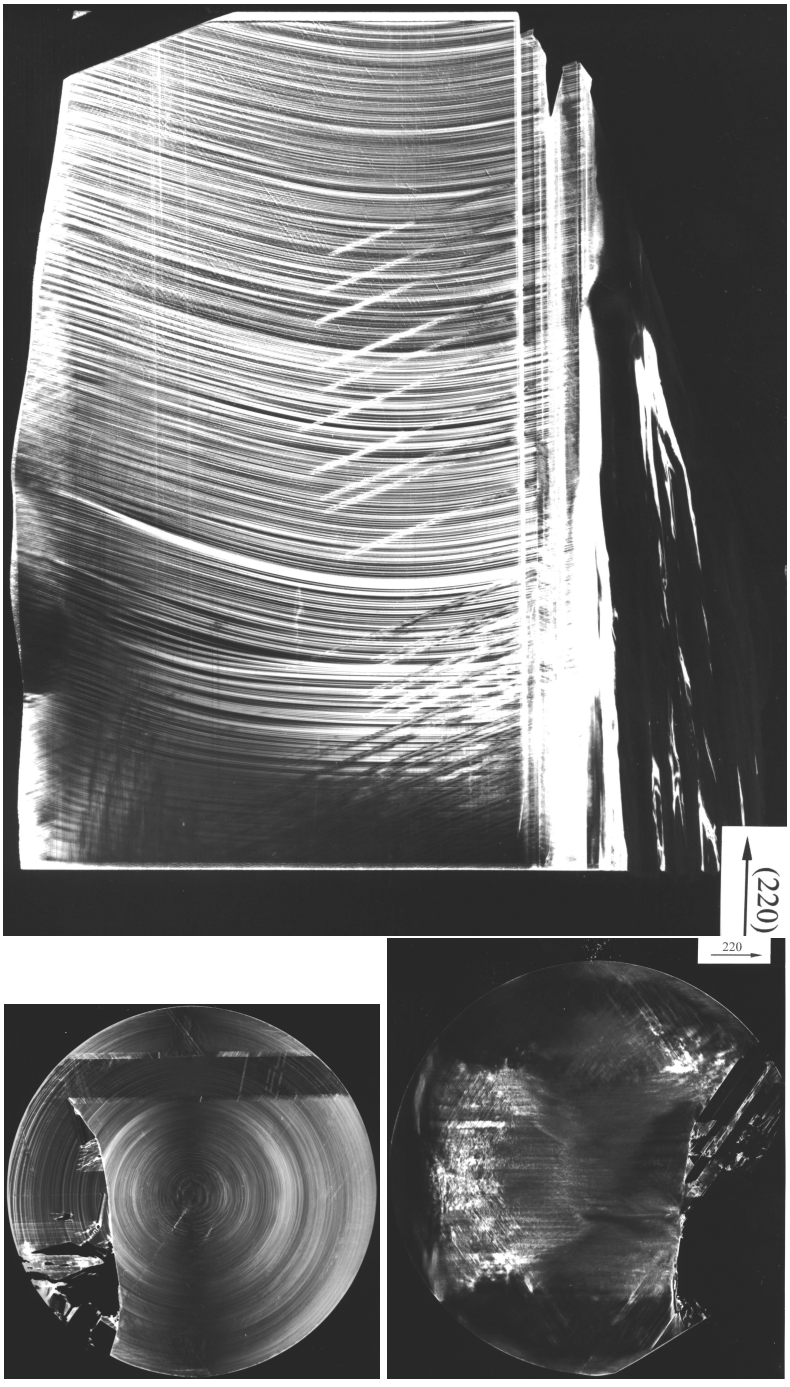


Abbildung A.12.: *Topogramme der Probe „SiGe 108“*

Abbildungsverzeichnis

2.1. Aufsicht auf das Dreikristall-Diffraktometer 3
2.2. Ewaldkonstruktion der Bragg-Bedingung 4
2.3. Streugeometrie im reziproken Raum 5
2.4. Koordinatensystem im reziroken Raum 6
2.5. Dreikristall-Diffraktometer an der Beamline BW5 8
2.6. Kontourbilder der berechneten Auflösung dreier perfekter Kristalle 11

