

# Hochpräzise Röntgenpolarimetrie mit Diamantkristallen

## Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)

vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät der



**FRIEDRICH-SCHILLER-  
UNIVERSITÄT  
JENA**

von M.Sc. Hendrik Bernhardt

geboren am 05.11.1989 in Jena

## **Gutachter:**

**1. Prof. Dr. Gerhard G. Paulus**

Institut für Optik und Quantenelektronik  
Friedrich-Schiller-Universität Jena

**2. Dr. rer. nat. habil. Ulf Zastra**

High-Energy-Density Science  
European XFEL GmbH

**3. Prof. Dr. Thomas Cowan**

Institut für Strahlenphysik  
Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf

Tag der Disputation: 30. Januar 2019

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen der hochpräzisen Röntgenpolarimetrie</b>	<b>6</b>
2.1	Streuung von Röntgenstrahlung . . . . .	6
2.2	Röntgenbeugung an perfekten Kristallen . . . . .	8
2.2.1	Die Grundgleichungen der dynamischen Theorie . . . . .	8
2.2.2	Der Bragg-Fall . . . . .	13
2.2.3	Mehrstrahlfälle und Umweganregungen . . . . .	15
2.2.4	Absorption . . . . .	18
2.3	Röntgenbeugung an imperfekten Kristallen . . . . .	19
2.3.1	Die kinematische Theorie . . . . .	19
2.3.2	Der Takagi-Taupin-Ansatz . . . . .	21
2.4	Beschreibung von Polarisationszuständen . . . . .	22
2.5	Röntgenquellen . . . . .	24
2.5.1	Die Röntgenröhre . . . . .	25
2.5.2	Das Synchrotron . . . . .	25
2.5.3	Der Freie-Elektronen-Laser im Röntgenbereich . . . . .	27
<b>3</b>	<b>Diamantkristalle für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie</b>	<b>28</b>
3.1	Diamant . . . . .	28
3.2	Herstellung von synthetischen Diamantkristallen . . . . .	30
3.2.1	Das Hochdruck-Hochtemperatur-Verfahren . . . . .	30
3.2.2	Die Chemische Gasphasenabscheidung . . . . .	30
3.3	Vor- und Nachteile von Diamant für die Röntgenbeugung und Röntgenpolarimetrie . . . . .	31
<b>4</b>	<b>Experimentelle Methoden</b>	<b>35</b>
4.1	Optische Untersuchungsmethoden . . . . .	35
4.1.1	Interferometrie zur Bestimmung der Oberflächenstruktur und der Kristalldickenvariation . . . . .	35
4.1.2	Polarisationsprüfung zur Bestimmung der optischen Spannungsdoppelbrechung . . . . .	37
4.2	Röntgenoptische Untersuchungsmethoden . . . . .	38
4.2.1	Kristallorientierung . . . . .	38
4.2.2	Projektionsröntgentopographie nach Lang . . . . .	39
4.2.3	Das Doppel- oder Zweikristalldiffraktometer (DKD) . . . . .	41
4.2.4	Der Dreikristallaufbau . . . . .	41

4.3	Methoden der hochpräzisen Röntgenpolarimetrie . . . . .	43
4.3.1	Channel-Cut- und Quasi-Channel-Cut-Kristalle . . . . .	44
4.3.2	Das Quasi-Channel-Cut Polarimeter . . . . .	47
<b>5</b>	<b>Charakterisierung der Diamantkristalle</b>	<b>49</b>
5.1	Ergebnisse der optischen Untersuchungsmethoden . . . . .	49
5.1.1	Interferometrie . . . . .	49
5.1.2	Polarisationsprüfung . . . . .	52
5.2	Ergebnisse der röntgenoptischen Untersuchungsmethoden . . . . .	56
5.2.1	Kristallorientierung . . . . .	56
5.2.2	Projektionsröntgentopographie nach Lang . . . . .	57
5.2.3	Dreikristallmessungen . . . . .	64
<b>6</b>	<b>Röntgenpolarimetrie mit Diamantkristall Quasi-Channel-Cuts</b>	<b>73</b>
6.1	Ergebnisse mit den Zweikristall-Quasi-Channel-Cuts . . . . .	73
6.2	Ergebnisse mit den Vierkristall-Quasi-Channel-Cuts . . . . .	77
6.3	Anwendung der Vierkristall-Quasi-Channel-Cuts . . . . .	86
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>97</b>
	<b>Literatur</b>	<b>100</b>

# 1 Einleitung

Am 8. November 1895 entdeckte Wilhelm Conrad Röntgen am physikalischen Institut der Universität Würzburg die Röntgenstrahlung. Über die Natur dieser neuen Strahlung war zunächst nur wenig bekannt, weswegen sie zunächst als X-Strahlung bezeichnet wurde. Bereits damals bestand die Idee, dass der Nachweis einer möglichen Polarisierung die Wellennatur der Röntgenstrahlung belegen könnte. Charles Glover Barkla war der erste, der 1903 bei Streuexperimenten an Gasen in Liverpool die Polarisierbarkeit der X-Strahlen demonstrierte [1]. Erst neun Jahre später wurde die Röntgenbeugung an Kristallen von Walter Friedrich, Paul Knipping und Max von Laue entdeckt [2] und damit der Grundstein für die bis heute zunehmende Verwendung von Röntgenstrahlung zur Strukturaufklärung gelegt. Mit Wellenlängen von 0,1 nm, und somit im Bereich der Atomabstände, ist Röntgenstrahlung ideal geeignet, um zu erforschen: *was die Welt im Innersten zusammen hält*. Polarisierte Röntgenstrahlung wurde nachweislich erst wieder um 1950 von Ramaseshan *et al.* [3] und Chandrasekaran [4] genutzt, um die Perfektion von Kristallen zu untersuchen. In Analogie zum Brewsterschen Gesetz in der Optik, kann Röntgenstrahlung durch Beugung an Kristallen bei einem Streuwinkel von nahezu  $90^\circ$  polarisiert werden. Der Polarisationsgrad der Strahlung hängt unter anderem von der Abweichung des Winkels von  $90^\circ$  ab und kann durch mehrmalige Wiederholung der Beugung gesteigert werden. Zu diesem Zweck benutzt man sogenannte Channel-Cut-Kristalle aus Silizium oder Germanium, in die ein Kanal gesägt wurde. An den Kanalwänden wird der Röntgenstrahl beliebig oft unter  $90^\circ$  gebeugt und so eine hohe Polarisationsreinheit erreicht. Wesentliche Erfolge auf dem Gebiet der Röntgenpolarimetrie erzielte Michael Hart in den 70er Jahren mit solchen Channel-Cut-Kristallen [5, 6]. Zudem entwickelte er einen verstimmbaren Channel-Cut, mit dem man auch bei Beugungswinkeln abseits von  $90^\circ$  eine Polarisationsreinheit von  $10^{-4}$  erreichen kann [7]. 1995 setzten Toellner *et al.* erstmalig ein Röntgenpolarimeter mit Silizium Channel-Cut's bei Experimenten zur resonanten Kernstreuung an Synchrotrons ein. Damit war es möglich, den Kernübergang im Eisenisotop 57 ( $^{57}\text{Fe}$ ) bereits 1 ns nach der Anregung beobachten zu können und eine Polarisationsreinheit von  $5,4 \cdot 10^{-7}$  zu erzielen [8].

Motiviert durch die Idee von Heinzl *et al.* [9], polarisierte Röntgenstrahlung zur Messung der Vakuumdoppelbrechung einzusetzen, arbeitet die hiesige Gruppe seit 2009 auf dem Gebiet der Röntgenpolarimetrie. Grundlage für dieses Experiment sind die Überlegungen von Heisenberg und Euler aus dem Jahr 1936 [10]. Strahlung ist Materie und Materie ist Strahlung. Aus diesem Äquivalenzprinzip folgt, dass sich Vorgänge im Vakuum nicht von materiellen Vorgängen trennen lassen, da Felder mit ausreichend hoher Energie Materie erzeugen werden und selbst wenn die Energie des Feldes nicht für die Materieerzeugung ausreicht, ergibt sich aus der virtuellen Möglichkeit eine Polarisierung des Vakuums und somit eine Änderung der Maxwell-Gleichungen. Ein Konzept zur Veranschaulichung dieser sogenannten Vakuumpolarisation ist die Ausrichtung von virtuellen Elektron-Positron-Paaren in einem elektrischen Feld. Senkrecht und parallel zu den virtuellen Dipol-Paaren liegt ein

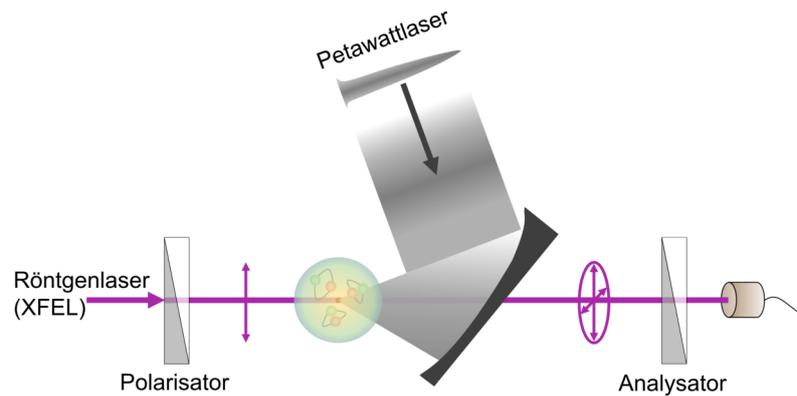


Abbildung 1.1: Experimenteller Aufbau zum Nachweis der Vakuumdoppelbrechung

unterschiedlicher Brechungsindex vor, wodurch das Vakuum doppelbrechend wird. Abbildung 1.1 zeigt den schematischen Aufbau des von Heinzl *et al.* vorgeschlagenen Experiments zum direkten Nachweis der Vakuumdoppelbrechung [9]. Ein intensiver Laserpuls mit einer Leistung von ca. einem Petawatt wird über einen Off-Axis Parabolspiegel in ein Ultrahochvakuum fokussiert. Durch das hohe elektrische Feld im Fokus werden die virtuellen Elektron-Positron-Paare ausgerichtet und eine Doppelbrechung induziert. Untersucht man das Vakuum mit einer polarisierten Welle, kommt es aufgrund der unterschiedlichen Brechungsindizes zu einer Phasenverschiebung zwischen den zwei senkrecht zueinander stehenden Polarisationsrichtungen. Der Effekt ist umso stärker, je kürzer die verwendete Wellenlänge des Probestrahls ist. Röntgenstrahlung ist somit besonders gut zum Nachweis der Vakuumdoppelbrechung geeignet, vorausgesetzt die benötigte Polarisationsreinheit wird erreicht. Ein Ziel zur Realisierung dieses Experiments besteht darin, Polarisationsreinheiten von  $< 1 \cdot 10^{-10}$  für kürzestmögliche Wellenlängen zu erreichen. Berit Marx-Glowna unternahm in ihrer Arbeit intensive Bemühungen, den Herstellungsprozess von Silizium Channel-Cut-Kristallen zu optimieren. Dadurch konnten Polarisationsreinheiten von  $2,4 \cdot 10^{-10}$  und  $5,7 \cdot 10^{-10}$  bei Wellenlängen von 0,2 nm bzw. 0,1 nm erreicht werden [11]. Kai Sven Schulze konnte in seiner Dissertation unter anderem zeigen, dass die erreichbare Polarisationsreinheit bei kürzeren Wellenlängen durch Interferenzeffekte im Kristall (Umweganregungen) limitiert ist [12]. Diamant ist ein vielversprechendes Kristallmaterial für Röntgenpolarisatoren, mit dem sowohl der Einfluss von Umweganregungen, als auch die verwendete Wellenlänge reduziert werden kann. Zudem ist der Absorptionskoeffizient für Röntgenstrahlung in Diamant sehr klein, was zu einem hohen Reflexionsvermögen von nahezu 100% innerhalb des Totalreflexionsgebietes der Rockingkurve führt [13, 14]. Diese Eigenschaft ist insbesondere bei der mehrmaligen Beugung in einem Channel-Cut von Vorteil und verringert dadurch die Verluste der Röntgenoptik. Aufgrund einer hohen Wärmeleitfähigkeit und einem niedrigen thermischen Ausdehnungskoeffizienten sind Diamanten seit den 1990er Jahren als Monochromatorkristalle an Synchrotronquellen der dritten Generation von Interesse [15, 16]. Diese Eigenschaft könnte auch für eine Anwendung der Röntgenpolarimetrie an einem Freie-Elektron-Laser in Zukunft wichtig sein. Alle Vorteile zusammengenommen, scheint Diamant zumindest theoretisch das wohl am besten geeig-

netste Kristallmaterial für ein Röntgenpolarimeter zur Messung der Vakuumdoppelbrechung zu sein. Bisher wurde kein Channel-Cut aus Diamantkristallen hergestellt, mit dem auch nur ansatzweise Polarisationsreinheiten von  $10^{-10}$  erreicht wurden. Ein experimenteller Nachweis der Eignung von Diamant für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie blieb somit bisher aus und wird durch die vorliegende Dissertation erbracht.

Diese Arbeit ist jedoch nicht die erste, die Diamanten zur Erzeugung linear polarisierter Röntgenstrahlung einsetzt. Bereits 1998 unternahmen Hasegawa *et al.* [17] einen ersten Versuch, Diamantkristalle für die Röntgenpolarimetrie zu verwenden. Im Gegensatz zu den bisher bekannten Konzepten nutzte er schwach absorbierende Kristalle in Transmission. Die unerwünschte Polarisationskomponente wurde dabei im Bragg-Fall nahezu vollständig weggebeugt und nur die durch den Kristall transmittierte Komponente verwendet. Ähnlich wie bei einem Glasplattensatz kann durch mehrere Kristalle hintereinander die Polarisationsreinheit verbessert werden. Zudem ist mit dieser Methode Röntgenpolarimetrie auch bei Beugungswinkeln weit entfernt von  $90^\circ$  möglich. Für drei hintereinander angeordnete 0,3 mm dicke Diamanten gelang es Hasegawa, die Intensität der einfallenden  $\sigma$ -Polarisation jedoch nur um  $5 \cdot 10^{-3}$  zu reduzieren, anstatt der theoretisch erwarteten  $10^{-30}$  [18]. Das enttäuschende Ergebnis wurde auf möglicherweise vorhandene Störungen in den verwendeten Diamanten zurückgeführt. Neben der geringen Größe, der schlechten Verfügbarkeit und dem hohen Preis ist die mangelhafte Kristallqualität ein wesentlicher Nachteil von Diamant gegenüber Silizium, dass durch über 50 Jahre Entwicklung in der Halbleiterindustrie auf Perfektion getrimmt wurde. Aus diesem Grund nimmt die Charakterisierung der verwendeten Kristalle und die dafür benötigten experimentellen Methoden einen nicht unerheblichen Teil in **Kapitel 4** und **5** der vorliegenden Arbeit ein. Die theoretischen Grundlagen der Röntgenbeugung, sowie die Eigenschaften, Vor- und Nachteile von Diamant werden zuvor in **Kapitel 2** und **3** beschrieben. Das **sechste Kapitel** ist der Röntgenpolarimetrie mit Diamant Quasi-Channel-Cuts und den erzielten Resultaten gewidmet.

## 2 Grundlagen der hochpräzisen Röntgenpolarimetrie

Die Polarimetrie beschäftigt sich mit der Änderung der Polarisation von transversaler elektromagnetischer Wellen. Ziel ist es, die Polarisation zu analysieren und Veränderungen beim Durchgang durch Proben zu bestimmen. Dafür werden Polarimeter eingesetzt, deren Komponenten wiederum den Polarisationszustand selbst ändern können und so teilweise oder unpolarisiertes Licht stärker polarisieren. Bei der hochpräzisen Röntgenpolarimetrie handelt es sich um ein Forschungsgebiet, für das zum einen die Wellenlänge der verwendeten Strahlung im Bereich von 0,1 nm liegt und zum anderen polarisierte Strahlung erzeugt wird, für die das Intensitätsverhältnissen zweier orthogonaler Polarisationsrichtungen über fast 10 Größenordnungen kontrolliert werden kann. Die wichtigsten Grundlagen für die vorliegende Arbeit sind im Wesentlichen durch die Röntgenbeugung an periodischen Ladungsverteilungen, wie perfekten und imperfekten Kristallen, gegeben. Der Kerngedanke der Röntgenpolarimetrie wird jedoch bereits bei der Streuung von Röntgenstrahlung an einer einzelnen Ladung ersichtlich. Zusätzlich soll auch auf die verwendeten Röntgenquellen eingegangen werden.

Die folgende Zusammenfassung der Grundlagen der Röntgenbeugung stützt sich auf das Buch von André Authier [19] sowie die Dissertationen von Kai Sven Schulze [12] und Berit Marx-Glowna [20].

### 2.1 Streuung von Röntgenstrahlung

Da Röntgenstrahlung elektromagnetische Strahlung ist, beruht ihre Wechselwirkung mit Materie auf elektrischen und magnetischen Kräften. Trifft eine elektromagnetische Welle auf Materie, so wirkt eine Kraft auf die Elektronen des Materials. Die Elektronen fangen an zu schwingen und senden dabei wiederum selbst elektromagnetische Wellen aus. Bei diesem als Streuung bezeichneten Vorgang kann sich die Richtung des elektrischen Felds  $\vec{E}$  ändern und somit auch die Polarisation. Aus der Maxwell-Gleichung  $\text{rot}\vec{E} = -\frac{\partial\vec{B}}{\partial t}$  folgt bereits, dass die magnetische Flussdichte  $\vec{B}$  einer elektromagnetischen Welle um  $1/c$  schwächer ist als das elektrische Feld  $\vec{E}$ . Demzufolge sind auch die magnetischen Wechselwirkungen schwach und werden in der nachfolgenden Betrachtung vernachlässigt. Die treibende Kraft ist dann rein elektrischer Natur und kann für eine Ladung  $q$  mit  $\vec{F} = q\vec{E}$  beschrieben werden. Trifft nun eine ebene Welle der Form  $\vec{E} = \vec{E}_0 \exp(i2\pi\vec{k}\vec{r} - i\omega t)$ , mit Wellenzahl  $k = 1/\lambda$  und Frequenz  $\omega$ , auf eine Ladung  $q$ , ergibt sich für diese die Bewegungsgleichung eines harmonischen Oszillators, der durch die Kraft  $q\vec{E}$  angetrieben wird [21]:

$$m\ddot{\vec{x}} = -\omega_0^2 m\vec{x} - \Gamma\dot{\vec{x}} + q\vec{E}(\vec{r} = 0). \quad (2.1)$$

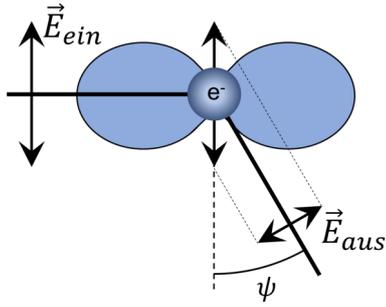


Abbildung 2.1: Streuung einer elektromagnetischen Welle  $\vec{E}_{ein}$  an einer Ladung. Aufgrund der Projektion des elektrischen Felds  $\vec{E}_{aus}$  in Richtung des Betrachters ist es möglich bei  $\psi = 0$  elektromagnetische Strahlung zu polarisieren.

$m$  ist die Masse der Ladung und  $\ddot{\vec{x}}$  gibt an, wie dieses beschleunigt wird. Der erste Term auf der rechten Seite beschreibt die Rückstellkraft des Oszillators.  $\omega_0$  ist somit eine Frequenz des Systems, z.B. die Resonanzfrequenz eines Übergangs. Die Bewegung der Ladung wird durch  $\Gamma\dot{\vec{x}}$  gedämpft, wobei die Dämpfungskonstante  $\Gamma$  zum Beispiel mit der Lebensdauer eines Zustands in Verbindung gebracht werden kann. Löst man Gleichung 2.1, so erhält man für die Bewegung der Ladung [19]:

$$\vec{x}(t) = \frac{q\vec{E}_0}{m(\omega_0^2 - \omega^2) - i\omega\Gamma} \exp(-i\omega t). \quad (2.2)$$

Wie zu sehen ist, oszilliert die elektrische Ladung mit der selben Frequenz  $\omega$  wie die einfallende Welle. Gemäß  $\vec{p}(t) = q\vec{x}(t)$  kann der Ladung ein Dipolmoment  $\vec{p}$  zugeordnet werden, dass dem eines Hertz'schen Dipols entspricht. Dieser Dipol sendet ein elektrisches Feld aus, dass in Fernfeldnäherung durch [19]:

$$E = \frac{q^2}{\underbrace{4\pi\epsilon_0 mc^2}_{=r_e}} \frac{\omega^2}{\underbrace{(\omega_0^2 - \omega^2) - i\omega\Gamma/m}_{=f}} \frac{E_0 \exp[i(2\pi\vec{k}\vec{r} - \omega t)]}{r} \sin\psi \quad (2.3)$$

gegeben ist, mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$  und der elektrischen Feldkonstante (Permittivität des Vakuums)  $\epsilon_0$ . Gleichung 2.3 beschreibt eine Kugelwelle, die sich im Raum ausbreitet und deren Amplitude von  $\sin(\psi)$  abhängt, wobei  $\psi$  der Winkel zwischen der Dipolachse und der Beobachtungsrichtung des ausgesandten Felds (siehe Abb. 2.1) ist. Für  $\psi = 0$  verschwindet das elektrische Feld, weswegen ein Dipol keine Strahlung entlang seiner Dipolachse aussendet. Diese Abhängigkeit wird bei der Röntgenpolarimetrie ausgenutzt. Nimmt man an, dass die einfallende ebene Welle zwei orthogonale elektrische Feldkomponenten hat, von denen eine wie in Abbildung 2.1 gezeigt in der Papierebene liegt und die andere senkrecht aus der Ebene heraus ragt, dann wird bei einer Streuung unter  $\psi = 0$  die in der Papierebene liegende Feldkomponente ausgelöscht, während für die Feldkomponente senkrecht zur Papierebene  $\psi = 90^\circ$  gilt und sich die maximale Amplitude ergibt. Dadurch ist es möglich Strahlung oder Licht zu polarisieren oder zu analysieren.

Der mit  $f$  gekennzeichnete Term in Gleichung 2.3 wird als Streufaktor bezeichnet. Er gibt das Amplitudenverhältnis der Streuung des gedämpften Oszillators zur Streuung des freien Elektrons an. Im Falle eines freien Elektrons ( $\omega_0 = 0$  und  $\Gamma = 0$ ) beträgt sein Wert minus eins und die Stärke der gestreuten Welle ist durch den klassischen Elektronenradius  $r_e = 2,818 \cdot 10^{-15}$  m für  $q = -e$  gegeben.

Maximal wird der Streufaktor, wenn sich das System in Resonanz befindet und die Frequenz der einfallenden Welle  $\omega = \omega_0$  beträgt. Dies wird bei der resonanten Röntgenstreuung ausgenutzt.

In Gleichung 2.3 ist keine Änderung der Frequenz  $\omega$  vorgesehen, wie es bei der inelastischen Streuung (z.B. Compton-Streuung) der Fall ist. In der, im nachfolgenden noch ausführlicher betrachteten, dynamischen Interferenztheorie wird die Compton-Streuung durch den Absorptionskoeffizient berücksichtigt (siehe Abschnitt 2.2.4). Ebenfalls vernachlässigt wird der Spin und Bahndrehimpuls des Elektrons und das sich daraus ergebende magnetische Moment  $\vec{m}$ . Dessen Wechselwirkung mit der magnetischen Flussdichte  $\vec{B}$  würde zu einem zusätzliche Kraftterm  $\vec{F} = \frac{1}{c} \text{grad}(\vec{m} \times \vec{B})$  in Gleichung 2.3 führen. Der Gradient des Kreuzprodukts  $\vec{m} \times \vec{B}$  ist proportional zu  $k$  und somit zu  $1/\lambda$ . Aufgrund der kleinen Wellenlänge sind die magnetischen Wechselwirkungen im Röntgenbereich drei bis vier Größenordnungen stärker als für sichtbares Licht. Daraus ergeben sich einige interessante Anwendungen im Bereich der Magnetooptik (z.B. engl: x-ray magnetic circular dichroism kurz: XMCD), bei denen die Polarisation der verwendeten Strahlung eine wichtige Rolle spielt.

## 2.2 Röntgenbeugung an perfekten Kristallen

### 2.2.1 Die Grundgleichungen der dynamischen Theorie

Die dynamische Theorie erklärt die Beugungsphänomene, die bei der Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit perfekten Kristallen auftreten, mithilfe der Dynamik der Dipolstrahler. Sie wurde unabhängig voneinander von Charles Galton Darwin (1914) [22] und Paul Peter Ewald (1917) [23] entwickelt. Trifft eine elektromagnetische Welle auf einen Kristall, so werden die Ladungen in diesem in Schwingungen versetzt und es entstehen viele Dipole, die Dipolstrahlung aussenden. Die emittierten Wellen überlagern sich und können unter bestimmten Gegebenheiten konstruktiv miteinander interferieren, wodurch starke Beugungsmaxima entstehen. Im Folgenden sind die Grundlagen für die Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit perfekten Kristallen zusammengefasst.

Im vorhergehenden Abschnitt wurde bereits die Bewegung einer einzelnen Ladung und das so entstandene Dipolmoment betrachtet. Möchte man diese Beschreibung auf einen Kristall erweitern, so bietet es sich an, von einer einzelnen Ladung  $q$  zu einer Ladungsdichteverteilung  $e\rho(\vec{r})$  überzugehen. Analog zur Gleichung 2.2 erhält man dann für das Dipolmoment  $d\vec{p}$  in einem unendlich kleinen Volumenelement  $dV$ :

$$\frac{d\vec{p}}{dV} = \frac{\rho(\vec{r})e^2\vec{E}(\vec{r})}{m(\omega_0^2 - \omega^2) - i\omega\Gamma}. \quad (2.4)$$

Dieser Differentialquotient entspricht der dielektrischen Polarisation  $\vec{P}(\vec{r})$  am Ort  $\vec{r}$ . Durch die anwesende elektromagnetische Welle entstehen viele Dipole und das gesamte Medium wird polarisiert. Das elektrische Feld  $\vec{E}(\vec{r})$  und die dielektrische Polarisation  $\vec{P}(\vec{r})$  sind über die Materialgleichung mit der elektrischen Flussdichte (oder auch dielektrische Verschiebung)  $\vec{D}(\vec{r})$  in linearer Näherung wie folgt verknüpft:

$$\vec{D}(\vec{r}) = \epsilon\vec{E}(\vec{r}) = \epsilon_0\vec{E}(\vec{r}) + \vec{P}(\vec{r}) = \epsilon_0(1 + \chi(\vec{r}))\vec{E}(\vec{r}). \quad (2.5)$$

Hierbei ist  $\varepsilon$  die Permittivität (oder auch dielektrische Leitfähigkeit) des Mediums,  $\varepsilon_0$  die elektrische Feldkonstante und  $\chi(\vec{r})$  die elektrische Suszeptibilität. Für Letztere ergibt sich aus Gleichung 2.4 und 2.5:

$$\chi(\vec{r}) = \frac{\rho(\vec{r})e^2}{\varepsilon_0[m(\omega_0^2 - \omega^2) - i\omega\Gamma]}. \quad (2.6)$$

In einem Kristall ist die Ladungsdichteverteilung  $e\rho(\vec{r})$  und somit auch die elektrische Suszeptibilität  $\chi(\vec{r})$  eine dreidimensionale periodische Funktion.  $\chi(\vec{r})$  kann daher durch eine Fourierreihe wie folgt dargestellt werden:

$$\chi(\vec{r}) = \sum_{\vec{h}} \chi_h \exp(2\pi i \vec{h} \cdot \vec{r}). \quad (2.7)$$

Durch die Fourierentwicklung geht man vom realen Raum in den reziproken Raum über. Aus dem Kristallgitter wird das reziproke Gitter und aus den Gittervektoren werden die reziproken Gittervektoren  $\vec{h}$ . Die Summation erfolgt über alle reziproken Gittervektoren  $\vec{h}$ . Für den Fourierkoeffizienten gilt:

$$\chi_h = \frac{e^2}{\varepsilon_0 V} \int_V \frac{\rho(\vec{r})}{m(\omega_0^2 - \omega^2) - i\omega\Gamma} \exp(-2\pi i \vec{h} \cdot \vec{r}) dV \quad (2.8)$$

wobei  $V$  das Volumen der Elementarzelle ist.

Die Elementarzelle ist ein Parallelepiped (z.B. ein Würfel), das von den Basisvektoren des Kristallgitters aufgespannt wird. Innerhalb dieser Elementarzelle befinden sich die Atome  $j$  an festen Orten  $r_j$ . Die Ladungen sind ebenfalls am Ort des Atoms  $r_j$  lokalisiert, weswegen das Integral über  $V$  durch eine Summe über alle Atome ersetzt werden kann. Jedes Atom  $j$  trägt mit seinem atomaren Streufaktor  $f_j$  (Atomformfaktor) zur Beugung bei. Ob dieser Beitrag konstruktiv oder destruktiv ist, lässt sich mit einem Phasenterm der Form  $\exp(-2\pi i \vec{h} \cdot \vec{r}_j)$  berücksichtigen. Für bestimmte reziproke Gittervektoren  $\vec{h}$  kann es so zu einer Auslöschung kommen und es wird keine Beugung am Kristall beobachtet. Hinzu kommt, dass sich die Atome im Festkörper nicht in Ruhe befinden, sondern aufgrund von Temperatur und Nullpunktsschwingung um ihre Ruhelage schwingen. Die Atomposition wird daher durch eine mittlere Atomposition ersetzt. Außerdem wird durch die Bewegung der Atome der Streuprozess geschwächt, was durch den Debye-Waller-Faktor  $\exp(-M_j)$  berücksichtigt wird.  $M_j$  ist hierbei eine dimensionslose Größe, die unter anderem von der Temperatur und der Debye-Temperatur  $\Theta_D$  des Kristalls abhängt. Je niedriger die Temperatur und je höher die Debye-Temperatur des Materials, desto geringer ist die Schwingung der Atome um ihre mittlere Ruhelage und umso kleiner ist  $M_j$ . Für die Fourierkoeffizienten der Suszeptibilität ergibt sich dann:

$$\chi_h = -\frac{r_e \lambda^2}{\pi V} \underbrace{\sum_j f_j \exp(-2\pi i \vec{h} \cdot \vec{r}_j - M_j)}_{=F_h}. \quad (2.9)$$

Der als  $F_h$  gekennzeichnete Teil der Gleichung ist der Strukturfaktor. Er wird oft als Maß für die Stärke des Beugungsprozesses herangezogen. Vereinfacht kann man sagen, je mehr Elektronen sich in der Elementarzelle befinden, desto mehr kohärente Streuer gibt es, die sich am Streuprozess beteiligen können. Der Strukturfaktor nimmt also bei gleicher Kristallstruktur mit größerer Ordnungszahl  $Z$  des

Kristallmaterials zu, was sich in einer größeren Halbwertsbreite und einem größeren integralen Reflexionsvermögen der später noch betrachteten Reflexionskurven (oder auch Rockingkurven) äußert. Für höhere Beugungsordnungen (größere  $(hkl)$ ) wird  $F_h$  immer kleiner.

Der Atomformfaktor  $f_j$  in Gleichung 2.9 wird oft noch in drei Teile zerlegt:

$$f_j = f_j^0 + f_j' + if_j'' \quad (2.10)$$

von denen  $f_j^0$  der normale Atomformfaktor ist und es sich bei  $f_j'$  und  $f_j''$  um anormale Dispersionskorrekturen handelt.

An dieser Stelle sei nochmal darauf hingewiesen, dass die elektrische Suszeptibilität  $\chi(\vec{r})$  eine der wichtigsten Größen in der Röntgenbeugung ist. Alle relevanten Eigenschaften des Kristalls sind in ihr vereint. Weit weg von Absorptionskanten mit  $\omega_0 \ll \omega$  und kleinem  $\Gamma$ , sowie unter Vernachlässigung der anormalen Dispersionskorrekturen kann  $\chi(\vec{r})$  näherungsweise als:

$$\chi_n(\vec{r}) = -\frac{\rho(\vec{r})r_e\lambda^2}{\pi} \quad (2.11)$$

geschrieben werden. Hieraus wird ersichtlich, dass die Suszeptibilität negativ und für Röntgenstrahlung ( $\lambda \approx 10^{-10}$  m) in der Größenordnung von  $10^{-5}$  bis  $10^{-7}$  ist. In dieser einfachen Beschreibung ist die Suszeptibilität isotrop und ein Skalar. Bedingt durch die lokale Umgebung des Atoms, der Ausrichtung von magnetischen Momenten oder den Elektronenorbitalen ist sie genau genommen anisotrop und ein Tensor zweiter Stufe. Das kann zu einigen interessanten Effekten führen, wie der Doppelbrechung von Röntgenstrahlung, optischer Aktivität oder dem Auftreten von sonst verbotenen Reflexen.

Um die Ausbreitung einer elektromagnetischen Welle im Kristall zu verstehen, ist es sinnvoll, die Wellengleichung aus den Maxwell-Gleichungen herzuleiten und zu lösen. Da der Kristall als Ganzes elektrisch neutral ist, heben sich alle Ströme und Ladungen in ihm auf. Die Maxwell-Gleichungen können dann wie folgt geschrieben werden:

$$\text{rot}\vec{H} = \frac{\partial\vec{D}}{\partial t} \quad (2.12)$$

$$\text{rot}\vec{E} = -\frac{\partial\vec{B}}{\partial t} \quad (2.13)$$

$$\text{div}\vec{D} = 0 \quad (2.14)$$

$$\text{div}\vec{B} = 0. \quad (2.15)$$

Für die Herleitung der Wellengleichung wendet man z.B. einen weiteren Rotationsoperator (rot) auf Gleichung 2.13 an und setzt für  $\vec{E}$  die umgestellte Materialgleichung  $\vec{E} = \vec{D}/[\epsilon_0(1 + \chi)] \approx \vec{D}(1 - \chi)/\epsilon_0$  ein. Zusätzlich macht man von Gleichung 2.12 und 2.15, sowie der Materialgleichung für die magnetische Flussdichte  $\vec{B} = \mu_0\vec{H}$  Gebrauch. Als Wellengleichung im Medium erhält man dann:

$$\Delta\vec{D} + \text{rot}\text{rot}\chi\vec{D} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{D} = 0. \quad (2.16)$$

Die Lösung dieser Gleichung ist eine Linearkombination von Einzellösungen und weist die selbe Periodizität wie die Suszeptibilität (vgl. Gleichung 2.7) auf:

$$\vec{D} = \exp(-2\pi i \vec{K}_0 \cdot \vec{r} - i\omega t) \sum_h \vec{D}_h \exp(-2\pi i \vec{h} \cdot \vec{r}). \quad (2.17)$$

Hierbei ist  $\vec{K}_0$  der Wellenvektor der einfallenden, ebenen Welle. Durch die zusätzliche Vereinbarung:

$$\vec{K}_h = \vec{K}_0 + \vec{h} \quad (2.18)$$

kann Gleichung 2.16 in

$$\vec{D} = \sum_h \vec{D}_h \exp(-2\pi i \vec{K}_h \cdot \vec{r} - i\omega t). \quad (2.19)$$

umgeformt werden. Somit wird ersichtlich, dass die elektrische Flussdichte  $\vec{D}$  im Kristall eine Summe aus unendlich vielen ebenen Wellen ist. Die einzelnen Wellen sind stark aneinander gebunden und formen eine physikalische Einheit, die als Wellenfeld bezeichnet wird. Setzt man diesen Lösungsansatz in die Wellengleichung 2.16 ein, so erhält man für die Vorfaktoren  $\vec{D}_h$ :

$$\vec{D}_h = \frac{\vec{K}_h^2}{\vec{K}_h^2 - k^2} \sum_{h'} \chi_{h-h'} \vec{D}_{h'[h]}. \quad (2.20)$$

Dabei ist  $\vec{D}_{h'[h]}$  die zu  $\vec{K}_h$  senkrechte Komponente des Vektors  $\vec{D}_{h'}$ . Gleichung 2.20 ist ein Satz unendlich vieler Gleichungen. Diese werden als *Grundgleichungen der dynamischen Theorie* bezeichnet. Für die physikalische Interpretation ist der Resonanzfaktor  $1/(\vec{K}_h^2 - k^2)$  vor der Summe interessant. An ihm erkennt man, dass insbesondere die Wellen mit einem Wellenvektor  $K_h$  sehr stark zum Wellenfeld beitragen, für die gilt  $|\vec{K}_h| \approx k = 1/\lambda$ . Der Beitrag aller anderen Wellen ist eher gering. Bei der Röntgenbeugung darf sich also der Betrag des Wellenzahlvektors nicht ändern. Der Summand  $+\vec{h}$  in Gleichung 2.18 führt somit nur zu einer Richtungsänderung. Geometrisch kann man sich das Ganze veranschaulichen, indem man eine Kugel mit dem Radius  $k = 1/\lambda$  im reziproken Gitter zeichnet. Die Verbindungslinien vom Mittelpunkt der Kugel zu zwei Gitterpunkten auf der Kugel sind die Wellenvektoren  $\vec{K}_0$  und  $\vec{K}_h$  (siehe Abbildung 2.2(a)). Sie haben beide einen Betrag von  $1/\lambda$ . Der reziproke Gittervektor  $\vec{h}$  ist die Verbindungslinie zwischen den beiden Gitterpunkten auf der Kugel. Diese Konstruktion wird auch als Ewaldkonstruktion bezeichnet und die Kugel entsprechend als Ewaldkugel. Bei Gleichung 2.18 handelt es sich um die Laue-Bedingung. Eine dazu äquivalente Beschreibung von Beugungseffekten am Kristall ist die Bragg-Bedingung. Bei dieser spannen die im Kristall geordneten Atome eine Schar von Netzebenen auf, die sich durch einen Netzebenenabstand  $d_{hkl}$ <sup>1</sup> beschreiben lassen. Trifft ein monochromatischer Röntgenstrahl der Wellenlänge  $\lambda$  unter einem Winkel  $\theta$  auf eine solche Netzebenenschar, wird ein Teil der Strahlung an der ersten und ein anderer Teil an tiefer liegenden Netzebenen gebeugt (vgl. Abb. 2.2(b)). Entspricht der Gangunterschied der beiden gebeugten

<sup>1</sup>Für die in dieser Arbeit überwiegend verwendeten kubischen Kristalle berechnet sich der Netzebenenabstand aus den Miller-Indizes  $(h, k, l)$  mit  $d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}$

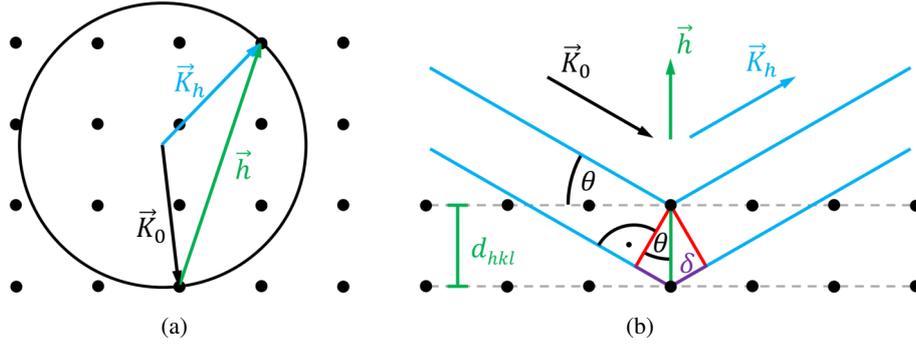


Abbildung 2.2: a) Zweidimensionale Darstellung der Ewaldkugel im reziproken Gitter mit den Wellenvektoren der einfallenden  $\vec{K}_0$  und der gebeugten Welle  $\vec{K}_h$  sowie dem reziproken Gittervektor  $\vec{h}$ . b) Veranschaulichung der Bragg-Bedingung

Strahlen genau einem ganzzahligen Vielfachen  $n$  der Wellenlänge, können diese konstruktiv miteinander interferieren. Aus einfachen geometrischen Überlegungen ergibt sich die Bragg Bedingung zu:

$$n\lambda = 2d_{hkl}\sin(\theta). \quad (2.21)$$

Der Einfallswinkel  $\theta$ , der die Bragg-Bedingung erfüllt, wird Bragg-Winkel  $\theta_B$  genannt.

Die vektorielle Form der Gleichung 2.20 lässt sich für Transversalwellen auflösen, indem man zwei orthogonale Basisvektoren  $\vec{e}^\sigma$  und  $\vec{e}^\pi$  für die beiden Polarisationsrichtungen senkrecht ( $\sigma$ ) und parallel ( $\pi$ ) zur Beugungsebene einführt. Die Welle  $\vec{D}_h$  kann dann geschrieben werden als:

$$\vec{D}_h = D_h^\sigma \vec{e}^\sigma + D_h^\pi \vec{e}^\pi. \quad (2.22)$$

Außerdem reduziert sich die Summe in Gleichung 2.19 im Zweistrahlfall, bei dem nur zwei reziproke Gitterpunkte auf der Ewaldkugel liegen (wie in Abb. 2.2(a) gezeigt), auf die in Vorwärtsrichtung gebeugte Welle  $\vec{D}_0$  mit Wellenvektor  $\vec{K}_0$  und die gebeugte Welle  $\vec{D}_h$  mit  $\vec{K}_h$ . Dadurch ergeben sich für die zwei Polarisationsrichtungen und die beiden Wellen folgende vier Gleichungen:

$$\vec{D}_0^\sigma = \frac{\vec{K}_0^2}{\vec{K}_0^2 - k^2} [\chi_0 \vec{D}_0^\sigma (\vec{e}_0^\sigma \cdot \vec{e}_0^\sigma) + \chi_h \vec{D}_h^\sigma (\vec{e}_0^\sigma \cdot \vec{e}_h^\sigma)], \quad (2.23)$$

$$\vec{D}_0^\pi = \frac{\vec{K}_0^2}{\vec{K}_0^2 - k^2} [\chi_0 \vec{D}_0^\pi (\vec{e}_0^\pi \cdot \vec{e}_0^\pi) + \chi_h \vec{D}_h^\pi (\vec{e}_0^\pi \cdot \vec{e}_h^\pi)], \quad (2.24)$$

$$\vec{D}_h^\sigma = \frac{\vec{K}_h^2}{\vec{K}_h^2 - k^2} [\chi_h \vec{D}_0^\sigma (\vec{e}_h^\sigma \cdot \vec{e}_0^\sigma) + \chi_0 \vec{D}_h^\sigma (\vec{e}_h^\sigma \cdot \vec{e}_h^\sigma)], \quad (2.25)$$

$$\vec{D}_h^\pi = \frac{\vec{K}_h^2}{\vec{K}_h^2 - k^2} [\chi_h \vec{D}_0^\pi (\vec{e}_h^\pi \cdot \vec{e}_0^\pi) + \chi_0 \vec{D}_h^\pi (\vec{e}_h^\pi \cdot \vec{e}_h^\pi)]. \quad (2.26)$$

Die Einheitsvektoren  $\vec{e}_0^\sigma$  und  $\vec{e}_h^\sigma$  stehen im Zweistrahlfall parallel zueinander, weswegen für das Skalarprodukt  $\vec{e}_0^\sigma \cdot \vec{e}_h^\sigma = 1$  gilt. Für die  $\pi$ -Polarisation ist das nicht der Fall. Zwischen den Vektoren  $\vec{e}_0^\pi$  und  $\vec{e}_h^\pi$  stellt sich der Winkel  $2\theta_B$  ein, womit sich für das Skalarprodukt  $\vec{e}_0^\pi \cdot \vec{e}_h^\pi = \cos(2\theta_B)$  ergibt. Aus diesen beiden Beziehungen resultiert auch die Definition des Polarisationsfaktors  $C$ :

$$C = \begin{cases} 1 & \text{für } \sigma - \text{Polarisation} \\ \cos(2\theta_B) & \text{für } \pi - \text{Polarisation.} \end{cases} \quad (2.27)$$

Liegen mehrere reziproke Gitterpunkte auf der Ewaldkugel (Mehrstrahlfall), müssen die  $\pi$ - und  $\sigma$ -Komponenten der unterschiedlichen Reflexe nicht notwendigerweise senkrecht zueinander stehen. Dadurch kann ein Polarisationsstand über einen Umweg Intensität erhalten, der im Zweistrahlfall nicht angeregt worden wäre. Diese sogenannten Umweganregungen stellen ein Limit für die Röntgenpolarimetrie mit Kristallen dar und werden in Abschnitt 2.2.3 genauer behandelt.

### 2.2.2 Der Bragg-Fall

Beim Bragg-Fall verlassen einfallender und gebeugter Strahl den Kristall an der selben Oberfläche. Für das Reflexionsvermögen  $R_h(\theta)$  im Zweistrahlfall ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$R_h(\theta) = |\gamma| \left| \frac{D_h}{D_0} \right|^2 = \frac{|\chi_h|}{|\chi_{\bar{h}}|} \frac{|E_1 - E_2|^2}{|\eta(E_1 - E_2) + \sqrt{\eta^2 - 1}(E_1 + E_2)|^2} \quad (2.28)$$

mit  $E_1 = \exp(+i\pi t \sqrt{\eta^2 - 1}/\Lambda_0)$  und  $E_2 = \exp(-i\pi t \sqrt{\eta^2 - 1}/\Lambda_0)$  [19]. Hierbei ist  $t$  die Dicke des Kristalls,  $\eta$  ein dimensionsloser Parameter, der die Abweichung des einfallenden Strahls von der Mitte der Reflexionskurve angibt, und  $\Lambda_0$  die Extinktionstiefe. Für diese Parameter gelten [19]:

$$\eta = \frac{(\theta - \theta_B) - \Delta\theta_{OS}}{\delta_{OS}} \quad (2.29)$$

und

$$\Lambda_0 = \frac{\lambda \sqrt{|\gamma_0| |\gamma_h|}}{C \sqrt{|\chi_h| |\chi_{\bar{h}}|}} = \frac{\pi V \sqrt{|\gamma_0| |\gamma_h|}}{r_e \lambda C \sqrt{F_h F_{\bar{h}}}}. \quad (2.30)$$

Aufgrund eines Brechungsindexunterschieds zwischen Medium und Vakuum, der für Röntgenstrahlung im Bereich von  $10^{-6}$  liegt, wird der einfallende Strahl in den Kristall hinein gebrochen und es kommt zu einer kleinen Winkelabweichung. Die Mitte der Reflexionskurve liegt daher nicht wie erwartet bei  $\theta = \theta_B$ , sondern ist um  $\Delta\theta_{OS} = -\chi_0(1 - \gamma)/(2\sin(2\theta_B))$  gegenüber dem Braggwinkel verschoben.  $\gamma$  ist hierbei das Asymmetrieverhältnis und berücksichtigt, dass die beugenden Netzebenen nicht zwangsläufig parallel zur Kristalloberfläche sein müssen. Das Asymmetrieverhältnis kann mit  $\gamma = \gamma_h/\gamma_0 = -\sin(\theta_B - \alpha)/\sin(\theta_B + \alpha)$  berechnet werden, wobei  $\alpha$  der Winkel zwischen Kristalloberfläche und Netzebene ist und  $\alpha < 0$  für streifenden Einfall gilt. Der Realteil von  $2\delta_{OS}$  ist die Breite der Darwin-Kurve, d.h. der Bereich, in dem das Reflexionsvermögen für nicht absorbierende Kristalle gleich eins ist, und ergibt sich zu  $\delta_{OS} = \lambda |\gamma_h| / (\Lambda_0 \sin(2\theta_B))$ . Bei  $C$  handelt es sich um den

bereits in Gleichung 2.27 angegebenen Polarisationsfaktor, der für  $\sigma$ -polarisierte Strahlung eins und für  $\pi$ -polarisierte gleich  $\cos(2\theta_B)$  ist.

Ist die Bragg-Bedingung erfüllt, nimmt die Intensität der Röntgenwelle mit zunehmender Kristalltiefe ab, da ein Teil der Intensität bereits in den obersten Atomlagen in Richtung  $\vec{K}_h$  gebeugt wurde. Die Extinktionstiefe  $\Lambda_0$  (vgl. Gl. 2.30) ist die Tiefe, bei der die Intensität der Röntgenwelle durch den Beugungsprozess auf  $1/e^2$  abgefallen ist. Sie ist umgekehrt proportional zur Wellenlänge, dem Polarisationsfaktor  $C$  und dem Strukturfaktor. Mit kürzerer Wellenlänge und kleinerem Strukturfaktor wird  $\Lambda_0$  immer länger und die Rockingkurven werden immer schmaler ( $\delta_{OS} \sim 1/\Lambda_0$ ). Zusätzlich ist aufgrund des Polarisationsfaktors  $C$  ( $\sigma$ :  $C = 1$  und  $\pi$ :  $C = \cos(2\theta_B)$ ) die Extinktionstiefe für  $\pi$ -polarisierte Strahlung immer größer, die Reflexionskurvenbreite immer schmaler und die Intensität immer geringer als für die  $\sigma$ -Polarisation. Insbesondere in der Nähe von  $\theta_B = 45^\circ$  ist eine deutliche Veränderung der Kurvenform zu erkennen (siehe Abbildung 2.3). Hier wird der Polarisationsfaktor für die  $\pi$ -Komponente immer kleiner, was zu einer größeren Extinktionstiefe und schmalere Reflexionskurven führt. Eine Besonderheit von Diamant gegenüber Silizium ist die geringe Absorption, weswegen die theoretischen Rockingkurven (Darwin-Prins-Kurven) der  $\sigma$ -Polarisation fast immer 99% im Maximum erreichen. Die schwache Absorption führt aber auch dazu, dass der Röntgenstrahl selbst bei Extinktionstiefen von mehreren  $100\mu\text{m}$  im Kristall nur wenig abgeschwächt wird. Daher haben die Reflexionskurven der  $\pi$ -Polarisation vergleichsweise hohe Maxima. Dies ist z.B. an der Kurve für die  $\pi$ -Komponente bei  $44,5^\circ$  in Abbildung 2.3 zu sehen. Für sie beträgt die Extinktionstiefe  $\Lambda_0^\pi = 200\mu\text{m}$ , dennoch ist das Kurvenmaximum immer noch 60% hoch. Bei Silizium ist die  $\pi$ -Polarisation bereits bei  $40^\circ$  auf 50% abgeschwächt und bei  $44,5^\circ$  lediglich weniger als 2% stark [12]. Das geschilderte Verhalten der Rockingkurven ist entscheidend für die Verwendung von Diamant in der hochpräzisen Röntgenpolarimetrie. Mit einem Reflexionsvermögen von fast 100% für die  $\sigma$ -Polarisation, sind die Kristalle gut für die mehrmalige Reflexion in einem Channel-Cut geeignet. Die Intensität der erwünschten  $\sigma$ -Polarisation wird dann kaum abgeschwächt und die Channel-Cuts haben minimale Verluste. Gleichzeitig erschwert die geringe Absorption die Röntgenpolarimetrie bei Braggwinkeln  $\theta_B \neq 45^\circ$ , aufgrund der vergleichsweise starken  $\pi$ -Polarisation und der geringen Polarisationsreinheit, die damit erreicht werden kann. Die gezeigten Reflexionskurven wurden mit der arbeitsgruppeninternen MATLAB-Routine *RC* berechnet [24].

Das integrale Reflexionsvermögen  $R_h^{Int.}(\theta)$  lässt sich für nicht absorbierende Kristalle mit:

$$R_h^{Int.} = \pi \delta_{OS} \tanh\left(\frac{\pi t}{\Lambda_0}\right) = \pi \frac{|C| \sqrt{|\gamma|} \sqrt{\chi_h \chi_{\bar{h}}}}{\sin(2\theta_B)} \tanh\left(\frac{\pi t}{\Lambda_0}\right) \quad (2.31)$$

berechnen [19]. Dabei kann der Tangens hyperbolicus ( $\tanh$ ) von  $\pi t/\Lambda_0$  Werte zwischen Null und Eins annehmen und strebt für dicke Kristalle  $t > \Lambda_0$  gegen Eins. In diesem Fall hängt das Integral hauptsächlich von  $\delta_{OS}$  ab und ist proportional zum Polarisationsfaktor  $C$ , der für  $\pi$ -polarisierte Strahlung  $C = \cos(2\theta_B)$  beträgt. Letzteres wird bei der Röntgenpolarimetrie mit Kristallen genutzt, um die Polarisation parallel zur Beugungsebene auszulöschen. Dafür muss der Braggwinkel  $45^\circ$  betragen, was auf zwei Arten erreicht werden kann. Die erste Möglichkeit wäre, bei einer gegebenen Wellenlän-

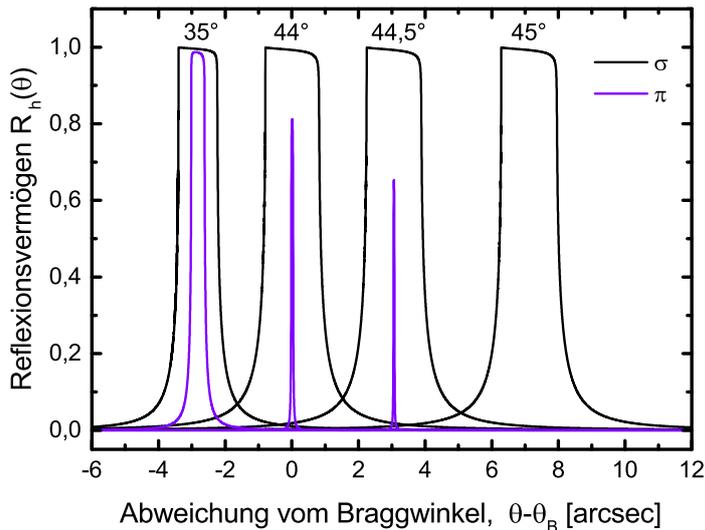


Abbildung 2.3: Reflexionskurven für die beiden Polarisationskomponenten  $\sigma$  und  $\pi$  bei verschiedenen Bragg-Winkeln. Bei  $45^\circ$  verschwindet die  $\pi$ -Komponente der Strahlung. Für eine bessere Darstellung wurden die Kurven bei  $35^\circ$ ,  $44^\circ$  und  $45^\circ$  um einige Bogensekunden verschoben.

ge eine geeignete Kristallreflexion zu suchen, so dass sich ein Braggwinkel von ca.  $45^\circ$  ergibt. Ein Beispiel dafür ist der Ge(333)-Reflex, dessen Braggwinkel für Cu  $K\alpha$ -Strahlung  $45,03^\circ$  beträgt. Mit zwei Kristallreflexionen kann so eine Reinheit von besser als  $10^{-5}$  erreicht werden. Möchte man eine noch höhere Reinheit des Polarisationszustandes erreichen, muss die Wellenlänge der verwendeten Strahlung so eingestellt werden, dass sich ein Braggwinkel von exakt  $45^\circ$  ergibt und der Polarisationsfaktor  $C = \cos(2\theta_B)$  verschwindet. Die Wellenlänge wird dann von der verwendeten Kristallreflexion z.B. C(400) oder Si(800) vorgegeben. Nachteil dieser Methode ist, dass man eine Röntgenquelle braucht, deren Wellenlänge sich variabel einstellen lässt. Aus diesem Grund finden solche Experimente an Synchrotrons oder Freien-Elektronen-Lasern statt, die über Experimentierstationen mit Undulatoren verfügen.

### 2.2.3 Mehrstrahlfälle und Umweganregungen

Liegen mehr als zwei reziproke Gitterpunkte auf der Ewald-Kugel, so ist von Mehrstrahlfällen die Rede. Neben der einfallenden und der gebeugten Welle mit  $\vec{K}_0$  und  $\vec{K}_h$  können dann noch weitere Wellenvektoren existieren, die die Laue-Bedingung für andere reziproke Gittervektoren erfüllen. Ein solches Szenario ist z.B. der Dreistrahlfall, bei dem drei reziproke Gitterpunkte auf der Ewaldkugel liegen. Dieser ist in Abbildung 2.4(a) dargestellt.

