

Diplomarbeit in Physik
angefertigt im
Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik

Aufbau einer Anlage zur Kristallorientierung mit Hilfe des Laue-Verfahrens

vorgelegt der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

von
Matthias Heinrichs

Bonn, 6. Dezember 2010

Anfertigung mit der Genehmigung
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

Referent: Privatdozent Dr. Reiner Vianden

Koreferentin: Privatdozentin Dr. Elisabeth Soergel

Hiermit versichere ich, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie die Zitate kenntlich gemacht habe.

Bonn, den 6. Dezember 2010

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Grundlagen	3
2.1 Kristalle	3
2.2 Beugung von Röntgenstrahlen an Kristallen	5
2.3 Das reziproke Gitter und die Ewaldsche Kugel	9
2.4 Röntgenstrukturanalyseverfahren	12
3. Komponenten des Aufbaus	15
3.1 Röntgenröhre	15
3.1.1 Die optische Bank	16
3.2 Die Probenhalter	18
3.3 Folienrahmen und Positionierungshilfe	20
3.4 Speicherfolie	22
3.5 Scanner	24
3.6 AIDA	26
3.7 Cologne Laue Indexation Program	28
4. Messungen	31
4.1 Orientierung von Co_3TeO_6	31
4.2 Szintigraphie mit ^{111}In	33
5. Zusammenfassung	35

Anhang	37
A. Tabellen und Bilder	39
B. Danksagung	49

1. Einleitung

Bereits 1912 hat der Physiker Max von Laue zusammen mit Paul Knipping und Walther Friedrich die erste Aufnahme von an einem Kristall gebeugten Röntgenstrahlen erstellt. Damit konnte er seine Theorie zur Beugung an Kristallgittern belegen. Für diesen Erfolg wurde ihm 1914 der Nobelpreis für Physik verliehen. Heutzutage sind diese Erkenntnisse Teil eines jeden Lehrbuchs der Festkörperphysik und jede Kristallklasse wurde bezüglich ihrer Symmetrie weitreichend erforscht. Die von Max von Laue entwickelte Methode wird aber bis heute von Experimentalphysikern verwendet, um die Orientierung von Kristallen zu untersuchen. Zu jeder Symmetrieachse eines Kristalls ergibt sich ein typisches Punktmuster (Lauediagramm), welches mit Hilfe eines Laue-Atlas oder mit einem geeigneten Computerprogramm der passenden Orientierung zugeordnet werden kann.

Die exakte Orientierung eines Kristalls ist bei vielen Versuchsanordnungen wichtig. Leicht nachvollziehbar ist das bei Channeling-Experimenten, bei denen der Gitterführungseffekt ausgenutzt wird. Dabei werden einzelne oder Bündel von Teilchen beschleunigt und ein Kristall damit bestrahlt. Am Helmholtz-Institut für Strahlen- und Kernphysik (HISKP) wird die Anlage zur Zeit hauptsächlich von zwei Gruppen genutzt.

Die Mitarbeiter der Gruppe „Nukleare Festkörperphysik“ untersuchen Materialien mit der Methode der gestörten γ - γ -Winkelkorrelation. Hierbei werden geeignete Sondennuklide in den Kristall eingebracht. In Abhängigkeit von der Gitterposition und Umgebung verändert sich der Feldgradient. Die Ausrichtung der Probe und die dadurch gewählte Detektorebene bestimmen die messbaren Anteile des Feldgradienten. Die Gruppe „Laserspektroskopie“ erforscht Kristalle mit nichtlinearen optischen Eigenschaften. Die dabei untersuchte Suszeptibilität χ ist eine tensorielle Größe, die stark von der Richtung im Material abhängt. So tritt zum Beispiel der Effekt der Frequenzverdopplung nicht unbedingt in jeder Richtung der Kristallachsen gleich auf.

Die Röntgenanlage zur Kristallorientierung am HISKP besteht seit mehreren Jahrzehnten ([Mar76]), ohne eine sichere Methode zum Positionieren des Kristalls zu bieten. Außerdem wurde die Produktion des bisher genutzten Fotofilms für kristallographische Aufnahmen vom Hersteller Polaroid im Jahr 2009 eingestellt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Anlage zur Kristallorientierung komplett umgebaut, neu justiert und erweitert.

2. Grundlagen

Mit Laue-Aufnahmen erhält man Informationen über die Struktur des untersuchten Einkristalls. Um die Ergebnisse richtig deuten zu können, sollen zuerst nochmal die wichtigsten Begriffe und Einteilungen für Kristalle zusammengefasst werden. Es werden die Grundlagen der Röntgenbeugung besprochen und unterschiedliche Verfahren kurz vorgestellt.