3.1. Darstellung der diffusen Streubeiträge um den (220)-Reflex von Silizium . . 17
3.2. Untergrundkorrektur der TDS 19
3.3. ILL-Hochtemperaturofen für Temperaturen bis 1800° C 20
3.4. Entwicklung der Halbwertsbreite der Proben „1“ und „2“ 23
3.5. Entwicklung der Reflexprofile der Probe „2“ 24
3.6. Ergebnisse des Temperzyklus (3) 25
3.7. Versuchsaufbau nach [TMU$^+$95] 27
3.8. Kopie einer Abbildung aus [TMU$^+$95] 28
3.9. Ergebnis des BMD-Tests 30
3.10. Vergleich der Ergebnisse mit [TMU$^+$95] 31
3.11. Ergebnis der Simulationsrechnungen von J. Esfandyari für Probe (1) 33

4.1. Verlauf der Germaniumkonzentration entsprechend der Scheil-Pfann-Gleichung 38
4.2. Wachstumsmodelle für $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle 38
4.3. Betragskorrektur des Wellenvektors $\vec{k}$ 41
4.4. Darstellung der Dispersionsflächen 42
4.5. Auswahl der Anregungspunkte 43

4.6. Richtung des Energietransportes 44
4.7. Wanderung der Anregungspunkte 47
4.8. Krümmung des Strahlweges 48
4.9. Erzeugung neuer Wellenfelder 50
4.10. Strahlwege in einem stark verzerrten Kristall 50
4.11. $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristall „SiGe 102“ 52
4.12. Probe und Topogramm des Kristalls „SiGe 102“ 53
4.13. Zusammenhang zwischen Germaniumkonzentration und Gitterparameter . . 54
4.14. Position der Meßpunkte 55
4.15. Gemessener Verlauf der Germaniumkonzentration 55
4.16. Entstehung des Borrmann-Fächer 56
4.17. Energieverteilung innerhalb des Borrmann-Fächers 58
4.18. Messung von Reflektivität und Halbwertsbreite: Prinzip 60
4.19. Reflektivität und Halbwertsbreite des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls 62
4.20. Vergleich zwischen experimentellen und theoretischen Reflektivitäten 64
4.21. Berechnete Reflexprofile verzerrter Kristalle 66
4.22. Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Reflexprofilen 67
4.23. Auflösungsfunktionen für verschiedenen Monochromatoren und Analysatoren 70
4.24. Berechnete Reflexprofile eines gebogenen Silizium-Kristalls 73
4.25. Reflexprofile des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls 73
4.26. Testaufbau eines Kristallbiegers 74
4.27. Integrale Reflektivitäten der Si-$TaSi_2$- und $Si_{1-x}Ge_x$-Kristalle 75
4.28. Reflexprofile der Si-$TaSi_2$- und $Si_{1-x}Ge_x$-Kristalle 76
4.29. Überstrukturreflexe durch Ladungsstreifenordnung 77

A.1. Gradientenkristall 102 84
A.2. Topogramme der Probe „SiGe 102“ 85
A.3. Gradientenkristall 103 88
A.4. Topogramme der Probe „SiGe 103“ 89
A.5. Gradientenkristall 104 90
A.6. Topogramme der Probe „SiGe 104“ 91

A.7. Gradientenkristall 105 92
A.8. Topogramme der Probe „SiGe 105“ 93
A.9. Gradientenkristall 107 94
A.10. Topogramme der Probe „SiGe 107“ 95
A.11. Gradientenkristall 108 96
A.12. Topogramme der Probe „SiGe 108“ 97