Abbildung 2.4(b) veranschaulicht den Dreistrahlfall mit drei Netzebenen. Die einfallende Welle mit Wellenvektor  $\vec{K}_0$  wird wie im Zweistrahlfall auch an der Netzebene  $\vec{h}$  gebeugt und es entsteht eine reflektierte Welle, die sich in Richtung  $\vec{K}_h$  ausbreitet. Zusätzlich erfüllt  $\vec{K}_0$  die Bragg-Bedingung für die Netzebene  $\vec{g}$ , wodurch es zu einer weiteren Beugung mit Ausbreitungsrichtung  $\vec{K}_g$  kommt. Diese Welle kann wiederum an der Netzebene  $\vec{h} - \vec{g}$  in Richtung der primären Reflexion  $\vec{K}_h$  gebeugt werden. Durch diesen entstandenen Umweg gelangt Intensität von der Welle  $\vec{K}_g$  in Richtung von  $\vec{K}_h$ . Problematisch hierbei ist, dass die letzte Beugung ( $\vec{K}_g$  zu  $\vec{K}'_h$ ) im Allgemeinen nicht bei einem Braggwinkel von  $45^\circ$  stattfindet und die Beugungsebene auch nicht parallel zur Beugungsebene der primären Reflexion steht, wodurch letztendlich  $\pi$ -polarisierte Strahlung in den fortlaufenden Strahlengang gelangt. Man

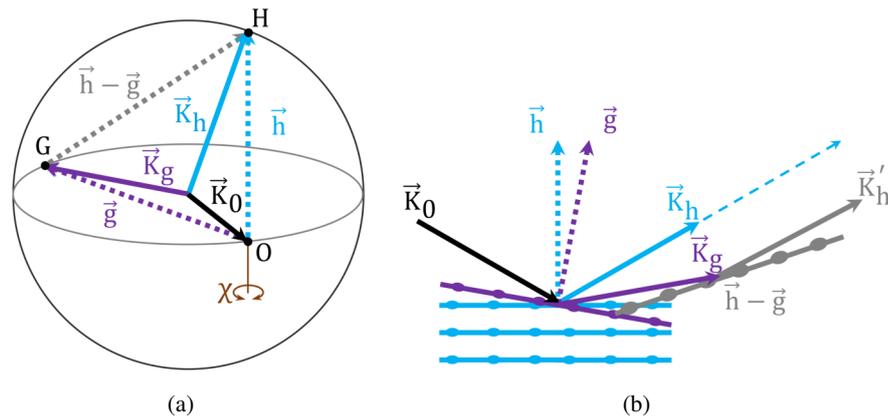


Abbildung 2.4: Veranschaulichung des Dreistrahlfalls mit Hilfe a) der Ewaldkugel und drei reziproken Gitterpunkten (O, G, H) und b) beugenden Netzebenen. Der einfallende Strahl  $\vec{K}_0$  wird an den beiden Netzebenen senkrecht zu  $\vec{h}$  und  $\vec{g}$  gebeugt. Es entstehen zwei Wellen mit  $\vec{K}_h$  und  $\vec{K}_g$ . Die Welle  $\vec{K}_g$  kann wiederum an einer Netzebene senkrecht zu  $\vec{h}-\vec{g}$  gebeugt werden.

kann sich diese Umweganregungen auch als ein System gekoppelter Pendel vorstellen, bei denen ein permanenter Energieaustausch zwischen den einzelnen Pendeln stattfindet. Selbst wenn für die Netzebene  $\vec{g}$  die Bragg-Bedingung nicht exakt erfüllt ist, kann über die Rockingkurvenausläufer Intensität der unerwünschten  $\pi$ -Polarisation übertragen und die erreichbare Polarisationsreinheit begrenzt werden. Insbesondere bei sehr hohen Reinheiten von bis zu  $10^{-10}$  gewinnen die schwachen Mehrstrahlfälle, angeregt durch die Rockingkurvenausläufer, zunehmend an Bedeutung. Ihre Intensität skaliert bei Kristallen der Diamantstruktur mit  $Z^4$ , wobei  $Z$  die Ordnungszahl ist [25]. Mehrstrahlfälle im Diamant mit  $Z = 6$  sollten somit deutlich schwächer sein, als in Silizium mit  $Z = 14$ . Darüber hinaus kann der Einfluss von Umweganregungen minimiert werden, indem der Kristall azimuthal um den reziproken Gittervektor  $\vec{h}$  gedreht wird (siehe Abbildung 2.4(a) Drehwinkel  $\chi$ ). Die Bragg-Bedingung bleibt dabei für  $K_0$  und  $K_h$  erfüllt, da beide Strahlen auf einem Kegelmantel sitzen, der als *Kosselkegel* bezeichnet wird. Mit dem Programm *Multidiffraction*, das von Kai Sven Schulze während seiner Promotion entwickelt wurde, kann die Intensität der Umweganregungen und das sich daraus ergebende Limit für die Polarisationsreinheit in Abhängigkeit vom azimuthalen Drehwinkel  $\chi$  berechnet werden [12]. Dafür wird eine endliche Schale um die Ewaldkugel gelegt und es werden alle Reflexe ermittelt, die sich bei einem bestimmten Azimut innerhalb dieser Schale befinden. Der Beitrag dieser Reflexe zur Intensität der gebeugten Welle wird für beide Polarisationskomponenten berechnet indem Gleichung 2.19 und 2.20 im Mehrstrahlfall für  $N$  Strahlen (mit  $N > 100$ ) gelöst wird. Abbildung 2.5 zeigt eine solche Berechnung für den Si(004)- und den C(004)-Reflex bei einem Braggwinkel von exakt  $45^\circ$  und einer Photonenenergie von 6,46 keV bzw. 9,83 keV. Dabei wurde die Intensität der  $\pi$ -Komponente berechnet, die sich durch Umweganregungen aus der  $\sigma$ -Komponente der einfallenden Strahlung ergibt und ins Verhältnis zur reflektierten Intensität der  $\sigma$ -Komponente gesetzt.  $\chi$  ist so definiert, dass bei  $0^\circ$  und  $90^\circ$  die Beugungsebene senkrecht zur  $\langle 100 \rangle$ - bzw.  $\langle 010 \rangle$ -Richtung steht.

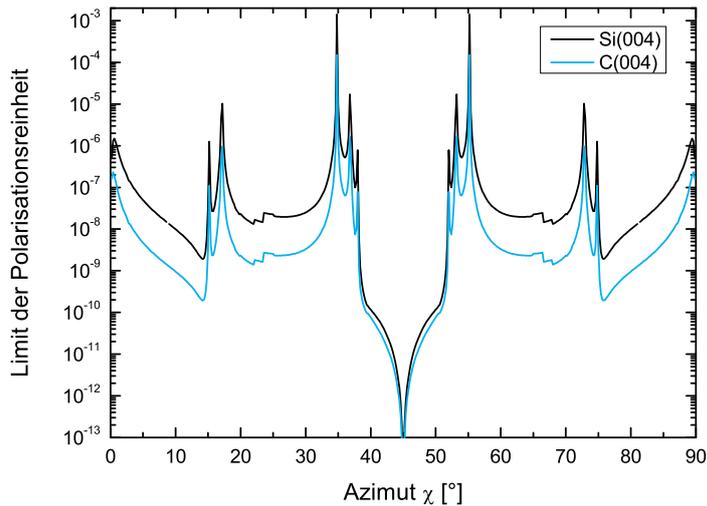


Abbildung 2.5: Limit der Polarisationsreinheit durch Umweganregungen für den symmetrischen (004)-Reflex von Silizium (schwarz) und Diamant (hellblau) bei einer Photonenergie von 6,46 keV bzw. 9,83 keV. Die Kurven wurden mit dem von Kai Sven Schulze entwickelten Programm *Multidiffraction* berechnet.

Jedes scharfe Maximum in Abbildung 2.5 ist eine starke Umweganregung, die es zu vermeiden gilt. Für beide Berechnungen sind exakt die selben Merkmale und Umweganregungen zu erkennen, was an der selben Kristallstruktur und Symmetrie von Diamant und Silizium, aber auch an der verwendeten Photonenergie liegt. Diamant und Silizium bilden beide ein kubisch-flächenzentriertes Gitter mit einer zweiatomigen Basis aus, das als Diamantstruktur bekannt ist. Die Symmetrien beider Kristalle sind somit identisch und es existieren die selben erlaubten und verbotenen Reflexe. Die unterschiedlichen Gitterkonstanten (Silizium: 5,43 Å, Diamant: 3,57 Å) führen dazu, dass bei Silizium die reziproken Gitterpunkte enger zusammen und bei Diamant weiter auseinander liegen. Bei der selben Wellenlänge, und somit einer Ewaldkugel mit dem Radius  $k = 1/\lambda$ , sind im engmaschigen reziproken Siliziumgitter mehr Reflexe erreichbar und damit auch mehr Umweganregungen möglich als bei Diamant. In der gezeigten Berechnung wird dieser Effekt durch die zwei verschiedenen Photonenergien kompensiert, da für beide Kristalle der Braggwinkel des (004)-Reflexes gleich  $45^\circ$  betragen sollte. Der Radius der Ewaldkugel für den C(004)-Reflex ist also im selben Maß größer, wie die reziproken Gitterpunkte im Diamant weiter auseinander liegen. Ebenfalls in der Abbildung zu erkennen ist, dass die Intensität der Umweganregungen für Diamant über einen großen Bereich des Azimuts um eine Größenordnung niedriger ist. Das bestätigt die von Tischler und Batterman [25] erkannte Intensitätsabnahme der Umweganregungen von Materialien mit kleinerem  $Z$ , wenn gleich der Effekt nicht ganz so groß ausfällt wie erwartet. Bei einem Azimut von  $45^\circ$  steht die Beugungsebene genau parallel bzw. senkrecht zu einer der  $\langle 110 \rangle$ -Richtungen. Aus Symmetriegründen interferieren bei dieser Stellung alle Wellenfelder, die zu einer Polarisationsänderung führen, im Kristall destruktiv, weswegen die Intensität der Umweganregungen stark abnimmt [12]. Diese Erkenntnis ist für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie sehr wertvoll, da nach aktuellem Kenntnisstand nur bei dieser azimuthalen Kristallorientierung eine Polarisationsreinheit von  $10^{-10}$  oder besser erreicht werden kann. Den Berechnungen zufolge muss das Azimut von Polarisator- und Analysator-Channel-Cut auf  $(45 \pm 5)^\circ$  genau eingestellt werden, um eine Reinheit von  $10^{-10}$  zu erreichen bzw. auf  $(45 \pm 0,5)^\circ$  für  $10^{-12}$ . Verdoppelt man die Photonenergie, ist die Bragg-Bedingung für den Si(008)- bzw. C(008)-Reflex erfüllt und es verdoppelt sich auch der Radius der Ewaldkugel. Dadurch sind wesentlich mehr

Umweganregungen möglich und der Bereich in dem alle Wellenfelder destruktiv interferieren wird schmaler. Für eine Polarisationsreinheit von  $10^{-10}$  muss das Azimut dann bereits auf  $(45 \pm 0,25)^\circ$  genau eingestellt werden.

## 2.2.4 Absorption

Um die Absorption von Röntgenstrahlung zu erklären ist es sinnvoll, die grundlegenden Wechselwirkungen zwischen Strahlung und Materie sowie die dabei stattfindende Energieübertragung zu betrachten. Genau wie bei der Streuung von Röntgenstrahlung in Abschnitt 2.1 interagiert die einfallende elektromagnetische Welle mit den Elektronen. Diese können im Festkörper die gesamte oder nur einen Teil der Photonenenergie absorbieren. Je nach Energiebereich sind dabei unterschiedliche Prozesse zu beachten. In dieser Arbeit wurde Röntgenstrahlung verwendet, deren Photonenenergie zwischen 8 und 29,5 keV lag. Für die Absorption sind demzufolge folgende Prozesse relevant:

- der photoelektrische Effekt mit dem Absorptionskoeffizient  $\mu^{PE}$ ,
- die unelastische Streuung durch den Compton-Effekt mit dem Absorptionskoeffizient  $\mu^C$
- und die unelastische Streuung aufgrund thermisch diffuser Streuung mit dem Absorptionskoeffizient  $\mu^T$ .

Insgesamt ergibt sich für den linearen Absorptionskoeffizienten [19]:

$$\mu = \mu^{PE} + \mu^C + \mu^T. \quad (2.32)$$

Den mit Abstand größten Beitrag liefert dabei der Absorptionskoeffizient des photoelektrischen Effekts  $\mu^{PE}$ . Für seinen Wirkungsquerschnitt  $\sigma^{PE}$ , als Maß für die Wahrscheinlichkeit der Photoabsorption, gilt  $\sigma^{PE} \sim Z^5 \cdot E_{ph}^{-7/2}$  mit der Ordnungszahl  $Z$  und der Photonenenergie  $E_{ph}$  [26]. Somit ist der Absorptionskoeffizient  $\mu^{PE}$  für Diamant mit  $Z = 6$  um einiges geringer als für Silizium mit  $Z = 14$ . Daraus ergeben sich einige interessante Anwendungen für Diamant im Röntgenbereich wie z.B. Phasenplatten [27], Linsen [28] oder Strahlmultiplexer (engl: *beam-multiplexing*) [29]. Der Anteil des Compton Effekts und der thermisch diffusen Streuung am linearen Absorptionskoeffizienten ist um ein bis zwei Größenordnungen geringer als der von  $\mu^{PE}$  [30]. Alle drei Beiträge haben die selbe dreidimensionale Periodizität wie das Kristallgitter, weswegen  $\mu$  in einer Fourierreihe entsprechend [19]:

$$\mu = \sum_h \mu_h(2\theta) \exp(2\pi i \vec{h} \vec{r}) \quad (2.33)$$

mit

$$\mu_h(2\theta) = \mu_h(2\theta)^{PE} + \mu_h(2\theta)^C + \mu_h(2\theta)^T \quad (2.34)$$

entwickelt werden kann. Die Fourierkoeffizienten  $\mu_h(2\theta)$  sind wiederum verknüpft mit den Imaginärteilen der Atomformfaktoren über [19]:

$$\mu_h(2\theta) = \frac{2\pi |\chi_{ih}|}{\lambda} = \frac{2r_e \lambda}{V} |F_{ih}| = \frac{2r_e \lambda}{V} \left| \sum_j f_j'' \exp[-M_j + 2\pi i \vec{h} \vec{r}_j] \right| \quad (2.35)$$

mit dem linearen Absorptionskoeffizienten in Vorwärtsrichtung:

$$\mu_0 = 2\pi|\chi_{i0}|/\lambda. \quad (2.36)$$

Beim Durchgang durch ein Medium mit der Dicke  $t$  wird die Intensität der Röntgenstrahlung nach dem Lambert-Beerschen-Gesetz entsprechend mit:

$$I = I_0 \exp(-\mu_0 t). \quad (2.37)$$

abgeschwächt.

## 2.3 Röntgenbeugung an imperfekten Kristallen

In der Realität ist ein Kristall nie perfekt. Zum einen gibt es zahlreiche Gitterfehler wie z.B. Punktdefekte, Versetzungen, Korngrenzen, Stapelfehler und Einschlüsse und zum anderen hat der Kristall immer eine endliche Ausdehnung und somit eine Oberfläche, an der Nachbaratome fehlen und Störungen vorhanden sind. Überschreiten diese Störungen eine gewisse Konzentration, kann es sinnvoll sein die Röntgenbeugung am Kristall mit der kinematischen Theorie zu beschreiben. Auf diese wird im folgenden Abschnitt eingegangen.

### 2.3.1 Die kinematische Theorie

Neben der dynamischen Theorie (siehe Abschnitt 2.2.1) existiert noch eine zweite, wesentlich elementarere Theorie zur Beschreibung der Röntgenbeugung an Kristallen. Sie wird als kinematische Theorie bezeichnet und arbeitet mit folgenden vier Vereinfachungen:

- Die Intensität der Röntgenstrahlung wird durch den Streuprozess nicht abgeschwächt (keine primäre Extinktion).
- Bereits gebeugte Strahlung wird nicht erneut gebeugt (keine Mehrfachbeugung).
- Es existiert keine Wechselwirkung zwischen einfallender und gebeugter Welle (z.B. keine Mehrstrahlfälle).
- Für alle Wellen im Kristall wird die Vakuumwellenlänge angenommen (keine Brechung).

Die kinematische Theorie ist z.B. zur Beschreibung der Röntgenbeugung an Mosaikkristallen geeignet. Ein Mosaikkristall besteht aus vielen kleinen Kristallblöcken, die alle zueinander eine gewisse Fehlorientierung aufweisen. Die Kristallblöcke müssen entsprechend klein sein, sodass die kinematische Theorie gilt und ihre Fehlorientierung muss groß genug sein, um unterschiedliche Anteile des Strahls zu beugen. Ist das der Fall, so hängt die Breite der Rockingkurve von der Verteilung der Kristalle ab und ist im Allgemeinen viel größer als die eines einzelnen Kristallblocks. Das integrale Reflexionsvermögen ist unabhängig von der Fehlorientierung und kann im Bragg-Fall mit [19]:

$$R_h^{Int.} = \frac{\lambda^3 r_e^2}{\sin(2\theta_B)} \frac{1}{V^2} \frac{t}{\sin(\theta_B)} \frac{C^2}{2} |F_{hkl}|^2 \quad (2.38)$$

bestimmt werden. Hierbei ist  $V$  das Volumen der Elementarzelle,  $t$  die Kristalldicke und  $C$  der in Gleichung 2.27 definierte Polarisationsfaktor. Für die  $\pi$ -Polarisation ergibt sich somit eine Proportionalität zu  $\cos^2(2\theta_B)$  anstatt von lediglich  $\cos(2\theta_B)$ , wie es bei der dynamischen Theorie der Fall ist. Daher ist es theoretisch möglich, bei Braggwinkeln in der Nähe von  $45^\circ$  mit Mosaikkristallen eine bessere Polarisationsreinheit zu erreichen als mit perfekten Kristallen.

Photonenenergie $E_{ph}$ [eV]	Braggwinkel $\theta_B$ [ $^\circ$ ]	Integral $R_\pi^{dyn}$ [ $\mu\text{rad}$ ]	Integral $R_\sigma^{dyn}$ [ $\mu\text{rad}$ ]	Integral $R_\pi^{kin}$ [ $\mu\text{rad}$ ]	Integral $R_\sigma^{kin}$ [ $\mu\text{rad}$ ]
12120	35,00	2,53	7,42	109,91	932,56
10007	44,00	0,29	10,23	1,02	825,56
9918	44,50	0,12	10,41	0,25	822,88
9881	44,71	$5,64 \cdot 10^{-2}$	10,48	$8,56 \cdot 10^{-2}$	821,89
9840	44,99	$2,57 \cdot 10^{-3}$	10,57	$2,64 \cdot 10^{-3}$	820,84

Tabelle 2.1: Integrales Reflexionsvermögen des C(400)-Reflexes der  $\pi$ - und  $\sigma$ -Polarisation nach dynamischer  $R_{\pi/\sigma}^{dyn.}$  und kinematischer Theorie  $R_{\pi/\sigma}^{kin.}$  für fünf verschiedene Braggwinkel  $\theta_B$  in der Nähe von  $45^\circ$ . Die Integrale wurden mit dem Programm RC berechnet.

Aus der dynamischen und kinematischen Theorie ergibt sich jeweils ein unteres und oberes Limit für das integrale Reflexionsvermögen eines Kristalls. Beide Limits sind für die Röntgenpolarimetrie mit imperfekten Kristallen sehr interessant, da anhand dieser ersichtlich wird, wie viel  $\pi$ - bzw.  $\sigma$ -polarisierte Strahlung ein Kristall im besten oder schlechtesten Fall reflektiert und welche Polarisationsreinheit demzufolge zu erwarten wäre. In Tabelle 2.1 sind die integralen Reflexionsvermögen beider Theorien für den Diamant-(004)-Reflex für unterschiedliche Photonenergien angegeben. Das integrale Reflexionsvermögen nach dynamischer Theorie  $R_{\pi/\sigma}^{dyn.}$  ist stets kleiner als das nach kinematische Theorie  $R_{\pi/\sigma}^{kin.}$ . Der Unterschied im Integral der beiden Theorien ist insbesondere für die  $\sigma$ -Polarisation sehr groß ( $R_\sigma^{kin.}/R_\sigma^{dyn.} \approx 80$ ). Für die  $\pi$ -Polarisation ändert sich das Verhältnis  $R_\pi^{kin.}/R_\pi^{dyn.}$  mit dem Braggwinkel und geht für  $\theta_B = 45^\circ$  gegen 1. Aus dem Verhältnis  $R_\pi/R_\sigma$  kann für beide Theorien eine zu erwartende Polarisationsunterdrückung abgeschätzt werden. Diese ist bei Braggwinkeln in der Nähe von  $45^\circ$  für den idealen Mosaikkristall immer besser als für den perfekten Kristall, was hauptsächlich am sehr großen Integral  $R_\sigma^{kin.}$  liegt. Dennoch ist davon abzuraten, Mosaikkristalle für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie an Synchrotrons oder FEL's zu benutzen, da die Rockingkurven dieser Kristalle mehrere 10 oder  $100\mu\text{rad}$  breit sein können und gleichzeitig das Reflexionsvermögen im Rockingkurvenmaximum niedriger ist als bei perfekten Kristallen. Moderne Synchrotrons haben eine Divergenz von wenigen ein bis zehn  $\mu\text{rad}$ . Unter bestimmten Voraussetzungen kann der Einsatz von schwach gestörten Kristallen, deren Rockingkurvenbreite nur um einige  $\mu\text{rad}$  verbreitert ist, von Vorteil sein und so eine höhere Polarisationsreinheit erzielt werden (siehe Abschnitt 6.3). Der Übergang vom perfekten Kristall zum idealen Mosaikkristall wird mithilfe der Takagi-Taupin-Theorie beschrieben.

### 2.3.2 Der Takagi-Taupin-Ansatz

Eine Lösung der Wellengleichung 2.16 für ebene Wellen in einem Kristall mit kleinen Störungen wurde unabhängig von Takagi [31] und Taupin [32] entwickelt. Dementsprechend werden die Lösungen als Takagi-Taupin-Gleichungen bezeichnet. Takagis Ansatz bestand darin, die Welle im Kristall als modifizierte Welle [19]:

$$\vec{D} = \sum_h \vec{D}_h(\vec{r}) \exp(-2\pi i \vec{K}_h \cdot \vec{r}). \quad (2.39)$$

zu betrachten, für die  $\vec{D}_h(\vec{r})$  leicht mit der Position  $\vec{r}$  variiert. Die Wellenvektoren  $\vec{K}_h$  sind konstant und miteinander über  $\vec{K}_h = \vec{K}_0 - \vec{h}$  verknüpft, wobei  $\vec{K}_0$  beliebig gewählt werden kann und eine feste Länge  $nk$  hat, mit dem Brechungsindex  $n$  und der Wellenzahl  $k$  im Vakuum. Die Aussage, dass  $\vec{D}_h(\vec{r})$  leicht mit der Position  $\vec{r}$  variiert, bedeutet, dass  $\Delta[\vec{D}_h(\vec{r})]$  vernachlässigbar ist gegenüber Termen die proportional zu  $\vec{D}_h(\vec{r})$  sind. Dem Ansatz von Takagi liegt die Idee zugrunde, dass für die Wellenfelder, die sich nach der dynamischen Theorie im perfekten oder gestörten Kristall ergeben, die Phase der Wellen als Produkt zweier Terme angesehen werden kann. Dabei ist ein Term ein schnell oszillierender, mit der Periodizität des Gitters  $1/h$ . Dieser repräsentiert die Trägerwelle. Der zweite Term oszilliert langsam und repräsentiert die Einhüllende. Seine Periode ist durch die Extinktionstiefe  $\Lambda_0$  gegeben. Ist der Kristall deformiert, wird die Periode beider Oszillationen ortsabhängig und ist somit nicht länger konstant. Das Besondere an Takagis Theorie ist, dass er den Phasenfaktor in ein Produkt zerlegt, das aus einem schnellen aber konstanten Phasenfaktor  $\exp(-2\pi i \vec{K}_h \cdot \vec{r})$  und einem langsamen, veränderlichen Term, der in  $\vec{D}_h(\vec{r})$  gesteckt wird, besteht. Das hat den Vorteil, dass die Berechnungen einfacher werden, allerdings verlieren die Phasenfaktoren dadurch ihre physikalische Bedeutung [19]. Setzt man Gleichung 2.39 in die Wellengleichung ein und macht zudem noch die Annahmen, dass  $\chi_h(\vec{r})$  und  $\vec{D}_h(\vec{r})$  innerhalb der Elementarzelle konstant sind, dann ergibt sich im Zweistrahlfall das folgende System gekoppelter Differentialgleichungen:

$$\frac{\partial D_0(\vec{r})}{\partial x_0} = -i\pi k C \chi_h D_h(\vec{r}) \quad (2.40)$$

$$\frac{\partial D_h(\vec{r})}{\partial x_h} = -i\pi k [C \chi_h D_0(\vec{r}) - 2\beta_h D_h(\vec{r})]. \quad (2.41)$$

Hierbei ist  $x_0$  eine Koordinate im realen Raum entlang des Wellenvektors  $\vec{K}_0$  und  $\beta_h$  eine Abweichung vom Braggwinkel die im perfekten Kristall durch:

$$\beta_h = -(\theta - \theta_B) \sin(2\theta_B) - \frac{1}{2} \chi_0. \quad (2.42)$$

gegeben ist. Die Takagi-Taupin-Gleichungen 2.40 und 2.41 sind analytisch nur für konstante Deformationsgradienten lösbar. Für Kristalle mit Defekten oder nicht konstantem Deformationsgradient bedarf es einer numerischen Lösung.

In einem deformierter Kristall ist der Ortsvektor  $\vec{r}$  der einzelnen Atome um eine Verschiebung  $\vec{u}(\vec{r})$  verschoben. Die Atome befinden sich dann an einem neuen Ort  $\vec{r}' = \vec{r} + \vec{u}(\vec{r})$ . Durch die Verschiebung ergibt sich auch eine lokale Änderung  $\delta\vec{h}$  des reziproken Gittervektors  $\vec{h}$  mit  $\delta\vec{h} = -\vec{\nabla}(\vec{h}\vec{u})$ . Die

Ableitung der Verschiebung wird als Deformation  $\kappa = \vec{\nabla} \vec{u}(\vec{r})$  (engl: *strain*) bezeichnet. Sie führt zu einer Änderung des Netzebenenabstands  $d_{hkl} + \Delta d$  und zu einer Drehung  $\Delta\alpha$  der Netzebenen. Für die in Gleichung 2.42 eingeführte Abweichung vom Braggwinkel gilt dann:

$$\beta'_h = -(\theta - \theta_B) \sin(2\theta_B) - \underbrace{\frac{1}{2} \chi_0 - \lambda \frac{\partial(\vec{u}\vec{h})}{\partial x_h}}_{\text{Deformation}}. \quad (2.43)$$

wobei  $x_h$  eine Koordinate in Richtung des gebeugten Strahls ist.

Eine Möglichkeit die Takagi-Taupin-Gleichungen numerisch zu lösen besteht darin, den Kristall in dünne Schichten zu unterteilen, wobei die Deformation innerhalb jeder Schicht als konstant angenommen wird. Für die einzelnen Schichten kann dann die analytische Lösung der Takagi-Taupin-Gleichungen verwendet werden. Da in der dynamischen Theorie die gebeugte Intensität in den obersten Schichten von allen darunter liegenden Schichten abhängt (Mehrfachbeugung), wird mit der untersten Schicht beginnend die gebeugte und transmittierte Welle berechnet. Die Berechnung erfolgt für verschiedene Einfallswinkel  $\theta$  um den Braggwinkel  $\theta_B$ , wodurch sich Reflexionsvermögen in Abhängigkeit des Einfallswinkels ergibt und man die Rockingkurve eines deformierten Kristalls erhält [33].

## 2.4 Beschreibung von Polarisationszuständen

Es gibt verschiedene Möglichkeiten, den Polarisationszustand von Licht zu beschreiben, wie zum Beispiel die Polarisationsellipse oder den Jones-Formalismus. Häufig findet auch eine Unterteilung in linear, zirkular und elliptisch polarisierte Strahlung statt, wobei die ersten beiden Zustände ein Spezialfall des Letzteren sind. Eine generelle Schwierigkeit hierbei ist oft, dass sich die Polarisation mit der Änderung des schnell oszillierenden elektrischen Felds  $\vec{E}$  beschäftigt, im Experiment jedoch nur die Messung von Intensitäten  $I \sim |\vec{E}|^2$  möglich ist. Dieses Problem wird durch den Stokes-Formalismus gelöst. Er nutzt nicht die Felder, sondern die Intensität  $I_\eta$ , die man mit einem Polarisationsfilter unter verschiedenen Filterwinkeln  $\eta$  messen würde. Die Polarisation einer elektromagnetischen Welle kann dann durch einen Vektor, bestehend aus den vier Stokesparametern:

$$S_0 = I_{0^\circ} + I_{90^\circ} = \langle E_x^2 + E_y^2 \rangle \quad (2.44)$$

$$S_1 = I_{0^\circ} - I_{90^\circ} = \langle E_x^2 - E_y^2 \rangle \quad (2.45)$$

$$S_2 = I_{45^\circ} - I_{135^\circ} = \langle 2E_x E_y \cos(\phi) \rangle \quad (2.46)$$

$$S_3 = I_{RZ} - I_{LZ} = \langle 2E_x E_y \sin(\phi) \rangle \quad (2.47)$$

beschrieben werden. Hierbei sind  $E_x$  und  $E_y$  die Amplituden des elektrischen Felds in der x-y-Ebene und  $\phi$  die Phasenverschiebung zwischen den beiden Feldkomponenten. Üblicherweise werden alle Stokesparameter auf die Gesamtintensität  $S_0$  normiert. Der Anteil linear polarisierter Strahlung in horizontaler und vertikaler Richtung, sowie  $+45^\circ$  und  $-45^\circ$  dazu, wird durch  $S_1$  und  $S_2$  wiedergegeben.  $S_3$  gibt den Unterschied von links und rechts zirkular polarisiertem Licht an.

Um die Änderung eines Polarisationszustands beim Durchgang durch eine Probe festzustellen, werden sogenannte Polarimeter verwendet. Diese bestehen oft aus zwei linearen Polarisatoren, die sich in einem gewissen Abstand parallel zueinander befinden. Am ersten Polarisator wird die einfallende Strahlung linear polarisiert und trifft danach auf den zweiten. Dieser ist drehbar gelagert, mit Drehachse parallel zur Lichtausbreitungsrichtung  $\vec{k}$ , und kann dazu verwendet werden, die Polarisationsrichtung des einfallenden Strahls zu analysieren. Der zweite Polarisator wird daher auch als Analysator bezeichnet. Dieser hat genau wie der Polarisator eine Durchlassrichtung für eine der beiden orthogonalen linearen Polarisationsrichtungen. Sind die Durchlassrichtungen von Polarisator und Analysator parallel zueinander, so kann das vom Polarisator kommende Licht den Analysator passieren. Stehen beide gekreuzt zueinander wird das linear polarisierte Licht am Analysator ausgelöscht. Für Präzisionsmessungen ist es wichtig, die Reinheit des linear polarisierten Zustands zu beschreiben. Das ist in der Röntgenpolarimetrie zum Beispiel mit der Polarisationsreinheit:

$$\delta = \frac{\int \int I_{\pi}(\theta, \lambda) d\theta d\lambda}{\int \int I_{\sigma}(\theta, \lambda) d\theta d\lambda} = \frac{\int \int R_{\pi}^N(\theta, \lambda) B(\theta, \lambda) d\theta d\lambda}{\int \int R_{\sigma}^N(\theta, \lambda) B(\theta, \lambda) d\theta d\lambda}. \quad (2.48)$$

möglich [34], wobei  $I_{\pi/\sigma}(\theta, \lambda)$  die gebeugte Intensität,  $R_{\pi/\sigma}(\theta, \lambda)$  das Reflexionsvermögen,  $N$  die Anzahl der Kristallreflexionen in einem Channel-Cut (siehe Abschnitt 4.3.2) und  $B(\theta, \lambda)$  die Brillianz<sup>2</sup> der Quelle ist. Die Reinheit ist somit das Verhältnis der integrierten Intensitäten  $I_{\pi/\sigma}(\theta, \lambda)$  der beiden Polarisationskomponenten, bei der die Beugungsebene des analysierenden Kristalls einmal senkrecht und einmal parallel zur einfallenden Polarisationsrichtung liegt. Die Integration über den Einfallswinkel und die Wellenlänge ist aufgrund der unterschiedlichen horizontalen und vertikalen Divergenzen notwendig. Bei der Verwendung von Kristallpolarisatoren in der Röntgenbeugung kommt es zusätzlich zu einer Dispersion des Beugungswinkels  $d\theta/d\lambda = (2d_{hkl}\cos(\theta_B))^{-1}$  in der Beugungsebene. Durch die Integration werden alle Wellenlängen und Winkel beachtet, die auf den Analysatorkristall treffen. Vergleicht man Gleichung 2.48 mit dem integralen Reflexionsvermögen im Bragg-Fall, so fällt auf, dass für eine Kristallreflexion ( $N = 1$ ) die Polarisationsreinheit in guter Näherung proportional zu  $|\cos(2\theta_B)|$  ist.

Trägt man die integrierte Intensität über dem Analysatorwinkel  $\eta$  auf, so erhält man eine Kurve, die sich mit dem Gesetz von Malus und einem zusätzlichen Term, der die Polarisationsreinheit  $\delta$  beachtet, entsprechend der Gleichung:

$$I(\eta) = I_0[\cos^2(\eta) + \delta\sin^2(\eta)] \quad (2.49)$$

beschreiben lässt. In Analogie zur Kleinwinkelnäherung beim Sinus folgt in der Auslöschung bei  $\eta \approx 90^\circ$  [12]:

$$I = I_0 \left( \frac{\eta\pi}{180} - \frac{\pi}{2} \right)^2 + I_0\delta. \quad (2.50)$$

Anhand dieser Gleichung ist gut zu erkennen, dass sich die Intensität in Abhängigkeit von  $\eta$  entsprechend einer Parabel der Form  $a(x+b)^2 + c$  ändert, wobei mit  $b$  ein durch den Versuchsaufbau

<sup>2</sup>Die Brillianz ist ein Maß für die Leistungsdichte einer Quelle und wird in Photonen/s/mrad<sup>2</sup>/mm<sup>2</sup>/0,1% Bandbreite angegeben.

bedingter Versatz im abgelesenen Winkel  $\eta$  berücksichtigt wird. Die Polarisationsreinheit muss nicht zwangsläufig über die Integrale in Durchlass und Auslöschung bestimmt werden. Stattdessen kann man auch die Intensitätsänderung hinter dem Analysator in Abhängigkeit von  $\eta$  messen und die Polarisationsreinheit  $\delta = c/a$  über eine nichtlineare Kurvenanpassung der Form  $a(\eta + b)^2 + c$  ermitteln. Diese Vorgehensweise funktioniert allerdings nur in einem kleinen Winkelbereich  $\eta$ , in dem sich die Rockingkurvenbreite nicht wesentlich ändert, da dann integrale und maximale Intensität proportional zueinander sind. Außerdem müssen Analysator und Polarisator entsprechend gut zueinander justiert sein, damit sich in diesem Winkelbereich der Rockingkurvenschwerpunkt nicht verschiebt. Zusätzlich muss das Untergrundsignal bestimmt und von der gemessenen Intensität abgezogen werden [12]. Diese Methode bietet viele Vorteile. Zum einen kann die Polarisationsreinheit in einer einzigen Messung bestimmt werden, die zudem noch in einem kleinen Winkelbereich stattfindet. Das spart Zeit, da der Analysator nicht von der Auslöschung in den Durchlass bewegt werden muss. Außerdem ändert sich in dem kleinen Winkelbereich das am Analysator benutzte Kristallvolumen nicht, da sich der einfallende Strahl kaum über den Kristall bewegt und die Eindringtiefe gleich bleibt. Insbesondere Letzteres ist für die integralen Intensitäten in paralleler und gekreuzter Stellung des Polarimeters nicht der Fall. In Durchlassrichtung dringt die Strahlung für perfekte Kristalle entsprechend der Extinktionstiefe  $\Lambda_0^\sigma$  nur einige Mikrometer ein, wohingegen in der Auslöschung  $\Lambda_0^\pi$  bei einem Braggwinkel von  $45^\circ$  unendlich groß wird. Die gebeugte Strahlung kommt dann aus einer Tiefe, die durch den Absorptionskoeffizienten abgeschätzt werden kann und in Diamant schnell einige hundert Mikrometer bis Millimeter beträgt. Für eine genaue Bestimmung der Polarisationsreinheit sollten diese möglichst mit beiden Methoden gemessen werden, d.h. sowohl über die Integrale in Auslöschung- und Durchlassrichtung, als auch mit dem parabelförmigen  $\eta$ -Scan nahe der Auslöschung. Dadurch ist es möglich, ggf. Unstimmigkeiten oder systematische Fehler zu erkennen.

Bringt man eine Probe zwischen Polarisator und Analysator, kann sich die Form der Parabel ändern. Wird zum Beispiel eine Verschiebung der Winkelposition  $b$  des Minimums beobachtet, dann wurde durch die Probe die Polarisationsebene gedreht. Ein prominentes Beispiel für eine solche Drehung der Polarisation ist die optische Aktivität von Zucker [11]. Ist hinter der Probe das Licht elliptisch polarisiert, dann macht sich das in einer Anhebung des Minimums  $c$  bzw. einer Änderung des Verhältnis  $c/a$  bemerkbar. Eine solche Elliptizität kann zum Beispiel durch eine Doppelbrechung der Probe verursacht werden.

## 2.5 Röntgenquellen

Die Erzeugung von Röntgenstrahlen beruht im Wesentlichen auf der Beschleunigung von energiereichen Elektronen. Bei Röntgenröhren beträgt die Energie der Elektronen einige Kiloelektronenvolt (keV). Röntgenstrahlung entsteht in Form von Bremsstrahlung und charakteristischer Strahlung, wenn die Elektronen auf eine Anode treffen, dort abgebremst werden und ihre Energie abgeben. An Synchrotrons oder Freien-Elektronen-Lasern kann die Elektronenenergie mehrere Gigaelektronenvolt (GeV) betragen und Röntgenstrahlung wird erzeugt, indem die Elektronen in einem Magnetfeld eine Beschleunigung erfahren.

### 2.5.1 Die Röntgenröhre

Die Röntgenröhre ist eine Laborquelle zur Erzeugung von Röntgenstrahlung. Ihre Funktionsweise beruht im Wesentlichen auf einer Kathode, die Elektronen emittiert, welche dann mit einer Hochspannung von einigen Kilovolt zur Anode beschleunigt werden. Treffen die Elektronen auf die Anode, werden sie abgebremst und es entsteht Bremsstrahlung. Zudem können Elektronen aus den inneren Atomschalen des Anodenmaterials herausgeschlagen werden. Die dabei entstehenden Lücken werden durch Elektronen aus höheren Atomschalen aufgefüllt und es wird eine für das Anodenmaterial charakteristische Röntgenstrahlung emittiert.

Bei heutigen Röntgenröhren ist es möglich, durch eine Fokussierung der Elektronen mit einer Elektronenoptik, hohe Brillianzen<sup>3</sup> zu erreichen. Dabei heizt sich das Anodenmaterial stark auf. Um die thermische Last auf eine größere Fläche zu verteilen wird die Anode gedreht. Ein solches System wird als Drehanode bezeichnet.

In dieser Arbeit wurde eine Mikrofokus Drehanode vom Typ MicroMax-007 HF mit Kupferanode und Parallelstrahloptik von Rigaku benutzt. Der Elektronenfokus auf der Anode beträgt  $70 \times 700 \mu\text{m}^2$ , was unter einem Abstrahlwinkel von ungefähr  $6^\circ$  einer Quellgröße von ca.  $70 \times 70 \mu\text{m}^2$  entspricht. Der Röntgenstrahl wurde mit einer Montel-Optik kollimiert. Diese bestehend aus zwei Mehrschicht-Spiegeln (engl: *multilayer mirrors*) die jeweils senkrecht zueinander und parallel zum Strahl angeordnet sind. Hinter der Optik ergibt sich ein Röntgenstrahl mit  $4 \times 10^9$  Photonen pro Sekunde bei einer elektrischen Leistung von 1,2 kW und einer Divergenz von ca. 100 Bogensekunden in horizontaler und vertikaler Richtung [12].

### 2.5.2 Das Synchrotron

Synchrotrons zählen mit zu den leistungsstärksten Röntgenquellen auf diesem Planeten. Die Röntgenstrahlung wird dabei durch hochenergetische Elektronen erzeugt, die sich auf einer nahezu kreisförmigen Bahn in einem Speicherring bewegen. Damit die Elektronen ihre Flugbahn nicht verlassen, muss auf diese eine Zentripetalkraft wirken, die in Form der Lorentzkraft  $\vec{F}_L = q\vec{v} \times \vec{B}$  ( $q$ : Ladung,  $\vec{v}$ : Geschwindigkeit) über ein Magnetfeld  $\vec{B}$  realisiert wird. Dadurch erfahren die Elektronen eine Beschleunigung und emittieren Bremsstrahlung, die als Synchrotronstrahlung bezeichnet wird. Charakteristisch für Synchrotrons ist die Energie mit der sich die Elektronen im Speicherring bewegen. Aus ihr und der Ruheenergie des Elektrons ( $m_e c^2 = 511 \text{ keV}$ ) kann der Lorentzfaktor  $\gamma_L$  mit [19]:

$$\gamma_L = \frac{E}{m_e c^2} = \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}} \quad (2.51)$$

berechnet werden. Beispielsweise beträgt die Energie  $E$  der Elektronen am europäischen Synchrotron (engl: *European Synchrotron Radiation Facility* kurz: ESRF) 6,04 GeV [36], der Lorentzfaktor 11820 und die Elektronengeschwindigkeit entspricht dem 0,999999996-fachen der Lichtgeschwindigkeit  $c$ . Aufgrund dieser relativistischen Geschwindigkeit kann die von den Elektronen emittierte

<sup>3</sup>  $10^8$  Photonen/s/mrad<sup>2</sup>/mm<sup>2</sup>/0,1 % Bandbreite [35]

Röntgenstrahlung als eine eng gebündelte Strahlungskeule beobachtet werden, deren natürliche vertikale Divergenz durch [19]:

$$2\psi \approx 2\gamma_L^{-1} \quad (2.52)$$

gegeben ist. Dieser Prozess wird durch eine Lorentztransformation, der vom Elektron im Ruhesystem emittierten Dipolstrahlung, ins Laborsystem verständlich.

Die bisherige Betrachtung beschränkte sich auf eine kreisförmige Bewegung der Elektronen. Der Speicherring eines Synchrotrons besteht jedoch aus gebogenen und geraden Abschnitten in denen Baugruppen mit verschiedenen Magnetfeldstrukturen eingesetzt werden, um die Bewegung der Elektronen gezielt zu beeinflussen. Für die Erzeugung von Röntgenstrahlung sind hierbei die drei Baugruppen (engl: *insertion devices*) Dipolmagnete (engl: *bending magnets*), Wiggler und Undulatoren relevant. Die beiden Letzteren bestehen aus mehreren  $N$  Dipolmagneten mit alternierender Polarität (siehe Undulator in Abbildung 6.4 auf Seite 78). Durch die wechselnde Magnetfeldrichtung senkrecht zur Kreisbewegung der Elektronen werden diese auf eine wellenförmige Flugbahn gezwungen und emittieren aufgrund dieser oszillierenden Bewegung Röntgenstrahlung. Die höchsten Brillianzen ( $10^{20}$  bis  $10^{23}$  Photonen/s/mrad<sup>2</sup>/mm<sup>2</sup>/0,1 % Bandbreite [35]) und zugleich die besten Strahleigenschaften für Experimente zur Röntgenpolarimetrie können mit Undulatoren erzielt werden. Diese sind so konzipiert, dass die von einem einzelnen Elektron bei einer Oszillation emittierte Strahlung in Phase mit der Strahlung von den vorhergehenden Oszillationen ist, wodurch es zu einer konstruktiven Interferenz kommt. Es entsteht ein Linienspektrum mit einer Divergenz kleiner als  $\psi$  (siehe Gleichung 2.54), dessen Intensität  $I$  mit  $N^2$  skaliert. Eine notwendige Voraussetzung für die kohärente Addition der Amplituden ist, dass die Elektronen im Undulator nur wenig ausgelenkt werden, was durch ein schwächeres Magnetfeld als bei einem Wiggler erreicht wird. Unterscheiden kann man Undulatoren von Wigglern zum Beispiel anhand des Undulatorparameters  $K$ , der mit [35]:

$$K = \frac{eB\lambda_U}{2\pi m_e c} \quad (2.53)$$

aus der Magnetfeldstärke  $B$  und der Undulatorperiode  $\lambda_U$  berechnet werden kann. Für  $K \gg 1$  spricht man von einem Wiggler. Die Auslenkung der Elektronen ist dann groß und die Amplituden der Strahlungskeulen eines einzelnen Elektrons summieren sich inkohärent auf.

Das Linienspektrum eines Undulators besteht aus einer fundamentalen Frequenz und mehreren höheren harmonischen. Die Wellenlänge  $\lambda_n$  der  $n$ -ten Harmonischen kann mit [19]:

$$\lambda_n = \frac{\lambda_u}{2\gamma_L^2 n} \left( 1 + \frac{K^2}{2} + \gamma_L^2 \theta^2 \right) \quad (2.54)$$

berechnet werden und hängt von der Winkelabweichung  $\theta$  vom Zentrum der emittierten Strahlungskeule ab. An dem Vorfaktor  $\frac{\lambda_u}{2\gamma_L^2}$  ist zu erkennen, dass die kurzwellige Röntgenstrahlung durch eine Lorentzkontraktion ( $1/\gamma_L$ ) und den longitudinalen Dopplereffekt  $1/(2\gamma_L)$  der Undulatorperiode  $\lambda_U$ , die einige zehn Millimeter beträgt, entsteht [37]. Durch Änderung des Abstands zwischen den Magnetpolen im Undulator kann die Magnetfeldstärke und somit der Undulatorparameter  $K$  verstellt

werden, womit es letztendlich möglich ist die Wellenlänge  $\lambda_n$  zu variieren. Obwohl Undulatoren an Synchrotrons viele wünschenswerte Eigenschaften haben, lässt sich die Brillanz der emittierten Strahlung noch weiter verbessern. Das ist zum Beispiel mit einem Freien-Elektron-Laser möglich. Auf diesen soll im nächsten Abschnitt eingegangen werden.

### 2.5.3 Der Freie-Elektronen-Laser im Röntgenbereich

Ein Freier-Elektronen-Laser (FEL) im Röntgenbereich ist eine Strahlungsquelle mit der sehr kurze und intensive Röntgenpulse erzeugt und Peakbrillanzen von  $10^{33}$  Photonen/s/mrad<sup>2</sup>/mm<sup>2</sup>/0,1% Bandbreite erreicht werden können. Genau wie bei einem Synchrotron werden hierfür schnelle Elektronen genutzt, die sich durch einen Undulator bewegen und dabei spontan Röntgenstrahlung emittieren (engl: *spontaneous emission*). Im vorhergehenden Abschnitt wurde bereits erläutert, dass die von einem einzelnen Elektron im Undulator emittierte Strahlung kohärent ist. Die Strahlung verschiedener Elektronen summiert sich jedoch inkohärent auf, da die Elektronen den Undulator in Form von Elektronenpaketen (engl: *bunches*) passieren und es in diesen Paketen keine räumliche Ordnung zwischen den Elektronen gibt. Bei einem FEL sind die Undulatoren entsprechend lang (mehrere 10 oder 100 Meter), sodass die Intensität der Röntgenstrahlung stark genug wird, um mit den Elektronenpaketen zu interagieren und dessen Ausdehnung zu modulieren. Dadurch werden einige Elektronen des Pakets beschleunigt und andere abgebremst. Es entstehen sogenannte Mikropakete (engl: *micro-bunches*), die um den Betrag der Röntgenwellenlänge zueinander separiert sind. Die von einem Mikropaket emittierte Strahlung überlagert sich nun kohärent mit der Strahlung der anderen Mikropakete und die Gesamtintensität ist nicht länger proportional zur Elektronenzahl, sondern zum Quadrat der Elektronenzahl je Mikropaket. Eine wichtige Voraussetzung, für diesen als selbst verstärkende spontane Emission (engl: *self-amplified spontaneous emission* kurz: SASE) bezeichneten Prozess, ist eine hohe Ladungsträgerdichte des ursprünglichen Elektronenpakets, was durch Linearbeschleuniger und Bunchkompressoren erreicht werden kann. Elektronenpakete mit Längen von  $30\ \mu\text{m}$  bei Peakströmen von 3 kA sind möglich [35, 38]. Nachteile des SASE-Prozesses sind die schlechte zeitliche Kohärenz und ein breites verrauschtes Spektrum, da die Verstärkung der spontanen Emission aus einer statistischen Fluktuation der Elektronendichte heraus erfolgt. Durch die Vorgabe eines Startsignals (engl: *seed*), dass dann kohärent im FEL verstärkt wird, können die zeitliche Kohärenz und die Energiebandbreite sowie die Brillanz verbessert werden. Dafür wird beim sogenannten *self-seeding* die vom FEL erzeugte Röntgenstrahlung nach einer ersten Teilstrecke des Undulators mit einem Diamantkristall monochromatisiert und der monochromatische Strahl als *seed* für die restliche Undulatorstrecke verwendet [39]. Dadurch kann die Energiebandbreite ( $\sim 20\ \text{eV}$ ) um einen Faktor 40 bis 50 reduziert werden.

# 3 Diamantkristalle für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie

In der Vergangenheit wurden bei verschiedenen Experimenten sehr hohe Polarisationsreinheiten mit Silizium Channel-Cuts erzielt. Dabei kam immer wieder die Frage auf, ob die Polarisationsreinheit ab einem bestimmten Punkt durch das verwendete Kristallmaterial limitiert ist. Auf der Suche nach anderen geeigneten Kristallen ist Diamant, aufgrund seiner außergewöhnlichen Eigenschaften, einer der wohl interessantesten Kandidaten für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie an Synchrotrons und Freien-Elektronen-Lasern. Welche Eigenschaften Diamant hat und wie diese zustande kommen wird in diesem Kapitel erklärt.

Insbesondere die Herstellung von hinreichend großen und perfekten Diamantkristallen, wie sie für Anwendungen in der Röntgenoptik benötigt werden, birgt gewisse Schwierigkeiten. Die meisten der in dieser Arbeit verwendeten Diamanten wurden mittels chemischer Gasphasenabscheidung synthetisiert. Zum Vergleich wurde ein Diamant charakterisiert, der mit dem Hochdruck-Hochtemperatur-Verfahren hergestellt wurde. Beide Herstellungsmethoden werden in diesem Kapitel kurz erklärt. Abschließend werden einige wichtige Vor- und Nachteile von Diamant für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie aufgelistet.

## 3.1 Diamant

Diamant zählt zu den beeindruckendsten Materialien auf unserem Planeten und ist insbesondere für seine Härte bekannt. Diese wird von keinem anderen natürlichen Stoff übertroffen und kommt durch die kovalenten Bindungen zustande, die die Kohlenstoffatome im Diamantkristall untereinander eingehen. Kohlenstoff besitzt insgesamt sechs Elektronen, von denen sich zwei in der K-Schale und vier in der L-Schale befinden. Die L-Schale wiederum kann in ein 2s- und drei 2p-Orbitale unterteilt werden. Im Grundzustand befinden sich beim Kohlenstoff zwei der vier äußeren Elektronen im 2s-Orbital und die verbleibenden zwei Elektronen verteilen sich auf die p-Orbitale. Diese Elektronenkonfiguration kann sich ändern, wenn Kohlenstoff eine Bindung mit anderen Elementen eingeht. Im Diamant bilden die äußeren Orbitale des Kohlenstoffs vier äquivalente  $sp^3$ -Hybridorbitale [40]. Durch diese Hybridisierung steigt zunächst die Energie, allerdings werden gleichwertige Bindungen zu den vier benachbarten Kohlenstoffatomen ermöglicht, wodurch am Ende die Gesamtenergie abgesenkt wird. Jedes der vier  $sp^3$ -Orbitale hat zu 25 Prozent einen s-Charakter, wodurch die Bindungen sehr stark werden. Diese durch den gesamten Kristall durchgängig vorhandenen starken Bindungen führen zu der extremen Härte von Diamant und sind die Grundlage für weitere außergewöhnliche Eigenschaften wie zum Beispiel einem hohen Elastizitätsmodul ( $E = 1200 \text{ GPa}$ ) [41], einer hohen Schallgeschwindigkeit ( $c_S = 19000 \text{ m/s}$ ) [42], einer hohen Debye-Temperatur ( $\Theta_D = 1860 \text{ K}$ ) [43],

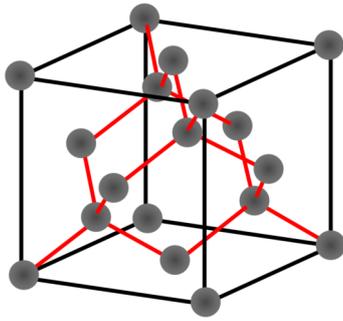


Abbildung 3.1: Kristallstruktur von Diamant, Silizium und Germanium. Jedes Atom ist mit vier Nachbaratomen verbunden (siehe rote Linien), die wie die Ecken eines Tetraeders zueinander angeordnet sind.

einer hohen Wärmeleitfähigkeit ( $\lambda = 25 \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ) [44] und einem niedrigen linearen Wärmeausdehnungskoeffizienten ( $\alpha = 1,0 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ) [45].

Die Kristallstruktur von Diamant wird als Diamantstruktur bezeichnet und ist in Abbildung 3.1 zu sehen. Sie ist ein kubisch-flächenzentriertes Gitter mit einer zweiatomigen Basis, bei der die Basisatome bei  $\{0,0,0\}$  und  $\{\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4}\}$  sitzen [46]. In dieser Struktur kristallisieren auch andere Elemente der vierten Hauptgruppe wie Silizium und Germanium. Die Gitterkonstante von Diamant ist mit  $3,567 \text{ \AA}$  ungefähr 1,5 mal kleiner als die von Silizium und wurde im Rahmen dieser Arbeit mit dem von Robert Löttsch entwickelten Bond-Aufbau überprüft und auf  $3,56698(8) \text{ \AA}$  bestimmt [47].

Diamanten entstehen in der Natur unter hohem Druck und hohen Temperaturen einige hundert Kilometer tief im Erdmantel [48, 49]. Auf ihrem Weg zur Erdoberfläche nehmen die Kristalle Stickstoff aus der Umgebung auf, der in Paaren oder Gruppen anstelle von Kohlenstoffatomen ins Gitter eingebaut wird. Diese Substitutionsatome stören die Perfektion und können zu Gitterdeformationen führen. Eine sich dadurch ergebende relative Änderung der Gitterkonstante  $\Delta a_0/a_0$  kann laut Burns *et al.* mit der Gleichung [50]:

$$\frac{\Delta a_0}{a_0} = (0,12 \pm 0,03) \cdot C_N \quad (3.1)$$

abgeschätzt werden, wobei  $C_N$  die Stickstoffkonzentration in Anzahl der Stickstoffatome pro Kohlenstoffatom ist. Bei sehr gutem Silizium beträgt  $\Delta a_0/a_0$  ca.  $10^{-8}$ , was mit Diamant bei einer Stickstoffkonzentration von unter 0,1 Millionstel (ppm) zu erreichen wäre.