2.1 Kristalle

Ein idealer Kristall wird beschrieben als eine periodische Anordnung von Atomen oder Ionen. Was ihn gegen andere Festkörper hervorhebt ist seine Fernordnung. Die Kristallstruktur wird charakterisiert durch die Begriffe *Basis* und *Gitter*. Eine Basis ist hierbei die kleinstmögliche Gruppe von Elementen. Wählt man bezüglich der Basis einen Koordinatenursprung, so liegen die Achsen in Richtung der jeweils nächsten Basis. Die Verschiebung des Ursprungs ergibt ein Punktgitter mit festen Abständen in die jeweilige Richtung.

$$\vec{R} = n_1 \cdot \vec{a} + n_2 \cdot \vec{b} + n_3 \cdot \vec{c} \quad \forall n_i \in \mathbb{R} \quad (2.1)$$

Die periodische Wiederholung der Kristallstruktur lässt sich also als Translation der Basis im Punktgitter beschreiben. Das Parallelepiped, welches von dem Translationsvektor \vec{R} aufgespannt wird, nennt man *Elementarzelle*. Diese ist nicht eindeutig, da man ein Gitter durch verschiedene Basisvektoren beschreiben kann und auch der Ursprung innerhalb der Basis nicht festgelegt ist. Man spricht von einer primitiven Elementarzelle, wenn diese nur einen Gitterpunkt enthält. Zur Unterteilung der verschiedenen Kristalle ist es jedoch gebräuchlicher, die räumliche Symmetrie zu betrachten.

Erlaubte Punktsymmetrieoperationen sind Spiegelungen, Drehungen und Inversionen. Für dreidimensionale Kristalle ergeben sich 32 verschiedene Symmetriegruppen, die man als Kristallklassen bezeichnet.

Es ist praktisch, dass bei Lauediagrammen, aufgrund ihrer zentrosymmetrischen Lage, lediglich elf Punktgruppen zu unterscheiden sind. Diese nennt man *Lauegruppen* (Siehe Tabelle 2.1). Erweitert man die Punktsymmetrien noch um Translationen, so ergeben sich 230 Raumgruppen. Eine tabellarische Übersicht der Bezeichnungen und Zugehörigkeiten ist im Anhang gegeben (A.1).

Kristallsystem	Punktgruppe	Lauegruppe
Triklin	1, $\bar{1}$	$\bar{1}$
Monoklin	2, m , $2/m$	$2/m$
Orthorhombisch	222, $mm2$, mmm	mmm
Tetragonal	4, $\bar{4}$, $4/m$	$4/m$
	422, $4mm$, $\bar{4}2m$, $4/mmm$	$4/mmm$
Trigonal	3, $\bar{3}$	$\bar{3}$
	32, $3m$, $\bar{3}m\bar{3}m$	
Hexagonal	6, $\bar{6}$, $6/m$	$6/m$
	622, $6mm$, $\bar{6}m2$, $6/mmm$	$6/mmm$
Kubisch	23, $m\bar{3}$	$m\bar{3}$
	432, $\bar{4}3m$, $m\bar{3}m$	$m\bar{3}m$

Legende

$\bar{1}$: Inversionszentrum

Zahl: Drehachse

m : Spiegelebene

$\bar{6}$: Drehinversionsachse

$6/m$: Drehachse senkrecht zu Spiegelebene

Tab. 2.1: Die elf Lauegruppen angegeben in der Hermann-Mauguin-Symbolik

Gebräuchlich ist die Einteilung in die sieben Kristallsysteme triklin, monoklin, orthorhombisch, tetragonal, trigonal, hexagonal und kubisch. Kombiniert mit vier Typen von Elementarzellen (primitiv, raumzentriert, flächenzentriert und basiszentriert) ergeben sich die 14 *Bravaisgitter*. Mit diesen 14 Gittern lassen sich alle Kristalle darstellen und deren Symmetrie erkennen. Die Tatsache, dass es sich bei den Bravaisgittern nicht immer um primitive Elementarzellen handelt, stellt nur selten ein Problem dar.