Tabellenverzeichnis

2.1. Quellparameter der Beamline BW5 des HASYLAB 7

3.1. Liste der getesteten Temperaturzyklen 22
3.2. Liste der untersuchten Proben 29

4.1. Gemittelte Halbwertsbreiten $\langle FWHM \rangle$ des $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalls . . . 63
4.2. Parameter für Reflex (111) und (333) 65
4.3. Ergebnisse der „PEPO“-Berechnungen und der Messungen an „SiGe 102“ . . 72

A.1. Ergebnisse der Messungen an dem Gradientenkristall 102 86

Literaturverzeichnis

[AAR97] V. Alex, N. V. Abrosimov, S. N. Rossolenko,
Inst. Phys. Conf. Ser **160**, 313, (1997)

[AB70] A. Authier, F. Balibar,
Acta Cryst. A **26**, 647, (1970)

[Abr98a] N. V. Abrosimov,
Institut für Kristallzüchtung, Berlin, persönliche Mitteilung, (1998)

[Abr98b] N. V. Abrosimov,
Institut für Kristallzüchtung, Berlin, persönliche Mitteilung, (1998)

[AM98] A. Authier, C. Malgrange,
Acta Cryst. A **54**, 806, (1998)

[ANS94] D. B. Aldrich, R. J. Nemanich, D. E. Sayers,
Phys. Rev. B **50**, 15026, (1994)

[ARA+96] N. V. Abrosimov, S. N. Rossolenko, V. Alex, A. Gerhardt, W. Schröder,
J. Crystal Growth **166**, 657, (1996)

[BC64] B. W. Batterman, H. Cole,
Reviews of Modern Physics **36**, 681, (1964)

[BCM83] F. Balibar, F. N. Chukhovskii, C. Malgrange,
Acta Cryst. A **39**, 387, (1983)

[BEM75] F. Balibar, Y. Epelboin, C. Malgrange,
Acta Cryst. A **31**, 836, (1975)

[BHL+98] R. Bouchard, D. Hupfeld, T. Lippmann, J. Neuefeind, H.-B. Neumann, H. F. Poulsen, U. Rütt, T. Schmidt, J. R. Schneider, J. Süßenbach, M. v. Zimmermann,
J. Synchrotron Rad. **5**, 90, (1998)

[BKL+91] V. G. Baryakhtar, M. V. Kovalchuk, Yu. M. Litvinov, V. B. Molodkin, V. V. Nemoshkalenko, S. I. Olikhovskii, E. N. Kislovskii, A. I. Nizkova, NIM A **308**, 291, (1991)

[Bou93] R. Bouchard, Dissertation Universität Hamburg, (1993)

[BPS+95] A. Borghesi, B. Pivac, A. Sassella, A. Stella, J. Appl. Phys. **77**, 4169, (1995)

[BSG+95] R. Bouchard, J. R. Schneider, S. Gupta, S. Messoloras, R. J. Stewart, H. Nagasawa, W. Zulehner, J. Appl. Phys. **77**, 553, (1995)

[BV88] H. Bender, J. Vanhellemont, Phys. Stat. Sol. A **107**, 455, (1988)

[CM89] F. N. Chukhovskii, C. Malgrange, Acta Cryst. A **45**, 732, (1989)

[Ded70] P. H. Dederichs, Phys. Rev. B **1**, 1306, (1970)

[Ded71] P. H. Dederichs, Phys. Rev. B **4**, 1041, (1971)

[Ded73] P. H. Dederichs, J. Phys. F **3**, 471, (1973)

[DEP64] J. P. Dismukes, L. Ekstrom, R. J. Paff, J. Phys. Chem. **68**, 3021, (1964)

[DGK+86] L. I. Datsenko, A. N. Gureev, V. I. Khrupa, E. N. Kislovskii, V. P. Klad'ko, A. I. Nizkova, I. V. Prokopenko, M. Ya. Skorokhod, *„Checking the structural perfection of single crystals“*, Patentschrift SU1255906, Patentamt der UdSSR, (1986)