Auch die unterschiedlichen Farben von Diamanten kommen im Wesentlichen durch Stickstoff und Bor sowie deren Aggregation mit Leerstellen zustande. Aus diesem Grund werden Diamantkristalle in vier Typen mit den Bezeichnungen Ia, Ib, Iia, Iib klassifiziert [51]. Die meisten natürlichen Diamanten sind vom Typ Ia (>95%). Bei ihnen ist der Stickstoff in Paaren oder Gruppen in den Kristall eingebaut, die nur eine geringe Absorption für sichtbares Licht haben, weswegen die Kristalle weißlich erscheinen. Der Stickstoffanteil beträgt 1000 bis 3000ppm [52]. Diamanten vom Typ Ib enthalten ungepaarte Stickstoffsubstitutionsatome mit 25 bis 500ppm [52, 53]. Viele mit dem Hochdruck-Hochtemperatur-Verfahren (siehe Abschnitt 3.2.1) synthetisch hergestellte Diamanten sind vom Typ Ib und haben eine gelbe Farbe [50]. Beträgt der Stickstoffgehalt weniger als 20ppm spricht man von Typ Iia oder Iib. Typ Iib Diamanten enthalten Bor als Substitutionsatome und haben eine blaue, graue oder braune Farbe. Sie sind extrem selten in der Natur zu finden ( $\leq 0,02\%$ ) und zählen nach neuesten Erkenntnissen zu den Diamanten, die in den größten Tiefen (in bis zu 750km) entstehen [54].

Obwohl natürliche Diamanten vom Typ Ia gefunden werden konnten, die nahezu perfekte Kristallgebiete mit wenigen Deformationen aufweisen, gilt die Mehrheit der natürlichen Diamanten als nicht geeignet für Röntgenoptiken wie z.B. Monochromatoren [50, 55]. Insbesondere für bildgebende Verfahren, bei denen der Erhalt der Phasenkohärenz wichtig ist, sind die Anforderungen an die Kristalle hoch. Solche Anwendungen benötigen Diamanten vom Typ IIa mit einem Stickstoffgehalt von wenigen Milliardsteln (ppb), sowie unverbreiterte Reflexionskurven und Oberflächenrauigkeiten von weniger als  $3 \text{ \AA}$  [50]. Nahezu perfekte Kristalle mit optimalen Reflexionseigenschaften sind auch für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie wünschenswert. Mittlerweile existieren mit dem Hochdruck-Hochtemperatur-Verfahren und der Chemischen Gasphasenabscheidung zwei Methoden, mit denen Diamanten vom Typ IIa hergestellt werden können. Beide Methoden werden im nächsten Abschnitt erklärt.

## 3.2 Herstellung von synthetischen Diamantkristallen

### 3.2.1 Das Hochdruck-Hochtemperatur-Verfahren

Mit dem Hochdruck-Hochtemperatur-Verfahren (engl: *High-Pressure-High-Temperature* kurz: HPHT) werden Diamanten in einer hydraulischen Presse bei einem Druck von 5 bis 6 GPa und Temperaturen von 1350 bis 1450 °C aus Graphit oder Diamantpulver hergestellt [50, 56]. Zusätzlich kommt eine Eisen-Cobalt-Legierung als Lösungsmittel zum Einsatz sowie Metalle der vierten Nebengruppe (Titan, Zirkonium, Hafnium) als Gettermaterial für Stickstoff. Ein kleiner Diamantkristall dient als Kristallisationskeim (engl: *seed*). Unter den extremen Herstellungsbedingungen löst sich der Kohlenstoff in der Metallschmelze und bewegt sich aufgrund eines Temperaturgradienten zum Diamantkeim, wo er homoepitaktisch ausfällt. Aus den Metallen der vierten Nebengruppe bilden sich Nitride, wie z.B. Titanitrid (TiN), die den Stickstoffgehalt im Diamant reduzieren und die Synthese von Typ IIa Kristallen ermöglichen. Hierbei entstehen jedoch auch Carbide, wie z.B. Titancarbid (TiC), die in den Diamant eingebaut werden können und sichtbare Einschlüsse bilden. Fügt man Metalle der ersten Nebengruppe (Kupfer, Silber, Gold) hinzu, kann man die Carbide auflösen und die Zahl der Einschlüsse deutlich verringern [56].

Mit dem HPHT-Verfahren können die qualitativ hochwertigsten Diamanten, mit  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  großen defektfreien Flächen, hergestellt werden [57]. Die Wahl des Ausgangsmaterials, dessen chemische Reinheit, die Kristallachsenorientierung des Diamantkeims sowie die Temperaturstabilität ( $< \pm 5^\circ \text{C}$ ) sind für die Kristallqualität entscheidend. Wachstumsraten von 6 bis 7 mg/h sind möglich, was ungefähr  $0,5 \text{ cm}^3$  in 250 Stunden entspricht [58]. Die größten so hergestellten Diamanten haben einen Durchmesser von 12 mm und sind 2 g (10 Karat) schwer.

### 3.2.2 Die Chemische Gasphasenabscheidung

Mit der chemischen Gasphasenabscheidung (engl: *chemical vapor deposition* kurz: CVD) kann Diamant als Schicht, bei einem niedrigem Druck von ca. einer zehntel Atmosphäre, auf einem 700 bis 1100 °C heißem Substrat hergestellt werden [59, 60]. Wie der Name bereits sagt, ist ein wesentlicher

Bestandteil dieser Methode eine chemische Reaktion der beteiligten Gase. Das sind meistens Wasserstoff ( $H_2$ ) und Methan ( $CH_4$ ) in einem Verhältnis von ca. 1 zu 100. Das Gasgemisch wird entweder thermisch mit einem heißen Filament (engl: *hot filament CVD*) oder aufgrund von Elektronenstößen in einem Plasma (engl: *plasma-assisted CVD*) aktiviert. Dabei entsteht atomarer Wasserstoff, der mehrere Aufgaben erfüllt. Zum einen verbindet sich Wasserstoff mit den freien Bindungen der Kohlenstoffatome an der Substratoberfläche und verhindert so die Entstehung einer Graphit ähnlichen Oberfläche, zum anderen entzieht er dem neutralen Methan Wasserstoff und erzeugt so reaktive Radikale wie  $CH_3$  [61, 62]. Die Radikale bewegen sich aufgrund verschiedener Strömungsmechanismen zum Substrat und werden dort adsorbiert. An der Substratoberfläche finden dann weitere chemische Reaktionen statt. Die Wasserstoffatome, die zuvor am Diamantsubstrat gebunden waren, können mit dem atomaren Wasserstoff aus dem Gasgemisch eine Bindung eingehen, wodurch molekularer Wasserstoff und freie Kohlenstoffbindungen entstehen, die von den  $CH_3$ -Radikalen besetzt werden. Anschließend werden die Radikale durch den atomaren Wasserstoff weiter dehydriert, bis letztendlich eine neue Kohlenstoffschicht entstanden ist. In der neuen Schicht können sowohl  $sp^2$ - (Graphit) als auch  $sp^3$ -Bindungen (Diamant) vorhanden sein, die durch den hohen Anteil an atomarem Wasserstoff geätzt werden. Unter geeigneten Herstellungsbedingungen ist die Wachstumsrate von Diamant größer als die Ätzrate. Bei Graphit ist das genau umgekehrt, wodurch bevorzugt Diamant aufwächst.

Je nachdem mit welcher Technologie das Gas aktiviert wird und welche Kristallqualität erzielt werden soll, können die Wachstumsraten sehr unterschiedlich sein. Kristalle besserer Qualität werden langsam, bei Wachstumsraten von z.B.  $8 \mu\text{m/h}$  hergestellt [63]. Durch Zugabe von Stickstoff zum Synthesegas kann das Wachstum beschleunigt werden und es lassen sich Raten von  $150 \mu\text{m/h}$  erreichen [64]. Kristalle mit einem Gewicht von 10 Karat und einer Fläche von  $20 \times 40 \text{mm}^2$  wurden bereits mit dem CVD-Verfahren hergestellt [65, 66].

Die neu gewachsene Diamantschicht kann mittels Laserschneiden oder durch Auflösen einer zuvor eingebrachten Störschicht vom Substrat abgelöst werden. Letzteres wird auch als Klonen bezeichnet und hat den Vorteil, dass der Materialverlust lediglich  $1 \mu\text{m}$  beträgt [67]. Beim Klonen werden Kohlenstoffionen einige  $\mu\text{m}$  tief in das Substrat implantiert, bevor dieses beschichtet wird [63]. Erhitzt man die Probe im Vakuum, dann wandelt sich das implantierte Gebiet in Graphit um, das entweder durch eine Säure oder mit Sauerstoff bei 550 bis  $600^\circ\text{C}$  aufgelöst werden kann [68]. Somit ist es möglich, die gesamte Schicht abzulösen und das Substrat erneut zu verwenden.

### 3.3 Vor- und Nachteile von Diamant für die Röntgenbeugung und Röntgenpolarimetrie

In den vorangegangenen Abschnitten wurden bereits Vor- und Nachteile von Diamant für die Röntgenbeugung und Röntgenpolarimetrie aufgezeigt und diskutiert. Nachfolgend sollen die Wichtigsten noch einmal zusammengefasst und kurz erklärt werden.

### Gitterkonstante

Mit  $3,567 \text{ \AA}$  ist die Gitterkonstante von Diamant mehr als 1,5 mal kleiner als die von Silizium oder Germanium. Das ist gleichbedeutend mit einer höheren Photonenenergie (kürzeren Wellenlänge) für Netzebenen mit den gleichen Miller-Indizes ( $h, k, l$ ) und bei Beugung unter dem gleichen Braggwinkel. Im Detail bedeutet das, dass die Wellenlänge bei  $\theta_B = 45^\circ$  für den C(004)-Reflex  $1,26 \text{ \AA}$  beträgt, anstatt der  $1,92 \text{ \AA}$  für den Si(004)-Reflex. Insbesondere für den Nachweis der Vakuumdoppelbrechung ist eine kürzere Wellenlänge von Vorteil, da die Stärke des zu erwartenden Signals mit  $\lambda^{-2}$  skaliert [9]. Andere Experimente, die eine exzellente Polarisationsreinheit bei gleichzeitig möglichst hoher Photonenenergie benötigen, könnten ebenfalls davon profitieren.

### Debye-Waller-Faktor

Der Debye-Waller-Faktor  $\exp(-M_j)$  gibt die Reduktion der Streuamplitude aufgrund von Gittervibrationen (Schwingungen der Atome um ihre mittlere Ruheposition) an. Er kann maximal eins werden und ist umso größer, je höher die Debye-Temperatur  $\Theta_D$  eines Materials ist. Mit 1860 K hat Diamant eine circa dreimal höhere Debye-Temperatur  $\Theta_D$  als Silizium [50]. Der Debye-Wallerfaktor ist somit größer, was bedeutet das mehr Strahlung kohärent elastisch gebeugt wird und der Anteil an thermisch diffus gestreuter Strahlung geringer ist. Bei Photonenenergien von über 20 keV und in der Neutronenbeugung wird die thermisch diffuse Streuung als eine Ursache für die Erhöhung von Rockingkurvenausläufern angegeben [69, 70]. Es ist anzunehmen, dass durch eine Verringerung der thermisch diffusen Streuung auch der Einfluss von Umweganregungen, welche die Polarisationsreinheit limitieren, reduziert werden kann. Ein Nachweis dessen steht jedoch noch aus.

### Intensität der Umweganregungen

Umweganregungen limitieren die erreichbare Polarisationsreinheit. Ihre Intensität muss daher so gut es geht reduziert werden. Das ist zum einen mit einer Optimierung des Azimuts möglich, bei der der Kristall um den reziproken Gittervektor gedreht wird. Zum anderen kann die Intensität der Umweganregungen durch das verwendete Kristallmaterial verringert werden. Die Idee zu Letzterem geht auf eine Entdeckung von Tischler und Batterman aus dem Jahr 1986 zurück [25]. Sie fanden heraus, dass die Intensität der Umweganregungen für Silizium und Germanium mit  $Z^4$  skaliert, wobei  $Z$  die Ordnungszahl des Kristallmaterials ist. Diese Erkenntnis war richtungsweisend für die vorliegende Arbeit und die Idee, die Polarisationsreinheit mit Diamantkristallen zu verbessern. Für Diamant ( $Z = 6$ ) ist die Intensität der Umweganregungen deutlich geringer als für Silizium ( $Z = 14$ ), was in Abbildung 2.5 auf Seite 17 zu sehen ist. Daher kann mit Diamant sehr wahrscheinlich eine höhere Polarisationsreinheit erreicht werden.

### Absorption

Die Absorption von Diamant ist ungefähr eine Größenordnung geringer als die von Silizium (bei  $E_{ph} = 8 \text{ keV}$ ), wodurch sich ein Reflexionsvermögen von fast 100% im Rockingkurvenmaximum ergibt [13, 50]. Das ist insbesondere dann von Vorteil, wenn der Strahl mehrmals reflektiert werden soll. Verwendet man einen Silizium Channel-Cut mit sechs Reflexionen bei einer Photonenenergie

von  $E_{ph} = 6,45 \text{ keV}$ , verliert man im Rockingkurvenmaximum ca. 40% an Intensität. Mit einem Channel-Cut aus perfektem Diamant beträgt der Verlust nicht einmal 1%.

Die niedrige Absorption von Diamant kann auch von Nachteil für die Röntgenpolarimetrie bei Braggwinkeln von  $\theta_B \neq 45^\circ$  sein. Nicht nur die  $\sigma$ -Polarisation, sondern auch die  $\pi$ -Polarisation wird im Diamant weniger stark absorbiert. Daraus ergeben sich zwei Konsequenzen. Zum einen lassen sich bei Braggwinkeln  $\theta_B \neq 45^\circ$  nicht so hohe Polarisationsreinheiten erreichen, wie es z.B. mit stärker absorbierenden Kristallen wie Silizium oder Germanium möglich ist. Zum anderen sind die Anforderungen an die Energiejustage für  $\theta_B = 45^\circ$  höher, da bereits kleine Abweichungen von einigen Elektronenvolt zu einer signifikanten Verschlechterung der Polarisationsreinheit führen. Der Absolutwert der Photonenenergie muss demzufolge mit einer höheren Genauigkeit eingestellt werden und die Einstellung muss stabiler sein.

### Strukturfaktor

Bedingt durch die geringere Ordnungszahl ist der Atomformfaktor und somit der Strukturfaktor von Diamant kleiner als bei Silizium. Ein kleinerer Strukturfaktor bedeutet eine schmalere Rockingkurvenbreite  $\omega$ , wodurch weniger vom einfallenden Energiespektrum  $\Delta E$  gebeugt wird. In den meisten Fällen hat die Röntgenquelle bzw. der Monochromator eine wesentlich größere Energiebandbreite (ca. 1 bis 100 eV) als der Polarisator. Letzterer wirkt dann wie ein Bandbreitenfilter, wodurch Intensität verloren geht. Für einen parallelen Strahl und perfekte Kristalle kann man die Energiebandbreite über  $\Delta E = \omega \cdot E_{ph} / \tan(\theta_B)$  aus der Rockingkurvenbreite  $\omega$ , der Photonenenergie  $E_{ph}$  und dem Braggwinkel  $\theta_B$  abschätzen. Für den Diamant-(004)-Reflex erhält man so bei 9,83 keV eine Bandbreite von  $\Delta E = 0,1 \text{ eV}$  und für den Si(004)-Reflex  $\Delta E = 0,3 \text{ eV}$  bei 6,45 keV. Aufgrund der höheren Energiebandbreite würde man hinter einen Si(004)-Polarisator ca. dreimal mehr Intensität erwarten, als hinter einem C(004)-Polarisator. In der Realität fällt der Unterschied jedoch geringer aus, da bei Silizium Channel-Cuts zusätzlich Intensität durch das niedrigere Reflexionsvermögen im Rockingkurvenmaximum verloren geht.

### Herstellung und Verfügbarkeit perfekter Kristalle

Ein wesentlicher Nachteil von Diamant ist seine aufwendige Herstellung und die schlechte Verfügbarkeit qualitativ hochwertiger Kristalle. Diamanten mit nur wenigen Versetzungen und Stickstoffsubstitutionsatomen können mit dem HPHT-Verfahren hergestellt werden, allerdings beträgt ihre Größe gerade einmal 12 mm im Durchmesser [57]. In der Vergangenheit wurden HPHT-Diamanten von den Firmen General Electric (USA), ASEA (Schweden), De Beers (Großbritannien) und Sumitomo (Japan) hergestellt. Leider war es nicht möglich vier bzw. acht HPHT-Diamanten vom Typ IIa zu erwerben.

Seit einigen Jahren verkauft das De Beers Tochterunternehmen Element6 synthetische CVD Diamanten vom Typ IIa mit einer Größe von bis zu  $8 \times 8 \times 1,2 \text{ mm}^3$ . Wie im Rahmen dieser Arbeit herausgefunden wurde, haben diese Kristalle sehr viele Versetzungen. Im Vergleich dazu ist Silizium als nahezu versetzungsfreier Einkristall mit einem Anteil von  $10^{-9}$  bis  $10^{-11}$  Substitutionsatomen und Durchmessern von üblicherweise 150 bis 200 mm verfügbar [71]. Aus den großen Silizium-Ingots

können monolithische Channel-Cuts mit sechs oder acht aufeinanderfolgenden Reflexionen und beliebiger Asymmetrie gefertigt werden [20]. Das ist mit den kleinen Diamantkristallen leider nicht möglich, wodurch sich zusätzliche Schwierigkeiten für die Realisierung einer Channel-Cut-Optik aus Diamant ergeben.

## 4 Experimentelle Methoden

Die vorliegende Dissertation ist innerhalb der AG Röntgenoptik die erste Arbeit, die sich mit Diamantkristallen beschäftigt. Gleichzeitig sollte ein Röntgenpolarimeter entwickelt werden, das empfindlicher ist als die bislang aus quasi perfekten Silizium bestehenden. Der Markt für perfekte Diamanten ist sehr klein und es ist schwierig, gute Kristalle zu beschaffen. Daher bestand ein großes Interesse, mehr über die verwendeten Diamanten, sowie deren Vor- und Nachteile für die Röntgenoptik und die Röntgenpolarimetrie zu erfahren. Zu diesem Zweck wurden mehrere Experimente durchgeführt. Neben den üblichen röntgenographischen Methoden, wie Topographie und Rockingkurvenmessungen, wurden auch optische Verfahren zur Untersuchung der Spannungsdoppelbrechung und Ermittlung der Oberflächenstruktur eingesetzt. In diesem Abschnitt sollen die verwendeten experimentellen Methoden und Prüfverfahren kurz erläutert werden.

### 4.1 Optische Untersuchungsmethoden

#### 4.1.1 Interferometrie zur Bestimmung der Oberflächenstruktur und der Kristalldickenvariation

Für perfekte Kristalle beträgt die Extinktionstiefe im Bragg-Fall meist nur einige Mikrometer (z.B.  $\Lambda_0^g = 7,5 \mu\text{m}$  für C(400) bei  $E_{ph} = 9,83\text{keV}$ ). Der größte Teil der Intensität wird daher nah an der Oberfläche aus dem Kristall heraus gebeugt. Ist die Oberfläche gestört, so kann das negative Auswirkungen auf die Eigenschaften der Röntgenoptik haben. Von Silizium ist bekannt, dass sich durch eine schlechte Oberflächenbearbeitung die Rockingkurven verbreitern und das maximale Reflexionsvermögen im Peak abnimmt. Unregelmäßige Oberflächen können auch die Wellenfront z.B. eines kohärenten FEL-Strahls stören [20]. Aus diesem Grund ist es sinnvoll, die Oberflächen der verwendeten Kristalle näher zu untersuchen.

Zur Aufklärung der Oberflächenstruktur wurden zwei verschiedene interferenzoptische Messgeräte verwendet. Mit dem Planflächenprüfgerät 63 von Carl Zeiss wurde zunächst die Oberfläche der Diamantkristalle überprüft und die Verkippung zwischen Vorder- und Rückseite bestimmt. Für eine exakte dreidimensionale Vermessung der Kristalloberflächen wurde in Kooperation mit dem Fraunhofer Institut für Angewandte Optik und Feinmechanik ein 3D Profilometer Zygo New View 7300 verwendet. Im folgenden soll die Funktionsweise der beiden Messsysteme kurz erläutert werden.

#### Planflächenprüfgerät 63

Das in Abbildung 4.1 zu sehende Planflächenprüfgerät 63 von Carl Zeiss besteht aus einem Fizeau-Interferometer mit gefilterter Quecksilber-Hochdrucklampe ( $\lambda \approx 550\text{nm}$ ). Bei diesem wird die zu

prüfende Oberfläche parallel zu einer Referenzfläche justiert, sodass das von beiden Flächen reflektierte Licht miteinander interferiert. Aus dem Streifenmuster des entstandenen Interferenzbildes kann man die Form und die Unebenheit der geprüften Oberfläche bestimmen.

Das vertikale Auflösungsvermögen ist durch die Ebenheit der Referenzfläche begrenzt, welche vom Hersteller mit  $\lambda/20$  angegeben wurde. Setzt man voraus, dass der Bediener des Gerätes in der Lage ist, 20 Interferenzlinien auf 1 mm abzuzählen, kann man das laterale Auflösungsvermögen auf ca.  $50\ \mu\text{m}$  abschätzen. Innerhalb der Arbeitsgruppe dient das Prüfgerät zur Sichtkontrolle und eventueller Nachbearbeitung von Kristalloberflächen. In den meisten Fällen ist hierbei eine Ebenheit von weniger als  $\lambda/2$  ausreichend, was bei größeren Kristallen ( $> 1 \times 1\ \text{cm}^2$ ) mit dem Auge sehr leicht überprüft werden kann. Der Aufbau verfügt standardmäßig nicht über ein Objektiv und auch nicht über eine Kamera mit Auswertesoftware, was die Vermessung kleiner Oberflächen erschwert. Exakte Oberflächenprofile der lediglich  $8 \times 8\ \text{mm}^2$  großen Diamantkristalle wurden daher mit einem moderneren Interferometer aufgenommen. Das Planflächenprüfgerät kann auch zur Bestimmung der Parallelität von Vorder- und Rückseite einer transparenten Probe verwendet werden. Hierfür muss die Probenoberfläche nur stark gegenüber der Referenzfläche verkippt werden. Die dann sichtbare Interferenz gleicher Dicke entsteht durch die Überlagerung des an der Vorder- und Rückseite der Probe reflektierten Lichtes. Aus der Streifenanzahl  $N$  des Interferenzbildes, der Wellenlänge  $\lambda$  des eingestrahlt Lichts und dem Brechungsindex  $n$  der Probe lässt sich über:

$$h = \frac{N \lambda}{n 2} \quad (4.1)$$

die Höhe  $h$  einer keilförmigen Probe abschätzen. Aus der Keilhöhe und der Kantenlänge der Probe kann man wiederum auf die Parallelität der Probenvorder- und -rückseite schließen.

### 3D Profilometer Zygo New View 7300

Mit dem 3D Profilometer Zygo New View 7300 war es möglich, Oberflächenprofile der Kristallvorder- und -rückseiten mit einer Auflösung von vertikal 2 nm und lateralen  $4,42\ \mu\text{m}$  aufzunehmen. Das System funktioniert ähnlich wie ein Michelson-Interferometer mit Weißlichtquelle. Strahlteiler und Referenzspiegel des Interferometers sind in einem festem Abstand zueinander im Objektiv des Profilometers verbaut. Das Licht einer Weißlicht-LED wird im Objektiv am Strahlteiler aufgeteilt, so dass ein Teil des Lichtes auf die Probe und ein anderer Teil auf den Referenzspiegel trifft. Mit einem piezoelektrisch verfahrbaren Probentisch kann die zu untersuchende Oberfläche parallel zum Referenzspiegel und in der Höhe bewegt werden. Ist die optische Wegstrecke zwischen Strahlteiler



Abbildung 4.1: Planflächenprüfgerät 63 von Carl Zeiss

und Referenzspiegel genau so groß, wie die Strecke zwischen Strahlteiler und Probenoberfläche, so entsteht ein Interferenzmuster. Dieses Interferenzmuster wird mit einem Bildsensor für verschiedene Höhen und Positionen auf der Probe aufgenommen und in eine dreidimensionale Oberflächenstruktur umgerechnet. Der Bildsensor besteht aus  $640 \times 480$  Pixeln mit einer Pixelgröße von ca.  $22 \mu\text{m}$ . Mit dem verwendeten Objektiv (NA 0,14) verfügt das System über eine 5-fache Vergrößerung und ein  $2,83 \times 2,12 \text{ mm}^2$  großes Bildfeld. Größere Probenoberflächen können vermessen werden, indem mehrere Aufnahmen mit individuell einstellbarer Überlappung aneinander gesetzt werden. Für die  $8 \times 8 \text{ mm}^2$  großen Diamantkristalle wurden die aufgezeichneten Oberflächenprofile aus  $4 \times 6$  Aufnahmen zusammengesetzt [72].

#### 4.1.2 Polarisationsprüfung zur Bestimmung der optischen Spannungsdoppelbrechung

Diamant gehört zu den kubischen Kristallsystemen und sollte daher isotrope optische Eigenschaften haben. Dennoch ist aus der Literatur bekannt, dass Diamantkristalle eine schwache Doppelbrechung aufweisen [60, 73, 74]. Dieses optische Phänomen lässt sich damit erklären, dass die isotrope Natur der Kristalle durch innere Verspannungen, z.B. hervorgerufen durch Einlagerungen oder Versetzungen, gestört ist. Die Verspannungen verursachen eine Änderung des Brechungsindex und führen somit zu einer Doppelbrechung. Diese Spannungsdoppelbrechung kann mit einem Polarisationsprüfgerät beobachtet werden und erlaubt es, die Kristalle hinsichtlich ihrer Qualität miteinander zu vergleichen und ggf. eine Vorauswahl zu treffen. Durch eine ausführliche Analyse der Muster kann die Größenordnung der inneren Verspannungen abgeschätzt und deren Ursache bestimmt werden.

In Abbildung 4.2 ist das Polarisationsprüfgerät von Carl Zeiss zu sehen, mit dem die Spannungsdoppelbrechungsmuster beobachtet wurden. Es besteht im wesentlichen aus einer Weißlichtlampe (L), einem im inneren fest verbauten Polarisator, einem Einschub (E) für weitere optische Elemente wie z.B. Phasenplatten oder Farbfiler, einem Proben­tisch (T) und einem drehbaren Analysator (A). Zur Beobachtung mit dem Auge kann das Okular (O) benutzt werden. Für die Aufnahme von Fotos wird über dem Schauglas (S) eine Kamera angebracht. Die in dieser Arbeit gezeigten Spannungsdoppelbrechungsbilder wurden mit einer Kamera vom Typ Canon EOS 100D aufgenommen. Im Falle gekreuzter Polarisatoren wurde für die CVD Diamanten eine Belichtungszeit von  $1/250''$  und für den HPHT Diamanten  $2,5''$  gewählt.

Zur quantitativen Bestimmung der Spannungsdoppelbrechung wurde eine  $\lambda/4$ -Platte mit Hauptachse parallel zur einfallenden Polarisation über die Probe eingebaut. Dieses Vorgehensweise ist auch als Sénarmont-Kompensationsverfahren bekannt [75, 76]. Das durch die doppelbrechende

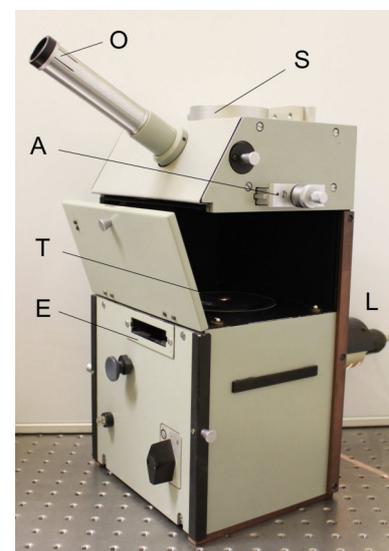


Abbildung 4.2: Polarisationsprüfgerät von Carl Zeiss

Probe erzeugte elliptisch polarisierte Licht wird von der  $\lambda/4$ -Platte wieder in linear polarisiertes Licht überführt. Allerdings ist die Polarisationsrichtung um einen Winkel  $\Delta\phi$  gegenüber der auf die Probe einfallenden Polarisation verdreht. Durch Nachstellen des Winkels am Analysators kann diese Polarisationskomponente zur Auslöschung gebracht und minimale Intensität hinter dem Analysator erreicht werden. Der nachgestellte Winkel entspricht der Phasenverschiebung  $\Delta\phi$ . Mit der Gleichung:

$$\Delta\phi = \frac{2\pi t}{\lambda_0} \Delta n \quad (4.2)$$

kann aus der Phasenverschiebung  $\Delta\phi$ , der Wellenlänge  $\lambda_0$  ( $\lambda_0 \approx 550\text{nm}$ ) und der Probendicke  $t$  die Doppelbrechung  $\Delta n$  berechnet werden. Aus Gleichung (4.2) wird zudem die bereits in der Einleitung angesprochene umgekehrte Proportionalität zwischen Phasenverschiebung und Wellenlänge sichtbar.

## 4.2 Röntgenoptische Untersuchungsmethoden

### 4.2.1 Kristallorientierung

Die Oberfläche eines Kristalls muss nicht zwangsläufig parallel zu einer niedrig indizierten Gitterebene wie z.B. der (001)-Ebene sein. Je nach Herstellung und Bearbeitung des Kristalls liegt meistens ein kleiner Verschnitt von  $< 1^\circ$  zwischen Kristalloberfläche und Gitterebene vor. Für die Entwicklung einer Röntgenoptik ist es wichtig, Größe und Lage des Verschnitts zu kennen, um diesen ggf. bei der optischen Vorjustage bereits ausgleichen zu können.

Der Verschnitt der Diamantkristalle wurde mit dem in Abbildung 4.3 gezeigten Aufbau der Firma Huber bestimmt. Bei diesem kann mit einem optischen Autokollimator die Kristalloberfläche mit den darunter befindlichen Zweikreissegmenten senkrecht zur Drehachse des Azimutgoniometers justiert werden. Im Anschluss daran wurde die Kristalloberfläche ins Drehzentrum des  $\theta - 2\theta$ -Kreis gefahren und sowohl Bragg-Winkel als auch Detektor auf den gewünschten Reflex justiert. Für die eigentliche Messung wird ein  $\theta$ - $2\theta$ -Scan aufgenommen und danach das Azimut um einen bestimmten Wert (z.B.  $30^\circ$ ) gedreht. Beide Vorgänge werden wahlweise solange wiederholt, bis die Kristalloberfläche einmal  $360^\circ$  um seine Drehachse gedreht wurde. Aus der Verschiebung des Maximums der  $\theta$ - $2\theta$ -Scans in Abhängigkeit vom Azimut lässt sich der Wert des maximalen Verschnitts und dessen azimutale Lage bestimmen.

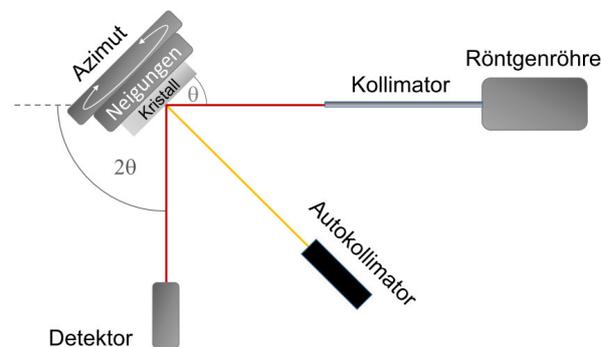


Abbildung 4.3: Kristallorientierung

### 4.2.2 Projektionsröntgentopographie nach Lang

Die Röntgentopographie ist ein Verfahren, mit dem die räumlichen Verteilung von Defektstrukturen abgebildet und die Topografie der Netzebenen untersucht werden kann. Hierfür wird mit einem Röntgenfilm oder einer Bildplatte die gebeugte Intensität als Funktion der Position über einem Kristall aufgezeichnet. Im Gegensatz zur Sektionsröntgentopografie (engl: *section topography*), bei der Kristall und Film fest stehen, wird bei der Projektionsröntgentopografie (engl: *projection topography*) der Kristall zusammen mit dem Film relativ zur Quelle verschoben und somit der gesamte Kristall abgebildet.

In Abbildung 4.4 ist die verwendete Lang-Kamera zu sehen. Ein wesentlicher Bestandteil ist der lange Kollimator (K) mit dem unter Verwendung kleiner Spalte (S) die horizontale Divergenz der Röntgenquelle stark eingeschränkt werden kann. Dadurch ist es möglich die Linien des  $K\alpha$ -Dubletts hinter dem Kristall voneinander zu trennen, um so die Auflösung des Aufbaus zu erhöhen und Doppelbilder im Röntgentopogramm zu verhindern. Die Vertikalblenden des Kollimators werden so gewählt, dass die gesamte Probe ausgeleuchtet wird. Der Kristall ist in der Regel auf das Maximum der charakteristischen  $K\alpha_1$ -Linie justiert. Soll ein Transmissionstopogramm aufgenommen werden, steht der Röntgenfilm (F) im gebeugten Strahl des Laue-Reflexes (siehe Abbildung). Für die Aufnahme eines Reflexionstopogramms wird der Bragg-Reflex genutzt. Die Probe (P) und Röntgenfilm (F) sind fest miteinander verbunden und lassen sich gemeinsam mit dem Translationsschlitten (T) horizontal zum Strahl verschieben, ohne dass sich der Einfallswinkel ändert. Dadurch ist es möglich spaltenweise ein Topogramm vom gesamten Kristall aufzunehmen (Projektionsmethode). Eine Blende vor dem Röntgenfilm verhindert, dass der Primärstrahl den Film trifft. Das Ergebnis der Topographie ist ein kontrastreiches Schwarz-Weiß-Bild, auf dem evtl. vorhanden Defekte und Störungen im Kristall zu erkennen sind.

Mit dem Aufbau ist es auch möglich eine Netzebenenanalyse durchzuführen. Hierfür wird der Einfallswinkel am Kristall in einem Bereich von mehreren Bogenminuten schrittweise geändert und die gebeugte Intensität mit einem Detektor, z.B. einem Szintillationszähler, aufgezeichnet. Die aufgezeichnete Intensitätsverteilung wird als Rockingkurve bezeichnet. Ist dieser Scan abgeschlossen, wird der Kristall mithilfe des Translationsschlitten relativ zum Primärstrahl verschoben und eine weitere Rockingkurve aufgezeichnet. Beide Vorgänge werden so oft wiederholt, bis der Kristall einmal über seine kompletten Länge verschoben wurde. Mit den gewonnenen ortsabhängigen Rockingkurven kann die Regelmäßigkeit der Netzebenen überprüft und der Winkel einer evtl. vorhandenen Fehlorientierung an verschiedenen Stellen auf dem Kristall bestimmt werden.

Als Röntgenquelle wurde eine Feinstfokus-Röntgenröhre mit Silber als Anodenmaterial und einer Quellgröße von 0,84 mm horizontal und 0,4 mm vertikal benutzt. Von jedem CVD Diamanten wurden Transmissionstopogramme des (400)- und (040)-Reflexes ( $\theta_B = 18,3^\circ$ ) und Reflexionstopogramme des (008)-Reflexes ( $\theta_B = 38,9^\circ$ ) aufgenommen. Um die Linien des  $K\alpha$ -Dubletts voneinander zu trennen, musste die horizontale Divergenz  $\Delta\theta_{hor}$  auf weniger als 535 arcsec bzw. im Fall des (008)-Reflexes auf weniger als 1300 arcsec reduziert werden. Dafür wurde eine 0,79 mm Blende unmittelbar nach der Quelle und eine 1,0 mm große Blende in 120 cm Entfernung in den Kollimator eingesetzt.

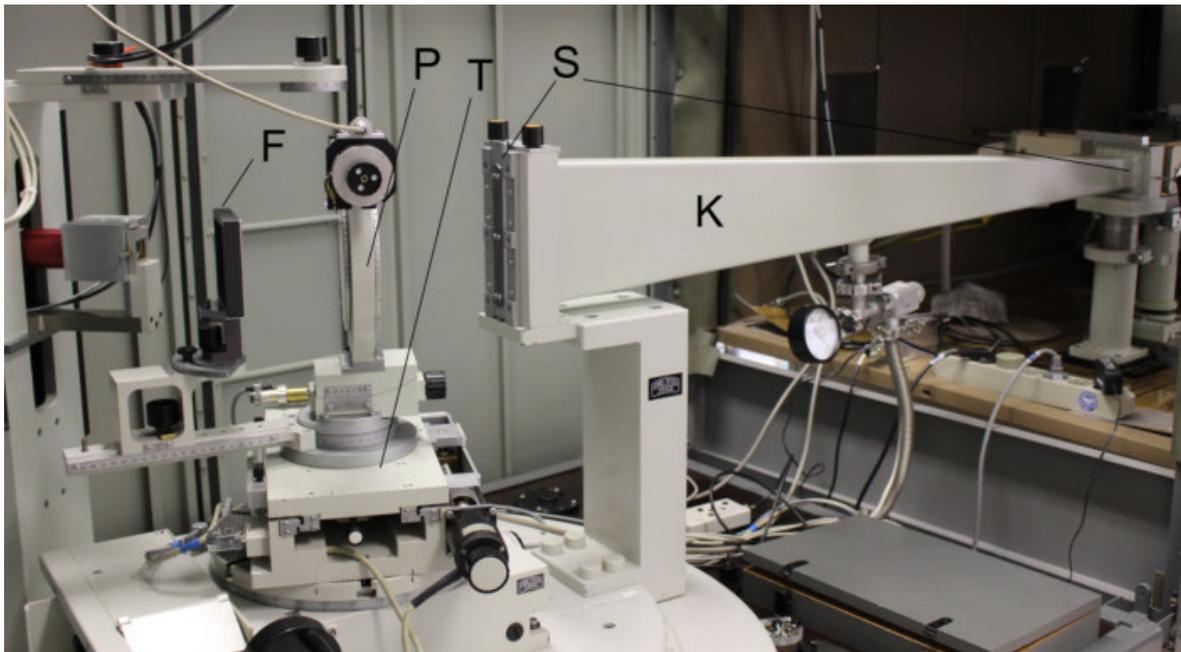


Abbildung 4.4: Abbildung der Lang-Kamera LK-160 mit der Reflexions- und Transmissionstopogramme aufgenommen wurden.

Somit ergibt sich eine horizontale Divergenz  $\Delta\theta_{hor}$  von ca. 308 arcsec. Die vertikale Divergenz  $\Delta\theta_{ver}$  wurde mit einer 10mm Lochblende auf ca. 900 arcsec begrenzt. Für die Netzebenenanalyse wurden 0,22mm, 0,20mm und 1,0mm große Blenden verwendet. Das entspricht einer Divergenz von  $\Delta\theta_{hor} \approx 72$  arcsec und  $\Delta\theta_{ver} \approx 240$  arcsec.

Da ein Topogramm ein Bild ist, ist die räumliche Auflösung eines der wichtigsten Merkmale. Diese wird durch die Korngröße des Fotofilms, die Geometrie des experimentellen Aufbaus und den Beugungsprozess beschränkt. Offensichtlich kann die Auflösung nicht besser sein als die Korngröße des verwendeten Fotofilms. Üblicherweise liegt diese im Bereich von einigen wenigen 2 bis 10  $\mu\text{m}$  und ist in unserem Fall nicht limitierend [77, 78]. Die geometrische Auflösung ergibt sich aus der Quellgröße und den Abständen zwischen Quelle, Kristall und Fotofilm. Sie kann auf horizontal 30 bis 50  $\mu\text{m}$  und vertikal 13 bis 23  $\mu\text{m}$  abgeschätzt werden. In ungünstigen Fällen wird die Auflösung durch den Beugungsprozess weiter verschlechtert. Dabei sind zwei Effekte zu beachten. Zum einen ist man für schmalere Rockingkurven empfindlicher auf Gitterstörungen des Kristalls. Zur Größe eines Defekts im Topogramm tragen dann auch Regionen bei, die weiter weg vom Zentrum der Störung liegen. Für die verwendete  $\text{AgK}\alpha$ -Strahlung sind die Rockingkurven lediglich 0,5 arcsec schmal. Dies führt dazu, dass Defekte wie z.B. Versetzungen entsprechend breit und diffus abgebildet werden, mit anderen überlappen können und sich somit nicht mehr klar trennen lassen. Zum anderen hat Röntgenstrahlung eine für perfekte Kristalle durch die Extinktionstiefe gegebene Eindringtiefe von einigen 10  $\mu\text{m}$ . Für gestörte Kristalle kann diese näherungsweise durch die Absorptionstiefe ersetzt werden, welche mit  $\mu_0 = 20,7$  mm größer als die Kristalldicke (0,7 bis 1,2 mm) ist. Somit enthält jeder Bildpunkt auf dem Topogramm Informationen aus der gesamten Kristalltiefe.

### 4.2.3 Das Doppel- oder Zweikristalldiffraktometer (DKD)

Um quantitative Aussagen über die Reflexionseigenschaften oder die Perfektion von Kristallen treffen zu können, werden üblicherweise Rockingkurvenmessungen durchgeführt. Eine wesentliche Herausforderung dabei ist es, dass die gemessene Rockingkurve immer eine Faltung aus der intrinsischen Reflexionskurve des Kristalls<sup>1</sup> mit der Energiebandbreite  $\Delta E$  und der Divergenz  $\Delta\theta$  des Versuchsaufbaus ist. In der Regel löst man dieses Problem mithilfe eines Doppelkristallaufbaus. Dabei wird die von einer Quelle emittierte Röntgenstrahlung an einem ersten Kristall so gebeugt, dass die Bragg-Bedingung erfüllt ist. Nach dieser ersten Beugung bestehen ein fester Zusammenhang zwischen Energie- bzw. Wellenlängen- und Divergenzspektrum. Jede Photonenenergie  $E_i$  kann einem ganz bestimmten Einfallswinkel  $\theta_i$  zugeordnet werden. An einem zweiten Kristall wird die gebeugte Intensität in Abhängigkeit vom Einfallswinkel gemessen, indem dieser schrittweise gedreht wird. Sind die Netzebenen beider Kristalle parallel zueinander, besitzen sie den gleichen Netzebenenabstand und sind beide Kristalle perfekt, können alle Strahlen mit der Photonenenergie  $E_i$  und dem Einfallswinkel  $\theta_i$ , die am ersten Kristall die Bragg-Bedingung erfüllen, diese auch am zweiten Kristall erfüllen. Die Rockingkurve des zweiten Kristalls ergibt sich dann als Faltung der Darwin-Prins-Kurven der beiden Kristalle. Diese Kristallanordnung wird auch als nicht-dispersive oder (+n, -n)-Konfiguration bezeichnet. Dabei bedeutet n die verwendete Kristallreflexion (z.B. Si(111)) und die Kombination von positiven und negativen Vorzeichen deutet darauf hin, dass die Netzebenen parallel zueinander stehen. Ist einer der beiden Kristalle gestört, dann ist die gemessene Rockingkurve gegenüber der theoretisch berechneten Faltung verbreitert und man müsste weitere Vergleichsmessungen anstellen, um herauszufinden, welcher der beiden Kristalle gestört ist. Sind beide Kristalle gestört, wird es umso schwieriger. Aus den bisherigen Untersuchungen (siehe z.B. Röntgentopogramme Abschnitt 5.2.2) ist bekannt, dass alle Diamantkristalle erhebliche Gitterstörungen aufweisen. Zur Messung von Rockingkurven und zum Vergleich der Kristalle untereinander ist der Doppelkristallaufbau in diesem Fall nicht geeignet. Um dennoch Rockingkurven messen zu können, die nicht durch den Versuchsaufbau oder die Quelle verbreitert sind, muss die Energiebandbreite  $\Delta E$  und die Divergenz  $\Delta\theta$  minimiert werden. Dies ist zum Beispiel mit einem Dreikristallaufbau möglich.

### 4.2.4 Der Dreikristallaufbau

Zur Messung von möglichst unverbreiterten Rockingkurven wurde ein Dreikristallaufbau in (+n, +n, -m)-Konfiguration genutzt. (+n, +n) bedeutet, dass an den ersten beiden Kristallen die gleichen Netzebenen verwendet wurden, diese aber antiparallel zueinander stehen. Das -m steht für den dritten Kristall, für den eine andere Reflexion genutzt wurde und dessen Netzebene parallel zu der des zweiten Kristalls steht. Der Vorteil einer solchen Kristallanordnung wurden bereits 1937 in einer Arbeit von DuMond beschrieben [79]. Durch die antiparallele Stellung der ersten beiden Kristalle entsteht ein schmalbandiges Strahlenbündel mit geringer Divergenz. Mit diesem kann die Rockingkurve eines dritten Kristalls sehr genau abgetastet werden. Renninger benutzte 1955 einen solchen Aufbau, um die Asymmetrie der Darwin-Prins-Kurve von Calcit-Kristallen zu messen [80].

<sup>1</sup>diese wird allgemein hin als Darwin-Prins Kurve bezeichnet

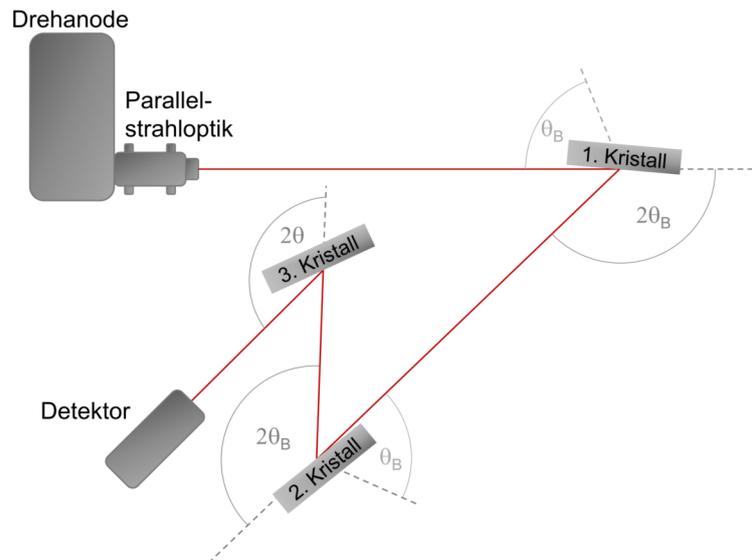


Abbildung 4.5: Schema des verwendeten Dreikristallaufbaus

Abbildung 4.2.4 zeigt ein Schema des verwendeten Dreikristallaufbaus. Als Quelle diente eine Mikrofokus Drehanode vom Typ MicroMax-007 HF mit Kupferanode und Multilayer-Parallelstrahl-optik von Rigaku. Die ersten beiden Kristalle waren polierte und geätzte Siliziumkristalle mit (001)-Oberflächen. Für beide Kristalle wurde der asymmetrische (353)-Reflex mit einem Asymmetriewinkel von  $\alpha = -62,77^\circ$  und einem Braggwinkel von  $\theta_B = 68,45^\circ$  verwendet. Durch den zweifachen streifenden Einfall (Einfallswinkel  $\theta = \theta_B - \alpha = 5,67^\circ$ ) und die antiparallele Stellung der Netzebenen vom ersten und zweiten Kristall, wird entsprechend der Rockingkurvenbreite  $0,9 \text{ arcsec}$  ein schmaler Energie- und Winkelbereich aus dem angebotenen Energie- und Divergenzspektrum der Quelle herausgeschnitten [79]. Somit entsteht ein paralleler und zugleich monochromatischer Strahl mit einer Restdivergenz von weniger als  $1 \text{ arcsec}$  und einer Energiebandbreite von  $\Delta E = 11 \text{ meV}$  bei einer Photonenenergie von  $E_{ph} = 8048 \text{ eV}$ . Abbildung 4.6(a) zeigt das zugehörige DuMond Diagramm für unpolarisierte Strahlung. Die Divergenz der Quelle übersteigt die Skalierung der Abszisse um ein Vielfaches und ist daher nicht eingezeichnet. Die theoretische Winkelverteilung der resultierenden „Strahlsonde“ nach dem zweiten Kristall ist für  $\pi$ ,  $\sigma$  und unpolarisierte Strahlung in Abbildung 4.6(b) gezeigt. Die Halbwertsbreite beträgt gerade einmal  $0,35 \text{ arcsec}$  für  $\pi$ -Polarisation bzw.  $0,55 \text{ arcsec}$  für  $\sigma$ -Polarisation und ist somit kleiner als die Rockingkurvenbreite der zu messenden Diamantkristalle. Dadurch lässt sich eine hohe Empfindlichkeit zum Beispiel auf Verbiegungen der Netzebenen erreichen. Darüber hinaus ist der Strahl nach dem zweiten Kristall horizontal stark aufgeweitet. Die Größe des maximal homogen nutzbaren Strahlprofils betrug  $10 \times 2 \text{ mm}^2$ , womit ein größeres Kristallgebiet untersucht werden konnte, ohne die Probe zu verschieben.

Der dritte Kristall war wahlweise einer der zu untersuchenden Diamantkristalle. Für die Rockingkurvenmessungen wurde Diamant (313)-Reflex mit einem Braggwinkel von  $\theta_B = 70,28^\circ$  gewählt. Bei diesem lassen sich die Rockingkurvenbreiten der CVD Diamanten direkt mit denen des HPHT Diamanten vergleichen. Aufgrund der ähnlichen Asymmetriewinkel ( $46,51^\circ$  für die CVD und  $49,54^\circ$  für

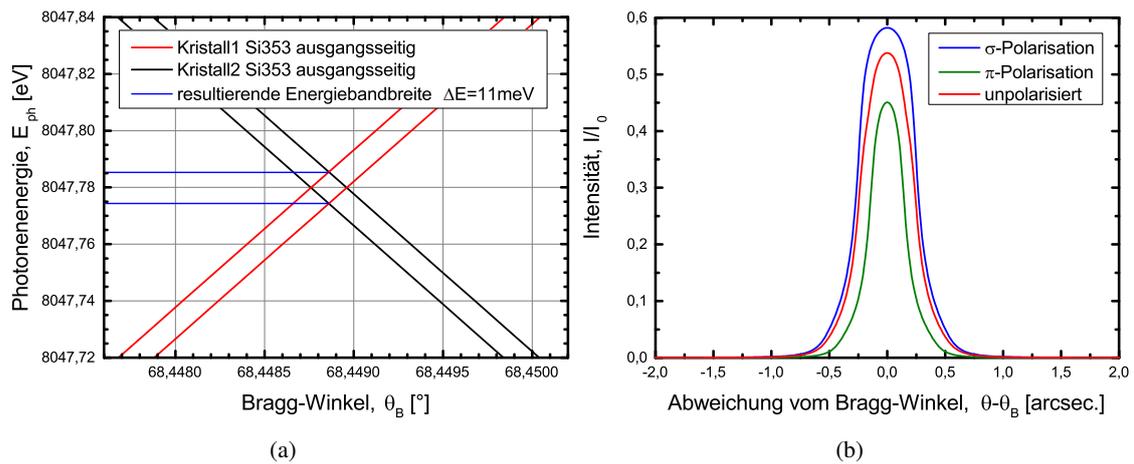


Abbildung 4.6: a) DuMond Diagramm für Si(353) in (n, n)-Konfiguration. Aufgetragen sind die Halbwertsbreiten des Si(353)-Reflexes für unpolarisierte Strahlung. b) Theoretisch berechnetes Winkelprofil nach dem zweiten Kristall des Dreikristallaufbaus

den HPHT Diamanten) sind die theoretischen Rockingkurven der unterschiedlich geschnittenen Kristalle nahezu identisch. Unter steilem Einfall beträgt die Halbwertsbreite der theoretischen Darwin-Prins-Kurven für  $\sigma$ -Polarisation nur 1,91 arcsec (bzw. 1,82 arcsec für den HPHT Diamanten).

Für einfache Rockingkurvenmessungen mit hoher Dynamik wurde die am dritten Kristall gebeugte Intensität  $I$  mit einer Avalanche-Photodiode<sup>2</sup> aufgezeichnet. Dafür wurde das untersuchte Kristallgebiet mit Schlitzblenden auf  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  eingeschränkt. Zusätzlich erfolgte vor und nach jedem Rockingkurvenscan die Messung der einfallenden Intensität  $I_0$ , um bei der Auswertung der Kurven das maximale Reflexionsvermögen in Prozent und das integrale Reflexionsvermögen in  $\mu\text{rad}$  ausrechnen zu können. Darüber hinaus wurden ortsabhängige Rockingkurven in einem größeren Kristallgebiet mit einer Röntgen-CCD<sup>3</sup> (engl: *charge-coupled device* kurz: CCD) bei weit geöffneter Schlitzblende ( $10 \times 10 \text{ mm}^2$ ) aufgenommen. Hierfür wurde der Braggwinkel des dritten Kristalls in einem Winkelbereich von  $0,02^\circ$  mit einer Schrittweite von  $6,25 \cdot 10^{-5}^\circ$  gescannt und nach jedem Schritt die CCD für 80 sek. belichtet. Die Auswertung der so gewonnenen Aufnahmen erfolgte mit einer selbstgeschriebenen MATLAB-Routine, auf die bei der Diskussion der Ergebnisse in Abschnitt 5.2.3 näher eingegangen wird.

### 4.3 Methoden der hochpräzisen Röntgenpolarimetrie

Es gibt zwei Möglichkeiten elektromagnetische Strahlung linear zu polarisieren. Eine besteht darin, die unterschiedliche Absorption von  $\pi$ - und  $\sigma$ -Polarisation auszunutzen. Für Röntgenstrahlung ist das mit Hilfe des Bormanneffekts möglich. Bei diesem wird der im Laue-Fall anomal transmittierte Strahl entsprechend dem Lambert-Beerschen-Gesetz geschwächt, allerdings erfolgt die Intensitäts-

<sup>2</sup>FMB Oxford Typ APD0008 200  $\mu\text{m}$  dick

<sup>3</sup>Princeton Instruments Typ PI-MTE 1300 mit 20  $\mu\text{m}$  Pixelgröße

abnahme im Zentrum der Rockingkurve nicht mit dem Absorptionskoeffizient  $\mu_0$ , sondern mit dem wesentlich schwächeren effektiven Absorptionskoeffizienten  $\mu_e = \mu_0(1 - |C\chi_{hi}/\chi_{0i}|)$ . Dieser ist aufgrund des Polarisationsfaktor  $C$  für die  $\pi$ - und  $\sigma$ -Komponente unterschiedlich. Bei Braggwinkeln  $0^\circ < \theta_B < 90^\circ$  wird die  $\pi$ -polarisierte Strahlung wesentlich stärker absorbiert und es entsteht ein teilweise linear polarisierter Röntgenstrahl. Vorteil dieser Methode ist, dass sie sich über einen breiten Wellenlängenbereich einsetzen lässt und sich dabei nur ein geringer Strahlversatz ergibt. Der Nachteil eines Borrmannpolarisators besteht darin, dass man für hohe Polarisationsreinheiten sehr dicke Kristalle braucht und somit auch die  $\sigma$ -Komponente stark geschwächt wird. Mit dieser Methode sind Polarisationsreinheiten von  $1.5 \cdot 10^{-5}$  an einer Drehanode nachgewiesen worden [81].

Bei der zweiten Möglichkeit wird die unterschiedliche Reflexion von  $\pi$ - und  $\sigma$ -Polarisation ausgenutzt. Stehen reflektierter und in das Material hinein gebrochener Strahl senkrecht zueinander, so ist der reflektierte Strahl vollständig linear polarisiert. Dies ist auch als Brewstersches-Gesetz bekannt. Für Röntgenstrahlung beträgt der Brechungsindex rund eins, wodurch sich ein Brewsterwinkel von  $45^\circ$  ergibt. Wird gleichzeitig die Bragg-Bedingung erfüllt, kommt es zu einer starken Reflexion. Durch mehrmaliges Reflektieren bei einem Braggwinkel von  $\theta_B = 45^\circ$  können Polarisationsreinheiten von bis zu  $2,4 \cdot 10^{-10}$  ohne große Intensitätsverluste erreicht werden [11]. Dafür werden Channel-Cut-Kristalle genutzt.