Eine Ebene definiert man zum Beispiel durch drei nichtlineare Punkte, die in der Ebene liegen. In einem Kristall wählt man die Schnittpunkte mit den Achsen aus Gleichung 2.1, um diese Punkte zu erhalten. Damit sind die Koeffizienten n_i eine hilfreiche Größe, Flächen im Kristall zu beschreiben. Eine allgemeinere Beschreibung sind die *Millerindizes*. Ausgehend von den Koeffizienten n_i , wird deren Kehrwert gebildet und mit dem kleinsten gemeinsamen Nenner multipliziert. Wird eine Achse überhaupt nicht geschnitten, weil die Ebene parallel verläuft, ergibt sich für den Millerindex eine Null, schneidet man im negativen Bereich, so notiert man einen Querstrich über der Zahl. Somit ergibt sich für jede Ebenenschar im Kristall ein eindeutiges Triplett $\{hkl\}$ von Millerindizes.

Noch ein Hinweis zur Notation: sollen nicht alle gleichwertigen Ebenen beschrieben werden, sondern eine spezifische, so schreibt man (hkl) . Will man mit Hilfe der Millerindizes eine Richtung beschreiben, bildet man den entsprechenden Vektor in Gleichung 2.1 und notiert die Koeffizienten $[hkl]$ in eckigen Klammern, falls eine spezifische Richtung gemeint ist und in spitzen Klammern $\langle hkl \rangle$, wenn die Gesamtheit aller kristallographisch gleichwertigen Richtungen bezeichnet werden soll.

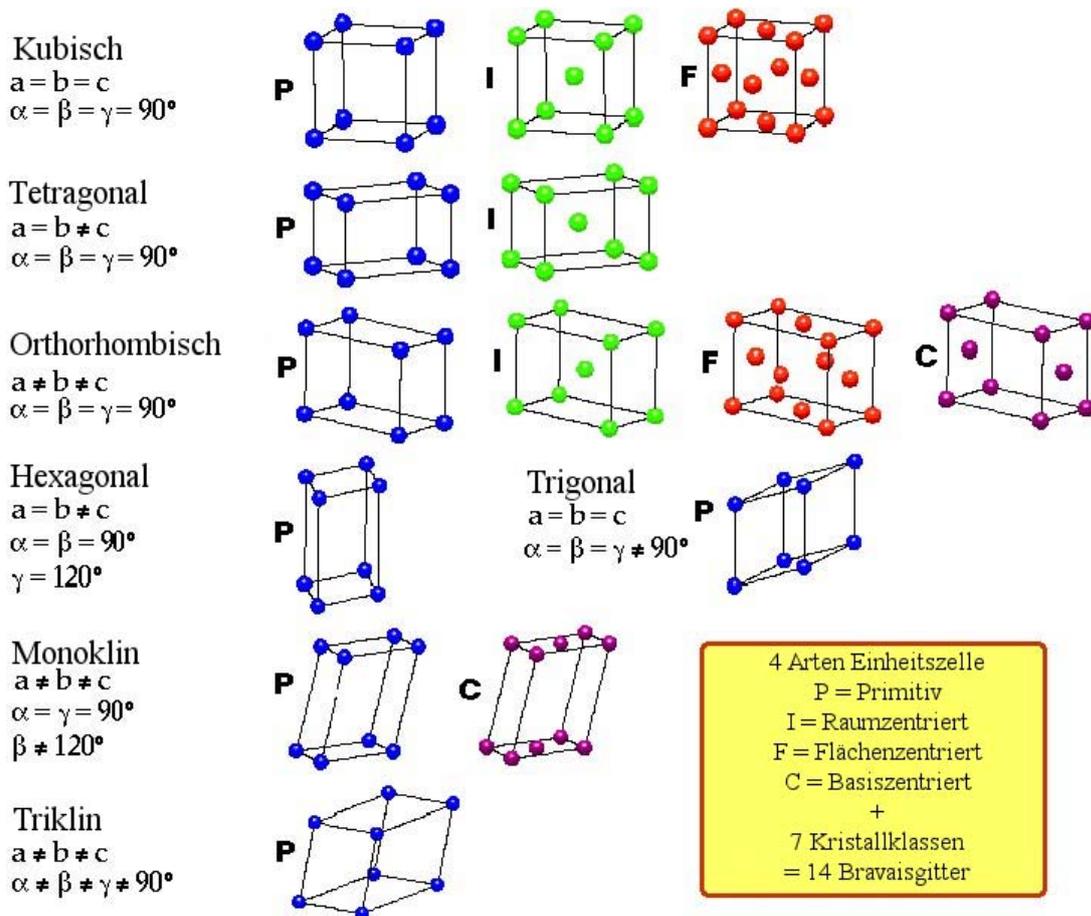


Fig. 2.1: Übersicht zu den Kristallklassen, Einheitszellen und den 14 Bravaisgittern