[DHC90] M. Deutsch, M. Hart, S. Cummings, Phys. Rev. B **42**, 1248, (1990)

[Dor97] E. Dornberger, Dissertation Université Catholique de Louvain, (1997)

[Esf99] J. Esfandyari, Wacker Siltronic AG, Burghausen, persönliche Mitteilung, (1999)

[ESS+96] J. Esfandyari, C. Schmeiser, S. Senkader, G. Hobler, B. Murphy, J. Electrochem. Soc. **143**, 995, (1996)

[GCR+98] O. De Gryse, P. Clauws, L. Rossou, J. Van Landuyt, J. Vanhellemont, W. Mondelaers, Electrochemical Society Proceedings **98-13**, 399, (1998)

[GM84a] J. Gronkowski, C. Malgrange, Acta Cryst. A **40**, 507, (1984)

[GM84b] J. Gronkowski, C. Malgrange, Acta Cryst. A **40**, 515, (1984)

[GV62] K. A. Gschneidner, G. H. Vineyard, J. Appl. Phys. **33**, 3444, (1962)

[Hua47] K. Huang, Proc. R. Soc. **190**, 102, (1947)

[Kat58] N. Kato, Acta Cryst. **11**, 885, (1958)

[Kat63] N. Kato, J. Phys. Soc. Japan **18**, 1785, (1963)

[Kat64a] N. Kato, J. Phys. Soc. Japan **19**, 67, (1964)

[Kat64b] N. Kato, J. Phys. Soc. Japan **19**, 971, (1964)

[KMN+99] S. Keitel, C. Malgrange, T. Niemöller, J. R. Schneider, Acta Cryst. A, akzeptiert

[KRB+99] S. Keitel, U. Rütt, M. A. Beno, J. R. Schneider, HASYLAB Jahresbericht, gedruckte Ausgabe 1027, (1999)

[KRN+98] S. Keitel, C. C. Retsch, T. Niemöller, J. R. Schneider, N. V. Abrosimov, S. N. Rossolenko, H. Riemann, NIM A **414**, 427, (1998)

[Liß94] K.-D. Liß, Dissertation Technische Hochschule Aachen, (1994)

[LS80] B. C. Larson, W. Schmatz, Phys. Stat. Sol. B **99**, 267, (1980)

[Mal99] C. Malgrange,
Université Pierre et Marie Curie, Paris, persönliche Mitteilung, (1999)

[MOO+85] V. B. Molodkin, S. I. Olikhovskii, M. E. Osinovskii, A. N. Gureev, L. I. Datsenko, A. I. Nizkova, B. F. Zhuravlev,
Phys. Stat. Sol. A **87**, 597, (1985)

[MR68] H. Maier-Leibnitz, F. Rustichelli,
„Monochromator-Einkristall“, Patentschrift DT1816542, Deutsches Patentamt, (1968)

[Neu94] H.-B. Neumann,
Diplomarbeit Universität Hamburg, (1994)

[NIF+99] T. Niemöller, N. Ichikawa, T. Frello, H. Hünnefeld, N. H. Andersen, S. Uchida, J. R. Schneider, J. M. Tranquada,
European Phys. J. B, zur Veröffentlichung eingereicht

[NMO+91] V. V. Nemoshkalenko, V. B. Molodkin, S. I. Olikhovskii, M. V. Kovalchuk, Yu. M. Litvinov, E. N. Kislovskii, A. I. Nizkova,
NIM A **308**, 294, (1991)

[NSS+96] H.-B. Neumann, J. R. Schneider, J. Süßenbach, S. R. Stock, Z. U. Rek,
NIM A **372**, 551, (1996)

[Oes97] C. Oeser,
Diplomarbeit Universität Hamburg, (1997)