#### 4.3.1 Channel-Cut- und Quasi-Channel-Cut-Kristalle

Ein Channel-Cut (CC) ist ein monolithischer Kristall, in den ein Graben geschnitten wurde (siehe Abbildung 4.7). An den Wänden des Grabens wird der einfallende Röntgenstrahl mehrmals unter dem gleichen Braggwinkel reflektiert und verlässt den Kristall wieder in Vorwärtsrichtung. Je nach Anzahl der Reflexionen und Kanalbreite ergibt sich dabei ein Strahlversatz von einigen zehn bis zwanzig Millimetern. Für die Röntgenpolarimetrie werden Channel-Cuts bei Braggwinkeln von  $\theta_B \approx 45^\circ$  eingesetzt. Hier ist das Reflexionsvermögen der  $\pi$ -Polarisation sehr schwach im Vergleich zur  $\sigma$ -Komponente. Durch die mehrfachen Reflexionen wird diese weiter unterdrückt und so hochgradig linear polarisierte Strahlung erzeugt. In Näherung skaliert dabei die Polarisationsreinheit mit der Reflexanzahl  $N$  entsprechend der Gleichung:

$$\delta \frac{\int \int R_\pi^N(\theta, \lambda) B(\theta, \lambda) d\theta d\lambda}{\int \int R_\sigma^N(\theta, \lambda) B(\theta, \lambda) d\theta d\lambda}. \quad (4.3)$$

Häufig wird der Unterschied im Reflexionsvermögen von  $\pi$  und  $\sigma$  auf den Polarisationsfaktor  $C$  reduziert. Dieser wird dann aus der Gleichung (4.3) herausgezogen und die Reinheit mit  $\delta \approx |\cos(2\theta_B)|^N$



Abbildung 4.7: Channel-Cut-Kristall aus Silizium. Im Graben wird der Röntgenstrahl viermal an den Seitenwänden reflektiert [12].

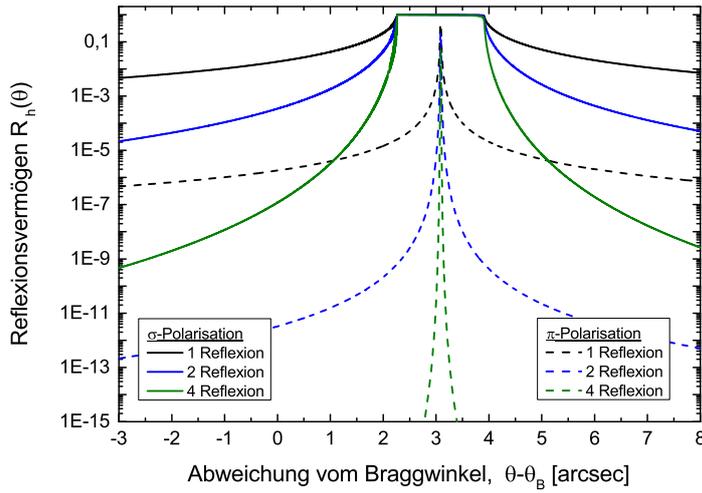


Abbildung 4.8: Rockingkurven der  $\pi$ - und  $\sigma$ -Polarisation für eins, zwei und vier aufeinanderfolgende Kristallreflexionen des C(400)-Reflexes bei einer Photonenenergie von 9881 eV und einem Braggwinkel von  $\theta_B = 44,71^\circ$ .

abgeschätzt. Wie in Tabelle 4.1 zu sehen ist, liefert diese Abschätzung für Diamant ab  $N \geq 2$  viel zu optimistische Werte.

Reflexzahl $N$	Integral $R_\pi^{Int.}$ [ $\mu\text{rad}$ ]	Integral $R_\sigma^{Int.}$ [ $\mu\text{rad}$ ]	Reinheit $\delta$	Reinheit $\delta \approx \cos(2\theta_B)^N$
1	$6 \cdot 10^{-2}$	11	$5 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-2}$
2	$2 \cdot 10^{-2}$	9	$2 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-4}$
4	$3 \cdot 10^{-3}$	8	$4 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$

Tabelle 4.1: Aus simulierten C(400)-Rockingkurven berechnetes integrales Reflexionsvermögen  $R_\pi^{Int.}$ ,  $R_\sigma^{Int.}$ , sowie die daraus resultierende Polarisationsreinheit für  $N$  gleich 1, 2 und 4 Kristallreflexionen für  $E_{ph} = 9881$  eV und  $\theta_B = 44,71^\circ$ . Zum Vergleich ist die Polarisationsreinheit nach der Abschätzung  $\delta \approx |\cos(2\theta_B)|^N$  gezeigt. Mehrstrahlfälle und andere reinheitslimitierende Effekte wurden nicht berücksichtigt.

Die Rockingkurven zu den Werten in Tabelle 4.1 sind in Abbildung 4.8 zu sehen. Aufgrund der geringen Absorption ist bei Diamant auch die  $\pi$ -Polarisation im Peak sehr stark. Das führt zu wesentlich schlechteren Polarisationsreinheiten bei Braggwinkeln  $\theta_B \neq 45^\circ$  als bei Silizium. Aus der Abbildung 4.8 wird ebenfalls ersichtlich, dass mit einer Erhöhung der Reflexanzahl die Ausläufer deutlich an Intensität verlieren. Dadurch ist es möglich, den Einfluss von Mehrstrahlfällen auf die Polarisationsreinheit zu verringern.

Mit einer Größe von  $8 \times 8 \times 1,2 \text{ mm}^3$  sind die verwendeten Diamanten zu klein, um daraus einen Channel-Cut herstellen zu können. Demzufolge wird ein Halter benötigt, der mehrere Kristalle parallel zueinander stellen kann, so dass ein künstlicher CC entsteht. Eine wesentliche Herausforderung hierbei sind die schmalen Rockingkurven. Die Kristalle müssen mit subbogensekunden Präzision ins Maximum justiert werden und dort möglichst mehrere Stunden verharren. Insofern ergeben sich besondere Anforderungen an die verwendeten Materialien und die eingesetzte Technologie. Um die thermische Ausdehnung so gering wie möglich zu halten, sind die Quasi-Channel-Cuts (QCC's) über-

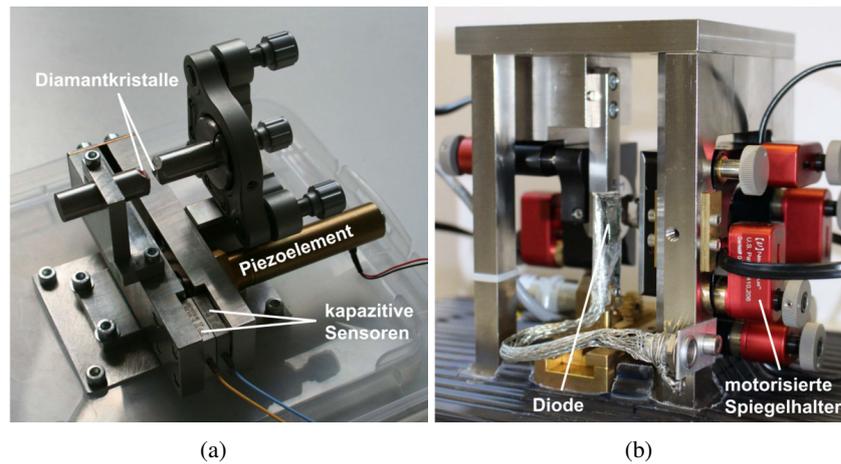


Abbildung 4.9: a) Zweireflexions-Quasi-Channel-Cut b) Vierreflexions-Quasi-Channel-Cut

wiegend aus Invar gefertigt. Für die Positionierung der Kristalle kommen Piezoelemente zum Einsatz, die entweder direkt oder in Form von Picomotor<sup>TM</sup> Aktuatoren<sup>4</sup> angewandt werden.

Es wurden zwei unterschiedliche QCC's verwendet. Zum einen kam der bereits von Berit Marx-Glowna entwickelte und in Abbildung 4.9(a) zu sehende Zweireflexions-QCC zum Einsatz. Mit diesem können lediglich zwei Kristalle pro Polarisatoreinheit verwendet werden. Ein mehrmaliges Reflektieren des Strahls pro Kristall ist bei den verwendeten Diamanten leider nicht möglich (siehe Kapitel 5). Um dennoch vier Kristallreflexionen zu realisieren, wurde der in Abbildung 4.9(b) zu sehende QCC entwickelt. Mit ihm ist es möglich, vier Kristalle pro Polarisatoreinheit parallel zueinander zu justieren und mit insgesamt acht individuellen Diamanten hoch präzise Röntgenpolarimetrie zu betreiben. Ein Vorteil der QCC-Technologie gegenüber einem monolithischen Channel-Cut ist die Möglichkeit, die Einzelkristalle gegeneinander zu verstimmen. Wie in Abbildung 4.8 zu sehen war, sind die Rockingkurven für die  $\pi$ -Polarisation extrem schmal. Durch ein Verstimmen der Kristalle überlappen sich diese schmalen Rockingkurven nicht länger und die Reinheit kann dadurch theoretisch verbessert werden [6].

Kernelement des Zweireflexions-QCC's in Abbildung 4.9(a) sind zwei Arme, die über eine Feder miteinander verbunden sind und durch ein Piezoelement auseinander gedrückt werden können. Der Piezo verfügt über einen Verstellweg von  $60\ \mu\text{m}$  und eine Auflösung von  $0,6\ \text{nm}$ . Dadurch ist es möglich, den Einfallswinkel am zweiten Kristall in einem Bereich von  $183\ \text{arcsec}$  mit einer Genauigkeit von  $2 \cdot 10^{-3}\ \text{arcsec}$  einzustellen. Mit kapazitiven Sensoren wird der Abstand der Arme gemessen und nach erfolgter Justage konstant gehalten. Für größere Winkeländerungen am zweiten Kristall kann der nachträglich motorisierte Spiegelhalter benutzt werden. Der erste Kristall steht fest und lässt sich über die später verwendeten Zweikreissegmente und Goniometer am Polarisatoraufbau ausrichten. Ein Vorteil dieser Halterung ist die extrem hohe Präzision von  $2 \cdot 10^{-3}\ \text{arcsec}$ , mit der die beiden Kristalle über das Piezoelement zueinander ausgerichtet werden können. Zudem lässt sich der erste

<sup>4</sup>New Focus U.S. Patent 5,410,206

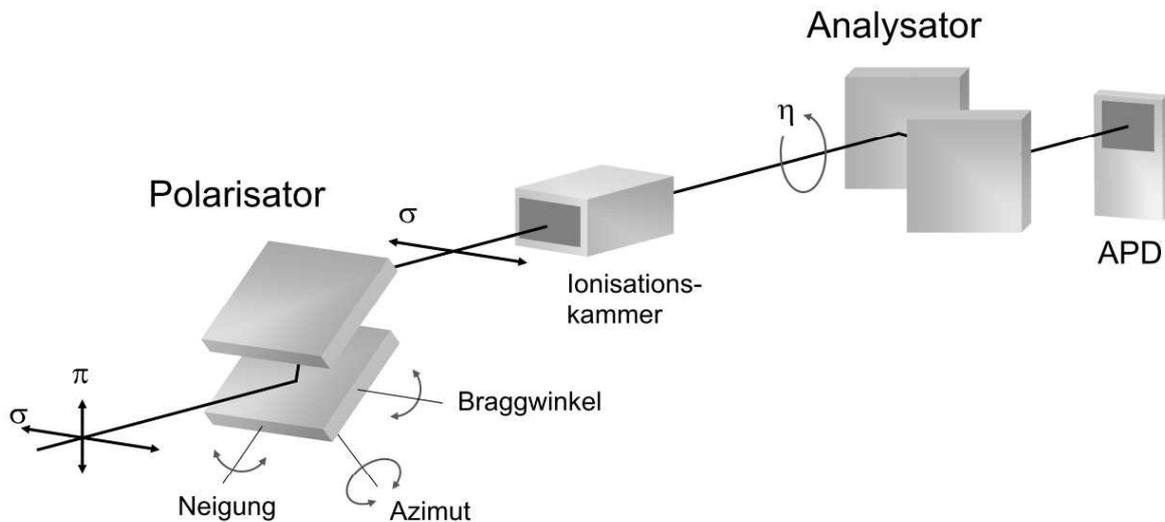


Abbildung 4.10: Schematischer Aufbau eines Röntgenpolarimeters bestehend aus vier Einzelkristallen. Der Analysator befindet sich in der Auslöschung.

Kristall auf dem langen Arm an verschiedenen Stellen anbringen und auch der Abstand der beiden Kristalle zueinander kann variabel eingestellt werden. Somit ist es möglich, den Strahlversatz beliebig anzupassen und asymmetrische Reflexionen zu nutzen. Eine Übertragung dieses Konzepts auf vier Kristalle würde zu viel Platz beanspruchen, weswegen für den Vierreflexions-QCC ausschließlich motorisierte Spiegelhalter gewählt wurden. Diese besitzen einen Verstellweg von  $\pm 5^\circ$  und eine Auflösung von  $0,15 \text{ arcsec}$ . Der erste Diamant steht wieder fest. Besonderheit ist die im Channel-Cut verfahrbare Diode<sup>5</sup>, welche jeweils hinter die ersten drei Kristalle bewegt werden kann. Mit einem weiteren Detektor nach dem letzten Diamanten, und somit dem gesamten Channel-Cut, können Rockingkurven an allen vier Kristallen gemessen werden. Der Vierreflexions-QCC wurde so konzipiert, dass er auch über Kopf montiert werden kann. Dadurch lässt sich die Richtung des 24 mm großen Strahlversatzes umkehren.

### 4.3.2 Das Quasi-Channel-Cut Polarimeter

Wie im sichtbaren Wellenlängenbereich besteht das Röntgenpolarimeter aus einem Polarisator und einem Analysatoraufbau (siehe Abb. 4.10). An beiden kommt jeweils ein Quasi-Channel-Cut zum Einsatz. Beim Polarisator befindet sich dieser zusammen mit einem Drehteller, einem Zweikreissegment und einem xy-Schlitten auf einem stabilen Aluminiumarm. Für die Justage des ersten Kristalls stehen somit sechs Freiheitsgrade zur Verfügung: die drei Raumrichtungen, um den Röntgenstrahl in den Channel-Cut einzufädeln, sowie drei orthogonale Drehachsen für Braggwinkel, Neigung und Azimut. Mit dem Braggwinkel und der Neigung wird der Polarisator ins Rockingkurvenmaximum justiert und der Strahl bis zum Ende des Kanals geführt. Eine kleinschrittige Optimierung des Azimut kann insbesondere bei hoher Photonenenergie von Vorteil sein, um den Einfluss von

<sup>5</sup>Typ XRB 100s-D380 von Detection Technology, Sensorfläche  $10 \times 10 \text{ mm}^2$ ,  $380 \mu\text{m}$  dick

Umweganregungen zu reduzieren. Prinzipiell wäre es wünschenswert, alle sechs Freiheitsgrade an jedem Kristall des Polarimeters kontrollieren zu können. Der Einfachheit halber wurden die Quasi-Channel-Cuts jedoch so konstruiert, dass auf eine Motorisierung der drei Raumrichtungen und des Azimuts bei jedem weiteren Kristall verzichtet werden konnte. Hinter dem Polarisator ist der Röntgenstrahl nahezu vollständig linear polarisiert. Um eine Änderung des Polarisationszustandes z.B. nach Durchgang durch eine Probe messen zu können, muss der Analysator um den Strahl gedreht werden. Daher verfügt dieser über ein zusätzliches Goniometer und ist entsprechend groß (siehe Abbildung 4.11). Mit der Dreipunktauflage und einer Glasplatte kann die Drehachse des  $\eta$ -Goniometers parallel zum Strahl justiert werden. Das ist insbesondere bei der Verwendung von kleinen Kristallen kritisch, da die Gefahr besteht diese nicht mehr zu treffen, wenn der Channel-Cut um den Strahl gedreht wird. Zwei Positionen des Winkels  $\eta$  sind von besonderer Bedeutung. Die Durchlassrichtung, bei der die Beugungsebene vom Analysator parallel zur Beugungsebene des Polarisators steht und die Auslöschung, bei der beide Beugungsebenen senkrecht zueinander orientiert sind. Das Verhältnis aus den Integralen der Reflexionskurven in beiden Stellungen entspricht der Polarisationsreinheit. Um auch einzelne Photonen in der Auslöschung nachweisen zu können, wird eine Avalanche Photodiode (APD) als Detektor verwendet. Deren Zählrate ist auf  $10^7$  Photonen pro Sekunde limitiert, weswegen im Durchlass eine Photodiode benutzt wird. Ein Wechsel und Abgleich beider Detektoren erfolgt bei einem geeigneten Analysatorwinkel nahe der Auslöschung. Um eine möglichst hohe Stabilität und Winkelpräzision zu erreichen, werden für den Braggwinkel und den  $\eta$ -Kreis Goniometer der Firma Huber mit einer Vollschrittauflösung von  $0,9 \text{ arcsec}$  eingesetzt.

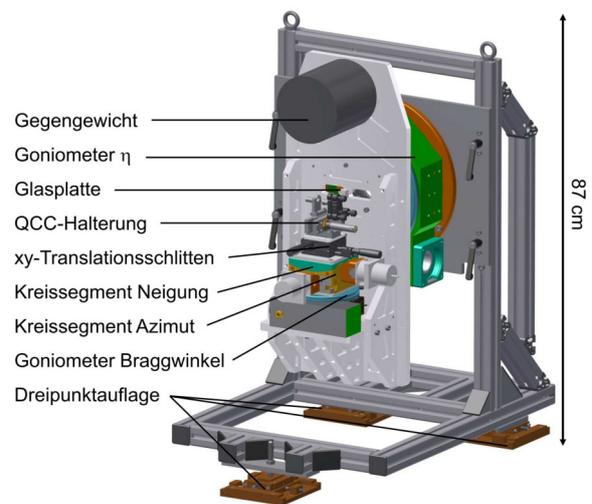


Abbildung 4.11: Analysator mit einem Zweireflexions-Quasi-Channel-Cut

# 5 Charakterisierung der Diamantkristalle

Die Leistungsfähigkeit einer Röntgenoptik hängt in hohem Maße von der Qualität der verwendeten Kristalle ab. Aus der Literatur ist bekannt, dass die Herstellung von Diamanten sehr aufwändig ist und nur selten zu perfekten Kristallen führt. Erste Voruntersuchungen haben gezeigt, dass die verfügbaren Diamanten viele Defekte aufweisen. Dennoch konnten schmale Rockingkurven gemessen werden, was entscheidend für eine Anwendung an Synchrotrons ist. Im folgenden Kapitel soll untersucht werden, welche Defekte und strukturellen Störungen die Eigenschaften der verwendeten Kristalle dominieren und inwiefern diese für die Anwendung in einem Quasi-Channel-Cut von Nachteil sein können.

## 5.1 Ergebnisse der optischen Untersuchungsmethoden

Üblicherweise werden bei Hochleistungsrontgenoptiken aus Silizium und Germanium die Oberflächen mit Interferometern auf Unebenheiten oder Bearbeitungsfehler überprüft. Bei Diamant besteht zusätzlich die Möglichkeit, das Kristallinnere z.B. mit einem Polarisationsprüfgerät auf Störungen zu untersuchen. Beide Methoden wurden in dieser Arbeit genutzt und bereits im Abschnitt 4.1 beschrieben. Nachfolgend soll auf die gewonnenen Ergebnisse eingegangen werden.

### 5.1.1 Interferometrie

Für die insgesamt acht untersuchten CVD Diamanten konnten verschiedenste Oberflächenformen beobachtet werden. Am häufigsten waren die Kristallvorder- und -rückseiten elliptisch bis nahezu sphärisch konkav oder konvex geformt. Zylinder- und sattelförmige Oberflächen konnten bei einigen wenigen Proben gemessen werden. Stellvertretend sind in Abbildung 5.1 die Oberflächenprofile der Vorder- und Rückseiten von Diamant Nr. 9 und Nr. 6 zu sehen. Für jedes Profil ist auf der x- und y-Achse die Position auf dem Kristall in mm abgetragen. Die Höhe der Oberfläche im jeweiligen Kristallgebiet ist farbig dargestellt und kann der entsprechenden Legende am rechten Rand entnommen werden. Blaue bis violette Farben repräsentieren tiefe Stellen oder Täler, wohingegen alle höheren Bereiche oder Berge orange bis rot eingefärbt sind. Die sich regelmäßig wiederholenden schwarzen Punkte auf den Profilen wurden durch das Aufnahmesystem verursacht und sind wahrscheinlich auf „tote Pixel“ des Bildsensors oder Schmutz auf dem Referenzspiegel zurückzuführen.

Wie den Abbildungen 5.1(a) und 5.1(b) entnommen werden kann, ist die Oberfläche von Diamant Nr. 9 auf der Vorder- und Rückseite annähernd konkav geformt und nimmt von der Mitte zum Rand hin um 350 bis 500nm zu. Die beiden Ecken links unten und rechts oben sind vorn und hinten auf dem Kristall die jeweils höchsten Punkte. Für die Oberflächenvermessung der Rückseite wurde jeder

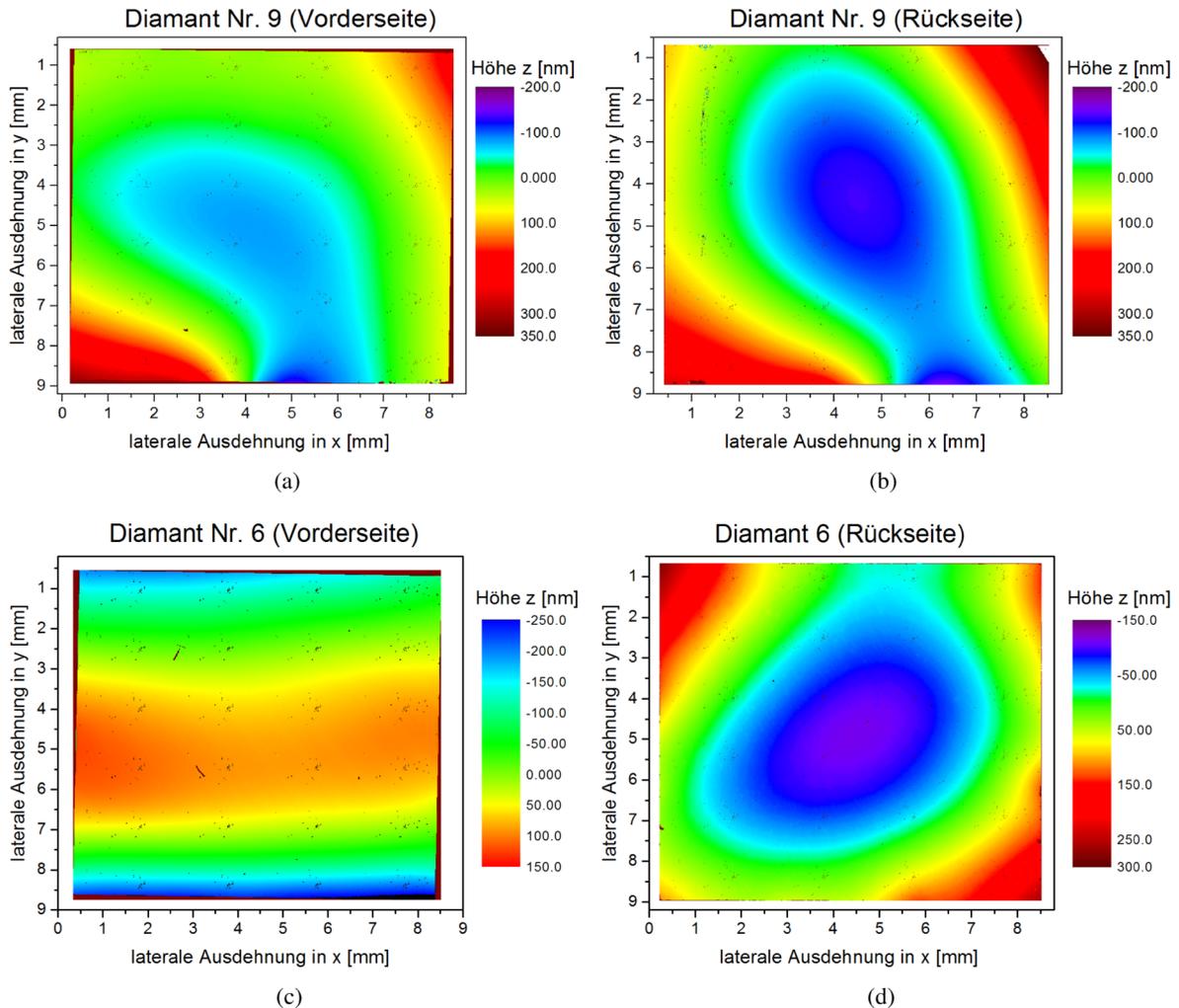


Abbildung 5.1: Oberflächenprofile der Vorder- (links) und Rückseiten (rechts) von Diamant Nr. 9 (oben) und Nr. 6 (unten) aufgenommen mit einem 3D Profilometer Zygo New View 7300.

Kristall einmal von links nach rechts über seine rechte Außenkante umgedreht. Die angesprochenen Ecken liegen somit nicht an den selben Stellen auf dem Kristall. Stattdessen ist die obere linke Ecke im Oberflächenprofil der Vorderseite der oberen rechten Ecke im Rückseitenprofil zuzuordnen. Dies gilt für alle hier gezeigten Kristalle und Oberflächenprofile.

Diamant Nr. 6 hat auf der Vorderseite in Abb. 5.1(c) ein näherungsweise zylinderförmig konvexes Oberflächenprofil, welches zum oberen und unteren Kristallrand hin um ca. 250 nm an Höhe verliert. Die Rückseite (siehe Abb. 5.1(d)) ist ähnlich wie bei Diamant Nr. 9 leicht elliptisch konkav geformt, mit einem maximalen Höhenunterschied von ca. 450 nm. Auf einer Strecke von 5,7 mm (halbe Diagonale über dem Kristall) entspricht das einem Krümmungsradius von ungefähr 35,6 m. Für die Spektroskopie und Abbildung von laserinduzierten Röntgenquellen werden gebogene Kristalle mit Krümmungsradien von 0,2 bis 0,4 m verwendet [82]. Die Rückseite von Diamant Nr. 6 ist somit hundertmal schwächer gekrümmt. Dieser Vergleich dient nur zur Veranschaulichung. Im Gegensatz zu

den sonst üblicherweise in der Arbeitsgruppe verwendeten gebogenen Kristallen, kann bei den hier gezeigten Diamanten erst einmal nicht davon ausgegangen werden, dass die Netzebenen genauso gekrümmt sind wie die Kristalloberflächen.

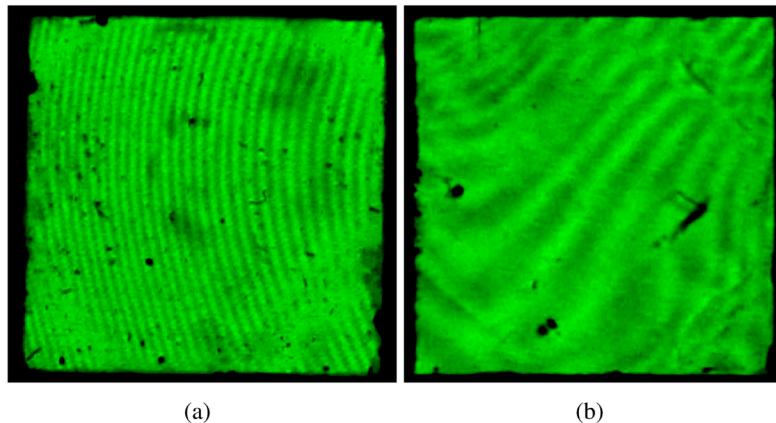


Abbildung 5.2: Interferenzen gleicher Dicke für Diamant Nr. 9 (links) und Nr. 6 (rechts) aufgenommen mit dem Planflächenprüfgerät 63 von Carl Zeiss.

Die Parallelität der Kristallvorder- und rückseiten konnte mit dem in Abschnitt 4.1.1 beschriebenen Planflächenprüfgerät 63 kontrolliert werden. Hierfür wurden die exemplarisch in Abbildung 5.2 zu sehenden Interferenzen gleicher Dicke bzw. Interferenzen am Keil ausgenutzt. Für Diamant Nr. 9 in Abb. 5.2(a) können entlang der Horizontalen etwa 30 schwarze Streifen abgezählt werden. Das entspricht einer Keilhöhe bzw. einer Dickenänderung von  $(3,4 \pm 1,2) \mu\text{m}$  über der Kristalllänge von 8 mm. Vorder- und Rückseite sind somit um  $(87 \pm 30)$  arcsec zueinander verkippt. Für Diamant Nr. 6 sind in Abbildung 5.2(b) entlang der Diagonalen (d.h. auf 11,3 mm) etwa 14 Streifen zu sehen. Die Keilhöhe beträgt somit  $(1,6 \pm 0,9) \mu\text{m}$ , was einer Verkipfung von  $(30 \pm 18)$  arcsec entspricht. Die angegebenen Werte sind lediglich eine Abschätzung. Für eine exakte Bestimmung der Keilhöhe müsste man die Unebenheiten der Kristallvorder- und -rückseiten aus den in Abbildung 5.2 zu sehenden Interferenzbildern herausrechnen.

Als letztes Beispiel ist in Abbildung 5.3 der Diamant mit den besten Oberflächen zu sehen. Der homogene Farbverlauf deutet schon an, dass sich die Höhe auf dem Kristall über große Bereiche hinweg nur sehr wenig ändert. Auf der Vorderseite beträgt der maximale Höhenunterschied in etwa 100 nm und auf der Rückseite ca. 150 nm. Alles in allem lagen die Oberflächenunebenheiten für die untersuchten CVD Diamanten zwischen 100 und 600 nm. Diamant Nr. 12 war mit einer Verkipfung von  $(12 \pm 10)$  arcsec der Kristall mit den parallelsten und Diamant Nr. 11 mit  $(270 \pm 42)$  arcsec der Kristall mit den am stärksten verkippten Vorder- und Rückseiten. Der Hersteller gibt lediglich eine Toleranz für die absolute Kristalldicke und für die Rauigkeit der polierten Oberflächen an, aber nicht für Parallelität und Welligkeit der Oberfläche. Somit war es leider nicht möglich, die in diesem Abschnitt präsentierten Ergebnisse mit den Herstellerangaben zu vergleichen. Dass die Oberflächenformen und -unebenheiten im Zusammenhang mit den in Abschnitt 5.2.3 zu sehenden Netzebenen deformationen stehen oder einen Einfluss auf die Rockingkurven haben, konnte nicht gezeigt werden. Vielmehr

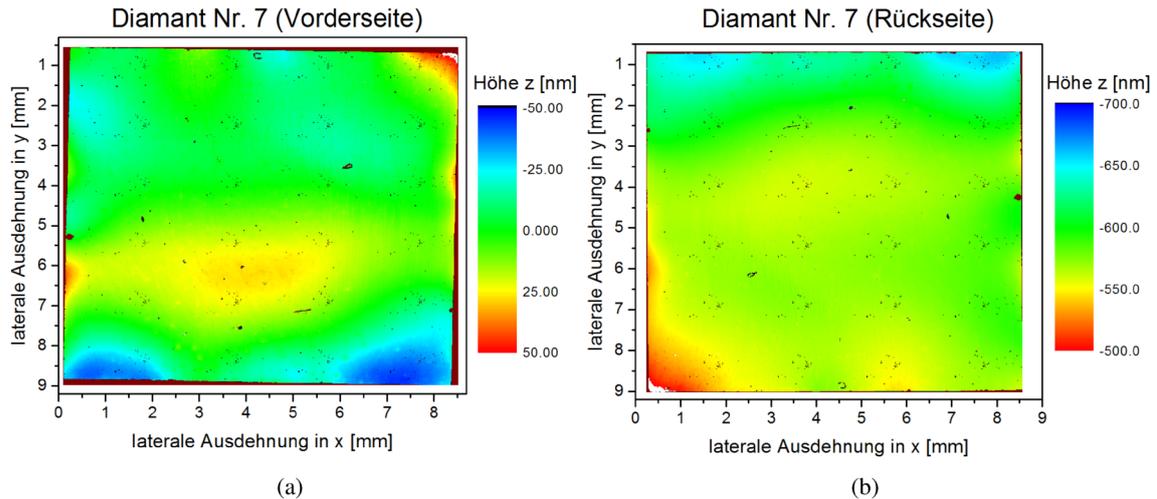


Abbildung 5.3: Oberflächenprofile der Vorder- (links) und Rückseite (rechts) von Diamant Nr. 7 aufgenommen mit einem 3D Profilometer Zygo New View 7300.

ist davon auszugehen, dass die für die Röntgenbeugung relevanten Kristalleigenschaften maßgeblich durch tieferliegende Störungen beeinflusst werden, wie im nächsten Abschnitt zu sehen ist.

### 5.1.2 Polarisationsprüfung

Die Polarisationsprüfung ist eine einfache und elegante Methode, um transparente Kristalle auf strukturelle Defekte hin zu untersuchen. Mit dieser konnte bei allen verwendeten Diamanten eine deutliche Doppelbrechung, die auf innere Verspannung zurückzuführen ist, beobachtet werden. Die Ursachen dieser Verspannungen können vielfältig sein. Für Diamant sind insbesondere plastische Verformungen, Änderungen der Gitterkonstante, Versetzungen, Einschlüsse und Risse in der Praxis relevant [73, 74]. Kennt man die Doppelbrechungsmuster, die durch solche Störungen hervorgerufen werden, dann ist es möglich, die beobachtete Spannungsdoppelbrechung der CVD Diamanten zu erklären. Daher werden im Folgenden die Doppelbrechungsmuster der einzelnen Störungen kurz vorgestellt. Plastische Verformungen können im Diamant unter sehr hohem Druck bei mehreren Gigapascal entstehen. Das ist z.B. bei der Entstehung von natürlichen Diamanten im Erdmantel oder bei der Herstellung von synthetischen HPHT Diamanten der Fall. Solche Kristalle zeigen Doppelbrechungsmuster mit Lamellen- und Mosaikstrukturen [83]. CVD Diamanten hingegen wachsen bei einem Umgebungsdruck von 10 bis 40 kPa als Schicht aus der Gasphase auf und erfahren somit nicht die Bedingungen, die benötigt werden, um erhebliche plastische Verformungen zu erzeugen [84]. Daher ist anzunehmen, dass bei den in dieser Arbeit primär verwendeten Kristallen keine plastischen Verformungen vorhanden sind.

Eine der häufigsten Verunreinigungen in Diamanten ist Stickstoff. Dieser kann als Einzelatom oder auch als Molekül in das Kristallgitter eingebaut werden und vergrößert dadurch die Gitterkonstante. Schwankungen im Herstellungsprozess können dazu führen, dass Stickstoff in ungleichmäßigen Kon-

zentrationen in den Kristall eingebaut wird. Zudem ist bekannt, dass verschiedene Wachstumsrichtungen unterschiedlich viel Stickstoff anhäufen [85]. Treffen Kristallgebiete mit unterschiedlichem Stickstoffgehalt aufeinander, erzeugt eine Fehlanpassung der Gitterkonstante eine sichtbare Doppelbrechung in diesem Bereich. Für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Kristalle gibt der Hersteller eine vergleichsweise niedrige Stickstoffkonzentration von  $< 1$  ppm an.

Versetzungen gehören zu den mit am häufigsten im Diamant auftretenden räumlich ausgedehnten Defekten. Sie sind eindimensionale Gitterfehler, die sich entlang einer Linie, der sogenannten Versetzungslinie, im Kristall ausbreiten. Man unterscheidet zwei geometrische Spezialfälle, die Stufen- und Schraubenversetzung, die im Allgemeinen als gemischte Versetzung, eine Mischung aus beiden Spezialfällen, vorkommt. In synthetischen CVD Diamanten sind überwiegend Stufen- und gemischte Versetzungen mit Versetzungsdichten von  $10^4$  bis  $10^6 \text{ cm}^{-2}$  zu finden [86]. Sie entstehen oft an der Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht und verlaufen parallel zur Wachstumsrichtung. In der unmittelbaren Nachbarschaft der Versetzungslinie ist das Kristallgitter elastisch verzerrt, wodurch ein elastisches Spannungsfeld entsteht. Wird ein solcher Kristall entlang der Wachstumsrichtung zwischen gekreuzten Polarisatoren betrachtet, verlaufen die Versetzungslinien parallel zur Blickrichtung und der Einfluss des Spannungsfeldes senkrecht dazu kann über die gesamte Länge der Versetzung als Spannungsdoppelbrechung beobachtet werden [60]. Nicht selten bilden sich auch Bündel von einigen wenigen Versetzungen, die ein charakteristisches Doppelbrechungsmuster in Schleifenform erzeugen [87].

Einschlüsse entstehen, wenn Fremdphasen in den Kristall eingebaut werden. Solche Fremdphasen können zum Beispiel Flüssigkeiten oder andere Minerale sein. Sie können sich aber auch durch die Anhäufung von Punktdefekten während des Wachstums im Kristall selber bilden. Im Allgemeinen besteht zwischen der Fremdphase und dem umgebenden Kristall eine Fehlanpassung der Gitterkonstante. Dadurch kommt es zu Verspannungen des Kristallgitters, die sich radial in der unmittelbaren Umgebung des Einschlusses verteilen und als doppelbrechender Halo beobachtet werden können. In CVD Diamanten können Einschlüsse durch die Bildung anderer Kohlenstoffmodifikationen, wie zum Beispiel Graphit, während des Kristallwachstums entstehen [40, 88].

Risse können sich bei zu hohen inneren Spannungen im Kristall ausbilden, zum Beispiel herbeigeführt durch Einschlüsse oder einer Anhäufung von Versetzungen. Bei ihnen konnten Doppelbrechungsmuster in Schleifenform am Ende des Risses beobachten werden [74].

In Abbildung 5.4 sind die Spannungsdoppelbrechungsbilder von zwei verschiedenen CVD Diamanten zu sehen. Diese wurden mit dem in Abschnitt 4.1.2 beschriebenen Polarisationsprüfgerät bei gekreuzten Polarisatoren aufgenommen. Die Blickrichtung ist entlang der  $\langle 001 \rangle$ -Kristallachse. Polarisator- und Analysatorachse stehen parallel zu den  $\langle 110 \rangle$ - bzw.  $\langle \bar{1}10 \rangle$ -Kristallachsen. Auf den Bildern sind dunkle, helle und farbige Gebiete zu sehen. Die schwarzen Gebiete entstehen durch Extinktion des Lichts zwischen den gekreuzten Polarisatoren und die hellen Bereiche sind Regionen der Nichtauslöschung aufgrund von Spannungsdoppelbrechung. Für einen nicht doppelbrechenden Kristall wäre das Bild komplett schwarz. Zusätzlich besteht die Möglichkeit, dass die Polarisationsrichtung des einfallenden Lichts mit einer Vorzugsrichtung des Kristalls bzw. einer Hauptspannungsrichtung zusammenfällt. Dabei kann es ebenfalls zur Auslöschung kommen und es entstehen Linien, die als

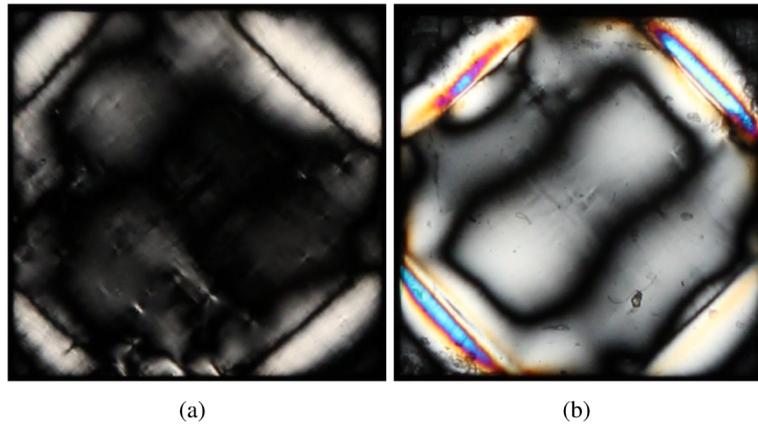


Abbildung 5.4: Spannungsdoppelbrechung von a) CVD Diamanten Nr.9 und b) CVD Diamant Nr. 6.

Isoklinen (Richtungsgleiche) bezeichnet werden. Dreht man die Probe unter den gekreuzten Polarisatoren, so wandern die Isoklinen, während die Isochromaten (Farbgleiche) feststehen. Die farbigen Stellen werden als Isochromaten höherer Ordnung bezeichnet. Sie treten auf, wenn der Gangunterschied zweier senkrecht zueinander polarisierten Wellen nach Durchgang durch den Kristall genau einem ganzzahlig Vielfachen  $m$  der Wellenlänge  $\lambda$  entspricht. In diesem Fall überlagern sich die beiden Wellen am Analysator wieder genau so, dass es zur Auslöschung kommt. Für linear polarisiertes Licht entspricht das einer Drehung des  $\vec{E}$ -Feldvektors um  $m$ -mal  $180^\circ$ . Wird weißes Licht verwendet, findet diese Auslöschung allerdings nur in einem schmalen Wellenlängenbereich statt, wodurch der Rest des durchgehenden Lichts farbig erscheint. Die zu sehenden Interferenzfarben sind also genau die Komplementärfarben zu den Farben/Wellenlängen, für die der Gangunterschied gleich  $m\lambda$  ist.

Besonders auffällig in Abbildung 5.4(a) und 5.4(b) sind die hellen, stark doppelbrechenden Gebiete in den vier Ecken. Aus der Literatur ist bekannt, dass bei der Herstellung von CVD Diamanten die neu gewachsene Diamantschicht über das Substrat hinaus wächst. An den Substraträndern bilden sich besonders viele Versetzungen, die den Kristall linienartig parallel zur  $\langle 001 \rangle$ -Richtung durchsetzen und deren elastische Spannungsfelder eine deutlich sichtbare Doppelbrechung hervorrufen [60]. Diese Erklärung lässt sich sehr gut auf die hier gezeigten Kristalle anwenden und stimmt ebenfalls mit den später in Abschnitt 5.2.2 zu sehenden Topogrammen überein. Im Fall von Diamant Nr. 6 (siehe Abb. 5.4(b)) ist die Doppelbrechung in den Kristallecken so hoch, dass blaue, gelbe und rote Interferenzfarben - die Isochromaten höherer Ordnung - zu sehen sind. Zusätzlich sind in der Mitte von Diamant Nr.6 schwarze Linien zu erkennen. Durch Drehung des Kristalls um  $45^\circ$  kann gezeigt werden, dass es sich dabei um Isoklinen handelt (siehe Abb. 5.5(a)).

Abbildung 5.5(a) zeigt den Diamant Nr.6 nach erfolgter Drehung um  $45^\circ$ . Polarisator und Analysator sind hier entlang der  $\langle 100 \rangle$ - und  $\langle 010 \rangle$ -Kristallachsen justiert. Die zwei schwarzen diagonalen Linien verlaufen entlang der Polarisator- und Analysatorachse. An diesen Stellen fällt die Polarisationsrichtung des eingestrahelten Lichts mit den Hauptspannungsrichtungen zusammen. Das heißt, die durch Spannungen lokal entstandene optische Achse steht an diesen Orten parallel bzw. senk-

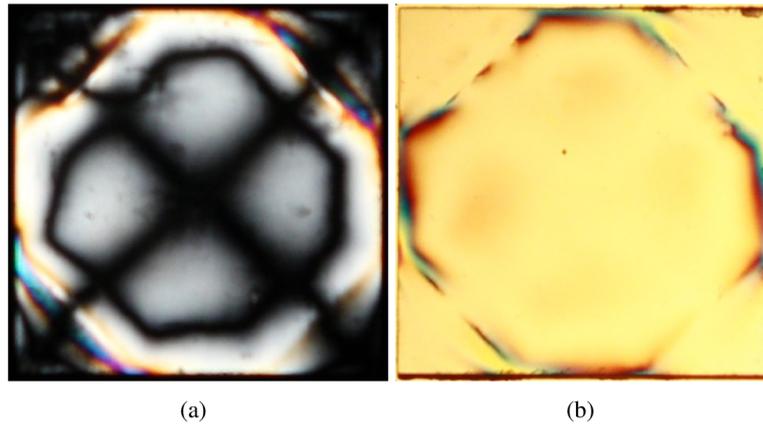


Abbildung 5.5: Spannungsdoppelbrechung von CVD Diamant Nr. 6, a) im Dunkelfeld (d.h. Analysator in Auslöschung) und b) im Hellfeld (d.h. Analysator in Durchlassrichtung).

recht zu den Polarisatoren. Ein Vergleich der beiden Abbildungen 5.4(b) und 5.5(a) zeigt, dass sich das Spannungsdoppelbrechungsmuster deutlich geändert hat. Somit sind die Spannungsfelder nicht isotrop im Kristall verteilt, sondern mit der zugrundeliegenden Kristallographie verknüpft. Ursache dafür können die vorhandenen Misch- und Stufenversetzungen sein. Diese bringen elastische Spannungen in ganz bestimmte kristallographische Richtungen ein. Im Fall von Stufenversetzungen mit Versetzungslinien parallel zur  $\langle 001 \rangle$ -Kristallachse werden Spannungen in  $\langle 110 \rangle$ - und  $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung erzeugt. In Abbildung 5.4(b) sind die Polarisatorachsen somit parallel zu den Spannungsrichtungen der Stufenversetzungen ausgerichtet. Im Gegensatz dazu bringen Mischversetzungen, mit  $\langle 001 \rangle$ -Versetzungslinien, Spannungen in die  $\langle 101 \rangle$ - und  $\langle 011 \rangle$ -Richtung ein.

Abbildung 5.5(b) zeigt dasselbe Bild wie Abbildung 5.5(a), allerdings diesmal mit Analysator in Durchlassrichtung gedreht. Hier ist deutlich der „Schatten“ des Substrates zu erkennen, auf dem Diamant Nr. 6 aufgewachsen ist.

Mit einer Spannungsdoppelbrechung von  $\Delta n = 4 \cdot 10^{-4}$  in den Ecken und ca.  $5 \cdot 10^{-5}$  in der Mitte des Kristalls gehört Diamant Nr. 6 zu den am stärksten verspannten Kristallen, die in dieser Arbeit untersucht wurden. Neben ihm gab es mit Diamant Nr. 7 noch einen weiteren Kristall, für den Isochromaten höherer Ordnung in den Kristallecken beobachtet werden konnten. Für Diamant Nr. 9 (Abb. 5.4(a)) beträgt die Spannungsdoppelbrechung  $\Delta n = 7 \cdot 10^{-5}$  in den Ecken und ca.  $1 \cdot 10^{-5}$  in der Kristallmitte. Er ist einer von den am wenigsten verspannten Kristallen in dieser Arbeit. Der Hersteller gibt für die Kristalle eine Spannungsdoppelbrechung von  $< 5 \cdot 10^{-4}$  an. Dieser Grenzwert wurde von keinem Kristall signifikant überschritten, ist allerdings auch sehr hoch angesetzt. In der Arbeit von Friel *et. al* [89] sind Aufnahmen von versetzungsreichen CVD Diamanten zu sehen, die maximal eine Spannungsdoppelbrechung von  $\Delta n = 4 \cdot 10^{-5}$  aufweisen. Ab einer Doppelbrechung von  $\Delta n \leq 1 \cdot 10^{-5}$  spricht man von einer „ultra schwachen Doppelbrechung“ [89].

Zusätzlich zu den CVD Diamanten wurde noch ein qualitativ hochwertiger HPHT Diamant auf Spannungsdoppelbrechung untersucht. Dieser wurde vom europäischen Synchrotron in Grenoble zur Verfügung gestellt (engl: *European Synchrotron Radiation Facility* kurz: ESRF). Abbil-

Abbildung 5.6 zeigt eine Aufnahme des Kristalls mit Polarisator entlang der  $\langle 100 \rangle$ - und Analysator entlang der  $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Kristallachse. Die Blickrichtung ist entlang der  $\langle 011 \rangle$ -Kristallachse gerichtet. Der Kristall befindet sich in einem ringförmigen Halter an dem er mit transparentem Klebstoff befestigt ist. Die sehr hellen Stellen oben und unten sowie rechts im Bild kommen durch die Spannungsdoppelbrechung des Klebers zustande. In der Mitte sind helle Punkte und Striche zu sehen, die durch Schmutz und Staub auf der Kristalloberfläche verursacht werden. Am rechten Rand zwischen den zwei Kleberesten zeigt der Diamant eine schwache Doppelbrechung. Diese Stelle liegt vermutlich in unmittelbarer Nähe zum Seedkristall, an dem das Kristallwachstum begann und der nach der Herstellung entfernt wurde. Der Diamant ist in diesem Gebiet weniger perfekt und weist hier viele Stapelfehler auf. Verglichen mit den CVD Diamanten ist die Spannungsdoppelbrechung im HPHT Diamanten extrem gering und liegt mit ca.  $1 \cdot 10^{-6}$  am Limit dessen, was mit dem Polarisationsprüfgerät beobachtet werden kann.

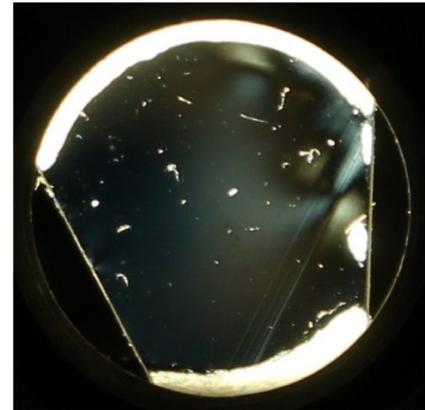


Abbildung 5.6: Spannungsdoppelbrechung eines HPHT Diamanten.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die Spannungsdoppelbrechung bei den untersuchten CVD Diamanten fast ausschließlich durch Versetzungen verursacht wird. Plastische Verformungen können aufgrund des Herstellungsprozesses als Ursache ausgeschlossen werden. Auch Einschlüsse und Risse konnten bei den hier gezeigten Kristallen nicht eindeutig beobachtet werden. Verglichen mit den Versetzungen ist der Stickstoffanteil mit  $< 1$  ppm in den Kristallen vermutlich zu gering, um einen signifikanten Beitrag zur beobachteten Spannungsdoppelbrechung zu liefern. Welches Ausmaß die Versetzungen in den verwendeten CVD Diamanten annehmen, wird ebenfalls im Abschnitt 5.2.2 ersichtlich.

## 5.2 Ergebnisse der röntgenoptischen Untersuchungsmethoden

### 5.2.1 Kristallorientierung

Bei einem Quasi-Channel-Cut müssen die beugenden Netzebenen auf wenige tausendstel Grad parallel zueinander justiert werden. Das kann mitunter sehr zeitaufwendig sein, weswegen die Kristalle üblicherweise mit sichtbarem Licht unter Autokollimation oder streifendem Einfall, so gut wie möglich vorjustiert werden. Bei diesen Methoden orientiert man sich an den Kristalloberflächen. Ist die beugende Netzebene gegenüber der Kristalloberfläche verkippt, muss dies bei der optischen Vorjustage berücksichtigt werden. Zur Bestimmung dieser Verkipfung wurde die in Abschnitt 4.2.1 beschriebene Kristallorientierung verwendet.

Abbildung 5.7 zeigt die Resultate dieser Messung für die Diamanten Nr. 6 und Nr. 9. Auf der Ordinate ist der Einfallswinkel zur C(008)-Netzebene angegeben. Dieser setzt sich aus dem Braggwinkel

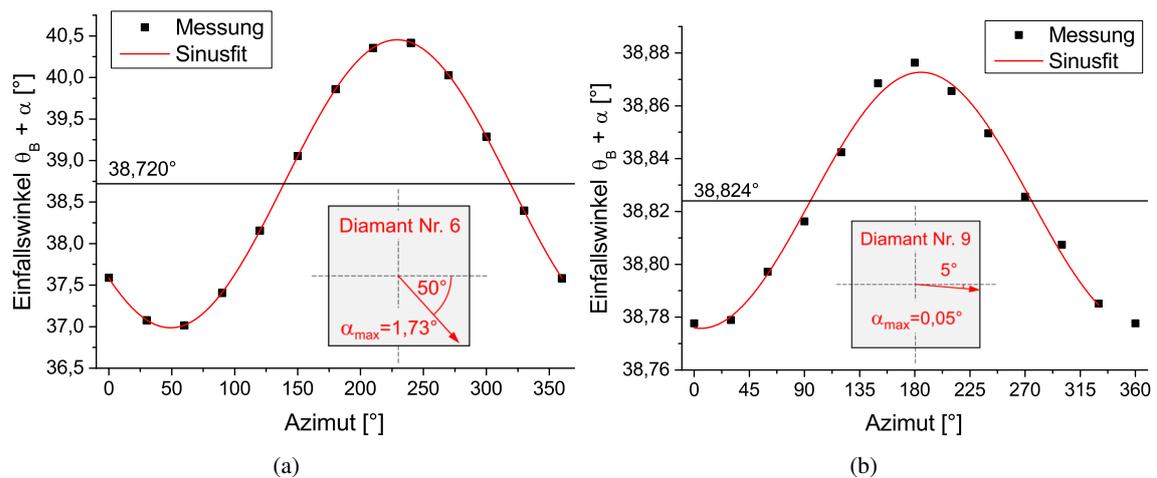


Abbildung 5.7: Orientierungsabweichung der C(008)-Netzebene zur Oberfläche aufgenommen mit AgK $\alpha$ -Strahlung an a) Diamant Nr.6 und b) Diamant Nr. 9.

$\theta_B$  und der Verkippung der Netzebenenormalen in der Beugungsebene zusammen. Auf der Abszisse ist das Azimut - der Drehwinkel um die Oberflächennormale als Drehachse - aufgetragen. Aus dem Diagramm kann der Verschnitt  $\alpha_{max}$  und dessen Lage in Bezug auf eine Kristallkante oder -ecke bestimmt werden. Beides ist in den Skizzen in Abbildung 5.7(a) und 5.7(b) angegeben. Der Pfeil zeigt dabei in die Richtung des kleinsten Einfallswinkels. Diamant Nr. 6 ist mit  $\alpha_{max} = 1,73^\circ$  der Kristall mit dem zweitgrößten Verschnitt in dieser Arbeit. Nur bei Diamant Nr. 7 war die C(008)-Netzebene mit  $\alpha_{max} = 2,73^\circ$  noch stärker gegenüber der Oberfläche verkippert. Der Kristall mit dem geringsten Verschnitt war Diamant Nr. 9 mit  $\alpha_{max} = 0,05^\circ$ . Alle Werte liegen unter der vom Hersteller angegebenen Toleranz von  $\pm 3^\circ$ . Liegt ein Verschnitt von mehreren Grad in der Neigung und wird in einem Quasi-Channel-Cut nicht ausgeglichen, so durchläuft der Strahl den Kanal schief und alle nachfolgenden Kristalle werden nicht mittig getroffen. Um das zu verhindern, wurden die Kristalle so in den Quasi-Channel-Cut eingesetzt, dass möglichst viel vom Verschnitt im Braggwinkel liegt. Zusätzlich wurde an jedem Kristall die Neigung optimiert.

### 5.2.2 Projektionsröntgentopographie nach Lang

Mit dem in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen Verfahren wurden von jedem Diamanten Projektionstopogramme in Reflexion und Transmission auf Röntgenfilm aufgenommen. Ganz allgemein sind auf dem Film belichtete Stellen in Schwarz und unbelichtete Stellen in Weiß zu sehen. Dabei kann zwischen Orientierungs- und Extinktionskontrasten unterschieden werden. Orientierungskontraste treten auf, wenn ein Kristallgebiet eine Fehlorientierung aufweist, deren Winkel größer ist, als die Divergenz des Röntgenstrahls. In diesem Fall ist die Bragg-Bedingung für das Gebiet nicht erfüllt und es trägt nicht zur Belichtung des Röntgenfilms bei. Der Film bleibt weiß. Fehlorientierungen können zum Beispiel durch Korngrenzen, Kristallzwillinge oder magnetische Domänen verursacht werden.

Bei Extinktionskontrasten ist das Kristallgitters um einen Defekt herum verzerrt. Dadurch erhöht sich das integrale Reflexionsvermögen in der den Defekt umgebenden Matrix. Es wird mehr Röntgenstrahlung zum Film gebeugt und dieser verfärbt sich schwarz. In solchen Kristallgebieten ist die dynamische Theorie nicht länger gültig und das integrale Reflexionsvermögen wird durch das kinematische Limit begrenzt. Neben den bereits erwähnten Kontrastmechanismen ist es auch möglich, dass Unregelmäßigkeiten auf der Kristalloberfläche Schatten werfen, die auf dem Röntgenfilm als schwarz-weiß Kontrast zu sehen sind. Solche Effekte sind umso stärker, je kleiner der Einfallswinkel und je geringer die Eindringtiefe der Röntgenstrahlung ist.

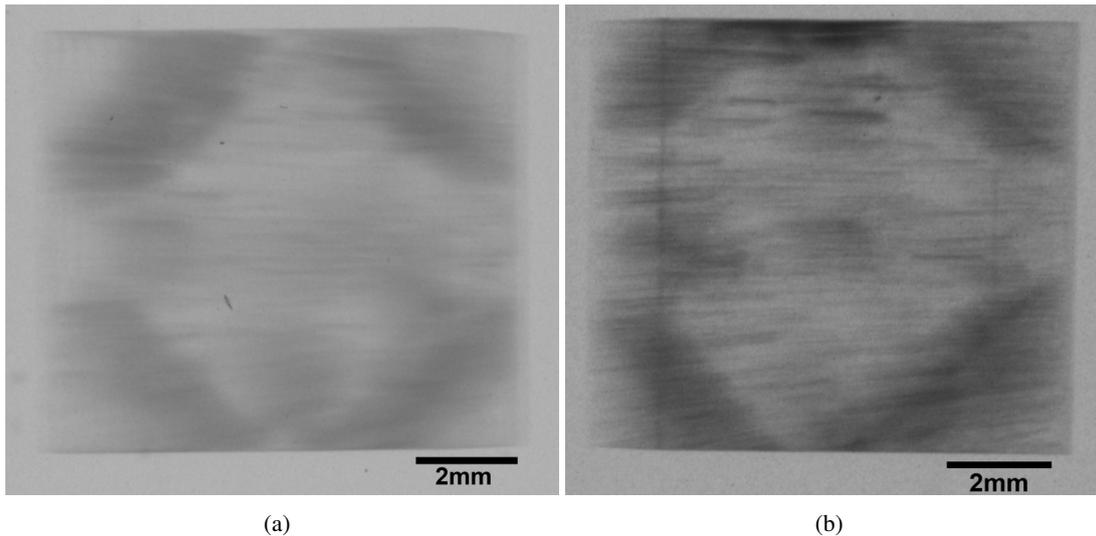


Abbildung 5.8: Reflexionstopogramme des (008)-Reflexes von CVD Diamanten aufgenommen mit  $\text{AgK}\alpha$  Strahlung  $\theta_B = 38,85^\circ$  a) Diamant Nr. 6 und b) Diamant Nr. 9

Abbildung 5.8 zeigt zwei Reflexionstopogramme der Diamanten Nr. 6 und Nr. 9. Diese wurden mit Silber  $\text{K}\alpha$  ( $E_{Ph} = 22,16\text{keV}$ ) Strahlung am symmetrischen Diamant (008)-Reflex bei einem Bragg-Winkel von  $38,86^\circ$  aufgenommen. Die beugenden Netzebenen liegen parallel zur Papierebene und der reziproke Gittervektor ragt senkrecht in  $\langle 001 \rangle$  Richtung aus der Papierebene heraus. Die Extinktionstiefe  $\Lambda_0^\sigma$  für  $\sigma$ -Polarisation beträgt  $29,2\mu\text{m}$  und die Absorptionslänge  $1/\mu_0$  ist  $20,7\text{mm}$  groß. Auffällig sind die vielen feinen schwarzen horizontalen Linien in den beiden Topogrammen. Diese sind das direkte Abbild von Versetzungen im Kristall. Beim direkten Bild wird jeder Punkt der Versetzung vom Primärstrahl durchquert und die Versetzungslinie in Richtung des gebeugten Strahls auf den Röntgenfilm projiziert. Für ein Produkt von Kristalldicke und Absorptionskoeffizient  $t\mu_0$  von bis zu zwei oder drei (hier  $t\mu_0 \approx 0,06$ ), dominiert das direkte Abbild der Versetzungen gegenüber dem dynamischen und intermediären Bild [19]. Aufgrund der schwachen Absorption der Strahlung trägt der Kristall über seine komplette Dicke  $t$  von  $1,2\text{mm}$  zum Topogramm bei. Die Reflexionstopogramme sind daher in Dispersionsrichtung (entlang der Bildhorizontale) entsprechend  $t/\tan(\theta_B)$  um  $1,5\text{mm}$  länger. Dies ist besonders gut an der vertikalen Linie in der linken Hälfte von Abbildung 5.8(b) zu sehen. Die Kristalloberfläche endet an dieser Linie. Die weiter links liegenden Teile des Topogramms

sind durch Strahlen entstanden, die an Netzebenen in größerer Tiefe reflektiert wurden und den Kristall durch die Seitenflächen verlassen haben. Bei genauerer Betrachtung der Topogramme fällt auf, dass viele Versetzungen ebenfalls eine Länge von ungefähr 1,5 mm aufweisen. Dabei handelt es sich sehr wahrscheinlich um Versetzungen, deren Versetzungslinien nahezu parallel zum reziproken Gittervektor und entlang der kompletten Kristalldicke verlaufen. Wie bereits in Abschnitt 5.1.2 erwähnt, entstehen beim Wachstum von CVD Diamanten an der Grenze zwischen Substrat und Schicht Stufen- und Mischversetzungen mit Versetzungslinien parallel zur  $\langle 001 \rangle$  Wachstumsrichtung. Diese durchsetzen den Kristall entlang seiner kompletten Dicke. Je nachdem, ob die Versetzungen einzeln oder in Bündeln auftreten, ist der Kontrast im Topogramm schwächer oder stärker [60, 90]. Am energetisch günstigsten und stabilsten sind die sogenannten  $45^\circ$ -Mischversetzungen, deren  $\frac{1}{2} \langle 011 \rangle$  Burgers-Vektoren um  $45^\circ$  gegenüber den  $\langle 001 \rangle$  Versetzungslinien verkippt sind [86, 91]. Generell sind Versetzungen in Topogrammen nur zu erkennen, wenn das Skalarprodukt aus Burgers-Vektor und reziprokem Gittervektor nicht Null ist und somit die am Beugungsprozess beteiligten Netzebenen durch die Versetzungen deformiert sind. Eine reine Stufenversetzung mit einer Versetzungslinie parallel zur  $\langle 001 \rangle$  Richtung wäre in den Topogrammen in Abbildung 5.8 nicht sichtbar, da der Burgers-Vektor in der Papierebene liegen würde. Somit handelt es sich bei den im Reflexionstopogramm zu sehenden Versetzungen sehr wahrscheinlich um die energetisch bevorzugten Mischversetzungen mit Versetzungslinien parallel zur  $\langle 001 \rangle$  Richtung und  $\frac{1}{2} \langle 011 \rangle$  Burgers-Vektoren. Prinzipiell wären aber auch alle anderen Versetzungen sichtbar, die einen Burgers-Vektor mit einer Komponente in  $\langle 001 \rangle$  Richtung besitzen, wie z.B. Schraubenversetzungen mit einer Versetzungslinie parallel zur  $\langle 011 \rangle$  Richtung oder Stufenversetzung mit Versetzungslinien senkrecht zur  $\langle 001 \rangle$  Richtung. In beiden Topogrammen sind so viele Versetzungen zu sehen, dass sich diese unmöglich voneinander trennen lassen. Somit kann nicht ausgeschlossen werden, dass auch andere, bisher nicht angesprochene Versetzungen zum Topogramm beitragen.

In den Kristallecken sind mehr und stärker geschwärmte Striche als im restlichen Kristall zu erkennen. Hier sind mehr Versetzungen vorhanden und die Deformationsfelder sind stärker, was mit der Spannungsdoppelbrechung und den beobachteten Isochromaten höherer Ordnung in Abschnitt 5.1.2 gut übereinstimmt. Die Belichtungszeit betrug für beide Topogramme ungefähr 17 Stunden. Abbildung 5.8(a) ist insgesamt deutlich blasser als Abbildung 5.8(b). Das kann mehrere Ursachen haben und lässt sich abschließend nicht eindeutig erklären. Ein schwächerer Kontrast im Reflexionstopogramm kann zum Beispiel durch eine geringere Anzahl von Versetzungsbündeln mit Schraubenanteil (Burgers-Vektor-Komponente in  $\langle 001 \rangle$ -Richtung) zustande kommen, allerdings müssten die Kristallkanten und Ränder im linken Bild dann ähnlich stark sein wie im rechten Bild. Dies ist nicht der Fall. Eine weitere Ursache könnte sein, dass Diamant Nr. 6 vor der Aufnahme nicht genau auf das Rockingkurvenmaximum justiert wurde.

Um auch Versetzungen abzubilden, deren Burgers-Vektoren in der (001)-Ebene liegen, wurden zusätzlich die Transmissionstopogramme in Abbildung 5.9 angefertigt. Diese wurden ebenfalls mit Silber  $K\alpha$  Strahlung allerdings am symmetrischen Diamant (400)- bzw. (040)-Reflex bei einem Bragg-Winkel von  $18,28^\circ$  aufgenommen. Die beugenden Netzebenen stehen senkrecht zur Papierebene und der reziproke Gittervektor liegt horizontal in dieser und zeigt nach links. Die Absorptionslänge  $1/\mu_0$

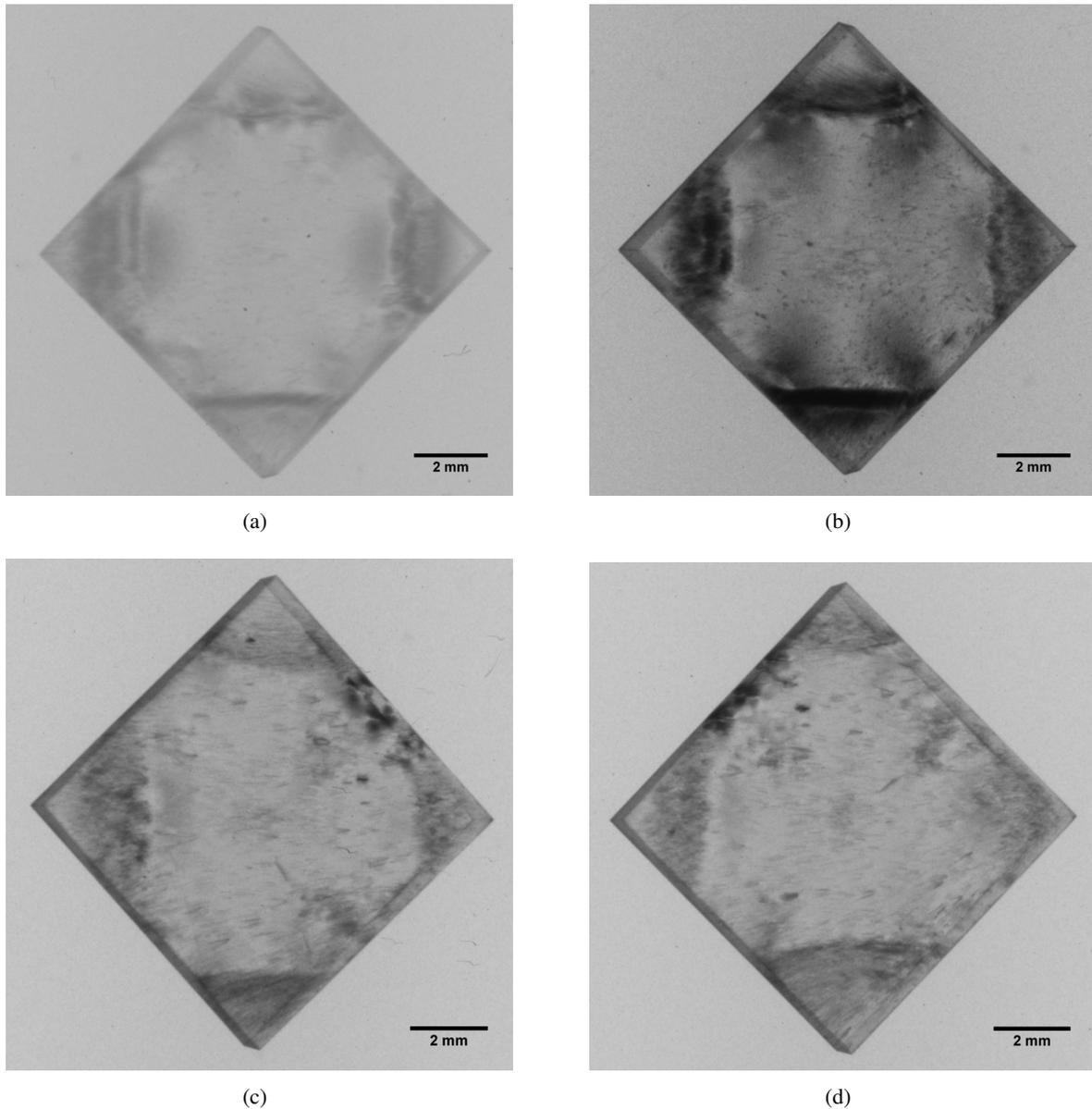


Abbildung 5.9: Transmissionstopogramme des (400)- und (040)-Reflexes von CVD Diamanten aufgenommen mit  $\text{AgK}\alpha$  Strahlung für  $\theta_B = 18, 28^\circ$ . Blickrichtung ist dem Röntgenstrahl entgegen und entlang der  $\langle 001 \rangle$ -Kristallachse gerichtet. a) Diamant Nr. 6 und b) Diamant Nr. 6 um  $90^\circ$  gegen den Uhrzeigersinn gedreht. c) Diamant Nr. 9 und d) Diamant Nr. 9 um  $90^\circ$  gegen den Uhrzeigersinn gedreht.

beträgt wie bei den Reflexionstopogrammen  $20,7 \text{ mm}$  und die Extinktionstiefe  $\Lambda_0^\sigma$  für  $\sigma$ -Polarisation ist  $72,0 \mu\text{m}$  groß. Die Topogramme wirken leicht dreidimensional, was besonders gut an den linken Außenkanten zu sehen ist. Dies kommt dadurch zustande, dass der Kristall wieder über seine komplette Dicke  $t$  zum Topogramm beiträgt. Ähnlich wie beim Reflexionstopogramm wird jede Linie oder Struktur die parallel zur  $\langle 001 \rangle$ -Richtung verläuft in die Ebene des Röntgenfilms projiziert und entsprechend  $t \cdot \tan(\theta_B)$  auf einer Strecke von  $0,4 \text{ mm}$  entlang der Bildhorizontale abgebildet (siehe z.B. Außenkanten der linken und rechten Ecke). Aus demselben Grund werden Versetzungen die pa-

parallel zur  $\langle 001 \rangle$ -Richtung verlaufen als waagerechte Striche mit einer Länge von 0,4 mm auf dem Röntgenfilm dargestellt. Davon sind einige sehr gut in Abbildung 5.9(c) und 5.9(d) zu sehen.

Während in den Reflexionstopogrammen lediglich Versetzungen mit einem Schraubenanteil zu sehen waren, sind hier nun alle Versetzungen mit einem Stufenanteil sichtbar. Das heißt zum Transmissionstopogramm können neben den  $45^\circ$ -Mischversetzungen auch reine Stufenversetzungen beitragen. Durch einen Vergleich der Reflexions- und Transmissionstopogramme wäre es prinzipiell möglich, beide Versetzungstypen zu unterscheiden und zu ermitteln, welches Bild von welcher Versetzung erzeugt wird. Aufgrund der großen Anzahl an Versetzungen ist dies allerdings hier nicht möglich. In den Topogrammen a) und c) liegt der reziproke Gittervektor der beugenden (040) Netzebene horizontal in der Bildebene. Somit sind in diesen nur Versetzungen sichtbar, die einen Burgers-Vektor mit Komponente in  $\langle 010 \rangle$ -Richtung haben, wie z.B. die  $45^\circ$ -Mischversetzungen mit  $\frac{1}{2} \langle 011 \rangle$  Burgers-Vektoren. Für die Aufnahme der Topogramme b) und d) wurden die Kristalle zuvor um  $90^\circ$  gegen den Uhrzeigersinn gedreht, sodass die Röntgenstrahlung jetzt an den (400)-Netzebenen gebeugt wird. In diesen sind nur Versetzungen mit Burgers-Vektorkomponenten in  $\langle 100 \rangle$ -Richtung zu sehen, wie z.B. die  $45^\circ$ -Mischversetzungen mit  $\frac{1}{2} \langle 101 \rangle$  Burgers-Vektoren. Die ebenfalls in CVD Diamanten vorkommenden Stufenversetzungen mit  $\langle 001 \rangle$ -Versetzungslinien und  $\langle 110 \rangle$ -Burgersvektoren [90] tragen sowohl zu den linken als auch den rechten Topogrammen bei.

Betrachtet man Abbildung 5.9(a), fallen als erstes die spannungs- und versetzungsreichen Ecken auf. In der Mitte des Topogramms sieht der Kristall auf den ersten Blick recht passabel aus. Verbessert man den Kontrast sind auch hier neben vielen kleinen Punkten zahlreiche Versetzungen erkennbar. Im um  $90^\circ$  gedrehten Topogramm in Abbildung 5.9(b) sind die erwähnten Punkte auch ohne Kontrastverbesserung zu erkennen. Bei diesen handelt es sich sehr wahrscheinlich um graphitische Ausscheidungen [19, 60, 92]. Vergleicht man Abbildung 5.9(a) mit Abbildung 5.9(b) fällt sofort der starke Unterschied im Kontrast auf. Dieser Unterschied erstreckt sich über den gesamten Kristall einschließlich der Kristallränder. Daraus lässt sich ableiten, dass nicht das Vorhandensein von richtungsabhängigen Deformationen, sondern sehr wahrscheinlich ein Unterschied im Belichtungs- und Entwicklungsprozess die Ursache für diesen starken Kontrastunterschied zwischen den zwei verschiedenen Orientierungen ist. Besonders charakteristisch für den Kristall sind die vier dunklen Ovale in Abbildung 5.9(b), welche x-förmig zwischen unterer und oberer Ecke angeordnet sind. Dabei handelt es sich wahrscheinlich um ein gerichtetes Deformationsfeld. In Abbildung 5.9(a) verursacht jeweils das Gebiet zwischen zwei Ovalen einen erhöhten Kontrast. Das Deformationsfeld wird wahrscheinlich durch eine sehr große Anzahl an Versetzungen verursacht, die bei diesem Diamanten in den Ecken vorhanden sind. Vergleicht man die Kristallecken von Abbildung 5.9(a) mit 5.9(b), so sieht man, dass die gleichen Ecken unterschiedliche Konturen im Topogramm hervorrufen. Dies kann z.B. durch die zwei verschiedenen Arten von  $45^\circ$ -Mischversetzungen hervorgerufen werden, von denen immer nur eine Art in einem Topogramm sichtbar ist. Noch viel besser sieht man diesen Unterschied, wenn man die untere Ecke von Diamant Nr. 9 in Abbildung 5.9(c) mit der rechten Ecke von Abbildung 5.9(d) vergleicht. Im linken Topogramm hebt sich die untere Ecke deutlich vom restlichen Kristallvolumen ab. Hier tragen mehr Versetzungen mit einer Burgers-Vektor-Komponente in  $\langle 010 \rangle$ -Richtung zum Kontrast bei als im umgebenden Kristallgebiet. Im rechten Topogramm befindet sich diese Ecke rechts und hebt sich

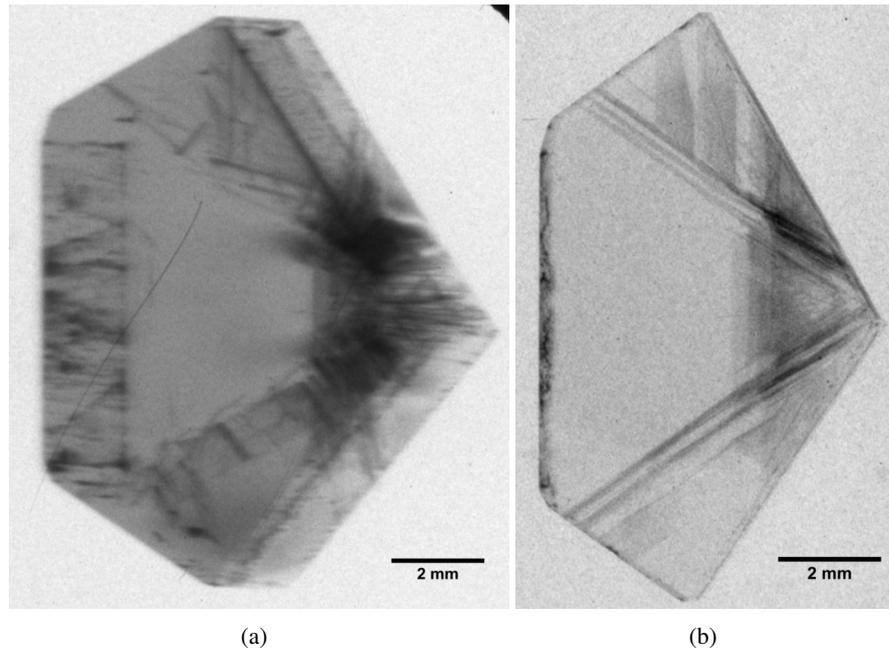


Abbildung 5.10: Topogramme eines HPHT Diamanten aufgenommen mit  $\text{AgK}\alpha$  Strahlung. a) Reflexionstopogramm des (044)-Reflexes mit  $\theta_B = 26,33^\circ$ . b) Transmissionstopogramm des (400)-Reflexes mit  $\theta_B = 18,28^\circ$ . Blickrichtung ist für beide Topogramme dem Röntgenstrahl entgegen und entlang der  $\langle 011 \rangle$ -Kristallachse gerichtet.

kaum vom restlichen Kristallvolumen ab. Der Beitrag von Versetzungen mit einer Burgers-Vektor-Komponente in  $\langle 100 \rangle$ -Richtung ist verglichen mit dem linken Topogramm geringer. In der Mitte von Diamant Nr. 9 sind viele Versetzungslinien zu erkennen, welche sich wesentlich besser vom restlichen Kristallvolumen abheben als bei Diamant Nr. 6. In Abbildung 5.9(c) ist im unteren, rechten Bereich der Kristallmitte eine stärker ausgeprägte Linie zu sehen, welche sich etwa 0,8 mm diagonal über den Kristall erstreckt. Dabei handelt es sich wahrscheinlich um ein Bündel mehrerer Stufenversetzungen mit Versetzungslinien in  $\langle \bar{1}\bar{1}2 \rangle$ -Richtung und  $\frac{1}{2} \langle 1\bar{1}0 \rangle$  Burgers-Vektoren. Dies ist die typische Stufenversetzung in Diamant mit dem Gleitsystem bestehend aus der (111)-Gleitebene und den  $\langle 110 \rangle$  Burgers-Vektoren. Das Versetzungsbündel ist in beiden Topogrammen gleichermaßen gut zu sehen, da es sowohl die (040)- als auch die (400)-Netzebene deformiert. An der  $\langle 1\bar{1}0 \rangle$  Kristallkante sind mehrere schwarze Flecken zu erkennen. Dabei handelt es sich um ein starkes Deformationsfeld, welches evtl. beim Zuschneiden der Kristalle entstanden ist.

Zum Vergleich ist in Abbildung 5.10 jeweils ein Reflexions- und Transmissionstopogramm eines HPHT Diamanten gezeigt. Die Topogramme wurden erneut mit Silber  $\text{AgK}\alpha$  Strahlung aufgenommen. Der Kristall ist so geschnitten, dass die Oberfläche senkrecht zur  $\langle 011 \rangle$ -Kristallachse steht. Daher wurde für das Reflexionstopogramm in Abb. 5.10(a) der (044)-Reflex mit einem Braggwinkel von  $\theta_B = 26,33^\circ$  benutzt. Die beugenden Netzebenen liegen parallel zur Papierebene und der reziproke Gittervektor ragt senkrecht in  $\langle 011 \rangle$  Richtung aus der Papierebene heraus. Die Extinktionstiefe  $\Lambda_0^\sigma$  für  $\sigma$ -Polarisation beträgt  $13,6 \mu\text{m}$  und die Absorptionslänge  $\mu_0$  ist  $20,7 \text{ mm}$  groß. Erneut trägt der

Kristall über seine komplette Dicke  $t$  von 0,7 mm zum Topogramm bei. Das Reflexionstopogramm ist daher in Dispersionsrichtung (entlang der Bildhorizontale) um ca. 1,8 mm länger als die Kristalloberfläche, was sehr gut an der Projektion der rechten Kristallkante in die Bildebene zu erkennen ist. Der Kristall wurde von Element 6 so gezüchtet, dass er möglichst keine Versetzungen enthält [93]. An der linken Kristallkante sind einige linienartige Störungen zu erkennen, die vermutlich beim Zuschneiden des Kristalls mechanisch eingebracht wurden. In der Kristallmitte befindet sich ein mehrere Quadratmillimeter großes Kristallgebiet, welches im oberen und unteren Teil des Bildes von Stapelfehlern begrenzt wird (besser zu erkennen im Transmissionstopogramm Abb. 5.10(b)). Stapelfehler sind Flächendefekte, die in den am dichtesten gepackten Ebenen, den (111)-Ebenen, liegen. Sie können zum Beispiel durch Agglomeration von Leerstellen (intrinsische Stapelfehler) oder Zwischengitteratomen (extrinsische Stapelfehler), aber auch durch Dissoziation einer perfekten Versetzung in zwei Shockley-Partialversetzungen entstehen [46, 94]. Die rechte Kristallecke ist stark gestört, weist viele Stapelfehler und ein starkes Spannungsfeld auf. Hier hat wahrscheinlich bei der Synthese das Kristallwachstum am „Seed“-Kristall eingesetzt, welcher nach der Herstellung entfernt wurde.

Im Transmissionstopogramm in Abbildung 5.10(b) sind erneut starke Störungen an der linken Kristallkante zu erkennen. Nach rechts schließt sich ein nahezu perfektes Kristallgebiet an. In der oberen Kristallecke sind zwei ca.  $1 \times 2 \text{ mm}^2$  große  $(\bar{1}11)$  Stapelfehler zu sehen. Diese konnten im Reflexionstopogramm zuvor nicht beobachtet werden, da der  $\langle \bar{1}11 \rangle$  Vektor des Stapelfehlers in der durch  $\langle \bar{1}00 \rangle$  und  $\langle 011 \rangle$  aufgespannten Beugungsebene des Reflexionstopogramms lag [95]. Bei den Linien entlang der  $\bar{2}1\bar{1}$  und  $\bar{2}\bar{1}1$  Richtungen im unteren und oberen Teil des Topogramms handelt es sich ebenfalls um Stapelfehler der  $(11\bar{1})$  und  $(\bar{1}\bar{1}1)$  Ebenen. In der rechten Kristallecke nimmt die Zahl und Dichte der Stapelfehler deutlich zu, was zu einem erhöhten Kontrast im Topogramm führt.

Abbildung 5.11 zeigt die Netzebenenanalyse der in Abb. 5.8 gezeigten Reflexionstopogramme von Diamant Nr. 6 und Nr. 9. Aufgetragen ist die am (004)-Reflex gebeugte Intensität in Impulsen pro Sekunde über der Abweichung vom Bragg-Winkel  $\theta - \theta_B$  in Bogenminuten (arcmin.). Für die Messung wurde der Kristall horizontal zum einfallenden Röntgenstrahl verschoben und alle 0,5 mm eine Rockingkurve aufgenommen. Die horizontale Position  $x$  der einzelnen Rockingkurven auf dem Kristall kann in Millimetern der Legende auf der rechten Seite entnommen werden, wobei  $x = +0,0 \text{ mm}$  ungefähr der Kristallmitte entspricht. Für die Rockingkurven von Diamant Nr. 6 wurde eine Schrittweite von 0,5 arcmin und für Diamant Nr. 9 0,3 arcmin gewählt. Die Rockingkurvenbreite ist im Wesentlichen durch die Divergenz von ungefähr 1,2 arcmin und Linienbreite 0,4 arcmin gegeben. Somit ist klar, dass insbesondere für Diamant Nr. 6 die Schrittweite nicht hinreichend klein gewählt wurde, um die Rockingkurven gut aufzulösen. Dies erklärt die kantige Kurvenform. Ziel der Netzebenenanalyse ist es, eine ortsabhängige Verbiegung der Netzebenen zu bestimmen. Dafür betrachtet man die Verschiebung des Rockingkurvenschwerpunkts oder -maximums. Für Diamant Nr. 6 in Abb. 5.11(a) variiert die Position des Rockingkurvenmaximums über dem Kristall willkürlich. Es ist keine einheitlicher Verbiegung der Netzebenen zu erkennen. Die nominelle Verschiebung des Maximums beträgt 1 bis 2 Bogenminuten, was auf einer Länge von 8 mm einem Krümmungsradius von 14 bis 28 m entspricht. Im Falle von Diamant Nr. 9 in Abbildung 5.11(b) verschiebt sich das Maximum um ungefähr 0,3 arcmin, was innerhalb der Schrittweite liegt und somit nicht signifikant ist. Die von den Verset-

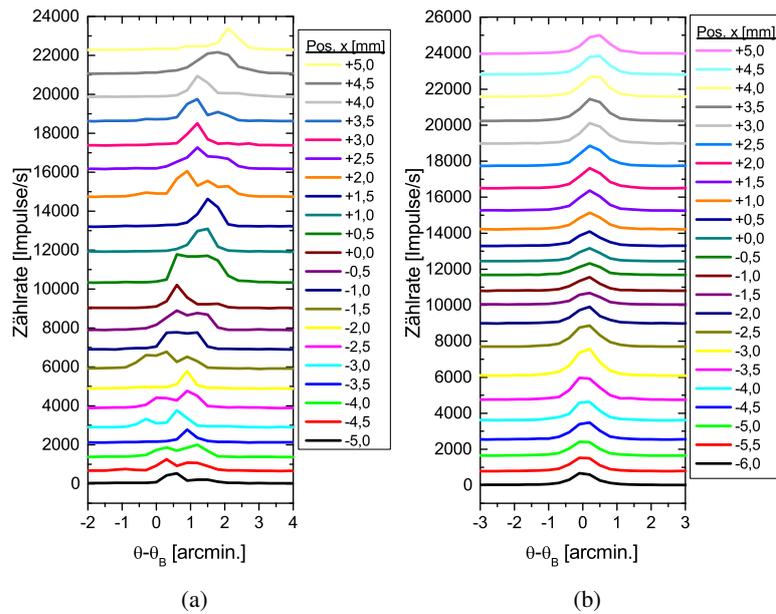


Abbildung 5.11: Netzebenenanalyse des (004)-Reflexes von CVD Diamanten aufgenommen mit  $\text{AgK}\alpha$  Strahlung  $\theta_B = 18,3^\circ$  a) Diamant Nr. 6 und b) Diamant Nr. 9

zungen eingebrachten Verspannungen und die daraus resultierenden Verbiegungen der Netzebenen sind zu klein, um sie mit einer einfachen Netzebenenanalyse hinreichend gut messen zu können. Im nachfolgenden Abschnitt wurde die Verbiegung der Netzebenen und die Reflexionseigenschaften der Kristalle mit ca. hundertmal höherer Auflösung bestimmt.

### 5.2.3 Dreikristallmessungen

Mit dem in Abschnitt 4.2.4 beschriebenen Dreikristallaufbau wurden sowohl mit einer APD als auch mit einer Röntgen-CCD Rockingkurven am Diamant-(313)-Reflex aufgenommen. Aufgrund des maximal  $10 \times 4 \text{ mm}^2$  großen Strahlquerschnitts konnte nur ein kleiner Ausschnitt der  $8 \times 8 \text{ mm}^2$  großen CVD Diamanten untersucht werden. Der hellblaue gestrichelte Rahmen in Abbildung 5.12(a) zeigt, welches Kristallgebiet im Nachfolgenden in den CCD-Aufnahmen zu sehen ist. Neben der Kristallvorderseite trägt auch ein Teil der linken Außenkante zu den CCD-Aufnahmen bei. An den Außenkanten sind die Diamanten stärker gestört, sodass sich diese Bereiche deutlich vom restlichen Kristall in den CCD-Aufnahmen abheben. Abbildung 5.12(b) zeigt exemplarisch eine CCD-Aufnahme von Diamant Nr. 9 bei einer Winkelstellung, die dem Rockingkurvenmaximum entspricht. Die hellen Bildpunkte sind Punkte hoher Intensität. An diesen Stellen wurde ein großer Teil der einfallenden Röntgenstrahlung vom Kristall in Richtung CCD-Kamera gebeugt. Dunkle Bildpunkte sind Punkte niedriger Intensität. Hier wurde nur wenig bis gar keine Röntgenstrahlung vom Kristall reflektiert. Wie zu erkennen ist, reflektiert der Kristall sehr inhomogen. Die von den Versetzungen in den Diamanten eingebrachten Spannungen verursachen eine Verbiegung der beugenden Netzebenen. Diese

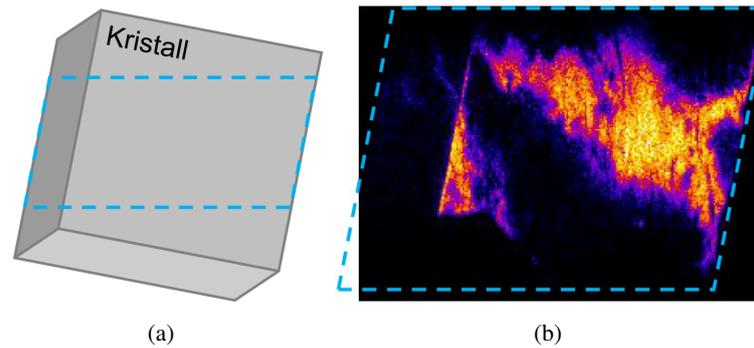


Abbildung 5.12: a) Modell eines CVD Diamanten. Der hellblau umrahmte Bereich markiert das auf den CCD-Aufnahmen sichtbare Kristallgebiet. b) CCD-Aufnahme von CVD Diamant Nr. 9 im Rockingkurvenmaximum.

Verbiegung ist innerhalb des untersuchten Kristallgebiets mehrere Bogensekunden groß. Da der auftreffende Röntgenstrahl eine Divergenz von  $\Delta\theta < 1$  arcsec hat, erfüllt nur ein Teil der Netzebene die Bragg-Bedingung für den einfallenden Strahl hinreichend gut und das restliche Kristallgebiet beugt keine Strahlung zum CCD-Detektor.

Über die gesamte Rockingkurve wurde in einem Winkelbereich von 72 arcsec alle 0,225 arcsec eine CCD-Aufnahmen aufgenommen und mit einer selbstgeschriebenen MATLAB-Routine ausgewertet. Mit dieser wurde als erstes der Untergrund ermittelt und abgezogen. Zur Verbesserung des Signal-Rauschverhältnisses wurde in jedem Pixel der Mittelwert über die  $4 \times 4$  nächsten Nachbapixel gebildet. Wesentlicher Bestandteil der Routine war eine Kurvenanpassung. Dafür wurde die Intensität jedes Bildpunktes über den gemessenen Winkelbereich aufgetragen. Als Ergebnis erhält man in jedem Pixel eine Reflexionskurve. Abbildung 5.13 zeigt stellvertretend drei dieser Rockingkurven für Diamant Nr. 9 und den HPHT Diamanten. Wie zu sehen ist, sind die Kurven nicht immer gleich hoch und gleich breit. Das lässt sich damit erklären, dass jeder Pixel ein anderes Kristallgebiet sieht und diese unterschiedlich stark durch Gitterfehler gestört sind. Für Diamant Nr. 9 ändert sich zudem noch die Position des Rockingkurvenschwerpunkts, da hier die beugenden Netzebenen durch Versetzungen deformiert sind. Bei genauerer Betrachtung fällt auf, dass die Kurven vom HPHT Diamanten höhere Maxima haben als die von Diamant Nr. 9. Dies ist kein Zufall. Wie im Nachfolgenden noch zu sehen sein wird, ist das maximale Reflexionsvermögen für den HPHT Diamanten über einen großen Bereich höher als bei den untersuchten CVD Diamanten.

Die in jedem Pixel der CCD aufgenommen Rockingkurven wurden mit einer Gaußkurve angepasst und die Halbwertsbreite, die Peakhöhe und die Theta-Position des Maximums bestimmt. Leider war es nicht möglich, die auf den Diamantkristall einfallende Intensität ( $I_0$ ) mit der CCD-Kamera zu messen. Um dennoch die Höhe der Gaußkurven in Werten  $I/I_0$  angeben zu können, wurden in einem  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  großen Kristallgebiet sowohl Messungen mit der APD, als auch mit der CCD-Kamera durchgeführt. Die aus der Auswertung der CCD-Aufnahmen gewonnenen Amplituden der Gaußverteilung wurden in diesem Gebiet gemittelt. Zusammen mit dem Rockingkurvenmaximum  $I/I_0$ ,

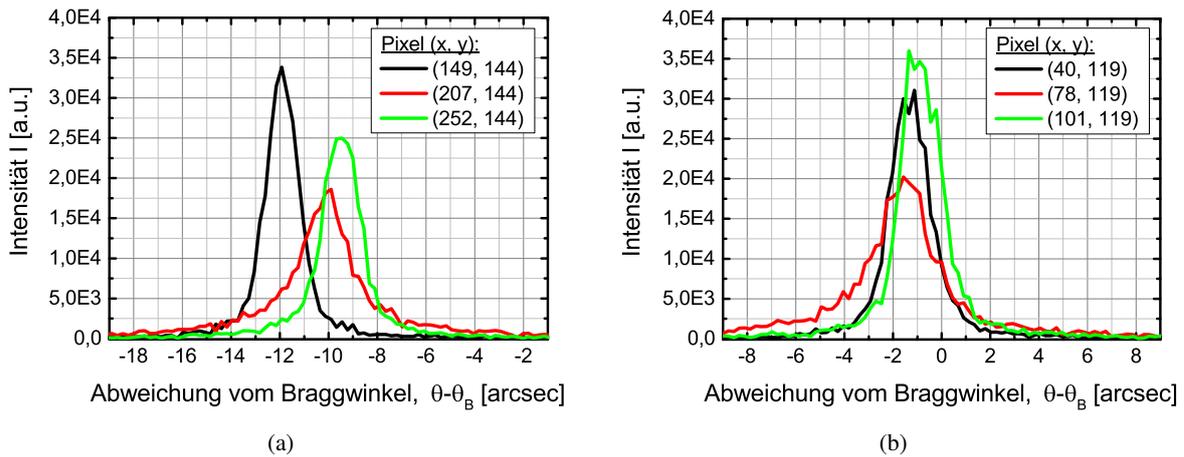


Abbildung 5.13: Rockingkurven des C(313)-Reflexes für  $E_{ph} = 8048 \text{ eV}$  ( $\theta_B = 70,28^\circ$ ) aufgenommen in drei verschiedenen Pixeln einer Röntgen-CCD. a) Diamant Nr. 9 und b) HPHT Diamant.

welches mit der APD gemessen wurde, wurden die Amplituden neu normiert. Somit lässt sich in jedem Bildpunkt der CCD-Aufnahmen die Peakreflexion (das Reflexionsvermögen im Rockingkurvenmaximum) in  $I/I_0$  angeben. Bei dieser Vorgehensweise macht man einen kleinen Fehler. Das mit der APD gemessene Rockingkurvenmaximum kommt dadurch zustande, dass die gebeugte Intensität vom kompletten  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  großen Kristallgebiet bei einem ganz bestimmten Einfallswinkel  $\theta$  maximal wird. Für die Normierung der CCD-Aufnahmen wurden die Maximalhöhen der Gaußkurven jedes einzelnen Bildpunkts in dem  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  Gebiet herangezogen. Die einzelnen Bildpunkte müssen allerdings nicht alle beim selben Einfallswinkel  $\theta$  ihren Maximalwert erreicht haben (siehe Abb. 5.13(a)). Insbesondere bei Kristallen, die innerhalb des  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  Gebiets stark verspannt sind, kann es vorkommen, dass für manche Bildpunkte das Rockingkurvenmaximum schon erreicht wurde, während es für andere Bildpunkte noch einige Bogensekunden weit weg liegt. Die für die CCD-Aufnahmen ermittelten Peakreflexionen in  $I/I_0$  sind daher ca. um 5 bis 15% zu niedrig. Darüber hinaus variiert die Empfindlichkeit der APD auf ihrer  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  großen Sensorfläche um 5 bis 10%. Das mit der APD gemessene  $I/I_0$  ist somit mit einem Fehler von mindestens 5% behaftet. Abbildung 5.14 zeigt die aus der Auswertung der CCD-Aufnahmen für Diamant Nr. 6 und Nr.9 gewonnenen Ergebnisse. In allen Bildern ist auf der x- und y-Achse die Position auf der Röntgen-CCD in Pixeln angegeben. Die Größe eines Pixels beträgt  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ . Der betrachtete Bildausschnitt ist somit ca. 5,5 mm breit und 4 mm hoch. Der Diamant-(313)-Reflex ist ein asymmetrischer Reflex mit einem Asymmetriewinkel von  $\alpha = 46,51^\circ$  und einem Braggwinkel von  $\theta_B = 70,28^\circ$ . Die Röntgen-CCD stand senkrecht zum gebeugten Strahl, der die Kristalloberfläche unter einem Winkel von ca.  $24^\circ$  verlässt. Das betrachtete Kristallgebiet ist daher horizontal um den Faktor  $\sin(24^\circ) = 0,4$  zusammengeschoben. Den Überschriften der Einzellabbildungen kann entnommen werden, welche Information jeweils in der Farbskala enthalten ist. In allen Bildern sind Pixel dunkelblau, die einen geringen Wert haben oder in denen die Kurvenanpassung kein zufriedenstellendes Ergebnis geliefert hat. Pixel mit hohem Wert sind rot dargestellt. Mit der Legende am jeweiligen rechten Bildrand kann

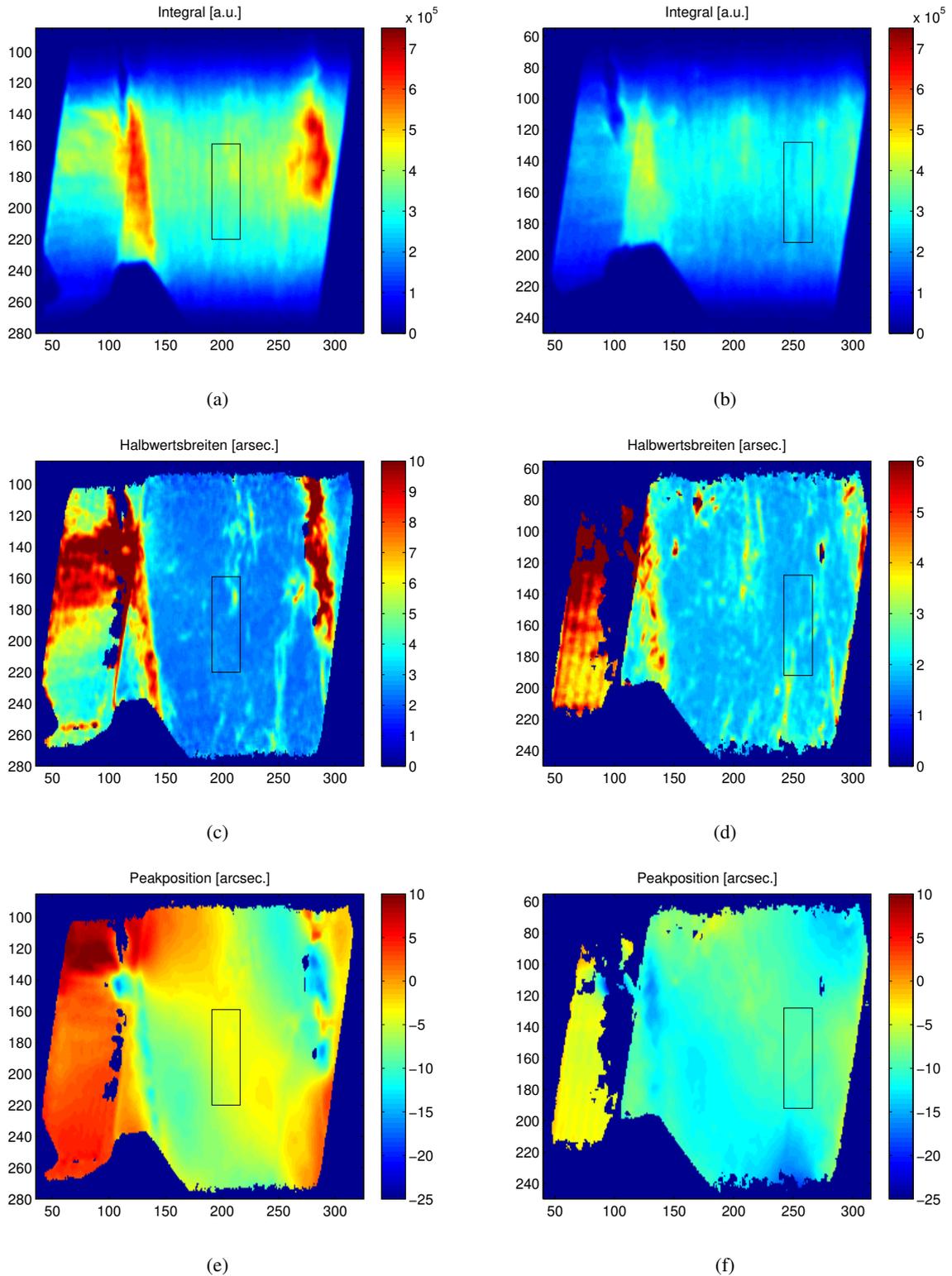


Abbildung 5.14: Integral, Halbwertsbreite und Peakposition in einem ca.  $8 \times 4 \text{ mm}^2$  großen Kristallgebiet von links CVD Diamant Nr.6 und rechts CVD Diamant Nr.9. Die Informationen wurden aus Rockingkurvenmessungen mit einer Röntgen-CCD gewonnen. Der schwarze Rahmen markiert das Kristallgebiet in dem zusätzlich Messungen mit einer APD durchgeführt wurden.

jede Farbe in die entsprechende Größe umgerechnet werden. Bei allen Abbildungen befindet sich links unten ein dunkelblauer dreiecksförmiger Bereich. An dieser Stelle war der Kristall während des Experiments durch einen Teil des Kristallhalters abgeschattet. Das schwarze Rechteck markiert das Gebiet, in dem zusätzlich Rockingkurven mit der APD aufgenommen wurden.

In Abbildung 5.14(a) und 5.14(b) ist das Integral der Rockingkurven für Diamant Nr. 6 und Nr. 9 aufgetragen. Dafür wurden jeweils alle CCD-Aufnahmen aufsummiert. Der Wert in der Legende entspricht der Anzahl an absorbierten  $\text{CuK}\alpha$ -Photonen multipliziert mit 1210. Der größte Teil der Bilder ist hellblau bis grün gefärbt, was ungefähr 200 bis 330 Photonen pro Pixel entspricht. Für Diamant Nr. 6 ist das Integral am rechten und linken Rand der Kristalloberfläche ungefähr zwei- bis dreimal größer. Aus den Röntgentopogrammen und den Spannungsdoppelbrechungsaufnahmen ist bekannt, dass in den Ecken die Zahl der Versetzungen und die dadurch in den Kristall eingebrachten Verspannungen zunehmen, wodurch das integrale Reflexionsvermögen in diesen Gebieten erhöht wird. Für Diamant Nr. 9 ist rechts keine und links nur eine kleine Erhöhung des Integrals zu sehen. Die durch die Versetzungen eingebrachten Verspannungen sind somit in Diamant Nr. 6 deutlich größer. Entlang der Vertikalen nimmt das Integral im oberen und unteren Drittel in beiden Abbildungen stark ab. Ursache dafür ist der einfallende Strahl, dessen Strahlprofil aufgrund der verwendeten Multilayeroptik nur in einem Bereich von 1,5 bis 2,0 mm maximal ist und zum Rand hin an Intensität verliert. In Abbildung 5.14(c) und 5.14(d) ist die Halbwertsbreite von Diamant Nr. 6 und Nr. 9 in Bogensekunden aufgetragen. Die Farbskala reicht im linken Bild von dunkelblau gleich 0 arcsec bis dunkelrot gleich 10 arcsec und im rechten Bild bis 6 arcsec. An manchen Stellen auf dem Kristall hat die Kurvenanpassung versagt. Diese Gebiete sind genau wie der Hintergrund in dunkelblau gehalten. Die Halbwertsbreite beträgt für Diamant Nr. 6 über große Bereiche auf der Kristallvorderseite 2,6 arcsec und für Diamant Nr. 9 2,0 arcsec. Somit ist für beide Kristalle die Halbwertsbreite kaum gegenüber dem Theoriewert von 1,9 arcsec verbreitert. Dort wo die Kristalle stärker gestört sind, nimmt die Halbwertsbreite insbesondere für Diamant Nr. 6 auf 7 oder mehr als 10 arcsec zu. Trotz der vielen Versetzungen und der starken Spannungsdoppelbrechung, die bei beiden Diamanten beobachtet werden konnten, sind die Rockingkurven über weite Teile des Kristalls erstaunlich schmal. Die theoretische Extinktionstiefe des Diamant-(133)-Reflexes für  $\text{CuK}\alpha$ -Strahlung beträgt  $3,6 \mu\text{m}$ . Üblicherweise sind tieferliegende Störungen erst in den Rockingkurvenausläufern unterhalb der Halbwertsbreite zu sehen.

Abbildung 5.14(e) und 5.14(f) zeigen, wie sich der Braggwinkel des Rockingkurvenmaximums über dem Kristall ändert. Die Farbskala reicht von  $-25$  bis  $+10$  Bogensekunden. In beiden Bildern hebt sich die Kristallkante durch eine andere Farbgebung deutlich von der Kristallvorderseite ab. Im linken Bild ist die Kante orange bis dunkelrot und im rechten Bild gelb gefärbt. Die Oberflächennormale der Kristallkante ist parallel zur  $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Somit beträgt der Asymmetriewinkel an der Kristallkante  $-49,54^\circ$  und auf der Kristalloberfläche  $+46,51^\circ$ . Daraus ergibt sich eine unterschiedliche Brechungskorrektur, sodass das Maximum der Rockingkurve für die Kristallkante laut Theorie um ca. 7 arcsec zu höheren Braggwinkeln hin verschoben ist. Das stimmt sehr gut mit den Werten in Abbildung 5.14(e) und 5.14(f) überein. Für beide Diamanten variiert die Position des Rockingkurvenmaximums auf der Kristallvorderseite um ungefähr 10 arcsec bzw. 6 arcsec. Das entspricht dem drei- bis fünffachen der Halbwertsbreite. Hier wird deutlich, wie und in welchem Ausmaß die Netzebenen

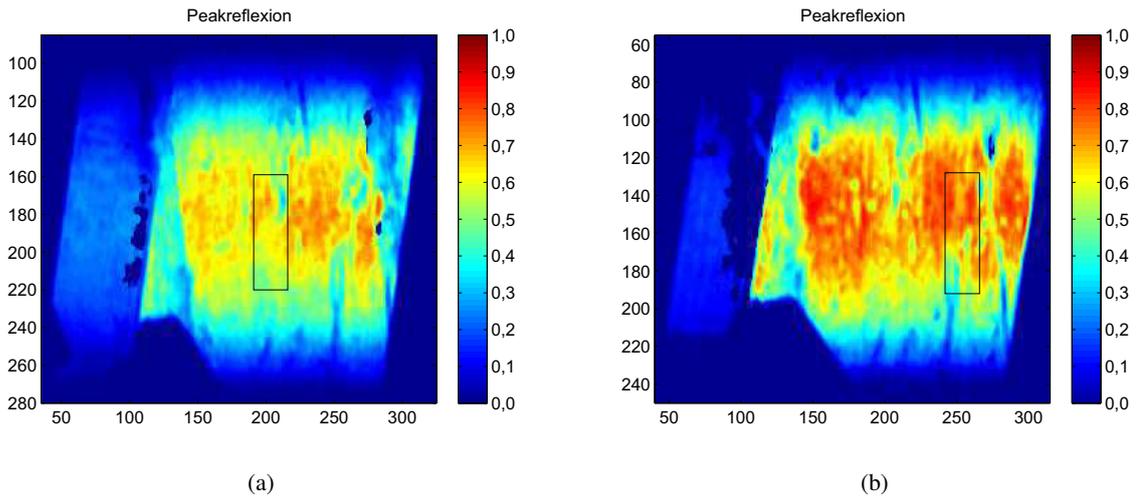


Abbildung 5.15: Peakreflexion in einem ca.  $8 \times 4 \text{ mm}^2$  großen Kristallgebiet für a) CVD Diamant Nr.6 und b) CVD Diamant Nr.9. Der schwarze Rahmen markiert das Kristallgebiet in dem zusätzlich Messungen mit der APD durchgeführt wurden.

durch die Versetzungen deformiert und verbogen werden. Gleichfarbige Bereiche sind Gebiete gleicher Verspannung und erfüllen die Bragg-Bedingung beim selben Einfallswinkel. Somit ist für eine feste Winkelstellung des Kristalls und für eine Quelle mit entsprechend kleiner Divergenz die Bragg-Bedingung nur in einem Teil des Kristalls hinreichend gut erfüllt, was zu einer Intensitätsverteilung führt, die der in Abbildung 5.12(b) gleicht. Für die Verwendung der Kristalle an einem Synchrotron oder einem XFEL mit Strahldivergenzen von  $2,0 \text{ arcsec}$  bzw.  $0,2 \text{ arcsec}$  und Strahlquerschnitten von  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  bis  $2 \times 2 \text{ mm}^2$  bedeutet das in erster Linie, dass nicht der volle Strahl optimal genutzt werden kann. Der Kristall wird aus dem einfallenden Strahl einen Teil ausschneiden, wodurch Intensität verloren geht. Außerdem ist es nicht möglich, auf ein und demselben Kristall mehrere Reflexionen durchzuführen. Somit braucht man für einen Quasi-Channel-Cut mit vier Reflexionen vier individuelle Kristalle.

In Abbildung 5.15 ist die Peakreflexion der beiden Diamanten dargestellt. Diese beträgt für Kristall Nr.6 über einen großen Bereich 45 bis 70% und für Kristall Nr. 9 50 bis 85%. Theoretisch ist im Rockingkurvenmaximum ein Reflexionsvermögen von 98% zu erwarten, welches bei keinem der untersuchten CVD Diamanten gemessen werden konnte. Somit muss davon ausgegangen werden, dass man in einem Quasi-Channel-Cut pro Kristallreflexion 30 bis 50% an Intensität verliert. Bei jeweils vier Reflexionen am Polarisator und Analysator ergibt sich dadurch ein kumulierter Intensitätsverlust von zwei bis drei Größenordnungen. Das erschwert die Untersuchung stark absorbierender Proben oder kleiner Effekte und macht Polarimetrie an Röntgenröhren nahezu unmöglich. Ganz anders sieht das für den untersuchten HPHT Diamanten aus.