[Pfa78] W. G. Pfann,
„Zone Melting“, Robert E. Krieger Publishing Company, Huntington, New York, (1978)

[PP61] P. Penning, D. Polder,
Philips Res. Repts. **16**, 419, (1961)

[Ret97] C. C. Retsch,
Diplomarbeit Universität Hamburg, (1997)

[RKS+98] C. C. Retsch, S. Keitel, H. Schulte-Schrepping, J. R. Schneider,
Proceedings of SPIE 98 **3448**, 76, (1998)

[Rüt96] U. Rütt,
Dissertation Universität Hamburg, (1996)

[RV93] M. M. Rieger, P. Vogl,
Phys. Rev. B **48**, 14276, (1993)

[SBH+97] J. Strempfer, Th. Brückel, D. Hupfeld, J. R. Schneider,
Europhys. Lett. **40**, 569, (1997)

[SC95] C. Schulze, D. Chapman,
Rev. Sci. Instrum. **66**, 2220, (1995)

[Sch95] T. Schmidt,
Dissertation Universität Hamburg, (1995)

[SEH95] S. Senkader, J. Esfandyari, G. Hobler,
J. Appl. Phys. **78**, 6469, (1995)

[SGR+88] J. R. Schneider, O. D. Goncevales, A. J. Rollason, U. Bonse, J. Lauer, W. Zulehner,
NIM B **29**, 661, (1988)

[SLS97] P. Suortti, U. Lienert, C. Schulze,
„Proceedings 17th International Conference X-RAY AND INNER-SHELL PROCESSES“, AIP Conference Proceedings **389**, 175, (1996)

[SN98] J. Strempfer, J. Neuefeind,
HASYLAB, Hamburg, persönliche Mitteilung, (1998)

[SW44] A. R. Stokes, A. J. C. Wilson,
Proc. Phys. Soc. **56**, 174, (1944)

[SWK+98] T. Schmidt, D. Woo, S. Keitel, J. R. Schneider, U. Lambert, W. Zulehner,
J. Appl. Cryst. **31**, 625, (1998)

[TAH+98] H. Takeno, K. Aihara, Y. Hayamizu, Y. Kitagawara,
Electrochemical Society Proceedings **98-1**, 1113, (1998)

[Tak62] S. Takagi,
Acta Cryst. **15**, 1311, (1962)

[Tak69] S. Takagi,
J. Phys. Soc. Japan **26**, 1239, (1969)

[Tau64] D. Taupin,
Bull. Soc. Fr. Minéral. Cristallogr. **87**, 469, (1964)

[TB84] R. Teworte, U. Bonse,
Phys. Rev. B **29**, 2102, (1984)

[THU+96] H. Takeno, R. Hoshi, S. Ushio, T. Takenaka,
„Method of evaluating a silicon single crystal“, Patentschrift EP0701119, Europäisches Patentamt, (1996)

[TMU+95] H. Takeno, M. Mizuno, S. Ushio, T. Takenaka,
Mat. Science Forum **196-201**, 1865, (1995)

[Tri71] H. Trinkaus,
Z. f. angew. Physik **31**, 229, (1971)

[Tri72a] H. Trinkaus,
phys. stat. sol. (b) **51**, 307, (1972)

[Tri72b] H. Trinkaus,
phys. stat. sol. (b) **54**, 209, (1972)

[VC87] J. Vanhellemont, C. Claeys,
J. Appl. Phys **62**, 3960, (1987)

[VC92] J. Vanhellemont, C. Claeys,
J. Appl. Phys. **71**, 1073, (1992)

[Veg21] L. Vegard,
Zeitschrift für Physik **V**, 17, (1921)

[VEO+98] J. Vanhellemont, J. Esfandyari, G. Obermeier, E. Dornberger, D. Gräf, U. Lambert, G. Kissinger,
Electrochemical Society Proceedings **98-13**, 101, (1998)