Der in Abbildung 5.16 zu sehende Bildausschnitt unterscheidet sich von den bisher gezeigten Kristallen. Das liegt daran, dass der HPHT Diamant auf einem kreisrunden Halter aufgeklebt ist. Die Kristallkante wird durch den Rand der Apertur verdeckt und trägt somit nicht zur CCD-Aufnahme bei. Wie im Integral und in der Halbwertsbreite in Abbildung 5.16(a) und 5.16(b) besonders gut zu

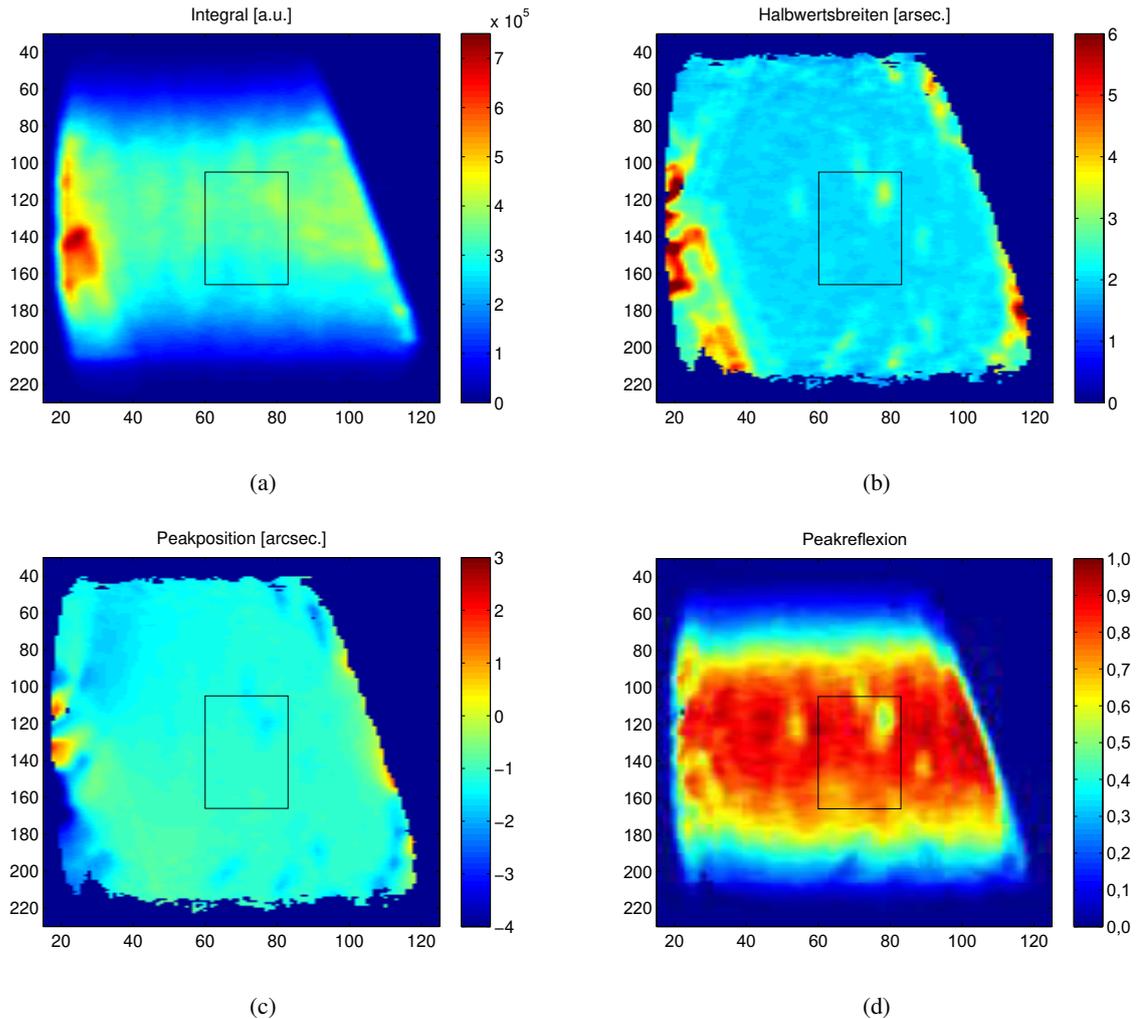


Abbildung 5.16: Integral, Halbwertsbreite, Peakposition und Peakreflexion in einem ca.  $6 \times 4 \text{ mm}^2$  großen Kristallgebiet eines HPHT Diamanten. Die Informationen wurden aus Rockingkurvenmessungen mit einer Röntgen-CCD gewonnen. Der schwarze Rahmen markiert das Kristallgebiet in dem zusätzlich Messungen mit einer APD durchgeführt wurden.

sehen, ist der Diamant am linken Rand etwas stärker gestört. Aus den Topogrammen ist bekannt, dass an diesen Stellen mehr Defekte und viele Stapelfehler im Kristall vorhanden sind, die das integrale Reflexionsvermögen deutlich erhöhen. Die Halbwertsbreite ist über ein großes Gebiet hinweg sehr homogen und entspricht nahezu der theoretisch zu Erwartenden von 1,8 arcsec. Lediglich am Rand und in der rechten oberen Ecke des schwarz umrahmten Gebiets, in dem zusätzliche Messungen mit der APD durchgeführt wurden, steigt diese auf ca. 4 arcsec bis 6 arcsec an. Ein deutlicher Unterschied zu den bisher gezeigten CVD Diamanten ist in Abbildung 5.16(c) zu sehen. Die Position des Rockingkurvenmaximums liegt fast ausnahmslos beim selben Einfallswinkel und weicht selten um mehr als 0,5 arcsec vom Rest des Kristalls ab. Dieses Resultat lässt sich sehr gut mit der niedrigen Spannungsdoppelbrechung, die bei diesem Diamanten beobachtet werden konnte, in Übereinstimmung bringen. Ähnlich wie bei der Halbwertsbreite ist die Peakreflexion in Abb. 5.16(d) sehr

homogen und beträgt über einen großen Bereich 80 bis 95%. Lediglich an den oberen und unteren Rändern reflektiert der Kristall schwächer, was an dem Intensitätsabfall des Strahlprofils liegt. Für die Röntgenpolarimetrie wäre die Verwendung solch qualitativ hochwertiger Kristalle in mehrfacher Hinsicht von Vorteil. Aufgrund der geringen Verspannungen könnte man bei entsprechend großen Diamanten den Röntgenstrahl mehrmals an ein und demselben Kristall reflektieren. Ein Vier- oder gar Sechsexreflexions-Channel-Cut ließe sich dadurch mit lediglich zwei Diamanten realisieren. Das wiederum würde den technischen Aufwand und die Kosten reduzieren sowie vermutlich auch die Stabilität des Channel-Cuts erhöhen. Zusätzlich wäre der Verlust pro Kristallreflexion wesentlich geringer als bei den CVD Diamanten.

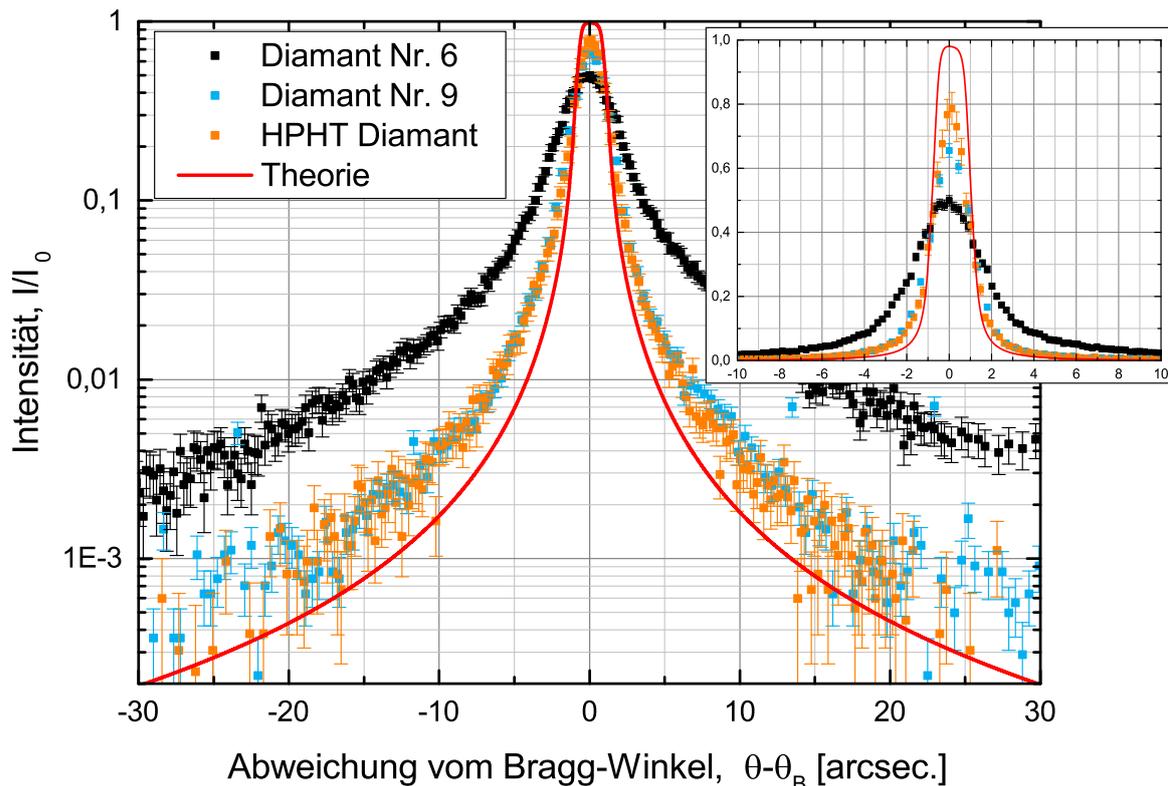


Abbildung 5.17: Rockingkurven des C133 Reflexes ( $\text{Cu K}\alpha$ ) für drei unterschiedliche Diamanten

In Abbildung 5.17 sind die mit der Avalanche Photodiode (APD) aufgenommenen Rockingkurven im Vergleich zur Theorie zu sehen. Die höhere Dynamik der APD ermöglicht es, die Rockingkurvenausläufer und somit den Einfluss tiefer liegender Störungen zu messen. Für alle drei Kristalle weichen die Ausläufer signifikant von der Theorie ab. Insbesondere für Diamant Nr. 6 ist die Rockingkurve bei  $1\% I/I_0$  mit  $28,6 \text{ arcsec}$  dreimal breiter als die Theorie mit  $8,5 \text{ arcsec}$ . Die Rockingkurvenausläufer vom HPHT Diamanten und Diamant Nr. 9 verhalten sich ähnlich und sind bei  $1\% I/I_0$  ca.  $12,1 \text{ arcsec}$  breit. In der linearen Darstellung rechts ist nochmal sehr gut die Abweichung von der Peakreflexion und der Halbwertsbreite zu sehen. Das Rockingkurvenmaximum beträgt bei keinem der drei Kristalle mehr als 80%. Entsprechend Abbildung 5.16(d) hätte man, bei geeigneter Wahl des reflektierenden

Kristallgebiets, für den HPHT Diamanten ein höheres Reflexionsvermögen im Peak messen können. Da die Rockingkurven auf die einfallende Intensität normiert sind, lässt sich das integrale Reflexionsvermögen in  $\mu\text{rad}$  angeben und mit dem theoretisch zu erwartenden von  $10,3 \mu\text{rad}$  vergleichen. Für Diamant Nr. 6 beträgt das Integral  $(14,4 \pm 2,8) \mu\text{rad}$  und ist gegenüber der Theorie leicht erhöht. Die Integrale von Diamant Nr. 9 und dem HPHT Diamanten stimmen mit  $(9,6 \pm 1,9) \mu\text{rad}$  bzw.  $(9,7 \pm 1,9) \mu\text{rad}$  im Rahmen der Messgenauigkeit gut mit der Theorie überein.

# 6 Röntgenpolarimetrie mit Diamantkristall

## Quasi-Channel-Cuts

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse und Polarisationsreinheiten vorgestellt, die mit den zwei unterschiedlichen Quasi-Channel-Cut Systemen am Synchrotron in Grenoble (ESRF) erzielt wurden. Das Synchrotron der ESRF ist eine Speicherringanlage, die über mehrere Experimentierstationen mit Undulatoren verfügt. Mit diesen ist es möglich die Wellenlänge auf einen Wert einzustellen, für den der Braggwinkel  $\theta_B = 45^\circ$  ist. Gleichzeitig verfügen die Experimentierstationen mit bis zu  $10^{14}$  Photonen/s über genügend Röntgenphotonen, um hohe Polarisationsreinheiten in vertretbaren Zeitspannen messen zu können.

### 6.1 Ergebnisse mit den Zweikristall-Quasi-Channel-Cuts

Die Zweireflexions-Quasi-Channel-Cuts wurden bei einer Messkampagne im Oktober 2014 an der Technik- und Instrumentierungs-Beamline ID06 eingesetzt. Der Speicherring befand sich währenddessen im  $7/8 + 1$  Modus mit einem Ringstrom von 200 mA. Die Experimentierstation verfügt über zwei Undulatoren und einen Si(111) Doppelkristallmonochromator mit einer theoretischen Energiebandbreite von ungefähr  $1,3 \text{ eV}$ <sup>1</sup>. Anders als in den Arbeit von Berit Marx-Glowna konnte für die Energiejustage kein monolithischer (n, +n) Kristall verwendet werden (siehe Abb. 6.1(a)) [20]. Bei diesem wird der einfallende Strahl an zwei senkrecht zueinander stehenden Netzebenen mit dem selben Netzebenenabstand gebeugt. Ist die Photonenenergie so eingestellt, dass der Braggwinkel  $45^\circ$  beträgt, wird die gebeugte Intensität maximal. Für Diamant gibt es einen solchen Kristall nicht. Um dennoch die Photonenenergie möglichst exakt einzustellen, wurden mehrere Methoden angewandt. Als erstes wurde die Photonenenergie der Beamline an der  $L_3$  Absorptionskante von Tantal bei 9881 eV kalibriert. Diese liegt ca. 50 eV über der Energie, die für den C(004)-Reflex benötigt wird. In einem zweiten Schritt wurde die (110)-Oberfläche der Kristallkante von Diamant Nr. 5 senkrecht zum Strahl gestellt. Hinter dem Kristall wurde die transmittierte Intensität in einem Winkelbereich von  $0,5^\circ$  gemessen. Es waren mehre Maxima und Minima zu sehen, da der Strahl mehrfach im Kristall an unterschiedlichen Netzebenen gebeugt wird. Zwei mögliche Beugungsszenarien sind in Abbildung 6.1(b) dargestellt. Ist die Bragg-Bedingung für den (440)-Reflex bei einem Braggwinkel von  $90^\circ$  erfüllt, dann kann die gleiche Wellenlänge an den (400)- oder (040)-Netzebenen mit  $\theta_B = 45^\circ$  gebeugt werden. Die Messung wurde für verschiedene Photonenenergien wiederholt, bis sich die transmittierte Intensität aller Reflexionen in einem scharfen Minimum überlagerte. Im Anschluss daran wurde der Einfallswinkel am Kristall geändert und das Maximum der C(004)-Rockingkurve ca.  $44,996^\circ$  entfernt vom senkrechten Einfall gefunden. Die Photonenenergie betrug 9835 eV. Nach dynamischer

<sup>1</sup>Abschätzung anhand der Darwinbreite des Si(111)-Reflexes bei 9,83 keV

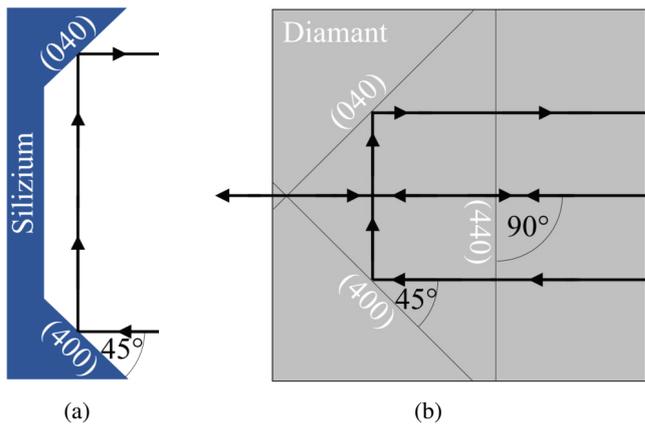


Abbildung 6.1: Kristalle für die Energiejustage mit dem Ziel  $\theta_B = 45^\circ$ . a) ein monolithischer (n, +n) Silizium-Kristall, bei dem der Strahl an zwei Kristallflächen unter  $\theta_B = 45^\circ$  gebeugt wird. b) ein Diamantkristall in dem der Strahl mehrfach gebeugt wird, wie z.B. an der (440)-Netzebene unter  $\theta_B = 90^\circ$  und an den (400)- und (040)-Netzebenen unter  $\theta_B = 45^\circ$ .

Theorie ergibt sich mit  $\Delta\theta_{OS} = -\chi_0(1 - \gamma)/(2\sin(2\theta_B))$  für den (400)-Reflex eine Brechungskorrektur von  $1,56\text{arcsec}$  ( $0,0004^\circ$ ). Im Fall des (440)-Reflexes beträgt der Braggwinkel  $\theta_B = 90^\circ$  und die konventionelle dynamische Theorie muss erweitert werden [96]. In beiden Szenarien ändert sich die Wellenlänge aufgrund von Brechung beim Übergang von Luft ins Medium. Diese Änderung ist im Wesentlichen durch  $\chi_0$  gegeben und beträgt ca.  $\Delta\lambda = 10^{-5}\text{Å}$ , was einer Energieänderung von  $100\text{meV}$  entsprechen würde.<sup>2</sup>

Nach erfolgter Energiejustage wurden die insgesamt vier Diamanten Nr. 5 bis Nr. 8 der beiden Quasi-Channel-Cuts im Durchlass auf das Rockingkurvenmaximum justiert und der Analysator mit dem Goniometer  $\eta$  für den Analysatorwinkel in die Position der Auslöschung bewegt. Dabei ändert sich die Intensität hinter dem Analysator entsprechend dem Gesetz von Malus mit  $I = I_0 \cdot \cos(\eta)^2$ . Bedingt durch den Aufbau und die optische Vorjustage ist der Winkel, an dem die Intensität minimal wird, leicht verschieden von  $\eta = 90^\circ$ . Um das Minimum zu finden, werden üblicherweise mehrere  $\eta$ -Scans, in unterschiedlichen Messbereichen von z.B.  $0,6$  bis  $0,02^\circ$  mit immer kleiner werdenden Schrittweiten, nahe der Auslöschung durchgeführt. Dabei ist darauf zu achten, dass die Kristalle bezüglich des Braggwinkels im Maximum der Reflexionskurve stehen. Hinter dem Analysator beschreibt die Intensität in einem kleinen  $\eta$ -Winkelbereich eine Parabel, in deren Minimum Polarisator und Analysator exakt gekreuzt zueinander stehen. In dieser Position wurde durch einen  $\theta$ -Scan am Analysator-Channel-Cut die Rockingkurve in der Auslöschung gemessen. Im Anschluss daran erfolgte eine erneute Optimierung der Photonenenergie, in  $0,5$  bis  $0,25\text{eV}$  Schritten, bis die schwächste Auslöschungsrockingkurve bei  $9838,75\text{eV}$  beobachtet werden konnte. Mit diesen Einstellungen wurde der Analysator zurück in den Durchlass bewegt und an verschiedenen  $\eta$ -Winkelstellungen Rockingkurven gemessen. Einige ausgewählte Kurven sind in Abbildung 6.2(a) zu sehen.

In der Auslöschung bei  $\eta = 90,00^\circ$  ist das Rockingkurvenmaximum  $492$  Impulse hoch, bei einem Untergrund von  $91$  Impulsen und einer Integrationszeit von  $100$  Sekunden (orange Kurve Abb. 6.2(a)). Die Halbwertsbreite beträgt  $11,64\text{arcsec}$ . Im Durchlass bei  $\eta = 0,00^\circ$  ist die Kurve um den Faktor  $4,31 \cdot 10^9$  stärker, mit einer Halbwertsbreite von  $2,92\text{arcsec}$ . Die unterschiedlichen Kurvenbreiten kommen dadurch zustande, dass beim Drehen des Analysators um den Strahl die Beu-

<sup>2</sup>Die angegebene Energieänderung dient nur zur Veranschaulichung. Beim Übergang ins Medium bleibt die Frequenz und somit die Energie erhalten.

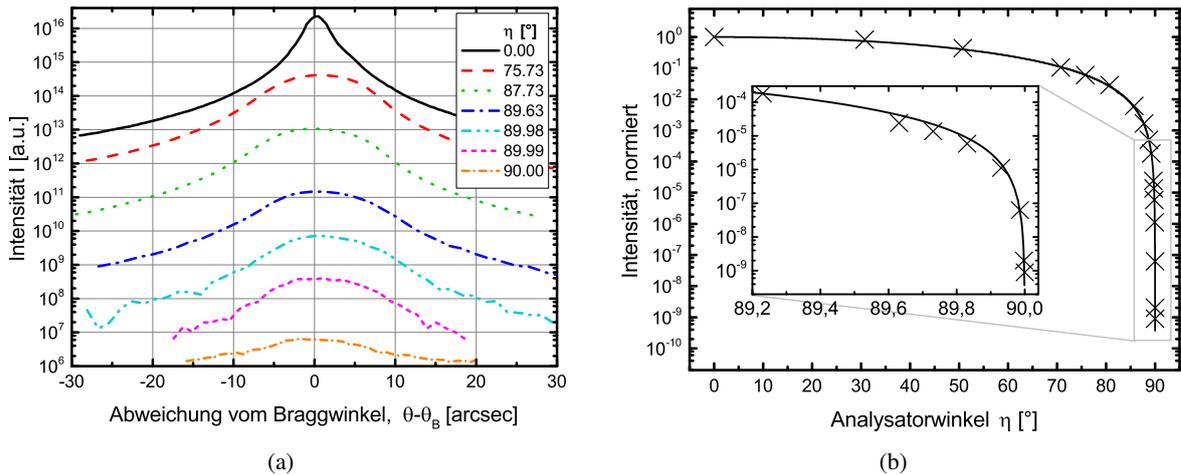


Abbildung 6.2: a) Rockingkurven am Analysator für verschiedene Analysatorwinkel  $\eta$ . b) Reinheit (siehe Gl. 2.48 aus Seite 23) des Diamant-Zweireflexions-Quasi-Channel-Cut.

gungsebene vom Analysator gegenüber der Beugungsebene des Polarisator verdreht wird. Im Detail bedeutet das, dass im Durchlass die Netzebenen (und damit auch die Beugungsebenen) aller Kristalle parallel zueinander sind. Dadurch ist man nicht-dispersiv und misst ähnlich wie bei einem Doppelkristalldiffraktometer eine schmale Rockingkurve, die sich aus einer Faltung der beiden Reflexionskurven von Polarisator und Analysator ergibt und lediglich durch die Kristallimperfectionen gegenüber der Theorie verbreitert ist. Befindet sich der Analysator in der Auslöschung, stehen die Beugungsebenen von Polarisator und Analysator senkrecht zueinander und die Rockingkurve ist zusätzlich zur Kristallqualität durch die horizontale Divergenz verbreitert. Letztere kann auf  $\sigma_{hor} = 22$  bis  $23 \mu\text{rad}$  abgeschätzt werden, indem man annimmt, dass sich die Halbwertsbreite der Auslöschungskurve entsprechend einer geometrischen Summe aus den Halbwertsbreiten von Durchlasskurve und horizontaler Divergenz ergibt. Die vertikale Divergenz lässt sich nicht so einfach bestimmen. Sie beträgt an Synchrotrons der dritten Generation ungefähr  $\sigma_{ver} = 10$  bis  $20 \mu\text{rad}$ . Beide Divergenzen sind insofern interessant, da sie die erzielbare Polarisationsreinheit limitieren können. Dieses Limit kann über  $\delta = \sigma_{hor}^2 + \sigma_{ver}^2$  auf ungefähr  $6$  bis  $9 \cdot 10^{-10}$  abgeschätzt werden.

In der Abbildung 6.2(b) sind die Integrale der gemessenen Rockingkurven normiert auf das Integral im Durchlass über dem Analysatorwinkel aufgetragen. Die Grafik zeigt, wie die Intensität hinter dem Analysator beim Drehen vom Durchlass in die Auslöschung über mehr als neun Größenordnungen abnimmt. Der Wert bei  $\eta = 90,00^\circ$  entspricht der Polarisationsreinheit von  $(8,9 \pm 1,8) \cdot 10^{-10}$  [97]. Somit ist es durchaus möglich, dass die gemessene Polarisationsreinheit durch die Divergenz der Quelle begrenzt wurde. Eine evtl. zu vermutende Degradierung des Polarisationszustandes durch Kristallstörungen ist offensichtlich nicht wesentlich größer als der Einfluss der Divergenz. Um das nachvollziehen zu können, ist es lohnenswert, die Ergebnisse mit denen von nahezu perfektem Silizium zu vergleichen.

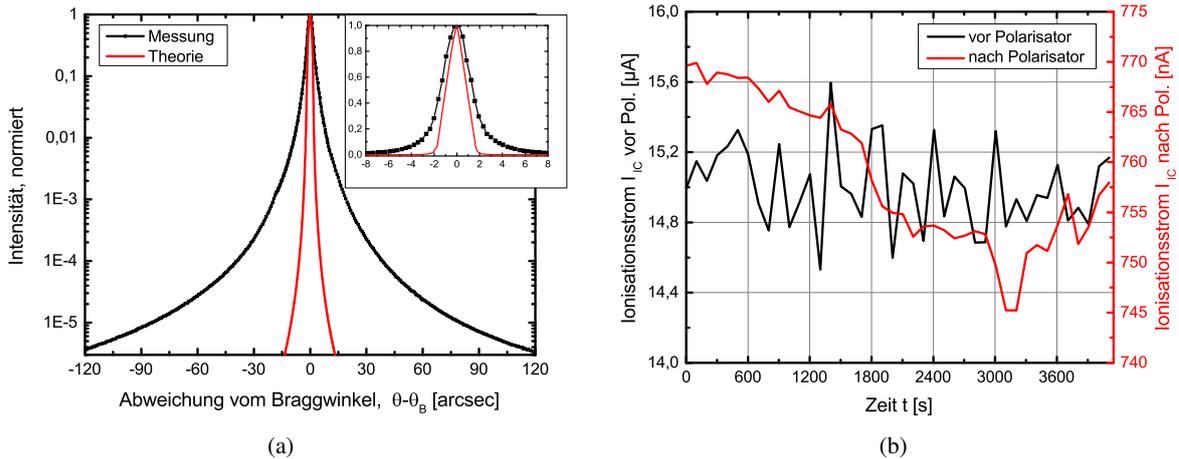


Abbildung 6.3: a) Im Durchlass gemessene Rockingkurve am Analysator verglichen mit einer Simulation für perfekte Kristalle b) Stabilität des Polarisors. Zu sehen ist der Ionisationsstrom vor (schwarze Kurve, linke Ordinate) und hinter (rote Kurve, rechte Ordinate) dem Polarisor.

Abbildung 6.3(a) zeigt die gemessene und theoretisch zu erwartenden Durchlasskurve für einen Diamant-Channel-Cut mit zwei Reflexionen. Beide Kurven sind normiert auf ihr jeweiliges Maximum. Anders als bei Silizium Channel-Cuts, bei denen Messung und Theorie über mehr als drei Größenordnungen übereinstimmen [20], ist die gemessene Durchlasskurve für Diamant bereits nach zwei Größenordnungen viermal breiter als die Berechnung. Es ist anzunehmen, dass diese Verbreiterung wieder durch die Versetzungen im Diamant und den damit verbundenen Deformationen verursacht wird. Silizium hingegen ist versetzungsfrei und kann bis auf Punktdefekte ( $10^{-9}$  bis  $10^{-11}$  Substitutionsatome) als perfekter Kristall behandelt werden [71]. Messungen mit Zweireflexions-Quasi-Channel-Cuts aus Silizium ergaben während der selben Messzeit eine Reinheit von lediglich  $2 \cdot 10^{-9}$  bei einer Photonenergie von 6,5 keV [20]. Mit  $8,9 \cdot 10^{-10}$  liefert Diamant eine doppelt so gute Reinheit, trotz der hohen Versetzungsdichte und den verbreiterten Ausläufern. Somit scheint die Kristallqualität vorerst nicht limitierend zu sein für Polarisationsreinheiten im Bereich von  $> 2 \cdot 10^{-9}$ . Anders als bei einem monolithischen Channel-Cut sind die gegenüberliegenden Kristallflächen in einem Quasi-Channel-Cut nicht fest miteinander verbunden. Dadurch ergeben sich mitunter Instabilitäten im Messaufbau, die im Experiment regelmäßig erfasst und bei Bedarf korrigiert werden müssen. Aus diesem Grund wurde die Intensität vor und hinter dem Polarisor mit zwei Ionisationskammern für alle Messungen aufgezeichnet. Abbildung 6.3(b) zeigt die zeitliche Entwicklung einer solchen Messung über mehr als eine Stunde. Wie zu sehen ist bleibt der Ionisationsstrom des einfallenden Strahls (schwarze Linie und linke Ordinate) im Mittel gleich und schwankt um maximal 4%. Hinter dem Polarisor (rote Linie und rechte Ordinate) nimmt die Intensität in ca. einer Stunde um 3 bis 4% ab. Ein Nachjustieren der einzelnen Kristalle ist somit nur alle zwei bis fünf Stunden notwendig. Die in diesem Abschnitt präsentierten Ergebnisse sind für den Nachweis der Vakuumdoppelbrechung und Experimente an Synchrotrons vierter Generation und zukünftigen Röntgenlasern von enormer Bedeutung. Entgegen dem bisherigen Kenntnisstand konnte gezeigt werden, dass Diamanten für die

hochpräzise Röntgenpolarimetrie geeignet sind und Diamant-Quasi-Channel-Cuts zuverlässig und stabil funktionieren. Die hervorragenden Ergebnisse und die zu Silizium vergleichsweise höhere Polarisationsreinheit, waren Anlass genug einen Vierreflexions-QCC mit Diamantkristallen zu entwickeln. Gleichzeitig musste eine Lösung gefunden werden, um die Divergenz zu kontrollieren und zu minimieren. Beides führt zu einem deutlich komplizierteren und technisch anspruchsvolleren Versuchsaufbau. Dieser und die damit gewonnenen Ergebnisse werden im nächsten Abschnitt ausführlich behandelt.

## 6.2 Ergebnisse mit den Vierkristall-Quasi-Channel-Cuts

Die Vierreflexions-Quasi-Channel-Cuts wurden im Januar 2018 an der, für die resonante Kernstreuung optimierten, Beamline ID18 der ESRF eingesetzt. Der Speicherring befand sich erneut im 7/8 + 1 Modus mit einem Ringstrom von 200 mA. Die Experimentierstation verfügt über drei 1,6 m lange Undulatoren und ein mit flüssigen Stickstoff gekühlten Si(111) Doppelkristallmonochromator. Die horizontale und vertikale Divergenz der Beamline kann unter Annahme einer gaußförmigen Intensitätsverteilung entsprechend einer geometrischen Summe mit der Formel:

$$\sigma_{hor/ver} = \sqrt{\sigma_e^2 + \left(\frac{2\lambda}{\pi s}\right)^2} \quad (6.1)$$

abgeschätzt werden. Dabei bezeichnet  $\sigma_e$  die Elektronenstrahldivergenz des Synchrotrons. Diese beträgt horizontal  $10\ \mu\text{rad}$  und vertikal  $1,17\ \mu\text{rad}$ . Der zweite Summand beschreibt die Divergenz einer beugungsbegrenzten Quelle und ist definiert als der Winkel, an dem die Intensität des Beugungsscheibchens mit Durchmesser  $s$  auf  $1/e$  abgefallen ist. Setzt man für  $s$  die entsprechenden Quell- bzw. Elektronenstrahlgrößen  $s_{hor} = 973\ \mu\text{m}$  und  $s_{ver} = 8,01\ \mu\text{m}$  [36] ein, liefert die Abschätzung bei der verwendeten Wellenlänge von  $1,26\ \text{\AA}$ , sowohl horizontal als auch vertikal eine Divergenz von  $\sigma = 10\ \mu\text{rad}$ . Bei einer Photonenenergie von  $14,41\ \text{keV}$ , die üblicherweise an der Beamline für die Untersuchung des  $^{57}\text{Fe}$ -Isotops genutzt wird, sind die mit Gleichung 6.1 berechneten Divergenzen ca. 20 bis 30% kleiner als die experimentell beobachteten Werte [98]. Ähnliche Abweichungen sind auch für  $9,83\ \text{keV}$  zu erwarten. Aus den abgeschätzten Divergenzen ergibt sich, dass die erzielbare Polarisationsreinheit an ID18 mindestens auf  $2 \cdot 10^{-10}$  limitiert sein wird. Möchte man höhere Polarisationsreinheiten erreichen, ist es erforderlich die Divergenzen zu verringern. Bei genauerer Betrachtung der Maschinenparameter und der Abschätzung fällt auf, dass die vertikale Divergenz im Wesentlichen durch die geringe Quellgröße bestimmt wird. Bei Elektronenstrahlgrößen unterhalb von  $10\ \mu\text{m}$  führt das bei einer Wellenlänge von  $1\ \text{\AA}$  zu Divergenzen von  $> 6\ \mu\text{rad}$ . Die Weiterentwicklung der Speicherringanlagen, mit dem Ziel immer kleinere Quellgrößen zu erreichen, stellt somit eine Herausforderung für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie dar. Lässt sich der Strahl nicht adäquat kollimieren, empfiehlt es sich bei kürzeren Wellenlängen zu arbeiten, da dann der Quotient  $\lambda/s$  und die Divergenz kleiner wird, womit sich höhere Polarisationsreinheiten erreichen lassen. Insbesondere Diamant ist, aufgrund seiner kleineren Gitterkonstante, für die Polarimetrie bei kürzeren Wellenlängen gut geeignet.

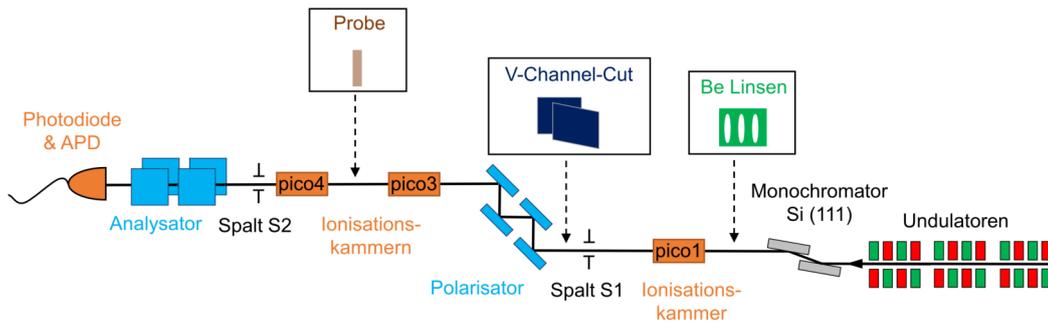


Abbildung 6.4: Schema des experimentellen Aufbaus zur Bestimmung der Polarisationsreinheit des Vierkristall-Quasi-Channel-Cut

Abbildung 6.4 zeigt ein Schema des verwendeten Versuchsaufbaus. Mit dem Si(111)-Monochromator konnte als erstes die Photonenenergie, der von den Undulatoren kommenden Röntgenstrahlung, selektiert und die Energiebandbreite eingeschränkt werden. Vor und hinter dem Polarisator, sowie nach einer optional zu untersuchenden Probe, wurde die Intensität mit drei Ionisationskammern (pico1, pico3 und pico4) während des gesamten Experiments überwacht. Aus ersten Laboruntersuchungen war bekannt, dass die Kristalle am Polarisator über längere Zeit nicht stabil in ihrem Rockingkurvenmaximum verharren. Eine Kontrolle der Intensität davor und dahinter ist zwingend erforderlich, um Verluste zu erkennen und die vier Diamantkristalle ggf. wieder neu zu justieren. Außerdem lassen sich die Messungen am Analysator dadurch auf die einfallende Intensität normieren. In Abbildung 6.4 nicht gezeigt sind die in beiden QCC's verfahrbaren Dioden, mit denen die Diamanten wieder in ihr Rockingkurvenmaximum gesetzt werden konnten. Hinter dem Analysator wurde der Röntgenstrahl mit einer kalibrierten PIN-Diode<sup>3</sup> bzw. in der Auslöschung mit vier gestapelten APD's für maximale Effizienz detektiert. Um die Polarisationsreinheit zu erhöhen, wurde der Versuchsaufbau so geplant, dass die Strahldivergenzen bei Bedarf mit vertikal kollimierenden Linsen und einem horizontal beugenden V-Channel-Cut (siehe Abb. 6.5(a)) verringert werden können. Angestrebt war eine Reinheit von kleiner  $1 \cdot 10^{-10}$  zu erreichen, wofür man horizontal und vertikal eine Divergenz von unter  $7 \mu\text{rad}$  benötigt. Prinzipiell gibt es mehrere Möglichkeiten die Divergenz eines Röntgenstrahls zu verkleinern. Zum einen kann man zwei kleine Spalten  $S_1$  und  $S_2$  in einem Abstand  $L$  verwenden, wodurch sich eine Divergenz von ungefähr  $\Delta\theta = (S_1 + S_2) / L$  ergibt [19]. Hierbei ist jedoch zu beachten, dass sich der Strahl aufgrund von Beugung am Spalt mit dieser Methode nicht beliebig gut kollimieren lässt. Für Spaltgrößen unterhalb von  $100 \mu\text{m}$  nimmt der Quotient  $\frac{\lambda}{S}$  Werte im Bereich von  $> 1 \mu\text{rad}$  an und man ist genau wie bei Speicherringanlagen der vierten Generation durch die Quellgröße beugungslimitiert. Im Experiment betrug der Abstand der beiden Spalte  $S_1$  und  $S_2$  ca. 15 m. Für Divergenzen unterhalb von  $10 \mu\text{rad}$  sind somit Spaltbreiten im Bereich von  $50 \mu\text{m}$  erforderlich, was wiederum zu einem erheblichen Intensitätsverlust aufgrund eines stark reduzierten Strahlquerschnitts führt. An ID18 hat der Röntgenstrahl eine Größe von ungefähr  $1,2 \times 0,5 \text{ mm}^2$  [99]. Mit  $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ -Spalten verliert man somit ungefähr zwei Größenordnungen an Intensität. Bei Pola-

<sup>3</sup>Si-Photodiode der Firma Canberra mit  $300 \text{ mm}^2$  aktiver Fläche und  $500 \mu\text{m}$  Dicke.

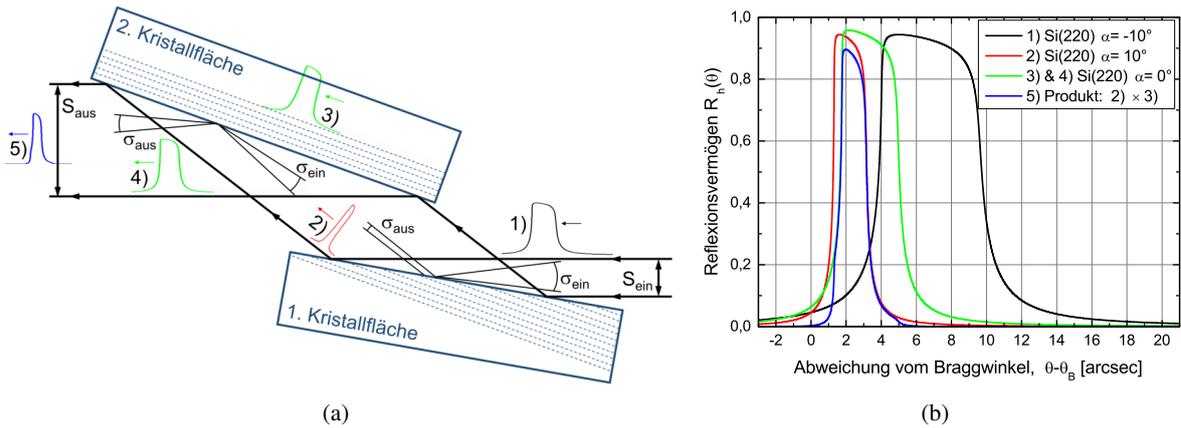


Abbildung 6.5: a) Skizze des verwendeten V-Channel-Cuts. An der ersten Kristallfläche beträgt der Asymmetriewinkel  $\alpha$  zwischen Netzebene und Oberfläche  $-10^\circ$ . Dadurch wird der Strahl kollimiert und aufgeweitet. Die simulierten eingangsseitigen (1) und 3)) und ausgangsseitigen (2) und 4)) Rockingkurven, sowie die ausgangsseitige Rockingkurve des gesamten V-Channel-Cuts sind ebenfalls zu sehen und in b) über der Abweichung vom Braggwinkel aufgetragen.

risationsreinheiten von  $10^{-10}$  hat man in der Regel nicht genügend Photonen in der Auslöschung, um Intensitätsverluste von zwei Größenordnungen hinnehmen zu können. Die Divergenz mit Spalten zu reduzieren ist in diesem Fall nicht sinnvoll.

Alternativ kann man versuchen den Strahl mit Linsen zu kollimieren [100]. Im Röntgenbereich verwendet man dafür sogenannte *compound refractive lenses* (CRL's) aus Beryllium. Auch bei dieser Methode verliert man Intensität, da zum einen Strahlung vom Beryllium absorbiert wird<sup>4</sup> und zum anderen solche Linsen einen endlichen Durchmesser haben und somit oft nur ein Teil des Strahlquerschnitts genutzt werden kann. Je nach Bedarf und verwendeter Wellenlänge lassen sich an ID18 bis zu 85 kollimierende Berylliumlinsen in den Strahl fahren. Die Linsen haben einen Durchmesser von 2 mm und befinden sich in neun Magazinen, wobei jedes Magazin eins bis fünfundzwanzig Linsen enthält. Dadurch ist es möglich, unterschiedlich viele Linsen zu stapeln und die Anzahl an die benutzte Wellenlänge anzupassen. Bei einer Photonenenergie von 14,41 keV wurde erfolgreich demonstriert, dass die vertikale Divergenz mit CRL's von  $14 \mu\text{rad}$  auf  $1,7 \mu\text{rad}$  reduziert werden kann [101].

Eine dritte Möglichkeit die Divergenz zu verringern besteht in der Verwendung von asymmetrischen Reflexionen. Dabei wird der Röntgenstrahl an einem Kristall im Bragg-Fall gebeugt und die Divergenz  $\sigma$  ändert sich entsprechend der Gleichung  $\sigma_{\text{aus}} = \sigma_{\text{ein}}/|\gamma|$  mit dem Asymmetrieverhältnis  $\gamma = \gamma_h/\gamma_0 = -\sin(\theta_B - \alpha)/\sin(\theta_B + \alpha)$  und dem Asymmetriewinkel  $\alpha$ . Nachteil dieser Methode ist, dass der Strahlquerschnitt  $S$  im selben Maß mit dem Asymmetrieverhältnis  $\gamma$  anwächst, wie die Divergenz abnimmt. Nach dem Satz von Liouville gilt  $\sigma_{\text{ein}} \cdot S_{\text{ein}} = \sigma_{\text{aus}} \cdot S_{\text{aus}}$  [102]. Eine kleinere Divergenz hat somit immer einen größeren Strahldurchmesser zur Folge. Darüber hinaus ändert sich durch die Beugung der Strahlengang. Um wenigstens die Strahlrichtung beizubehalten, bietet

<sup>4</sup>1 mm Beryllium absorbiert bei 9,83 keV ca. 10% der einfallenden Intensität

es sich an, einen V-Channel-Cut (VCC) zu benutzen. Ähnlich wie bei einem richtigen Channel-Cut handelt es sich dabei um einen Kristall, in den ein Kanal gesägt wurde. In diesem wird der Röntgenstrahl zweimal an der selben Netzebene gebeugt, wodurch sich hinter dem VCC wieder ein Strahlversatz ergibt. Aufgrund eines V-förmigen Schnitts ist der Einfallswinkel zu den Kanalwänden auf jeder Seite des Grabens unterschiedlich, was zu einer Änderung der Winkeldivergenz und des Strahlquerschnitts führt. Auch die Verwendung eines VCC's ist entsprechend der Reflexionskurven und deren Überlappung mit einem Intensitätsverlust verbunden. Möchte man die horizontale Divergenz an einem Synchrotron mit einem VCC verringern, so ist zusätzlich die Polarisation der Undulatorstrahlung zu beachten. Um die einfallende Polarisation nicht zu unterdrücken und unnötig Intensität zu verlieren, sind für den VCC Beugungsreflexe mit Braggwinkeln möglichst weit weg von  $45^\circ$  zu wählen. In dieser Arbeit wurde die horizontale Divergenz mit dem in Abbildung 6.5(a) skizzierten V-Channel-Cut verringert. An der ersten Fläche des Kristalls wird der Strahl unter streifendem Einfall am Si(220)-Reflex bei einem Braggwinkel von  $19,16^\circ$  gebeugt. Der Asymmetriewinkel  $\alpha$  beträgt  $-10^\circ$  und der Asymmetrieparameter  $\gamma = -3,06$ . Die schwarze und rote Kurve in Abbildung 6.5(b) zeigen jeweils die eingangs- und ausgangsseitigen Rockingkurven dieser ersten Kristallreflexion. Bei der Planung des VCC's ist zu beachten, dass die Halbwertsbreite der eingangsseitigen Rockingkurve mindestens so groß sein sollte, wie die Divergenz der Quelle, um die gesamte Intensität des einfallenden Strahls zu akzeptieren. Dies ist mit einer Breite von  $5,86$  arcsec bzw.  $28 \mu\text{rad}$  gut gegeben. Nach dem Verlassen der ersten Kristallreflexion hat der Strahl eine Winkeldivergenz, die der roten Kurve gleicht. Diese wird jedoch nicht vollständig von dem darauf folgenden symmetrischen Si(220)-Reflex akzeptiert, was an der unvollständigen Überlappung der roten und grünen Rockingkurve zu erkennen ist. Das Produkt dieser beiden Kurven ist in blau dargestellt und gibt die ausgangsseitig Rockingkurve des gesamten VCC's wieder. Mit ihr kann der Intensitätsverlust aus den Integralen der roten und blauen Kurve auf ca. 30% abgeschätzt werden. Hinter dem VCC sollte die horizontale Divergenz, entsprechend dem Asymmetrieparameter der ersten Kristallreflexion dreimal kleiner und der Strahldurchmesser demzufolge dreimal größer sein als der von der Quelle kommende Strahl. Mit einem Spalt lässt sich bei Bedarf der Strahlquerschnitt wieder auf die gewünschte Größe reduzieren.

Aus den Erfahrungen der letzten Strahlzeit wurde die Beamline vor der ersten Polarisationsreinheitsmessung an der Tantal  $L_3$ -Kante bei  $9881 \text{ eV}$  kalibriert und auf die für Diamant theoretisch zu erwartende Photonenenergie von  $9832,5 \text{ eV}$  gestellt. Im Anschluss daran wurde der zweite Monochromatorkristall um  $0,001^\circ$  gegenüber dem ersten verstimmt. Dadurch wird die dritte Harmonische des Undulators um drei Größenordnungen unterdrückt, bei einem Intensitätsverlust von lediglich 20% in der Fundamentalen. Diese

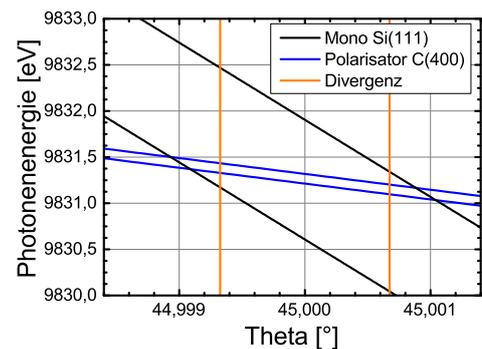


Abbildung 6.6: DuMond Diagramm des Monochromators und Polarisators, sowie die theoretisch zu erwartende vertikale Divergenz von ID18

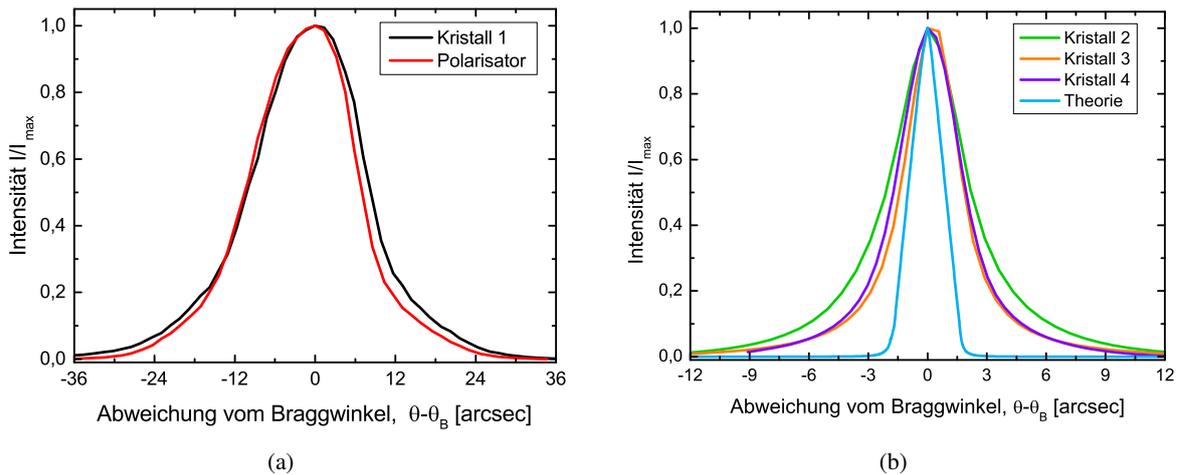


Abbildung 6.7: Gemessene Rockingkurven der Kristalle am Polarisator für den C(004)-Reflex bei 9,83 keV mit  $\theta_B = 45^\circ$ . a) Erster Kristall und kompletter Polarisator. b) Zweiter, dritter und vierter Kristall.

Vorgehensweise ist wichtig, um die Polarisationsreinheit nicht unnötig durch den Einfluss erhöhter Umweganregungen der höheren Harmonischen zu verschlechtern [103]. Für den Monochromator ist genau wie bei der letzten Messzeit eine theoretische Energiebandbreite von ungefähr 1,3 eV zu erwarten. Entsprechend dem in Abbildung 6.6 zu sehenden DuMond Diagramms akzeptiert der Polarisator nur einen Teil des angebotenen Divergenz- und Energiespektrums [79]. Er wirkt demzufolge ähnlich wie ein Bandpass. Im Fall perfekter Diamantkristalle beträgt seine Energiebandbreite lediglich 0,1 eV, weshalb man mit einem Intensitätsverlust von über einer Größenordnung am Polarisator rechnen muss. Aus den bisherigen Ergebnissen wissen wir, dass die verwendeten Diamanten nicht perfekt sind, weswegen eine experimentelle Überprüfung dieser theoretischen Überlegungen von großem Interesse war. Dafür mussten zunächst alle Kristalle am Polarisator mit der, im Channel-Cut verfahrenen, Diode auf ihr Rockingkurvenmaximum justiert werden.

Abbildung 6.7 zeigt die dabei aufgenommenen Reflexionskurven. Der Übersichtlichkeit halber und um eine bessere Vergleichbarkeit zu gewährleisten, sind alle Kurven im Maximum auf eins normiert. Für den ersten Kristall, sowie den gesamten Polarisator ist die Rockingkurve mit ca. 17,7 arcsec (Abb. 6.7(a)) sehr breit, da man für diese Messung dispersiv ist und entsprechend einer (+n, -m)-Konfiguration überwiegend eine Faltung aus Quelldivergenz und Energiebandbreite des Monochromators misst. Abbildung 6.7(b) zeigt die Rockingkurven des zweiten, dritten und vierten Kristalls. Zum Vergleich ist zusätzlich die theoretische Doppelkristallkurve dargestellt. Genau genommen misst man für den dritten und vierten Kristall keine einfache Doppelkristallkurve, sondern eine Faltung aus einer Einzelkristallkurve mit einer quadrierten bzw. dreifach potenzierten Reflexionskurve. Bei Silizium führt das dazu, dass die Rockingkurven mit zunehmender Reflexanzahl immer schmäler werden. Da die theoretische Darwin-Prinskurve von Diamant, aufgrund geringer Absorption, nahezu kastenförmig ist, liegen diese Unterschiede bei linearer Darstellung innerhalb der Strichbreite. Eine wesentliche Änderung der theoretischen Kurvenform durch mehrmaliges Reflektieren ist erst bei

logarithmischer Achsenskalierung in den Ausläufern zu erkennen. Die berechnete Doppelkristallkurve hat eine Halbwertsbreite von  $2,0 \text{ arcsec}$  und ein Integral von  $8,7 \mu\text{rad}$ . Für den zweiten, dritten und vierten Kristall sind die Rockingkurven  $4,0 \text{ arcsec}$ ,  $3,5 \text{ arcsec}$  und  $3,9 \text{ arcsec}$  breit. Die auf eins normierten Integrale sind ca. zweieinhalb bis dreimal größer, als das berechnete. Das tatsächliche integrale Reflexionsvermögen in  $\mu\text{rad}$  konnte nicht für alle Kristalle bestimmt werden, da hierfür die Intensität vor und hinter dem Kristall mit ein und dem selben Detektor gemessen werden muss. Das war nur bei Kristall zwei und drei möglich. Für diese wurde mit der im Channel-Cut verfahrbaren Diode ein Integral von  $22,7 \mu\text{rad}$  und  $7,7 \mu\text{rad}$  bei einer Peakreflexion von  $75\%$  und  $35\%$  bestimmt. Diese Werte sind jedoch mit einem Fehlerbalken von mindesten  $30\%$  zu versehen, da zum einen die Diodenvorder- und Rückseite eine unterschiedliche Empfindlichkeit von ca.  $10\%$  aufweist und zum anderen die Platzverhältnisse im Quasi-Channel-Cut eine exakte Diodenpositionierung erschweren, wodurch die gemessenen Reflexionsvermögen im Peak verfälscht sein können.

Nachdem alle vier Kristalle des ersten Quasi-Channel-Cuts auf ihr Rockingkurvenmaximum justiert waren, wurde mit einer kalibrierten PIN-Diode vor und hinter dem Polarisator ein Photostrom von  $3,24 \text{ mA}$  und  $166 \mu\text{A}$  gemessen. Nach Berücksichtigung der Luftabsorption entspricht das ungefähr einer Transmission von  $8,8\%$ . Entsprechend der abgeschätzten Energiebandbreiten eines perfekten Si(111)-Monochromators und eines C(004)-Polarisators mit perfekten Diamantkristallen würde man eine Transmission von ca.  $7,7\%$  erwarten. Das die gemessene Transmission höher ist, mag zunächst verwundern, lässt sich aber mit den Störungen in den verwendeten Diamantkristallen erklären. Dadurch steigt das integrale Reflexionsvermögen an, was zu einer höheren Transmission führen kann.

Abbildung 6.8 zeigt den zeitlichen Verlauf des normierten Ionisationsstroms hinter dem Polarisator. Es sind vier Messkurven dargestellt. Diese wurden zu unterschiedlichen Tageszeiten aufgenommen, unmittelbar nachdem alle Kristalle auf ihr Rockingkurvenmaximum justiert waren. Wie zu sehen ist, fällt die Intensität hinter dem Polarisator innerhalb von einer Stunde um  $6$  bis  $16\%$  ab. Der Ionisationsstrom des einfallenden Strahls nimmt in der selben Zeit um lediglich  $2\%$  ab. Damit ist der Vierreflexions-QCC wesentlich instabiler als der Zweireflexions-QCC. Aufgrund der geringen Größe der verwendeten Diamanten bedeuten mehr Reflexionen automatisch mehr Kristalle und somit auch mehr Motoren und bewegliche Elemente, die sich mit der Zeit verstellen können. Um keine verfälschten Polarisationsreinheiten zu bestimmen, ist eine Normierung der am Analysator gemessenen Rockingkurven auf den einfallenden Strahl zwingend notwendig. Darüber hinaus ist es ratsam, die Kristalle am Polarisator alle ein bis zwei Stunden neu zu justieren. Für die Entwicklung eines QCC mit sechs Reflexionen sollte das bestehende Konzept in Hinblick auf maximale Stabilität überarbeitet werden.

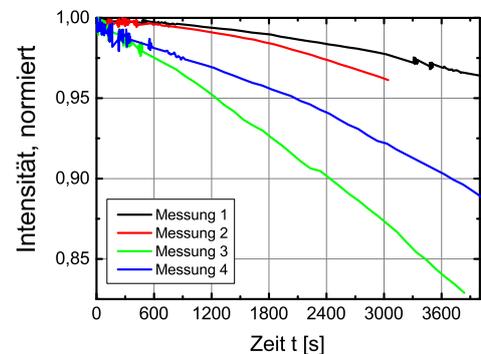


Abbildung 6.8: Stabilität des Polarisators

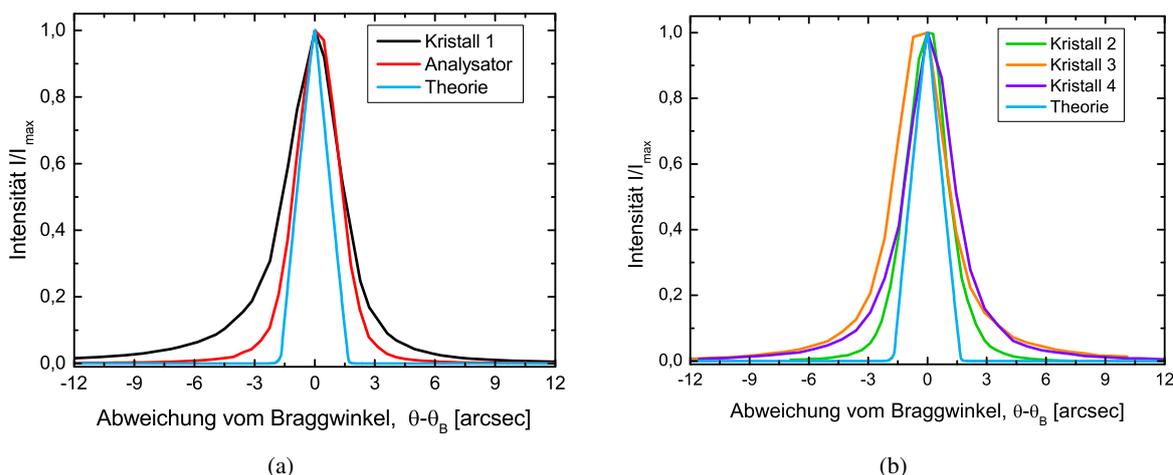


Abbildung 6.9: Rockingkurven der Kristalle am Analysator in Durchlassrichtung gemessen bei 9,83 keV am C(004)-Reflexes mit  $\theta_B = 45^\circ$ . a) Erster Kristall und kompletter Analysator. b) Zweiter, dritter und vierter Kristall.

Nach dem Polarisator wurden die Kristalle am Analysator justiert. Die entsprechenden Rockingkurven sind in Abbildung 6.9 zu sehen. Im Unterschied zum Polarisator misst man am Analysator bereits für den ersten Kristall eine sehr schmale Reflexionskurve, da man entsprechend einer (n, -n)-Konfiguration nicht-dispersiv ist. Die Kurvenmaxima wurden wieder auf eins normiert. Als theoretischer Vergleich ist diesmal die berechnete Durchlasskurve eines Polarimeters bestehend aus zwei perfekten Vierreflexions-Diamant-Channel-Cuts dargestellt (hellblaue Kurve). Ihr Integral beträgt  $8,0 \mu\text{rad}$  und ihre Halbwertsbreite  $1,8 \text{arcsec}$ . Die Rockingkurven der Kristalle eins bis vier sind  $2,4$  bis  $3,4 \text{arcsec}$  und die des gesamten Analysators  $2,6 \text{arcsec}$  breit. Die Integrale der auf eins normierten Rockingkurven sind ca.  $1,6$  bis  $2,3$  mal größer als theoretisch berechnet. Nachdem alle Kristalle auf ihr Rockingkurvenmaximum justiert waren, wurde mit der kalibrierten PIN-Diode ein Photostrom von  $3,9 \mu\text{A}$  hinter dem Analysator gemessen. Unter Berücksichtigung der Luftabsorption entspricht das einer Transmission von etwa  $10\%$ . Für perfekte Kristalle würde man eine Transmission von nahezu  $100\%$  erwarten, da die Energiebandbreite von Polarisator und Analysator exakt übereinstimmen und das Reflexionsvermögen im Peak in etwa  $1$  beträgt. Diese theoretischen Überlegungen werden auf die hier verwendeten, imperfekten Diamanten nicht zutreffen. Zum einen sind die Rockingkurven der Kristalle zwei bis vier am Analysator, mit Breiten von ca.  $2,4 \text{arcsec}$ , schmäler als am Polarisator, was zu einer geringeren Energiebandbreite führen könnte. Alternativ wäre eine Transmission von  $10\%$  auch mit einer durchschnittlichen Peakreflexion von  $56\%$  je Kristall erklärbar. Dieser Wert stimmt sehr gut mit den Ergebnissen aus den Dreikristallmessungen überein. Bedingt durch die schmalere Energiebandbreite des Polarisators im Vergleich zum Monochromator und die Reflexionsverluste der imperfekten Kristalle, ergibt sich für den gesamten Polarimeteraufbau ein Intensitätsverlust von etwas mehr als zwei Größenordnungen im Durchlass, wobei im Experiment noch eine weitere Größenordnung durch die verbleibenden Luftwege verloren ging.

Um den Einfluss der Divergenz auf die Polarisationsreinheit nachzuweisen, wurden mehrere Reinheitsmessungen durchgeführt. Tabelle 6.1 gibt einen Überblick über die verschiedenen Modifikationen, die am Versuchsaufbau vorgenommen wurden und zeigt die dabei erzielten Reinheiten. Zusätzlich ist die horizontale Divergenz  $\sigma_{hor}$  angegeben. Diese wurde aus den Breiten der in Abbildung 6.10(a) zu sehenden Analysatorrockingkurven bestimmt. In der Nähe der Auslöschung sind die Rockingkurven am Analysator überwiegend durch die horizontale Divergenz verbreitert. Die breiteste Kurve wurde für Konfiguration I und die schmalste für Konfiguration VI gemessen. Durch Entfaltung der entsprechenden Kurven ergab sich eine horizontale Divergenz  $\sigma_{hor}$  von  $15\ \mu\text{rad}$  bzw.  $6\ \mu\text{rad}$ . Die vertikale Divergenz konnte leider nicht gemessen werden, sollte aber laut Gleichung 6.1 um die  $10\ \mu\text{rad}$  betragen. Aus beiden Divergenzen können die, in der vierten Spalte angegebenen Reinheiten abgeschätzt werden. Für Konfiguration I, II, und VI stimmen gemessene und abgeschätzte Reinheit gut überein. Somit scheint eine vertikale Divergenz von  $10\ \mu\text{rad}$  für die Abschätzung gerechtfertigt. Gleichzeitig wird die Polarisationsreinheit dadurch auf  $1 \cdot 10^{-10}$  limitiert. Für bessere Werte ist es zwingend notwendig den Röntgenstrahl vertikal zu kollimieren. Den Messergebnissen zufolge war das weder mit drei, noch mit fünf CRL's möglich. Die höheren Reinheiten für Konfiguration III bis V deuten darauf hin, dass durch die verwendeten Linsen die vertikale Divergenz leicht vergrößert wurde. Die beste Polarisationsreinheit konnte mit Konfiguration VI bei der kleinsten horizontalen Divergenz erreicht werden.

Konfiguration	Divergenz $\sigma_{hor}$ (gemessen)	Reinheit $\delta$ (gemessen)	Reinheit $\delta$ (berechnet <sup>5</sup> )
I) Divergenz von ID18	$15\ \mu\text{rad}$	$(3,1 \pm 0,8) \cdot 10^{-10}$	$3,2 \cdot 10^{-10}$
II) Spalt S2 hor. $800\ \mu\text{m}$	$12\ \mu\text{rad}$	$(2,1 \pm 0,8) \cdot 10^{-10}$	$2,5 \cdot 10^{-10}$
III) S2 hor. $800\ \mu\text{m}$ & 3 CRL's	$12\ \mu\text{rad}$	$(3,8 \pm 1,4) \cdot 10^{-10}$	$2,5 \cdot 10^{-10}$
IV) S2 hor. $800\ \mu\text{m}$ & 5 CRL's	$12\ \mu\text{rad}$	$(3,2 \pm 1,1) \cdot 10^{-10}$	$2,5 \cdot 10^{-10}$
V) S2 hor. $400\ \mu\text{m}$ & 3 CRL's	$12\ \mu\text{rad}$	$(4,2 \pm 1,7) \cdot 10^{-10}$	$2,5 \cdot 10^{-10}$
VI) VCC & 5 CRL's	$6\ \mu\text{rad}$	$(1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-10}$	$1,3 \cdot 10^{-10}$

Tabelle 6.1: Polarisationsreinheit und horizontale Divergenz des Polarimeters in sechs unterschiedlichen Konfigurationen des Versuchsaufbaus.

Abbildung 6.10(b) zeigt die Reinheitsmessung vom Durchlass zur Auslöschung für Konfiguration II. Aufgrund der vielen Messpunkte und dem großen Winkelbereich, den der Analysator dabei zurücklegen muss, ist diese Messmethode sehr zeitaufwendig. Alternativ kann man die Polarisationsreinheit auch aus einem  $\eta$ -Scan nahe der Auslöschung bestimmen. Dafür wird dieser mit einer Parabelfunktion angepasst und die Tiefe des Minimus sowie der Anstieg ermittelt. Aus dem Quotient beider erhält man die Polarisationsreinheit (siehe Abschnitt 2.4). Die in Tabelle 6.1 angegebenen Reinheiten wurden genau auf diese Art und Weise aus den in Abbildung 6.11 zu sehenden  $\eta$ -Scans gewonnen.

<sup>5</sup>Entsprechend der Gleichung  $\delta = \sigma_{hor}^2 + \sigma_{ver}^2$  wurde die Reinheit aus der gemessenen horizontalen Divergenz  $\sigma_{hor}$  und einer vertikalen Divergenz  $\sigma_{ver} = 10\ \mu\text{rad}$  (siehe Gl. 6.1) abgeschätzt.

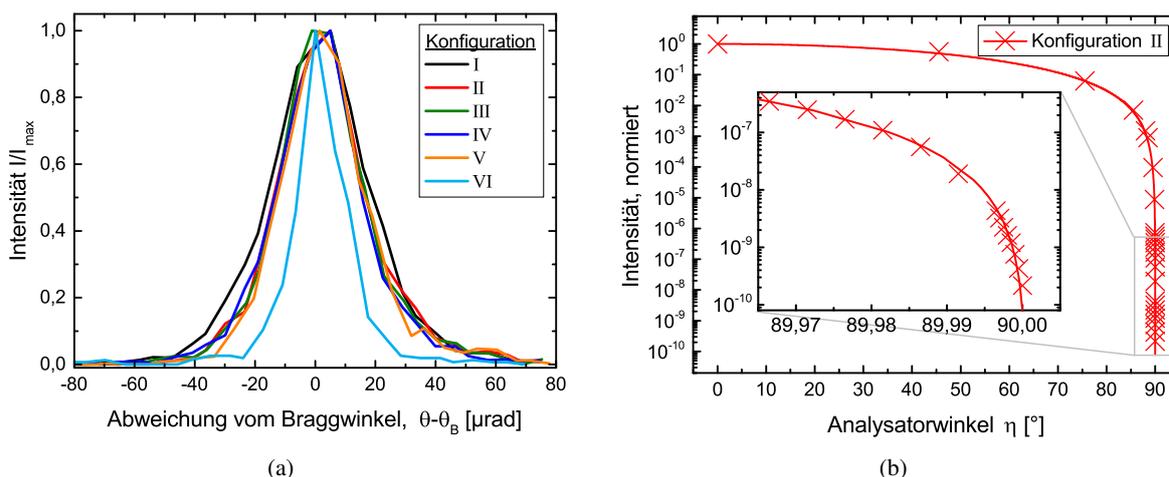


Abbildung 6.10: a) Rockingkurven am Analysator  $0,04^\circ$  entfernt von der Auslöschung aufgenommen. b) Polarisationsreinheit des Diamant-Vierreflexions-Quasi-Channel-Cut bei  $9,83\text{ keV}$  für Konfiguration II.

Auch ohne die angepasste Parabelfunktion können die gezeigten Scans hinsichtlich ihrer Polarisationsreinheit miteinander verglichen werden, indem man die Tiefe der Minima und die Höhe der Flügel betrachtet. Konfiguration I, III und IV haben ähnlich tiefe Minima, wohingegen die Flügel für I am höchsten und für III am niedrigsten sind. Somit ist von diesen drei Konfigurationen die Reinheit für I am besten und für III am schlechtesten, was mit den Werten in Tabelle 6.1 übereinstimmt. Auch die Minima von Konfiguration II und V sind ähnlich tief bei deutlich unterschiedlichen Flügeln, was zu der wesentlich besseren Reinheit von II passt.

Für Konfiguration VI wurde zusätzlich zum Eta-Scan die in Abbildung 6.12 gezeigten Rockingkurven im Durchlass und in der Auslöschung gemessen. Die Auslöschungskurve ist der Mittelwert aus zwei Messungen, die einmal mit 100 und einmal mit 360 Sekunden Integrationszeit aufgenommen wurden. Im Mittel konnten im Maximum 13 Impulse bei einem Untergrund von 3 Impulsen in 100 Sekunden gemessen werden. Die Durchlasskurve ist entsprechend 10 Größenordnungen stärker. Aus den Integralen beider Kurven ergibt sich eine Reinheit von  $(1,7 \pm 0,7) \cdot 10^{-10}$ . Innerhalb des Fehlers stimmt dieses Ergebnis mit der Reinheit überein, die aus dem Eta-Scan gewonnen wurde.

Die bisher in diesem Abschnitt aufgeführten Resultate sind in verschiedener Hinsicht bemerkenswert. Zum einen wurde gezeigt, dass ein Quasi-Channel-Cut aus vier einzelnen Diamantkristallen funktioniert und mit diesem eine bisher nicht erreichte Polarisationsreinheit von bis zu  $(1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-10}$  gemessen werden kann. Dadurch war es möglich, den bestehenden und von Berit Marx-Glowna mit Sechsexreflexions-Silizium-Channel-Cuts gemessenen Rekord von  $2,4 \cdot 10^{-10}$  bei einer Photonenenergie von  $6,457\text{ keV}$  einzustellen [11]. Das gelang jedoch nur aufgrund der Arbeiten von Kai Sven Schulze und dem Wissen, wie die Divergenz die Reinheit limitiert [104]. Zusätzlich wurde erstmalig experimentell nachgewiesen, dass die Polarisationsreinheit verbessert werden kann, indem man die horizontale Divergenz mit einem V-Channel-Cut verringert. Die gemessenen Werte stimmen sehr gut mit den abgeschätzten Reinheiten überein. Somit scheint man nicht durch die verwendeten Kristalle

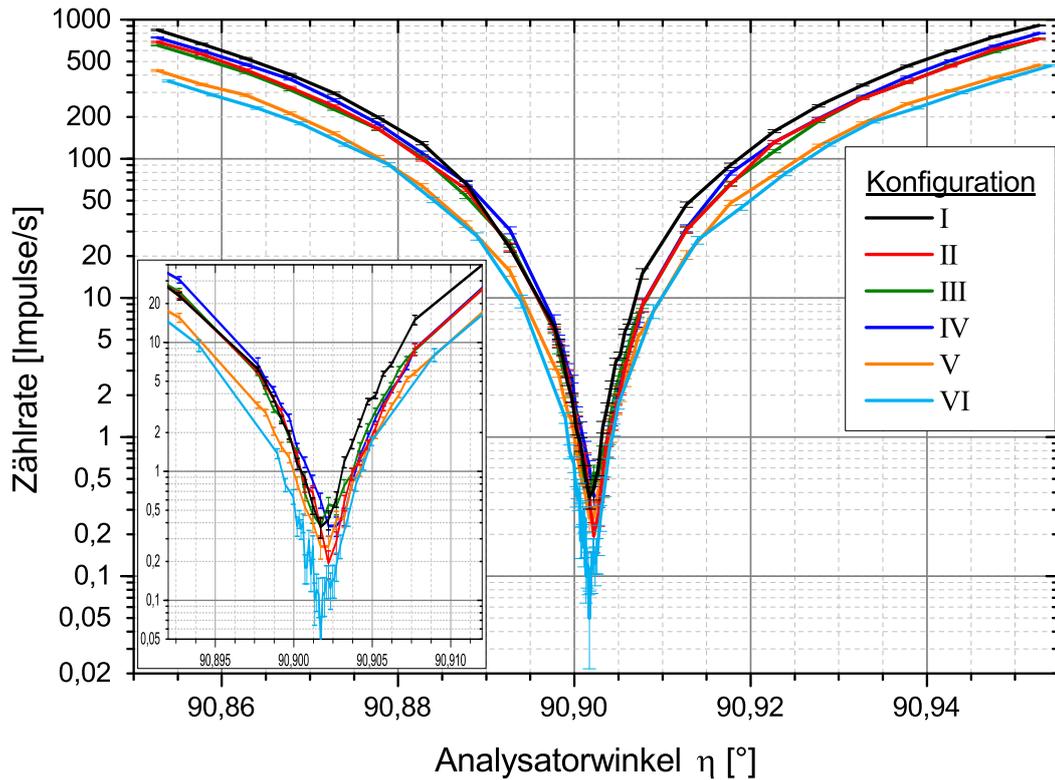


Abbildung 6.11:  $\eta$ -Scans für Konfiguration I bis VI in der Nähe der Auslöschung aufgenommen bei 9,83 keV.

oder die lediglich vier Reflexionen pro Channel-Cut limitiert zu sein. Viel wahrscheinlicher ist es, dass die vertikale Divergenz mit ca.  $10\ \mu\text{rad}$  zu groß war. An Synchrotrons der vierten Generation oder Röntgenlasern mit geringeren Divergenzen sollte es daher möglich sein, noch höhere Polarisationsreinheiten mit Diamant-Quasi-Channel-Cuts zu erreichen. Messzeit an diesen Einrichtungen zu bekommen ist schwierig, selbst wenn es darum geht Röntgenoptiken für den Nachweis der Vakuumdoppelbrechung zu testen und Polarisationsreinheiten von  $10^{-11}$  zu erreichen. Umso wichtiger ist es, neue Anwendungen für die entwickelten Röntgenpolarisatoren zu finden. Diamant könnte auch hierbei eine Rolle spielen, da die wesentlich kleinere Gitterkonstante von  $a = 3,567\ \text{\AA}$  im Vergleich zu Silizium mit  $a = 5,431\ \text{\AA}$  hochpräzise Röntgenpolarimetrie bei anderen und insbesondere kürzeren Wellenlängen ermöglicht. Auf einige potentiell interessante Anwendungen, sowie erste Experimente an der  $L_3$ -Kante von Tantal, wird im nächste Abschnitt eingegangen.

### 6.3 Anwendung der Vierkristall-Quasi-Channel-Cuts

Die im vorhergehenden Kapitel beschriebenen Messungen fanden bei einer Photonenenergie von 9,83 keV statt. Für diese liegt der Braggwinkel des symmetrisch zu Oberfläche orientierten C(004)-Reflexes genau bei  $\theta_B = 45^\circ$ . Je weiter man sich von 9,83 keV entfernt, umso stärker weicht der Braggwinkel von  $45^\circ$  ab und desto schlechter wird die Polarisationsreinheit. Um möglichst

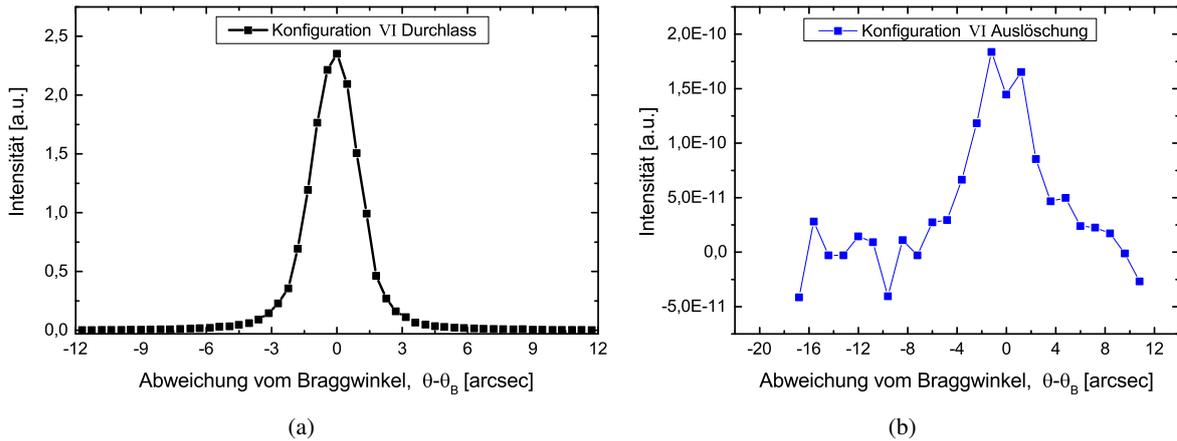


Abbildung 6.12: a) Durchlasskurve und b) Auslöschungskurve für Konfiguration VI

schwache Polarisierungseffekte untersuchen zu können, empfiehlt es sich, mit den entwickelten QCC's möglichst nah bei einer Photonenenergie von 9,83 keV zu arbeiten. Ist das nicht möglich, kann man auch versuchen andere Reflexe zu nutzen. Für diese ergeben sich unterschiedliche Netzebenenabstände, die die Bragg-Bedingung bei anderen Wellenlängen mit einem Braggwinkel von  $\theta_B = 45^\circ$  erfüllen. Die meisten dieser Reflexe liegen asymmetrisch im Kristall, wodurch sich der Ein- und Ausfallswinkel des Röntgenstrahls zur Kristalloberfläche verändert.

Aufgrund der Geometrie des QCC's und den festen Abständen der Diamanten zueinander, ist die Verwendung von asymmetrischen Reflexen nur sehr eingeschränkt möglich. Die symmetrischen Reflexe C(004), C(008) und C(0012) sind daher für den bestehenden Vierreflexions-QCC gegenüber allen anderen zu bevorzugen. Für sie ergibt sich bei einer Photonenenergie von 9,83 keV, 19,66 keV und 29,49 keV ein Braggwinkel von  $\theta_B = 45^\circ$ . Somit sind Anwendungen interessant, die in der Nähe dieser Photonenenergien durchgeführt werden können. Dazu zählen zum einen Experimente, für die der genaue Wert der verwendeten Wellenlänge eine untergeordnete Rolle spielt, wie z.B. der Nachweis der Vakuumdoppelbrechung oder die Untersuchung der Faradayrotation in dichten Plasmen [105, 106].

In der Einleitung wurde bereits die resonante Kernstreuung angesprochen. Bei ihr wird die Photonenenergie vom Kernübergang des zu untersuchenden Mößbauerisotopes vorgegeben. Mit den entwickelten Diamant QCC's wären prinzipiell Experimente an den Übergängen des  $^{187}\text{Os}$ -Isotop bei 9,78 keV mit einer Lebensdauer von  $\tau = 3,06\text{ ns}$  [107], sowie am  $^{40}\text{K}$ -Isotop bei 29,83 keV mit  $\tau = 4,13\text{ ns}$  [108, 109] denkbar. Aufgrund der zunehmenden Zahl an Reflexen und Umweg-

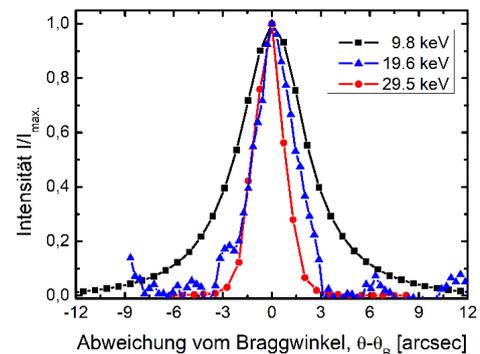


Abbildung 6.13: Gemessene Rockingkurven des C(004)-, C(008)- und C(0012)-Reflexes bei den angegebenen Photonenenergien.

anregungen, sowie den immer schmäler werdenden Rockingkurven, wird Röntgenpolarimetrie bei höheren Photonenenergien immer schwieriger. Gleichzeitig könnten die Vorteile von Diamant, wie die geringere Gitterkonstante und die reduzierte Intensität von Umweganregungen, hier erst richtig zu Geltung kommen. In dieser Arbeit wurden Kristalle verwendet, für die auch bei 19,6 keV und 29,5 keV Rockingkurvenbreiten von über einer Bogensekunde gemessen werden konnten (siehe Abbildung 6.13). Für perfekte Diamantkristalle wären diese Kurven 0,3 arcsec bzw. 0,05 arcsec breit. Einen Vierreflexions-QCC mit so schmalen Rockingkurven stabil zu betreiben, ist mit einem sehr hohen technischen Aufwand verbunden. Ganz anders ist das für die verwendeten CVD Diamanten, die breitere Reflexionskurven limitiert durch die Kristallperfektion aufweisen (siehe Abb.: 6.13). Der Vierreflexions-QCC wurde bereits an einer Laborquelle bei 19,6 keV getestet und funktionierte ähnlich stabil wie bei der zuvor beschriebenen Messzeit. Somit wären auch Experimente bei höheren Photonenenergien ohne technischen Mehraufwand denkbar.

Ebenfalls für die Röntgenpolarimetrie von großem Interesse ist die Erforschung von Doppelbrechung, optischer Aktivität oder Dichroismus in der Nähe von elektronischen Übergängen. Insbesondere im Bereich der Magnetooptik sind aus der Literatur zahlreiche Experimente und Effekte bekannt, die sich auf die Polarisation auswirken und von einer resonanten Erhöhung in der Nähe von Absorptionskanten Gebrauch machen, wie zum Beispiel:

- zirkularer magnetischer Röntgendichroismus (engl: *x-ray magnetic circular dichroism*, kurz: XMCD) [110]
- linearer magnetischer Röntgendichroismus (engl: *x-ray magnetic linear dichroism*, kurz: XMLD) [111]
- Faraday-Effekt [112, 113]
- magnetooptischer Kerr-Effekt [114]
- Voigt-Effekt [115]

Auch an nichtmagnetischen Materialien konnte linearer und zirkularer Dichroismus in der Nähe von Absorptionskanten beobachtet werden [116, 117]. Von einem Dichroismus ist immer dann die Rede, wenn die Absorption von der einfallenden Polarisationsrichtung abhängig ist, was z.B. aufgrund der Orbitalausrichtung und dadurch bedingte polarisationsabhängige Dipol- und Multipolübergänge der Fall sein kann. Das Resultat ist eine Polarisationsdrehung oder Elliptizität, die mit einem Röntgenpolarimeter gemessen werden kann. Untersuchungen an Absorptionskanten sind nicht nur aufgrund resonant verstärkter Effekte und elementspezifischer Selektion interessant. An den Kanten ändert sich vor allem der Imaginärteil des Brechungsindex. Da Real- und Imaginärteil durch die Kramers-Kroning Relation miteinander verknüpft sind, ist an den Kanten auch eine Änderung des Realteils zu vermuten. So war es zum Beispiel 2001 möglich, Doppelbrechung in der Nähe der Br K-Kante nachzuweisen [118].

Mit einem Braggwinkel von  $\theta_B = 44,71^\circ$  eignet sich der C(400)-Reflex noch am ehesten für Untersuchungen an der Tantal  $L_3$ -Kante. Aufgrund der schwachen Absorption der  $\pi$ -polarisierten Strahlung im Diamant liegt die zu erwartende Polarisationsreinheit für einen Vierreflexions-QCC aus perfekten Diamantkristallen bei lediglich  $4 \cdot 10^{-4}$ . Durch ein geringfügiges Verstimmen der Kristalle von weni-

ger als einer Bogensekunde ist es theoretisch möglich, ohne große Intensitätsverluste eine Reinheiten von  $10^{-8}$  zu erreichen [7]. Ein experimenteller Nachweis dessen wäre ein beeindruckendes Ergebnis, wodurch sich mit Quasi-Channel-Cuts neue Anwendungen für die Röntgenpolarimetrie ergeben würden.

Tantal wird für Kondensatoren, hochbrechende optischen Schichten aber auch in Form von Lithiumtantalat ( $\text{LiTaO}_3$ ) für verschiedene elektronische Bauelemente verwendet. Lithiumtantalat ist, genau wie das ähnliche und häufig in der nichtlinearen Optik eingesetzte Lithiumniobat ( $\text{LiNbO}_3$ ), ein Material mit außergewöhnlich vielfältigen und gezielt beeinflussbaren Eigenschaften. Beide Materialien haben die gleiche Kristallstruktur und sind als Kristalle ohne Inversionszentrum linear elektrooptisch, piezoelektrisch und pyroelektrisch. Dadurch können sie für diverse Anwendungen eingesetzt werden wie z.B. elektrooptische Schalter (Pockels-Zellen) [119], piezoelektrische Wandler (Ultraschallgeräte, Durchflussmesser) [120] oder pyroelektrische Sensoren (Infrarotsensoren, Bewegungsmelder) [121]. Des Weiteren lassen sich in den ionischen  $\text{LiTaO}_3$ -Kristallen sogenannte Phononen-Polaritonen<sup>6</sup> mit Frequenzen im Terahertzbereich erzeugen. Somit ist das Material ein geeigneter Kandidat für den Frequenzbereich zwischen Elektronik und Photonik (100 GHz und 10 THz), in dem bisher nur begrenzte Möglichkeiten zur Signalerzeugung, -steuerung, -führung und -verarbeitung bestehen [123–125].

In der Laserphysik werden  $\text{LiTaO}_3$  und  $\text{LiNbO}_3$  als longitudinale Pockels-Zellen zum schalten oder selektieren von Laserpulsen verwendet. Dafür werden die Kristalle wie eine veränderliche Phasenplatte zwischen zwei gekreuzte Polarisatoren gebracht. Legt man ein elektrisches Feld an den Kristall an, wird dieser doppelbrechend (Pockels-Effekt). Die induzierte Doppelbrechung ist proportional zum angelegten elektrischen Feld und zu Suszeptibilität zweiter Ordnung  $\chi^{(2)}$ , die bei Wellenlängen von mehreren hundert Nanometer im Bereich von  $10^{-12}$  m/V liegt [126]. Durch Anlegen einer Spannung von einigen Kilovolt an den Kristall, wirkt dieser wie ein  $\lambda/2$ -Plättchen und kann die Polarisationsrichtung einer linear polarisierten Welle um  $90^\circ$  drehen.

Im Röntgenbereich ist es immer noch eine ungelöste Herausforderung, Röntgenpulse mit Phasenplatten und Röntgenpolarimetern zu schalten und zu verkürzen, was nicht zuletzt daran liegt, dass  $\chi^{(2)}$  mit  $\lambda^4$  skaliert und somit bei Wellenlängen von  $\lambda = 1 \text{ \AA}$  auf ca.  $10^{-23}$  m/V abgeschätzt werden kann [126]. Dementsprechend klein ist die mit einem elektrischen Feld induzierte Doppelbrechung. Ähnlich wie in der Magnetooptik könnte der Effekt in der Nähe von Absorptionskanten stärker sein. Zudem verfügt das Röntgenpolarimeter, mit einer Polarisationsreinheit von bis zu  $10^{-10}$ , über eine unübertroffene Empfindlichkeit auf selbst kleinste Polarisationsänderungen. Gleichzeitig ist es möglich, den piezoelektrischen und den linearen elektrooptischen Effekt unabhängig voneinander zu untersuchen. Dafür misst man den elektrooptischen Effekt weit entfernt von Bragg-Reflexionen des  $\text{LiTaO}_3$ -Kristalls, aber in der Nähe der Tantal  $L_3$ -Kante. Somit könnte man zum Beispiel eine durch das elektrische Feld induzierte Anisotropie in den Tantal  $5d$ -Orbitalen nachweisen. Der piezoelektrische Effekt ließe sich hingegen in der Nähe von Bragg-Reflexen untersuchen, bei denen eine

<sup>6</sup>Phononen-Polaritonen sind bosonische Quasiteilchen, die durch eine Kopplung von Photonen mit Gitterschwingungen (Phononen) entstehen. Die vom Photon im Kristall erzeugte Polarisation verzerrt das Gitter und die elektromagnetische Welle wird von dieser Gitterverzerrung begleitet [122].

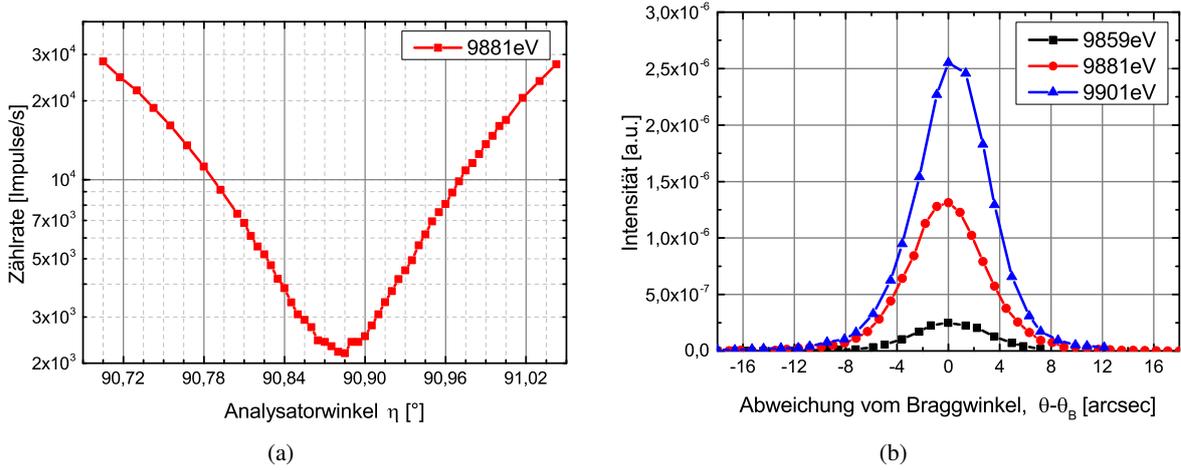


Abbildung 6.14: a) Eta-Scan zur Bestimmung einer Polarisationsreinheit von  $(7,5 \pm 3,0) \cdot 10^{-7}$  bei 9881 eV b) Analysatorrockingkurven in der Auslöschung bei drei verschiedenen Photonenenergien

durch mechanische Verspannungen verursachte Polarisationsänderung detektierbar wäre. Feldinduzierte Elektronenverschiebungen konnten bereits mittels Bragg-Reflexionen nachgewiesen werden [127]. In jedem Fall wird ein eingebrachter LiTaO<sub>3</sub>-Kristall zu einer Änderung der Transmission des Channel-Cut-Polarimeters in Abhängigkeit der angelegten Spannung führen.

Zur Untersuchung von Lithiumtantalat wurde der bereits in Abbildung 6.4 auf Seite 78 gezeigte Versuchsaufbau verwendet. Um den Photonfluss zu maximieren wurden der VCC und die CRL's aus dem Aufbau entfernt. Die zu erwartende Polarisationsreinheit ist ohnehin weit entfernt von dem divergenzlimitierten Wert von  $3 \cdot 10^{-10}$ . An der Tantal L<sub>3</sub>-Kante bei 9881 eV sowie 20 eV darüber und darunter wurde mittels Eta-Scan und Analysatorrockingkurven in der Auslöschung die Reinheit bestimmt. Abbildung 6.14(a) zeigt den Eta-Scan bei 9811 eV. Die Intensität im Minimum ist über drei Größenordnungen höher als bei den bisher in Abschnitt 6.2 gezeigten Scans. Die Anpassung mittels Parabelfunktion liefert eine Reinheit von  $(7,5 \pm 3,0) \cdot 10^{-7}$ . In Abbildung 6.14(b) sind die Rockingkurven in der Auslöschung für 9859 eV, 9881 eV und 9901 eV zu sehen. Für diese ergibt sich eine Polarisationsreinheit von  $(1,4 \pm 0,6) \cdot 10^{-7}$ ,  $(7,4 \pm 3,0) \cdot 10^{-7}$  und  $(1,4 \pm 0,6) \cdot 10^{-6}$ . Somit ändert sich die Polarisationsreinheit in einem Energiebereich von 42 eV um ca. eine Größenordnung, von ca.  $10^{-7}$  am Anfang des zu scannenden Spektrums auf  $10^{-6}$  am Ende des Spektrums.

Die Polarisationsreinheiten der verschiedenen Photonenenergien können mit einer theoretischen Abschätzung für den perfekten Kristall nach dynamischer Theorie und den idealen Mosaikkristall nach kinematischer Theorie verglichen werden (siehe Abb.: 6.15(a)). Dafür muss man das integrale Reflexionsvermögen  $R_{\pi/\sigma}^{Int.}$  der  $\pi$ - und  $\sigma$ -Polarisation eines Vierreflexions-Channel-Cuts für beide Theorien berechnen und das Verhältnis  $R_{\pi}^{Int.}/R_{\sigma}^{Int.}$  bilden. Im Fall der dynamischen Theorie erfolgt die Abschätzung, indem man die Rockingkurven für vier Reflexionen simuliert (siehe z.B. Abbildung 4.8 aus Seite 45), über  $\theta$  integriert und das Verhältnis  $R_{\pi}^{Int.}/R_{\sigma}^{Int.}$  berechnet. Die Abschätzung von  $R_{\pi}^{Int.}/R_{\sigma}^{Int.}$  eines Vierreflexions-Channel-Cuts bestehend aus idealen Mosaikkristallen wurde anders durchgeführt, da

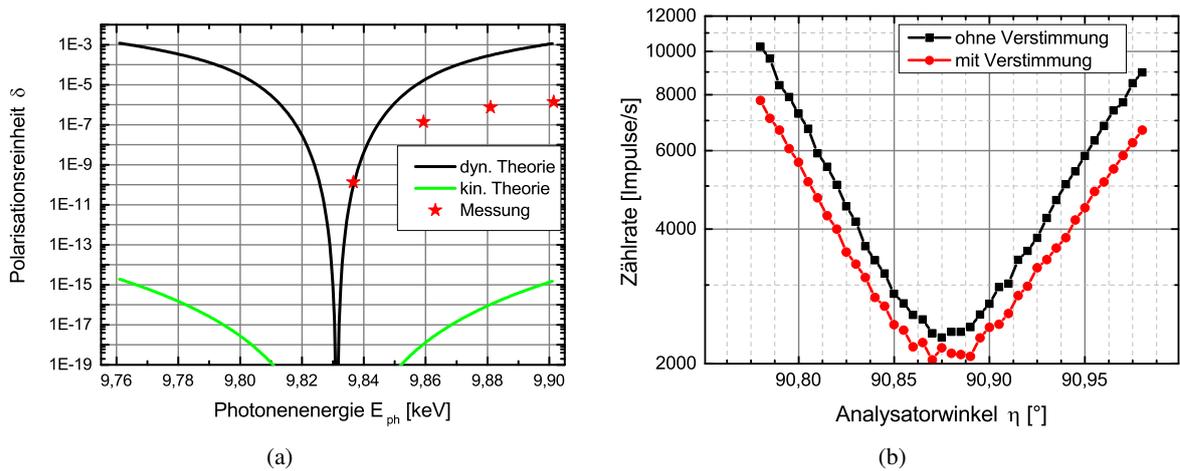


Abbildung 6.15: a) Polarisationsreinheit aufgetragen über der Photonenenergie; gemessen und nach dynamischer und kinematischer Theorie abgeschätzt b) Eta-Scan mit und ohne Verstimmung der Kristalle am Analysator aufgenommen bei 9884 eV.

die zu simulierenden Rockingkurven sehr unterschiedlich aussehen können und sich aus der kinematischen Theorie lediglich das integrale Reflexionsvermögen  $R_{\pi/\sigma}^{Int.}$  als Limit ergibt. Es ist bekannt, dass für eine Reflexion an einem idealen Mosaikkristall das Verhältnis  $R_{\pi}^{Int.}/R_{\sigma}^{Int.} \approx \cos(2\theta)^2$  ist. Für vier Reflexionen wurde entsprechend der üblicherweise durchgeführten Abschätzung (siehe Erläuterung zu Gleichung 4.3 auf Seite 44)  $(\cos(2\theta)^2)^N$  mit  $N = 4$  berechnet. Es ist anzunehmen, dass diese Abschätzung viel zu optimistisch ist, insbesondere da für Diamant die  $\pi$ -polarisierte Strahlung kaum im Kristall absorbiert wird und schon die Abschätzung der dynamischen Theorie mit  $\cos(2\theta)$  nach zwei Reflexionen viel zu gute Polarisationsreinheiten geliefert hat (siehe Tabelle: 4.1 auf Seite 45). Das erklärt, warum die grüne Kurve in Abbildung 6.15(a) bei deutlich niedrigeren Reinheiten verläuft. Sowohl die Abschätzung nach dynamischer, als auch nach kinematischer Theorie vernachlässigt den Einfluss von Umweganregungen und der Röntgenquelle (Divergenz, Energiebandbreite, höhere Harmonische) auf die Polarisationsreinheit und sind somit nur weit weg vom Divergenzlimit oder anderen reinheitslimitierenden Effekten anwendbar. Die in dieser Arbeit verwendeten Diamantkristalle sind keine Mosaikkristalle. Somit wurden auch nicht so hohe Polarisationsreinheiten erwartet, sondern Werte, die zwischen den zwei Extremen sehr nah an der dynamischen Theorie liegen. Wie die eingezeichneten Messpunkte in Abbildung 6.15(a) zeigen, wurden diese Erwartungen bestätigt. Die Polarisationsreinheit ist zwei bis drei Größenordnungen besser, als für einen perfekten Channel-Cut-Kristall. Dies kann überwiegend auf die Qualität der verwendeten Kristalle zurückgeführt werden. Das Ergebnis zeigt sehr eindrucksvoll, dass abseits von  $\theta_B = 45^\circ$  die Verwendung von leicht gestörten Kristallen für die Röntgenpolarimetrie von Vorteil sein kann. Daraus ergeben sich unter Umständen neue Anwendungsmöglichkeiten für gestörte Kristalle in der hochpräzisen Röntgenpolarimetrie.

Zusätzlich wurde getestet, ob die Polarisationsreinheit durch ein Verstimmen (engl: *detuning*) des Beugungswinkels der Kristalle verbessert werden kann. Dafür wurden die Diamanten zwei bis vier am Analysator auf 80% des Rockingkurvenmaximums justiert, was einer Winkelverschiebung von

ungefähr  $0,7\text{arcsec}$  entspricht. Ein Verstellen der Kristalle am Analysator sollte ausreichen, da die Röntgenstrahlung der Undulatorquelle bereits auf ca.  $10^{-4}$  vorpolarisiert ist [128]. Durch den Polarisator wird die  $\pi$ -Komponente um weitere vier, bzw. im Falle deformierter Diamanten entsprechend der gemessenen Reinheit um weitere sechs bis sieben Größenordnungen unterdrückt. Somit ist hinter dem Polarisator die  $\pi$ -Polarisation mit  $10^{-10}$  bis  $10^{-11}$  ausreichend gut abgeschwächt. Im Falle perfekter Diamanten würde eine Verstimmung von  $0,2\text{arcsec}$  ausreichen, um die Reinheit auf  $10^{-9}$  zu verbessern. Es ist anzunehmen, dass durch die Kristallstörungen auch die Rockingkurven für die  $\pi$ -Polarisation verbreitert sind und die Kristalle stärker verdreht werden müssen. Gleichzeitig verliert man dadurch mehr Intensität, da man auch das Rockingkurvenmaximum für die  $\sigma$ -Polarisation verlässt. Das Verstimmen ist somit immer ein Kompromiss zwischen verbesserter Polarisationsreinheit und Intensität. Im Experiment wurde mit den  $0,7\text{arcsec}$  verstellten Diamanten bei einem  $\eta$ -Winkel knapp oberhalb der Auslöschung ein Intensitätsverlust von 30% im Maximum gemessen. In Abbildung 6.15(b) sind die zwei  $\eta$ -Scans zu sehen, mit denen die Polarisationsreinheit, einmal mit optimierten und einmal mit verstimmten Kristallen, bei  $9884\text{eV}$  ermittelt wurde. Mit  $(1,0 \pm 0,4) \cdot 10^{-6}$  und  $(1,3 \pm 0,5) \cdot 10^{-6}$  ergibt sich für beide Scans im Rahmen des Messfehlers die gleiche Polarisationsreinheit. Anders als bei Hart's verstimmbaren Channel-Cut [6] führt ein Verdrehen der Kristalle gegeneinander zu keiner Verbesserung. Das kann zum einen an der schon sehr guten Reinheit von  $(1,0 \pm 0,4) \cdot 10^{-6}$  liegen. Der Channel-Cut von Hart erzielte lediglich eine Polarisationsreinheit von  $10^{-4}$ . Zum anderen könnte auch die Kristallqualität und die breiteren Rockingkurven der  $\pi$ -Polarisation eine Ursache dafür sein. Ein Verstimmen der Kristalle um  $0,7\text{arcsec}$  reicht dann evtl. nicht aus, um signifikant bessere Polarisationsreinheiten zu erreichen. Die Kristalle stärker vom Rockingkurvenmaximum weg zu drehen wurde nicht ausprobiert, da der wesentlich höhere Intensitätsverlust die verbesserte Reinheit nicht rechtfertigt. Für alle nachfolgenden Messungen wurde die Verstimmung wieder rückgängig gemacht.

Insgesamt wurden zwei dünne Lithiumtantalatkristalle, mit senkrecht zur c-Achse ( $\langle 001 \rangle$ -Richtung) geschnittenen Oberflächen, im Polarimeter in Transmission untersucht. Der erste Kristall (Probe 5) war  $60\mu\text{m}$  dick und verfügte über Elektroden aus Leitsilber, die so aufgebracht waren, dass entlang der  $\langle 010 \rangle$ -Achse ein elektrisches Feld angelegt werden konnte. Sowohl die y- als auch die z-Achse von Lithiumtantalat sind piezoelektrisch. Abbildung 6.16 zeigt eine Skizze des Kristalls. Mithilfe eines parallel zum Röntgenstrahl ausgerichteten Justierlasers wurde die Kristalloberfläche senkrecht zum Strahl orientiert. Die einfallende Polarisation stand unter  $45^\circ$  zur  $\langle 010 \rangle$ -Achse.

Mit den zwei Ionisationskammern pico3 und pico4 (siehe Abb. 6.4 auf S. 78) konnte der Ionisationsstrom vor und hinter der Probe gemessen werden. Mit diesem Monitoring und durch ein synchrones Verfahren der Braggwinkel von Monochromator, Polarisator und Analysator war es möglich,

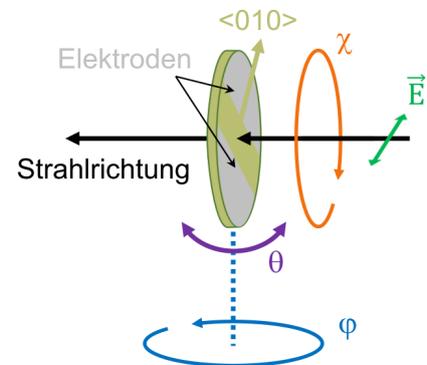


Abbildung 6.16: Orientierung des  $\text{LiTaO}_3$ -Kristalls (Probe 5) zum einfallenden Strahl

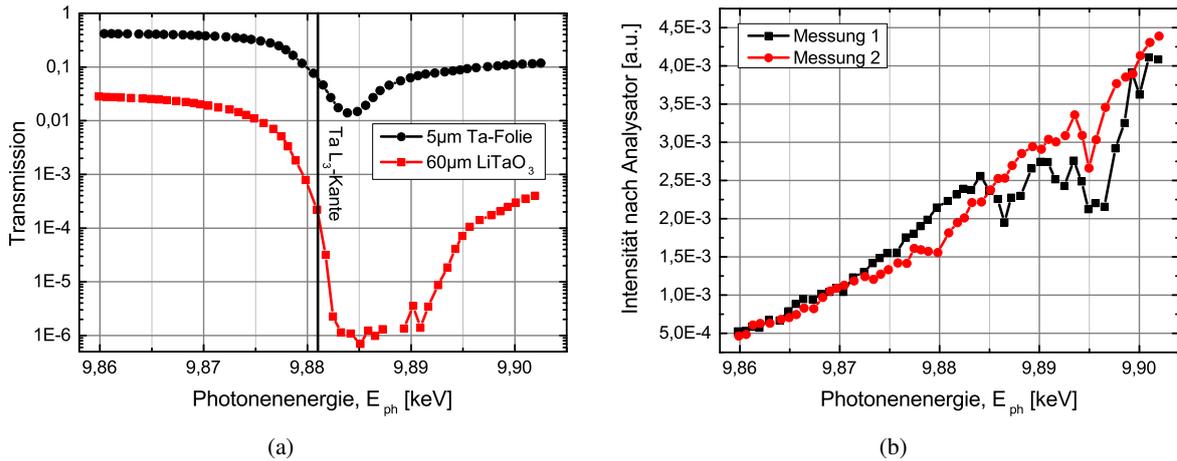


Abbildung 6.17: a) Transmissionsspektrum einer  $5\mu\text{m}$  dicken Tantalfolie und eines  $60\mu\text{m}$  dicken  $\text{LiTaO}_3$ -Kristalls um die Ta  $L_3$ -Kante. b) Scan der Tantal  $L_3$ -Kante ohne Probe mit Analysator in der Auslöschung.

Transmissionsspektren aufzunehmen. Abbildung 6.17(a) zeigt das Transmissionsspektrum der ersten  $\text{LiTaO}_3$ -Probe im Vergleich zu einer  $5\mu\text{m}$  dicken Tantalfolie. Wie zu sehen ist, lässt der Kristall bereits im vorderen Teil des Spektrums bei  $9,86\text{keV}$  nur noch  $3\%$  der einfallenden Strahlung durch. Im Minimum zwischen  $9,884\text{keV}$  und  $9,891\text{keV}$  ist die Absorption bereits so hoch, dass das Signal im Rauschen der Ionisationskammer unter geht. Mit einer Dicke von  $60\mu\text{m}$  zählte der Kristall mit zu den dünnsten Proben, die für das Experiment zur Verfügung standen.

Zusätzlich zu den Transmissionsspektren wurde mit einer APD und dem Analysator in der Auslöschung die Intensität der  $\pi$ -Polarisation entlang der Absorptionskante gemessen, um eine evtl. induzierte Doppelbrechung zu untersuchen. Im Nachfolgenden werden mehrere dieser „Polarisationspektren“ gezeigt, für die das Signal der APD auf den Ionisationsstrom von  $\text{pico}3$  normiert und über der Photonenergie aufgetragen ist. Der Analysator befand sich bei allen aufgenommenen Spektren in der Auslöschung.

Abbildung 6.17(b) zeigt zwei Messungen ohne Probe. Aus dem Vergleich beider lässt sich bestimmen, wie stabil und reproduzierbar die Spektren aufgenommen werden können. Im Mittel weichen beide Messungen über den gesamten Energiebereich um weniger als  $20\%$  voneinander ab. Damit zählen die hier gezeigten Spektren zu den stabilsten und am besten reproduzierbaren, die je mit einem Quasi-Channel-Cut aufgenommen wurden. Gleichzeitig sind die Grenzen der Methode ersichtlich. Effekte mit einer Stärke von  $20\%$  oder weniger sollten durch mehrmaliges Wiederholen der Messung bestätigt werden. Insbesondere der Bereich zwischen  $9887\text{eV}$  und  $9899\text{eV}$  ist mit Abweichungen von  $30\%$  bis  $60\%$  wenig zuverlässig, was bei der Interpretation der Daten berücksichtigt werden muss. Der Intensitätsanstieg von  $5,0 \cdot 10^{-4}$  auf  $4,5 \cdot 10^{-3}$  über den gesamten Messbereich kommt dadurch zustande, dass die Polarisationsreinheit von der Photonenergie abhängig ist und sich im gezeigten Messbereich um ca. eine Größenordnung verschlechtert.

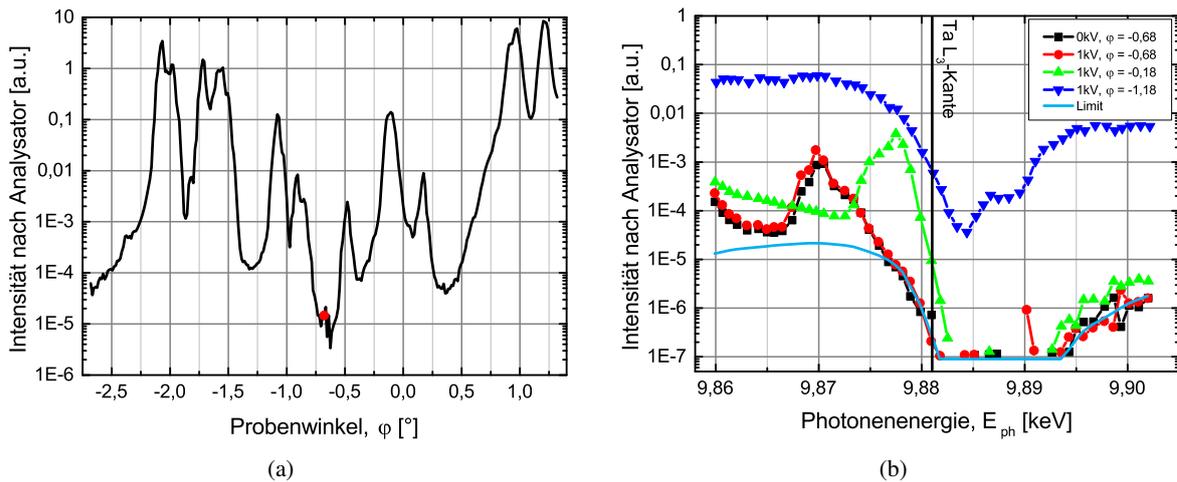


Abbildung 6.18: a)  $\varphi$ -Scan des  $60\mu\text{m}$  dicken  $\text{LiTaO}_3$ -Kristalls (Probe 5) bei  $9862\text{eV}$ . Durch Ausläufer von Bragg-Reflexionen in der Probe erhöht sich der Anteil an  $\pi$ -polarisierter Strahlung und somit das Signal hinter dem Analysator. b) Polarisationspektren der Probe 5 (Elektroden entlang der  $y$ -Achse) mit und ohne angelegter Spannung, sowie für unterschiedliche  $\varphi$ -Winkel.

Eine wesentliche Herausforderung bei der Untersuchung von kristallinen Proben im Röntgenpolarimeter sind Phasenänderungen der polarisierten Strahlung in der Nähe von Bragg-Reflexionen der Probe. Durch die Ausläufer der Bragg-Reflexionen erhöht sich der Anteil an  $\pi$ -polarisierter Strahlung und der Messaufbau wird unempfindlicher auf andere, die Polarisation beeinflussende Effekte. Um den Einfluss dieser Reflexe zu minimieren, muss die Probe entsprechend zum Strahl orientiert werden. Dafür bietet es sich an, die Probe in einem größeren Winkelbereich zu scannen und die Intensität hinter dem Analysator zu beobachten. Abbildung 6.18(a) zeigt eine solche Messung für Probe 5, aufgenommen bei einer Photonenergie von  $9862\text{eV}$ . Der Scan ist genau so normiert, wie bei der Messung ohne Probe (Abb.: 6.17(b)). Dort betrug die Intensität hinter dem Analysator  $5,0 \cdot 10^{-4}$  bei  $9,86\text{keV}$ . Von den Spektren in Abbildung 6.17(a) ist bekannt, dass der  $\text{LiTaO}_3$ -Kristall bei dieser Photonenergie  $3 \cdot 10^{-2}$  transmittiert. Somit ist der Einfluss von Bragg-Reflexionen weitestgehend minimiert, wenn die Intensität hinter dem Analysator kleiner als  $1,5 \cdot 10^{-5}$  ist. Gemäß dem  $\varphi$ -Scan ist das nur in dem Winkelbereich zwischen  $\varphi = -0,75^\circ$  bis  $\varphi = -0,50^\circ$  erfüllt. Dementsprechend wurde die Probe für die nachfolgenden Messungen bei  $\varphi = -0,68^\circ$  platziert (siehe roter Punkt in Abb.: 6.18(a)).