[Woo96] D. Woo,
Diplomarbeit Universität Hamburg, (1996)

[WP75] B. T. M. Willis, A. W. Pryor,
„Thermal Vibrations in Crystallography“, Cambridge University Press, (1975)

[WSM98] W. Windl, O. F. Sankey, J. Menéndez,
Phys. Rev. B **57**, 2431, (1998)

[WSS96] J. Wollweber, D. Schulz, W. Schröder,
J. Crystal Growth **163**, 243, (1996)

[Zac45] W. H. Zachariasen,
„Theory of X-ray Diffraction in Crystals“, John Wiley and Sons, Inc., New York, (1945)

[ZVN98] M. v. Zimmermann, A. Vigliante, T. Niemöller, N. Ichikawa, T. Frello, J. Madsen, P. Wochner, S. Uchida, N. H. Andersen, J. M. Tranquada, D. Gibbs, J. R. Schneider,
Europhys. Lett. **41**, 629, (1998)

Danksagung

Meinem Betreuer Prof. Dr. Jochen Schneider danke ich sehr für die Überlassung der interessanten Aufgabenstellung und die stete Betreuung und Hilfe im Verlauf meiner Arbeit am HASYLAB.

Meinen Dank aussprechen möchte ich Prof. Dr. Cecilé Malgrange von der Université Pierre et Marie Curie, Paris, für ihre Theorie der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristalle und die vielen hilfreichen Hinweise zum Verständnis der dynamischen Theorie.

Dr. Nikolai Abrosimov am Institut für Kristallzüchtung in Berlin fühle ich mich für die Herstellung der $Si_{1-x}Ge_x$-Gradientenkristallen und für die Beantwortung aller Fragen bezüglich der Zucht dieser Kristalle zu Dank verpflichtet.

Bei Dr. Ulrich Lienert möchte ich mich für die interessanten Meßzeiten an der ESRF und die damit verbundenen Anregungen herzlichst bedanken.

Für die „PEPO"-Berechnungen der gebogenen Laue-Monochromatoren danke ich Dr. Thomas Tschentscher.

Dr. Ulrich Lambert und Dr. Jalinous Esfandyari von der Wacker Siltronic AG in Burghausen schulde ich Dank für die Zusammenarbeit und die ΔO_i-Simulationsrechnungen.

Besonderer Dank gilt der Arbeitsgruppe „Hochenergetische Photonen", deren anregende und hilfsbereite Atmosphäre sehr viel zu dem Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat. An dieser Stelle hervorheben möchte ich Thomas Niemöller und Heiko Hünnefeld für die Hilfe bei den Meßzeiten, Christian Oeser für die gegenseitige Betreuung während seiner Diplomarbeit und Dr. Klaus Höppner für seine Hilfe bei wirklich allen LaTeX 2ε-Fragen.

In diesem Zusammenhang sei auch allen anderen Mitarbeitern am HASYLAB gedankt, deren beständige, oft über das normale Maß hinausgehende Hilfsbereitschaft für ein äußerst angenehmes und konstruktives Arbeitsumfeld sorgte.

Ich danke meinen Korrekturlesern für ihre Leidensfähigkeit und ihre förderliche Kritik. Namentliche Erwähnung verdient an dieser Stelle mein Bruder Dr. Michael Keitel, der sich als Mediziner mit viel Geduld durch gänzlich unbekanntes Terrain gearbeitet hat.

Besonders möchte ich mich bei Barbara für ihren Ansporn, ihre große Hilfe und ihre Geduld in der Zeit des Zusammenschreibens bedanken.

Meiner Familie möchte ich für ihre stete und geduldige Unterstützung danken, ohne die diese Arbeit nur schwer durchführbar gewesen wäre. Große Dankbarkeit empfinde ich gegenüber meinen Eltern, die ihren beiden Söhnen ein Studium ermöglichten.