In Abbildung 6.18(b) sind mehrere Kantenspektren der Probe 5 zu sehen. Aufgetragen ist wieder die Intensität hinter dem Analysator normiert auf den Ionisationsstrom von  $\text{pico}3$ . Somit ergeben sich Spektren, die der Proben transmission sehr ähnlich sehen und gleichzeitig aufzeigen, bei welcher Photonenergie die Intensität der  $\pi$ -Polarisation ansteigt. Die durchgezogene hellblaue Linie stellt das Produkt aus Proben transmission (Abb.: 6.17(a)) und der Polarisationsreinheit (Spektrum ohne Probe Abb.: 6.17(b)) dar. Alle Punkte, die über dieser Linie liegen, sind Messwerte für die mehr  $\pi$ -polarisierte Strahlung vorhanden ist als ohne Probe. Die Spektren wurden mit einer Integrationszeit von 10 Sekunden aufgenommen. Eine Intensität von  $1 \cdot 10^{-7}$  entspricht einem Photon in 10 Sekunde

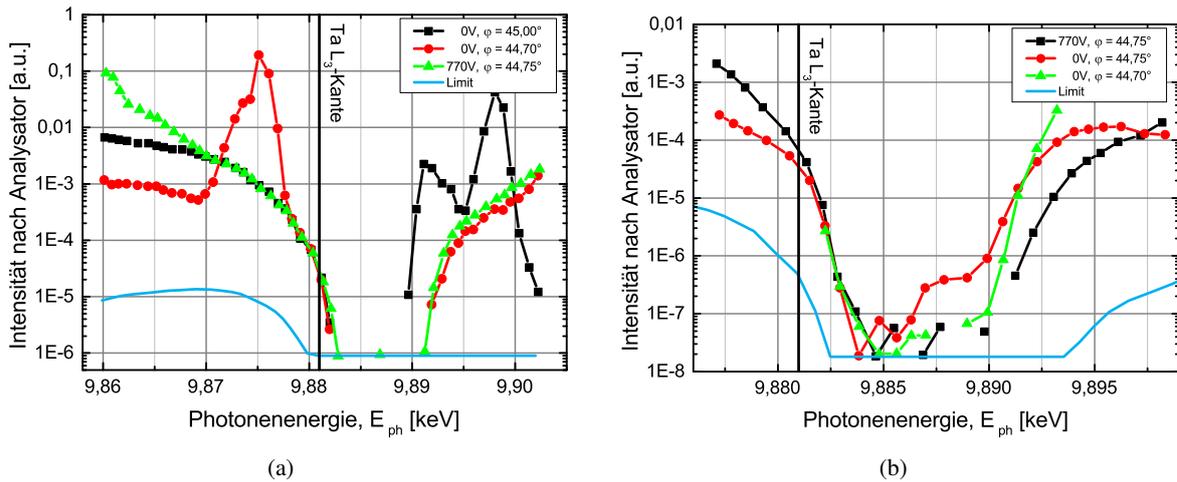


Abbildung 6.19: Polarisationspektren der Probe 10 (Elektroden entlang der  $c$ -Achse) für verschiedene  $\varphi$ -Winkel und Spannungen a) Integrationszeit eine Sekunde b) Integrationszeit 50 Sekunden.

hinter dem Analysator. Dementsprechend sind die Messungen nach unten hin auf  $1 \cdot 10^{-7}$  limitiert, was zwischen 9,880 und 9,895 keV der Fall ist. Die in schwarz und rot dargestellten Spektren wurden bei der selben Winkeleinstellung der Probe aufgenommen, einmal ohne und einmal mit Hochspannung von 1000 V. Wie zu sehen ist, sind beide Messungen nahezu identisch. Lediglich im Maximum bei 9,87 keV gibt es leichte Unterschiede. Die erhöhte Intensität beider Spektren in diesem Energiebereich ist auf eine Bragg-Reflexion der Probe zurückzuführen. Das lässt sich überprüfen, indem die Messung für einen anderen Winkel  $\varphi$  wiederholt wird (grüne Kurve). Ein Vergleich des roten und grünen Spektrums zeigt, dass sich die Bragg-Reflexion in Richtung höherer Photonenergien verschoben hat. Eine Drehung der Probe um den selben Betrag von  $\varphi$  in entgegengesetzte Richtung führte zu einer Anhebung des gesamten Spektrums (siehe blaue Messkurve). Vermutlich befindet sich die Probe bei diesem  $\varphi$  während des gesamten Energiescans im Ausläufer eines Kristallreflexes, was zu einer Intensitätserhöhung aufgrund einer Phasenänderung der polarisierten Strahlung führt. Die hier gezeigten Spektren zählen mit zu den am wenigsten durch Bragg-Reflexe beeinflussten. Darüber hinaus wurden zwischen 9877 und 9898 eV Messungen mit einer Integrationszeit von 100 Sekunden und Hochspannungen von  $-2$  bis  $+2$  kV durchgeführt. Auch bei diesen betrug die Intensität im Transmissionsminimum hinter dem Analysator lediglich ein Photon in 100 Sekunden und es konnten keine signifikanten Unterschiede beobachtet werden.

Als zweites wurde ein  $50 \mu\text{m}$  dicker  $\text{LiTaO}_3$ -Kristall (Probe 10) untersucht. Dieser hatte Elektroden auf der Vorder- und Rückseite, sodass eine Spannung entlang der  $c$ -Achse angelegt werden konnte. Unter Autokollimation wurde der Kristall mit dem Justierlaser zunächst senkrecht zum einfallenden Röntgenstrahl justiert. Anschließend wurden  $\varphi$  und  $\theta$  um  $45^\circ$  verdreht, damit sich der entsprechende Winkel zwischen einfallender Polarisation und  $c$ -Achse einstellt. Abbildung 6.19(a) zeigt drei Spektren der Probe 10 für verschiedene  $\varphi$  Winkel an der Absorptionskante. Die Messungen wurden mit einer Integrationszeit von einer Sekunde durchgeführt. Dementsprechend ist man im Transmis-

sionsminimum auf eine Intensität von  $1 \cdot 10^{-6}$  hinter dem Analysator limitiert. Die beiden Spektren in schwarz und rot zeigen rechts bzw. links starke Beiträge von Bragg-Reflexionen. In grün ist die Messung dargestellt, die am wenigsten durch Bragg-Reflexionen beeinflusst wurde. Auch hier ist im vorderen Teil des Spektrums eine deutliche Intensitätserhöhung zu beobachten. Ein Vergleich mit der nachträglich berechneten hellblauen Linie zeigt, dass für alle drei Spektren die Intensität der  $\pi$ -Polarisation wesentlich höher ist, als es durch die Reinheit des Polarimeters und die Proben- transmission zu erwarten wäre. Somit stehen vermutlich alle drei Spektren unter dem Einfluss von Bragg-Reflexionen der Probe.

Abbildung 6.19(b) zeigt drei Spektren, die mit einer Integrationszeit von 50 Sekunden aufgenommen wurden. Beim selben Einfallswinkel  $\varphi$  sind erstmalig deutliche Unterschiede in Abhängigkeit von der angelegten Spannung zu sehen (vgl. schwarze und rote Kurve). Insbesondere oberhalb von 9,855keV ist der Anteil an  $\pi$ -polarisierter Strahlung ohne angelegte Spannung eine Größenordnung höher als mit. Eine Drehung um  $\varphi = -0,05^\circ$  hebt diesen Effekt allerdings fast vollständig wieder auf (siehe grüne Kurve), so dass auch hier davon ausgegangen werden muss, dass die Unterschiede durch Ausläufer von Bragg-Reflexionen in der Probe zustande kommen. Die an den piezoelektrischen LiTaO<sub>3</sub>-Kristall angelegte Spannung führt zu einer mechanischen Verzerrung. Dadurch verschieben sich die reziproken Gitterpunkte und die Ausläufer der Bragg-Reflexe tragen auf unterschiedliche Weise zu den zwei Spektren in schwarz und rot bei, was zu einer Intensitätsab- bzw. zunahme hinter dem Analysator führen kann.

Zusammenfassend kann zu diesem Abschnitt gesagt werden, dass das Röntgenpolarimeter und die Diamant Quasi-Channel-Cuts ausgesprochen gut funktioniert haben und damit exzellente Ergebnisse gewonnen werden konnten. Noch nie zuvor wurden so glatte und reproduzierbare Spektren mit Quasi-Channel-Cuts, die zudem noch aus jeweils vier Einzelkristallen bestehen, aufgenommen. Das System ist somit sehr gut für Experimente geeignet, bei denen die Photonenenergie variiert werden muss. Die bei 9881 eV erreichte Polarisationsreinheit ist zwei Größenordnungen besser als nach dynamischer Theorie zu erwarten wäre. Auch das ist ein bemerkenswertes Ergebnis. Demzufolge können leicht gestörte Kristalle unter bestimmten Umständen für die Röntgenpolarimetrie von Vorteil sein. Diese Erkenntnis sollte sich auch auf andere Kristallmaterialien anwenden lassen, wodurch sich evtl. neue Möglichkeiten ergeben. Ein Verstimmen der Kristalle gegeneinander hat zu keiner Verbesserung der Reinheit geführt und wirft die Frage auf, ob diese Methode mit besseren Kristallen erfolgreich verlaufen wäre. Die Untersuchung von kristallinen Proben bleibt aufgrund von Bragg-Reflexionen und deren Ausläufern eine Herausforderung. Als einfache Faustformel kann gesagt werden, dass Kristalle mit kleinen Gitterparametern als Untersuchungsobjekt gegenüber denen mit großen vorzuziehen sind, da dann weniger Reflexe in der Ewaldkugel liegen. Ähnliches gilt für die verwendete Wellenlänge. Je kürzer die Wellenlänge, desto größer ist die Ewaldkugel und umso mehr Bragg-Reflexe sind möglich. Im besten Fall sind die zu untersuchenden Proben nicht kristallin.

## 7 Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war es, einen funktionsfähigen Diamant Quasi-Channel-Cut für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie zu entwickeln, mit dem nicht nur bessere Polarisationsreinheiten erzielt werden können als mit Silizium Channel-Cuts, sondern der auch noch bei einer höheren Photonenenergie arbeitet. Diese Ziele wurden erfüllt und darüber hinaus noch weitere Erkenntnisse gewonnen, die für die Entwicklung zukünftiger Röntgenpolarimeter von Bedeutung sein können.

Mit dem Diamant Zweireflexions-Quasi-Channel-Cut wurde bei 9,83 keV eine Polarisationsreinheit von  $(8,9 \pm 1,8) \cdot 10^{-10}$  gemessen. Die Reinheit ist damit mehr als doppelt so gut, wie die eines vergleichbaren Silizium Channel-Cuts bei 6,46 keV. Um die bisher beste Polarisationsreinheit von  $2,4 \cdot 10^{-10}$  zu übertreffen, wurden zwei Diamant Vierreflexions-Quasi-Channel-Cuts entwickelt. Mit ihnen konnte eine Polarisationsreinheit von  $(1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-10}$  gemessen werden, nachdem die Divergenz mit Beryllium-Linsen und einem V-Channel-Cut minimierte wurde. Die erzielte Reinheit ist somit die beste, die jemals mit Channel-Cut-Kristallen im Röntgenbereich gemessen wurde. Sie übertrifft die von äquivalenten Silizium Channel-Cuts bei 6,46 keV um eine Größenordnung und ist auch besser als die Polarisationsreinheit von Sechs- oder Achtreflexions-Channel-Cuts [20].

Zusätzlich wurde in der vorliegenden Arbeit gezeigt, dass die Polarisationsreinheit durch eine Verringerung der Divergenz verbessert werden kann. Die erzielte Reinheit von  $1,3 \cdot 10^{-10}$  ist sehr wahrscheinlich immer noch durch die Divergenz limitiert. Es wäre also denkbar, mit dem entwickelten Diamant Vierreflexions-Quasi-Channel-Cut an einer Röntgenquelle mit geringerer Divergenz eine noch bessere Polarisationsreinheit zu erreichen. Synchrotrons der vierten Generation, wie z.B. Max IV in Schweden oder der europäische XFEL in Hamburg verfügen über Strahllinien mit geringeren Divergenzen. Ein Test der Diamant Quasi-Channel-Cuts an diesen Einrichtungen steht noch aus. Gleichzeitig besteht die Hoffnung, dass sich auch mit Silizium Channel-Cuts noch bessere Polarisationsreinheiten bei entsprechend kleiner Divergenz erreichen lassen.

Die mit den Diamant Quasi-Channel-Cuts erzielten Reinheiten sind umso erstaunlicher, da die Qualität der verwendeten Kristalle wesentlich schlechter ist als man es z.B. von herkömmlichem Silizium gewohnt ist. Um die Auswirkungen der Kristallqualität auf die Performance der Röntgenoptik zu verstehen, wurden die verwendeten Diamanten ausführlich charakterisiert. Es wurden Topogramme aufgenommen, die belegen, dass eine große Zahl an Versetzungen mit Versetzungslinien parallel zur (001)-Wachstumsrichtung vorhanden ist. Diese eindimensionalen Gitterfehler konnten in allen Stereopaaren beobachtet werden. Somit sind sowohl Versetzungen mit Stufen- als auch mit Schraubencharakter vorhanden, die die CVD Diamanten entlang der drei Kristallachsen deformieren. Bei den Versetzungen mit Schraubencharakter handelt es sich wahrscheinlich um die, in der Literatur dokumentierten und als energetisch bevorzugt deklarierten,  $45^\circ$ -Mischversetzungen mit  $\frac{1}{2} \langle 011 \rangle$  Burgersvektor [86, 90, 91]. Das Ausmaß der dadurch eingebrachten Deformationen lässt sich am einfachsten als Spannungsdoppelbrechung unter gekreuzten Polarisatoren beobachten. Deutliche Unterschiede zu

einem HPHT Diamanten, der mehrere Millimeter große versetzungsfreie Gebiete aufweist, konnten beobachtet werden. Die Spannungsdoppelbrechung ist somit gut geeignet, um eine Vorauswahl der Kristalle zu treffen.

Mit einem hochauflösenden Dreikristallaufbau in (+n, +n, -m)-Konfiguration wurden ortsabhängig Rockingkurven gemessen, die bzgl. des integralen Reflexionsvermögens, der Halbwertsbreite, der Peakposition und dem maximalen Reflexionsvermögen im Peak ausgewertet wurden. Die Ergebnisse zeigen sehr eindrucksvoll, dass die Halbwertsbreiten und die integralen Reflexionsvermögen zwar nur wenig von der Theorie abweichen, dadurch aber merklich Intensität im Rockingkurvenmaximum verloren geht. Statt dem theoretisch zu erwartenden Reflexionsvermögen von 98 % wurde bei den meisten CVD Diamanten überwiegend 50 bis 70 % gemessen. In einem Channel-Cut, in dem der Strahl an mehreren CVD Diamanten gebeugt wird, ergeben sich so erhebliche Intensitätsverluste. Außerdem war zu sehen, dass die Versetzungen die Netzebenen entsprechend stark deformieren und dadurch eine Verschiebung des Rockingkurvenmaximums von mehreren zehn Bogensekunden zustande kommt. Für einen feststehenden Kristall und eine Quelle mit geringer Divergenz (von ca. 1 arcsec) wird die Bragg-Bedingung dann nur noch in einem Teil des ausgeleuchteten Kristallgebiets erfüllt und es geht zusätzlich Intensität verloren. Insbesondere wenn Polarisationsreinheiten von  $10^{-10}$  oder besser nachgewiesen werden sollen ist Intensität rar. Für einen potentiellen Sechsexreflexions-Quasi-Channel-Cut empfiehlt sich die Verwendung von nahezu deformationsfreien HPHT Diamanten.

Dass die Versetzungen für die Röntgenpolarimetrie auch von Vorteil sein können, hat sich bei der Anwendung der Quasi-Channel-Cuts am Lithiumtantalat gezeigt. Obwohl die gewünschten Effekte nicht gemessen werden konnten, wurde eine um zwei Größenordnungen bessere Polarisationsreinheit erzielt, als es nach dynamischer Theorie zu erwarten wäre. Aus dieser Erkenntnis ergeben sich mitunter interessante Anwendungsmöglichkeiten von leicht gestörten Kristallen in der hochpräzisen Röntgenpolarimetrie.

Eine Verbesserung der Polarisationsreinheit durch das Verstimmen der einzelnen Kristalle gegeneinander konnte nicht erreicht werden, da die  $\pi$ -Polarisations-Rockingkurven durch die Versetzungen vermutlich zu stark verbreitert sind. Dieses Experiment mit wesentlich besseren Diamantkristallen zu wiederholen wäre sehr interessant. Durch eine verbesserte Reinheit würden sich neue Anwendungsmöglichkeiten von Diamant Quasi-Channel-Cuts bei Braggwinkeln von  $\theta_B \neq 45^\circ$  ergeben.

Für den Nachweis der Vakuumdoppelbrechung am europäischen XFEL empfiehlt sich ebenfalls die Verwendung von besseren Diamantkristallen. Zum einen um Intensitätsverluste so gering wie möglich zu halten und zum anderen, da die Extinktionstiefe der bisher verwendeten Kristalle für die  $\sigma$ -Polarisation vermutlich um einiges größer ist, als es nach dynamischer Theorie für perfekte Kristalle zu erwarten wäre. Die Extinktionstiefe führt zu einer Verlängerung der Pulsdauer, die minimal sein sollte [129]. Mittlerweile gibt es in Russland einige Unternehmen die qualitativ hochwertige HPHT Diamanten anbieten, welche für eine nächste Version des entwickelten Diamant Quasi-Channel-Cuts durchaus geeignet sein könnten.

Letztendlich war es ein enormer Zugewinn für die hochpräzise Röntgenpolarimetrie und die gesamte Arbeitsgruppe, sich mit einem weiteren Kristallmaterial zu befassen und Channel-Cut-Kristalle aus Diamant zu realisieren, da die vorliegende Arbeit nachgewiesen hat:

- dass die Divergenz einen maßgeblichen Einfluss auf die Polarisationsreinheit hat und somit bei entsprechend geringer Divergenz Reinheiten von besser  $10^{-10}$  auch mit anderen Kristallmaterialien möglich sein könnten,
  - die Verwendung von schwach absorbierenden Kristallen für Channel-Cut-Polarimeter bei Bragg-Winkeln von  $\theta_B \neq 45^\circ$  eine Herausforderung darstellt,
- und
- dass Gitterfehler nicht zwangsläufig negative Auswirkungen auf die Polarisationsreinheit eines Channel-Cut-Röntgenpolarimeters haben müssen.

# Literaturverzeichnis

- [1] BARKLA, C. G.: Polarisation in Röntgen Rays. In: *Nature* 69 (1904), Nr. 1794, S. 463
- [2] FRIEDRICH, W. ; KNIPPING, P. ; LAUE, M.: Interferenzerscheinungen bei Roentgenstrahlen. In: *Annalen der Physik* 346 (1913), Nr. 10, S. 971–988
- [3] RAMASESHAN, S. ; RAMACHANDRAN, G. N.: Investigation of the degree of perfection of a crystal by means of polarized x-rays. In: *Proceedings of the Indian Academy of Sciences-Section A* Bd. 39 Springer, 1954, S. 20–30
- [4] CHANDRASEKARAN, K. S.: Study of perfection of crystals using polarized x-rays. In: *Acta Crystallographica* 12 (1959), Nr. 11, S. 916–922
- [5] HART, M.: X-ray polarization phenomena. In: *Philosophical Magazine B* 38 (1978), Nr. 1, S. 41–56
- [6] HART, M. ; RODRIGUES, A. R. D.: Tuneable polarizers for X-rays and neutrons. In: *Philosophical Magazine B* 40 (1979), Nr. 2, S. 149–157
- [7] HART, M. ; SIDMONS, D. P. ; AMEMIYA, Y. ; STOJANOFF, V.: Tunable x-ray polarimeters for synchrotron radiation sources. In: *Review of scientific instruments* 62 (1991), Nr. 11, S. 2540–2544
- [8] TOELLNER, T. S. ; ALP, E. E. ; STURHAHN, W. ; MOONEY, T. M. ; ZHANG, X ; ANDO, M ; YODA, Y. ; KIKUTA, S.: Polarizer/analyzer filter for nuclear resonant scattering of synchrotron radiation. In: *Applied physics letters* 67 (1995), Nr. 14, S. 1993–1995
- [9] HEINZL, T. ; LIESFELD, B. ; AMTHOR, K.-U. ; SCHWOERER, H. ; SAUERBREY, R. ; WIPF, A.: On the observation of vacuum birefringence. In: *Optics communications* 267 (2006), Nr. 2, S. 318–321
- [10] HEISENBERG, W. ; EULER, H.: Folgerungen aus der diracschen theorie des positrons. In: *Zeitschrift für Physik* 98 (1936), Nr. 11-12, S. 714–732
- [11] MARX, B. ; SCHULZE, K. S. ; USCHMANN, I. ; KÄMPFER, T. ; LÖTZSCH, R. ; WEHRHAN, O. ; WAGNER, W. ; DETLEFS, C. ; ROTH, T. ; HÄRTWIG, J. u. a.: High-precision x-ray polarimetry. In: *Physical review letters* 110 (2013), Nr. 25, S. 254801
- [12] SCHULZE, K. S.: *Methoden und Möglichkeiten der hochpräzisen Röntgenpolarimetrie*, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Dissertation, 2015

- [13] SHVYD'KO, Y. ; STOUPIN, S. ; BLANK, V. ; TERYTYEV, S.: Near-100% Bragg reflectivity of X-rays. In: *Nature Photonics* 5 (2011), Nr. 9, S. 539
- [14] SHVYD'KO, Y. V. ; STOUPIN, S. ; CUNSOLO, A. ; SAID, A. H. ; HUANG, X.: High-reflectivity high-resolution X-ray crystal optics with diamonds. In: *Nature Physics* 6 (2010), Nr. 3, S. 196
- [15] BERMAN, L. E. ; HASTINGS, J. B. ; SIDONS, D. P. ; KOIKE, M. ; STOJANOFF, V. ; HART, M.: Diamond crystal X-ray optics for high-power-density synchrotron radiation beams. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 329 (1993), Nr. 3, S. 555–563
- [16] FERNANDEZ, P. B. ; GRABER, T. ; LEE, W.-K. ; MILLS, D. M. ; ROGERS, C. S. ; ASSOUFID, L.: Test of a high-heat-load double-crystal diamond monochromator at the Advanced Photon Source. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 400 (1997), Nr. 2-3, S. 476–483
- [17] HASEGAWA, Y. ; UEJI, Y. ; OKITSU, K. ; ABLETT, J. M. ; SIDONS, D. P. ; AMEMIYA, Y.: Transmission-type X-ray linear polarizer with perfect crystals. In: *Journal of synchrotron radiation* 5 (1998), Nr. 3, S. 738–740
- [18] HASEGAWA, Y. ; UEJI, Y. ; OKITSU, K. ; ABLETT, J. M. ; SIDONS, D. P. ; AMEMIYA, Y.: Tunable X-ray polarization reflector with perfect crystals. In: *Acta Crystallographica Section A: Foundations of Crystallography* 55 (1999), Nr. 5, S. 955–962
- [19] AUTHIER, A.: *Dynamical theory of x-ray diffraction*. Bd. 11. New York : Oxford University Press, 2001
- [20] MARX-GLOWNA, B.: *Hochauflösende Röntgenpolarimetrie*, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Dissertation, 2017
- [21] JAMES, Reginald W.: *The Optical Principles of the Diffraction of X-rays*. London : G. Bell and Sons, 1962
- [22] DARWIN, C. G.: XXXIV. The theory of X-ray reflexion. In: *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 27 (1914), Nr. 158, S. 315–333
- [23] EWALD, P. P.: Zur Begründung der Kristalloptik. In: *Annalen der Physik* 359 (1917), Nr. 24, S. 557–597
- [24] ENSSLEN, M.: *Bestimmung röntgenographischer Reflexionseigenschaften gebogener Kristalle in Braggreflexion zur Plasmadiagnose*, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Diplomarbeit, 1990
- [25] TISCHLER, J. Z. ; BATTERMAN, B. W.: Determination of phase using multiple-beam effects. In: *Acta Crystallographica Section A* 42 (1986), Nr. 6, S. 510–514

- [26] SCHATZ, G. ; WEIDINGER, A.: Nukleare Festkörperphysik. In: *Nukleare Festkörperphysik. Series: Teubner Studienbücher Physik, ISBN: 978-3-519-23079-3. Vieweg+ Teubner Verlag (Wiesbaden), Edited by Günter Schatz and Alois Weidinger (1997)*
- [27] GILES, C. ; VETTIER, C. ; DE BERGEVIN, F. ; MALGRANGE, C. ; GRÜBEL, G. ; GROSSI, F.: X-ray polarimetry with phase plates. In: *Review of scientific instruments* 66 (1995), Nr. 2, S. 1518–1521
- [28] NÖHAMMER, B. ; HOSZOWSKA, J. ; FREUND, A. K. ; DAVID, C.: Diamond planar refractive lenses for third-and fourth-generation X-ray sources. In: *Journal of synchrotron radiation* 10 (2003), Nr. 2, S. 168–171
- [29] ZHU, D. ; FENG, Y. ; STOUPIN, S. ; TERYTYEV, S. A. ; LEMKE, H. T. ; FRITZ, D. M. ; CHOLLET, M. ; GLOWNIA, J. M. ; ALONSO-MORI, R. ; SIKORSKI, M. u. a.: Performance of a beam-multiplexing diamond crystal monochromator at the Linac Coherent Light Source. In: *Review of Scientific Instruments* 85 (2014), Nr. 6, S. 063106
- [30] GIARDINA, M. D. ; MERLINI, A.: Effect of Compton Scattering on the Borrmann Effect of X-Rays in Silicon Crystals. In: *Zeitschrift für Naturforschung A* 28 (1973), Nr. 8, S. 1360–1365
- [31] TAKAGI, S.: Dynamical theory of diffraction applicable to crystals with any kind of small distortion. In: *Acta Crystallographica* 15 (1962), Nr. 12, S. 1311–1312
- [32] TAUPIN, D.: Théorie dynamique de la diffraction des rayons X par les cristaux déformés. In: *Bulletin De La Societe Francaise Mineralogie Et De Cristallographie* 87 (1964), Nr. 4, S. 469
- [33] HÖFER, S.: *Zeitaufgelöste Röntgenbeugung an einkristallinem Indiumantimonid*, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Dissertation, 2014
- [34] ALP, E. E. ; STURHAHN, W. ; TOELLNER, T. S.: Polarizer–analyzer optics. In: *Hyperfine Interactions* 125 (2000), Nr. 1-4, S. 45–68
- [35] ALS-NIELSEN, J. ; MCMORROW, D.: *Elements of modern X-ray physics*. John Wiley & Sons, 2011
- [36] ESRF: *ESRF Highlights 2016*. ESRF, 2017
- [37] MARGARITONDO, G. ; RAFELSKI, J.: The relativistic foundations of synchrotron radiation. In: *Journal of synchrotron radiation* 24 (2017), Nr. 4, S. 898–901
- [38] EMMA, P. ; AKRE, R. ; ARTHUR, J. ; BIONTA, R. ; BOSTEDT, C. ; BOZEK, J. ; BRACHMANN, A. ; BUCKSBAUM, P. ; COFFEE, R. ; DECKER, F.-J. u. a.: First lasing and operation of an ångstrom-wavelength free-electron laser. In: *nature photonics* 4 (2010), Nr. 9, S. 641
- [39] AMANN, J. ; BERG, W. ; BLANK, V. ; DECKER, F.-J. ; DING, Y. ; EMMA, P. ; FENG, Y. ; FRISCH, J. ; FRITZ, D. ; HASTINGS, J. u. a.: Demonstration of self-seeding in a hard-X-ray free-electron laser. In: *Nature photonics* 6 (2012), Nr. 10, S. 693

- [40] KLEBER, W.: *Einführung in die Kristallographie*. 19., verb. Aufl. Berlin : Verl. Technik, 1974
- [41] HESS, P.: The mechanical properties of various chemical vapor deposition diamond structures compared to the ideal single crystal. In: *Journal of Applied Physics* 111 (2012), Nr. 5, S. 3
- [42] WANG, S. ; HSU, Y. ; PU, J. ; SUNG, J. C. ; HWA, L. G.: Determination of acoustic wave velocities and elastic properties for diamond and other hard materials. In: *Materials Chemistry and Physics* 85 (2004), Nr. 2-3, S. 432–437
- [43] VICTOR, A. C.: Heat capacity of diamond at high temperatures. In: *The Journal of Chemical Physics* 36 (1962), Nr. 7, S. 1903–1911
- [44] OLSON, J. R. ; POHL, R. O. ; VANDERSANDE, J. W. ; ZOLTAN, A. ; ANTHONY, T. R. ; BANHOLZER, W. F.: Thermal conductivity of diamond between 170 and 1200 K and the isotope effect. In: *Physical Review B* 47 (1993), Nr. 22, S. 14850
- [45] STOUPIN, S. ; SHVYD'KO, Y. V.: Ultraprecise studies of the thermal expansion coefficient of diamond using backscattering x-ray diffraction. In: *Phys. Rev. B* 83 (2011), Mar, S. 104102
- [46] KELLY, A. ; GROVES, G. W. ; KIDD, P.: *Crystallography and crystal defects*. John Wiley & Sons, 2000
- [47] LÖTZSCH, R.: *Bent crystal X-ray optics for the diagnosis and applications of laser-produced plasmas*, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Dissertation, 2012
- [48] ELDRIDGE, C. S. ; COMPSTON, W. ; WILLIAMS, I. S. ; HARRIS, J. W. ; BRISTOW, J. W.: Isotope evidence for the involvement of recycled sediments in diamond formation. In: *Nature* 353 (1991), Nr. 6345, S. 649
- [49] CARTIGNY, P.: Stable isotopes and the origin of diamond. In: *Elements* 1 (2005), Nr. 2, S. 79–84
- [50] BURNS, R. C. ; CHUMAKOV, A. I. ; CONNELL, S. H. ; DUBE, D. ; GODFRIED, H. P. ; HANSEN, J. O. ; HÄRTWIG, J. ; HOSZOWSKA, J. ; MASIELLO, F. ; MKHONZA, L. u. a.: HPHT growth and x-ray characterization of high-quality type IIa diamond. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* 21 (2009), Nr. 36, S. 364224
- [51] BREEDING, C. M. ; SHIGLEY, J. E.: The “type” classification system of diamonds and its importance in gemology. In: *Gems & Gemology* 45 (2009), Nr. 2, S. 96–111
- [52] FRITSCH, E. ; SCARRATT, K.: Natural-color nonconductive gray-to-blue diamonds. In: *Gems & Gemology* 28 (1992), Nr. 1, S. 35–42
- [53] SHIGLEY, J. E. ; FRITSCH, E. ; STOCKTON, C. M. ; KOIVULA, J. I. ; FRYER, C. W. ; KANE, R. E.: The gemological properties of the Sumitomo gem-quality synthetic yellow diamonds. In: *Gems & Gemology* 22 (1986), Nr. 4, S. 192–208

- [54] SMITH, E. ; SHIREY, S. ; RICHARDSON, S. ; NESTOLA, F. ; BULLOCK, E. ; WANG, J. ; WANG, W.: Blue boron-bearing diamonds from Earth's lower mantle. In: *Nature* 560 (2018), S. 84–87
- [55] LANG, A. R. ; KOWALSKI, G. ; MAKEPEACE, A. P. W. ; MOORE, M.: On long-range lattice perfection in natural type 1a diamond. In: *Philosophical Magazine A* 64 (1991), Nr. 3, S. 543–560
- [56] SUMIYA, H. ; SATOH, S.: High-pressure synthesis of high-purity diamond crystal. In: *Diamond and Related Materials* 5 (1996), Nr. 11, S. 1359–1365
- [57] SUMIYA, H. ; TAMASAKU, K.: Large defect-free synthetic type IIa diamond crystals synthesized via high pressure and high temperature. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 51 (2012), Nr. 9R, S. 090102
- [58] SUMIYA, H. ; TODA, N. ; SATOH, S.: Growth rate of high-quality large diamond crystals. In: *Journal of Crystal Growth* 237 (2002), S. 1281–1285
- [59] SCHWANDER, M. ; PARTES, K.: A review of diamond synthesis by CVD processes. In: *Diamond and related materials* 20 (2011), Nr. 9, S. 1287–1301
- [60] MARTINEAU, P. M. ; LAWSON, S. C. ; TAYLOR, A. J. ; QUINN, S. J. ; EVANS, D. J. F. ; CROWDER, M. J.: Identification of synthetic diamond grown using chemical vapor deposition (CVD). In: *Gems & Gemology* 40 (2004), Nr. 1, S. 2–25
- [61] GROTHJOHN, T. A. ; ASMUSSEN, J.: Microwave plasma-assisted diamond film deposition. In: *Diamond films handbook* (2002), S. 243–260
- [62] ASHFOLD, M. N. R. ; MAY, P. W. ; REGO, C. A. ; EVERITT, N. M.: Thin film diamond by chemical vapour deposition methods. In: *Chemical Society Reviews* 23 (1994), Nr. 1, S. 21–30
- [63] MOKUNO, Y. ; CHAYAHARA, A. ; YAMADA, H. ; TSUBOUCHI, N.: Improving purity and size of single-crystal diamond plates produced by high-rate CVD growth and lift-off process using ion implantation. In: *Diamond and Related Materials* 18 (2009), Nr. 10, S. 1258–1261
- [64] YAN, C. ; VOHRA, Y. K. ; MAO, H. ; HEMLEY, R. J.: Very high growth rate chemical vapor deposition of single-crystal diamond. In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 99 (2002), Nr. 20, S. 12523–12525
- [65] LIANG, Q. ; YAN, C. ; MENG, Y. ; LAI, J. ; KRASNICKI, S. ; MAO, H. ; HEMLEY, R. J.: Recent advances in high-growth rate single-crystal CVD diamond. In: *Diamond and Related Materials* 18 (2009), Nr. 5-8, S. 698–703
- [66] YAMADA, H. ; CHAYAHARA, A. ; UMEZAWA, H. ; TSUBOUCHI, N. ; MOKUNO, Y. ; SHIKATA, S.: Fabrication and fundamental characterizations of tiled clones of single-crystal diamond with 1-inch size. In: *Diamond and Related materials* 24 (2012), S. 29–33

- [67] SCHRECK, M. ; ASMUSSEN, J. ; SHIKATA, S. ; ARNAULT, J.-C. ; FUJIMORI, N.: Large-area high-quality single crystal diamond. In: *Mrs Bulletin* 39 (2014), Nr. 6, S. 504–510
- [68] PARIKH, N. R. ; HUNN, J. D. ; MCGUCKEN, E. ; SWANSON, M. L. ; WHITE, C. W. ; RUDDER, R. A. ; MALTA, D. P. ; POSTHILL, J. B. ; MARKUNAS, R. J.: Single-crystal diamond plate liftoff achieved by ion implantation and subsequent annealing. In: *Applied physics letters* 61 (1992), Nr. 26, S. 3124–3126
- [69] CHAPMAN, D. ; HASTINGS, J. ; MOULIN, H. ; SIDDON, D. P. ; GARRETT, R. F. ; NACHALIEL, E. ; DILMANIAN, F. A.: Measurement of rocking curve wings at high x-ray energies / Brookhaven National Lab. 1991. – Forschungsbericht
- [70] AGAMALIAN, M. ; WIGNALL, G. D. ; TRIOLO, R.: Optimization of a Bonse–Hart Ultra-Small-Angle Neutron Scattering Facility by Elimination of the Rocking-Curve Wings. In: *Journal of Applied Crystallography* 30 (1997), Nr. 3, S. 345–352
- [71] RECSILICON: *Glossary*. <http://www.recsilicon.com/technology/glossary/>, . . – zugegriffen am 07.08.2018
- [72] CORP., Zygo: *NewView<sup>TM</sup> 7000 Series Objective Chart*. [https://www.zygo.com/met/profilers/NewView\\_7000\\_Series\\_Objective\\_Chart.pdf](https://www.zygo.com/met/profilers/NewView_7000_Series_Objective_Chart.pdf), 2014. – zugegriffen am 16.11.2017
- [73] LANG, A. R.: Causes of birefringence in diamond. In: *Nature* 213 (1967), Nr. 5073, S. 248–251
- [74] HOWELL, D.: Strain-induced birefringence in natural diamond: a review. In: *European Journal of Mineralogy* 24 (2012), Nr. 4, S. 575–585
- [75] HARIHARAN, P.: The Sénarmont compensator: an early application of the geometric phase. (1993)
- [76] LÜDTKE, F.: *Lichtinduzierter Ladungstransport in undotierten Lithiumniobat-Kristallen*, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, Dissertation, 2012
- [77] BOWEN, D. K. ; TANNER, B. K.: *High resolution X-ray diffractometry and topography*. London : CRC press, 2005
- [78] KÖHLER, R.: High-resolution X-ray topography. In: *Applied Physics A: Materials Science & Processing* 58 (1994), Nr. 3, S. 149–157
- [79] DUMOND, J. W. M.: Theory of the use of more than two successive x-ray crystal reflections to obtain increased resolving power. In: *Physical Review* 52 (1937), Nr. 8, S. 872
- [80] RENNINGER, M.: Messungen zur Röntgenstrahl-Optik des Idealkristalls. I. Bestätigung der Darwin–Ewald–Prins–Kohler-Kurve. In: *Acta Crystallographica* 8 (1955), Nr. 10, S. 597–606

- [81] SCHULZE, K. S. ; MARX, B. ; USCHMANN, I. ; FÖRSTER, E. ; STÖHLKER, T. ; PAULUS, G. G.: Determination of the polarization state of x rays with the help of anomalous transmission. In: *Applied Physics Letters* 104 (2014), Nr. 15, S. 151110
- [82] STRAUBE, H.: *Optimierung von Röntgenoptiken für die Hochenergie-Elektronen-Spektromikroskopie*, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Diplomarbeit, 1982
- [83] GAILLOU, E. ; POST, J. E. ; ROSE, T. ; BUTLER, J. E.: Cathodoluminescence of natural, plastically deformed pink diamonds. In: *Microscopy and Microanalysis* 18 (2012), Nr. 6, S. 1292–1302
- [84] LIANG, Q. ; YAN, C. ; MENG, Y. ; LAI, J. ; KRASNICKI, S. ; MAO, H. ; HEMLEY, R. J.: Recent advances in high-growth rate single-crystal CVD diamond. In: *Diamond and Related Materials* 18 (2009), Nr. 5, S. 698–703
- [85] SAMLENSKI, R. ; HAUG, C. ; BRENN, R. ; WILD, C. ; LOCHER, R. ; KOIDL, P.: Incorporation of nitrogen in chemical vapor deposition diamond. In: *Applied physics letters* 67 (1995), Nr. 19, S. 2798–2800
- [86] FUJITA, N. ; BLUMENAU, A. T. ; JONES, R. ; ÖBERG, S. ; BRIDDON, P. R.: Theoretical studies on <100> dislocations in single crystal CVD diamond. In: *physica status solidi (a)* 203 (2006), Nr. 12, S. 3070–3075
- [87] PINTO, H. ; JONES, R.: Theory of the birefringence due to dislocations in single crystal CVD diamond. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* 21 (2009), Nr. 36, S. 364220
- [88] WANG, W. ; TALLAIRE, A. ; HALL, M. S. ; MOSES, T. M. ; ACHARD, J. ; SUSSMANN, R. S. ; GICQUEL, A.: Experimental CVD synthetic diamonds from LIMHP-CNRS, France. In: *Gems & Gemology* 41 (2005), Nr. 3, S. 234–244
- [89] FRIEL, I. ; CLEWES, S. L. ; DHILLON, H. K. ; PERKINS, N. ; TWITCHEN, D. J. ; SCARSBROOK, G. A.: Control of surface and bulk crystalline quality in single crystal diamond grown by chemical vapour deposition. In: *Diamond and Related Materials* 18 (2009), Nr. 5, S. 808–815
- [90] GAUKROGER, M. P. ; MARTINEAU, P. M. ; CROWDER, M. J. ; FRIEL, I. ; WILLIAMS, S. D. ; TWITCHEN, D. J.: X-ray topography studies of dislocations in single crystal CVD diamond. In: *Diamond and Related materials* 17 (2008), Nr. 3, S. 262–269
- [91] FUJITA, N. ; BLUMENAU, A. T. ; JONES, R. ; ÖBERG, S. ; BRIDDON, P. R.: Core reconstructions of the <100> edge dislocation in single crystal CVD diamond. In: *physica status solidi (a)* 204 (2007), Nr. 7, S. 2211–2215
- [92] LANG, A. R.: X-ray topographic and optical imaging studies of synthetic diamonds. In: *Journal of applied crystallography* 27 (1994), Nr. 6, S. 988–1001

- [93] HÄRTWIG, J.: *Persönliches Gespräch*. – Jena, 12.01.2018
- [94] FÖHL, H.: *Skript Einführung in die Materialwissenschaften*. [https://www.tf.uni-kiel.de/matwis/amat/def\\_ge/kap\\_5/backbone/r5\\_4\\_1.html](https://www.tf.uni-kiel.de/matwis/amat/def_ge/kap_5/backbone/r5_4_1.html), . – zugegriffen am 08.03.2018
- [95] MARTINEAU, P. M. ; GAUKROGER, M. P. ; GUY, K. B. ; LAWSON, S. C. ; TWITCHEN, D. J. ; FRIEL, I. ; HANSEN, J. O. ; SUMMERTON, G. C. ; ADDISON, T. P. G. ; BURNS, R.: High crystalline quality single crystal chemical vapour deposition diamond. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* 21 (2009), Nr. 36, S. 364205
- [96] BRÜMMER, O. ; HÖCHE, H. R. ; NIEBER, J.: X-ray diffraction in the Bragg case at Bragg angles of about  $\pi/2$ . In: *physica status solidi (a)* 53 (1979), Nr. 2, S. 565–570
- [97] BERNHARDT, H. ; MARX-GLOWNA, B. ; SCHULZE, K. S. ; GRABIGER, B. ; HABER, J. ; DETLEFS, C. ; LOETZSCH, R. ; KÄMPFER, T. ; RÖHLSBERGER, R. ; FÖRSTER, E. u. a.: High purity x-ray polarimetry with single-crystal diamonds. In: *Applied Physics Letters* 109 (2016), Nr. 12, S. 121106
- [98] RÜFFER, R. ; CHUMAKOV, A. I. ; BESSAS, D.: *X-ray Source ID18 ESRF*. [http://www.esrf.eu/home/UsersAndScience/Experiments/MEx/ID18/beamline\\_layout/optics/xsource.html](http://www.esrf.eu/home/UsersAndScience/Experiments/MEx/ID18/beamline_layout/optics/xsource.html), . – zugegriffen am 23.05.2018
- [99] CHUMAKOV, A. I. ; SERGEEV, I. ; CELSE, J.-P. ; RÜFFER, R. ; LESOURD, M. ; ZHANG, L. ; R., Sánchez: Performance of a silicon monochromator under high heat load. In: *Journal of synchrotron radiation* 21 (2014), Nr. 2, S. 315–324
- [100] BARON, A. Q. R. ; KOHMURA, Y. ; OHISHI, Y. ; ISHIKAWA, T.: A refractive collimator for synchrotron radiation. In: *Applied physics letters* 74 (1999), Nr. 10, S. 1492–1494
- [101] RÜFFER, R. AND CHUMAKOV, A. I. AND BESSAS, D.: *Collimating Lenses ID18 ESRF*. [http://www.esrf.eu/home/UsersAndScience/Experiments/MEx/ID18/beamline\\_layout/optics/CL.html](http://www.esrf.eu/home/UsersAndScience/Experiments/MEx/ID18/beamline_layout/optics/CL.html), . – zugegriffen am 23.05.2018
- [102] RÖHLSBERGER, R.: Methods and instrumentation. In: *Nuclear Condensed Matter Physics with Synchrotron Radiation*. Springer, 2004, S. 37–65
- [103] MARX-GLOWNA, B. ; SCHULZE, K. S. ; USCHMANN, I. ; KÄMPFER, T. ; WEBER, G. ; HAHN, C. ; WILLE, H.-C. ; SCHLAGE, K. ; RÖHLSBERGER, R. ; FÖRSTER, E. u. a.: Influence of higher harmonics of the undulator in X-ray polarimetry and crystal monochromator design. In: *Journal of synchrotron radiation* 22 (2015), Nr. 5, S. 1151–1154
- [104] SCHULZE, K.: *Fundamental limitations of the polarization purity of x rays*. 2018. – Publikation in Bearbeitung
- [105] KARBSTEIN, F. ; GIES, H. ; REUTER, M. ; ZEPF, M.: Vacuum birefringence in strong inhomogeneous electromagnetic fields. In: *Physical Review D* 92 (2015), Nr. 7, S. 071301

- [106] SCHLENVOIGT, H. P.: Measuring ultrafast dynamics of self-generated magnetic fields from laser-solid interaction by X-ray polarimetry. In: *Proposal LCLS Run 10* (2014)
- [107] BESSAS, D. ; SERGUEEV, I. ; MERKEL, D. G. ; CHUMAKOV, A. I. ; RÜFFER, R. ; JAFARI, A. ; KISHIMOTO, S. ; WOLNY, J. A. ; SCHÜNEMANN, V. ; NEEDHAM, R. J. u. a.: Nuclear resonant scattering of synchrotron radiation by Os 187. In: *Physical Review B* 91 (2015), Nr. 22, S. 224102
- [108] NAKANO, T. ; FUKUDA, N. ; SETO, M. ; KOBAYASHI, Y. ; MASUDA, R. ; YODA, Y. ; MIHARA, M. ; NOZUE, Y.: Synchrotron-radiation-based Mössbauer spectroscopy of K 40 in antiferromagnetic potassium nanoclusters in sodalite. In: *Physical Review B* 91 (2015), Nr. 14, S. 140101
- [109] SETO, M. ; KITAO, S. ; KOBAYASHI, Y. ; HARUKI, R. ; MITSUI, T. ; YODA, Y. ; ZHANG, X. W. ; MAEDA, Y.: Nuclear resonance scattering of synchrotron radiation by 40 K. In: *Physical review letters* 84 (2000), Nr. 3, S. 566
- [110] VAN DER LAAN, G. ; FIGUEROA, A. I.: X-ray magnetic circular dichroism - A versatile tool to study magnetism. In: *Coordination Chemistry Reviews* 277 (2014), S. 95–129
- [111] SCHWICKERT, M. M. ; GUO, G. Y. ; TOMAZ, M. A. ; O'BRIEN, W. L. ; HARP, G. R.: X-ray magnetic linear dichroism in absorption at the L edge of metallic Co, Fe, Cr, and V. In: *Physical Review B* 58 (1998), Nr. 8, S. R4289
- [112] SIDONS, D. P. ; HART, M. ; AMEMIYA, Y. ; HASTINGS, J. B.: X-ray optical activity and the Faraday effect in cobalt and its compounds. In: *Physical review letters* 64 (1990), Nr. 16, S. 1967
- [113] OKITSU, K. ; OGUCHI, T. ; MARUYAMA, H. ; AMEMIYA, Y.: Faraday effect and x-ray birefringence at cobalt K-absorption edge with the tunable x-ray polarimeter. In: *International Symposium on Polarization Analysis and Applications to Device Technology* Bd. 2873 International Society for Optics and Photonics, 1996, S. 100–105
- [114] MERTINS, H.-C. ; VALENCIA, S. ; ABRAMSOHN, D. ; GAUPP, A. ; GUDAT, W. ; OPPENEER, P. M.: X-ray Kerr rotation and ellipticity spectra at the 2 p edges of Fe, Co, and Ni. In: *Physical Review B* 69 (2004), Nr. 6, S. 064407
- [115] MERTINS, H.-C. ; OPPENEER, P. M. ; KUNEŠ, J. ; GAUPP, A. ; ABRAMSOHN, D. ; SCHÄFERS, F.: Observation of the x-ray magneto-optical Voigt effect. In: *Physical review letters* 87 (2001), Nr. 4, S. 047401
- [116] BROUDER, C.: Angular dependence of X-ray absorption spectra. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* 2 (1990), Nr. 3, S. 701

- [117] ALAGNA, L. ; PROSPERI, T. ; TURCHINI, S. ; GOULON, J. ; ROGALEV, A. ; GOULON-GINET, C. ; NATOLI, Calogero R. ; PEACOCK, R. D. ; STEWART, B.: X-ray natural circular dichroism. In: *Physical review letters* 80 (1998), Nr. 21, S. 4799
- [118] PALMER, B. A. ; MORTE-RÓDENAS, A. ; KARIUKI, B. M. ; HARRIS, K. D. M. ; COLLINS, S. P.: X-ray birefringence from a model anisotropic crystal. In: *The Journal of Physical Chemistry Letters* 2 (2011), Nr. 18, S. 2346–2351
- [119] ROTH, M. ; TSEITLIN, M. ; ANGERT, N.: Oxide crystals for electro-optic Q-switching of lasers. In: *Glass physics and chemistry* 31 (2005), Nr. 1, S. 86–95
- [120] SHUR, V. Y.: Lithium niobate and lithium tantalate-based piezoelectric materials. In: *Advanced Piezoelectric Materials*. Elsevier, 2010, S. 204–238
- [121] NORKUS, V.: Pyroelectric infrared detectors based on lithium tantalate: state of art and prospects. In: *Detectors and Associated Signal Processing* Bd. 5251 International Society for Optics and Photonics, 2004, S. 121–129
- [122] HUNKLINGER, Siegfried: *Festkörperphysik*. 5. Auflage. Berlin : Boston: De Gruyter., 2018
- [123] STOYANOV, N. S. ; WARD, D. W. ; FEURER, T. ; NELSON, K. A.: Terahertz polariton propagation in patterned materials. In: *Nature materials* 1 (2002), Nr. 2, S. 95
- [124] WARD, D. W. ; STATZ, E. R. ; NELSON, K. A.: Fabrication of polaritonic structures in LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub> using femtosecond laser machining. In: *Applied Physics A* 86 (2007), Nr. 1, S. 49–54
- [125] FEURER, T. ; STOYANOV, N. S. ; WARD, D. W. ; VAUGHAN, J. C. ; STATZ, E. R. ; NELSON, K. A.: Terahertz polaritonics. In: *Annu. Rev. Mater. Res.* 37 (2007), S. 317–350
- [126] BOYD, Robert W.: *Nonlinear optics*. Ed. 2. Amsterdam : Elsevier, 2003
- [127] FUJIMOTO, I.: Electric-field-induced ionic displacement and redistribution of bonding electrons in LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub> revealed by modulation X-ray diffraction. In: *Acta Crystallographica Section A: Crystal Physics, Diffraction, Theoretical and General Crystallography* 38 (1982), Nr. 3, S. 337–345
- [128] MARX, B. ; SCHULZE, K. S. ; USCHMANN, I. ; KÄMPFER, T. ; WEHRHAN, O. ; WILLE, H. C. ; SCHLAGE, K. ; RÖHLSBERGER, R. ; WECKERT, E. ; FÖRSTER, E. u. a.: High precision measurement of undulator polarization in the regime of hard x-rays. In: *Applied physics letters* 105 (2014), Nr. 2, S. 024103
- [129] SHVYD'KO, Y. ; LINDBERG, R.: Spatiotemporal response of crystals in x-ray Bragg diffraction. In: *Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams* 15 (2012), Nr. 10, S. 100702

# Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Bei der Auswahl und Auswertung folgenden Materials haben mir die nachstehend aufgeführten Personen in der jeweils beschriebenen Weise unentgeltlich geholfen.

1. K. S. Schulze - Berechnung der Intensität von Umweganregungen in Diamant und Silizium,
2. R. Löttsch - Messung und Auswertung der Gitterkonstante von Diamant,
3. M. Stumpf - Messung der Oberflächen-/Höhenprofile der Diamanten am Fraunhofer Institut für Angewandte Optik und Feinmechanik,
4. H. Marschner - Aufnahme der Röntgentopogramme,
5. T. Kämpfer, R. Löttsch, K. S. Schulze und B. Grabiger - Auswertung der Dreikristallmessungen.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Jena, den 29.01.2019

---

Hendrik Bernhardt

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mir bei dieser Arbeit geholfen und mich in den letzten Jahren unterstützt haben.

Zuerst möchte ich mich bei meinem betreuenden Hochschullehrer Herrn Prof. Dr. Gerhard G. Paulus dafür bedanken, dass ich bei ihm auf dem Gebiet der Röntgenoptik promovieren durfte. Insbesondere bin ich ihm sehr dankbar für die Freiheiten und die Zeit, die er mir eingeräumt hat, um auf dem Gebiet der Röntgenoptik umfassend arbeiten und diese Arbeit zusammenfassend schreiben zu können.

Ein sehr großer Dank gebührt meinem unmittelbaren Betreuer Dr. Ingo Uschmann, der mich mit seinem Wissen und seiner Erfahrung auf dem Gebiet der Röntgenbeugung und im Bereich der Optik kontinuierlich unterstützt und somit auch wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat. Er war mir während meiner gesamten Promotion ein guter ‚Lehrer‘ und ich bin sehr dankbar dafür, dass ich mit ihm zusammenarbeiten durfte.

Bedanken möchte ich mich auch bei Dr. Berit Marx-Glowna, Dr. Kai Sven Schulze, Dr. Robert Löttsch, Annika Schmitt und Benjamin Grabiger für die gute Zusammenarbeit in der Arbeitsgruppe, die zahlreichen fachlichen Diskussionen, ihre bedingungslose Hilfe bei Fragen und Problemen sowie die gemeinsam durchgeführten Messzeiten.

Weiterhin bedanke ich mich bei den weiteren Kolleginnen und Kollegen der AG Röntgenoptik, allen voran Prof. Dr. Eckhart Förster, Heike Marschner und Jana Brusberg, sowie den ehemaligen Kollegen Dr. Jürgen Kräußlich, Dr. Tino Kämpfer, Dr. Sebastian Höfer und Dr. Vinzenz Hilbert für die gute Zusammenarbeit, das angenehme Arbeitsklima und die gemeinsam verbrachte Zeit.

Für ihre Unterstützung während der Messkampagnen an der ESRF, sowie ihre Hilfe bei den Vor- und Nachbereitungen möchte ich mich bei den DESY-Kollegen Prof. Dr. Ralf Röhlberger, Dr. Hans-Christian Wille und Dr. Johann Haber sowie den Kollegen der ESRF Dr. Carsten Detlefs, Dr. Rudolf Rüffer, Dr. Dimitrios Bessas und Dr. Aleksandr Chumakov bedanken.

Viele der in dieser Arbeit durchgeführten Experimente wären ohne die Werkstätten und die Konstruktionsabteilung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät nicht möglich gewesen. Daher danke ich den Mitarbeitern dieser Einrichtungen, insbesondere Heiner Voigt, Bernhard Klumbies, Dirk Hieronymus, Reiner Bark und Thomas Köhler.

Dem Helmholtz-Institut Jena und der Research School of Advanced Photon Science möchte ich für das Stipendium, mit dem meine Promotion finanziert wurde, und die guten Graduiertenprogramme sehr herzlich danken.

Zum Schluss geht ein besonderer Dank an meine Familie, insbesondere an meine Eltern Angela und Ralf Bernhardt, die immer an mich geglaubt, mich stets motiviert und in jeder Hinsicht unterstützt haben.