2.2 Beugung von Röntgenstrahlen an Kristallen

Um Interferenz zu beobachten, müssen mehrere Faktoren zusammenkommen. So muss die Welle eine zeitliche und räumliche Kohärenz aufweisen und die Wellenlänge und die Spaltbreite müssen in der gleichen Größenordnung sein. Im Falle von Kristallen, die üblicherweise Gitterparameter von einigen Ångström haben, ist es die Röntgenstrahlung, die alle notwendigen Eigenschaften erfüllt. Die Physiker Max von Laue (*1879, †1960), Sir William Henry Bragg (*1862, †1942) und sein Sohn William Lawrence Bragg (*1890, †1970) haben hierbei die Grundlagen für die Röntgenstrukturanalyse geschaffen. Interessant ist dabei nicht nur die Herleitung, wie es zu Beugungsmustern kommt, sondern auch die Möglichkeit aus entstandenen Aufnahmen Rückschlüsse auf die Kristallstruktur zu ziehen.

Vorweg soll an die Eigenschaften von Strahlung, die bei einer Röntgenröhre entsteht, erinnert werden. Man unterscheidet:

- **Bremsstrahlung** entsteht in der Röntgenröhre durch die Ablenkung, welche die anregenden Elektronen in der Kernnähe des Anodenmaterials erfahren. Jede Richtungsänderung führt zur Abstrahlung von Energie in Form von Photonen. Je nach Anregungsenergie, Abstand und Materialeigenschaften ergeben sich so alle Wellenlängen im Röntgenbereich. Der stückweise Energieverlust der Elektronen lässt diese langsamer werden, was zur Bezeichnung Bremsstrahlung führte.
- Die **charakteristische Strahlung** einer Röntgenröhre wird durch ihr Anodenmaterial bestimmt. Trifft ein anregendes Elektron auf ein Elektron der inneren Schale der Anode, so kann es dieses heraus schlagen. Das Auffüllen der Leerstelle aus höheren Schalen führt zum Aussenden wohldefinierter, intensiver Röntgenwellen. Die Bezeichnungen, z. B. K_α , verweisen auf die Schale mit der Leerstelle und die Herkunft des auffüllenden Elektrons.

Durch eine Röntgenröhre ergibt sich immer eine Überlagerung dieser beiden Strahlungsarten, doch man kann über die anregende Energie und Filter die Zusammensetzung des Spektrums für die Anforderungen der jeweiligen Anwendung in gewissen Grenzen beeinflussen. Die kleinste Wellenlänge λ_0 des Bremsstrahlungsspektrums ergibt sich aus der maximalen Energie der anregenden Elektronen durch die Formel

$$E = \frac{hc}{\lambda_0} \quad \text{bzw.} \quad E[\text{keV}] = \frac{12.345}{\lambda_0[\text{\AA}]}, \quad (2.2)$$

wobei h für das Plancksche Wirkungsquantum und c für die Lichtgeschwindigkeit stehen.

Zuerst soll der eindimensionale Fall einer periodischen, linearen Anordnung von Atomen betrachtet werden, an der ein Röntgenstrahl gebeugt wird. Jedes Atom in dieser Reihe ist dann gemäß des Huygensschen Prinzips Zentrum einer konzentrischen, sphärischen Elementarwelle. Eine Verstärkung findet statt, wenn der Gangunterschied der Wellen ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge ist. Bei gegenphasigen Wellen gleicher Amplitude kommt es entsprechend zur kompletten Auslöschung. Die Gleichung

$$\cos \mu + \cos \nu = \frac{m\lambda}{a} \quad \forall m \in \mathbb{Z} \quad (2.3)$$

ist die *Lauebedingung* für die phasengleiche Streuung aller Glieder einer Reihe translationsäquivalenter, punktförmiger Streukörper. μ bezeichnet den Winkel

zwischen einfallendem Strahl und der Atomreihe, ν den Winkel zum Maximum. Die Wellenlänge ist mit λ gegeben, der Atomabstand mit a . In Abbildung 2.2 werden die benutzten Winkel und Abstände sowie die berechnete Wegdifferenz illustriert. Der geometrische Ort eines Maxima, welches von einem Punkt ausgeht, bildet einen Kegelmantel mit der Atomreihe als Achse. Betrachtet man alle erlaubten Winkel ν bei festen Werten für a , μ und λ , so ergibt sich aus Gleichung 2.3 ein gefächertes System koaxialer Doppelkegel um die Atomreihe. Abbildung 2.3 zeigt diese sogenannten *Lauekegel*.

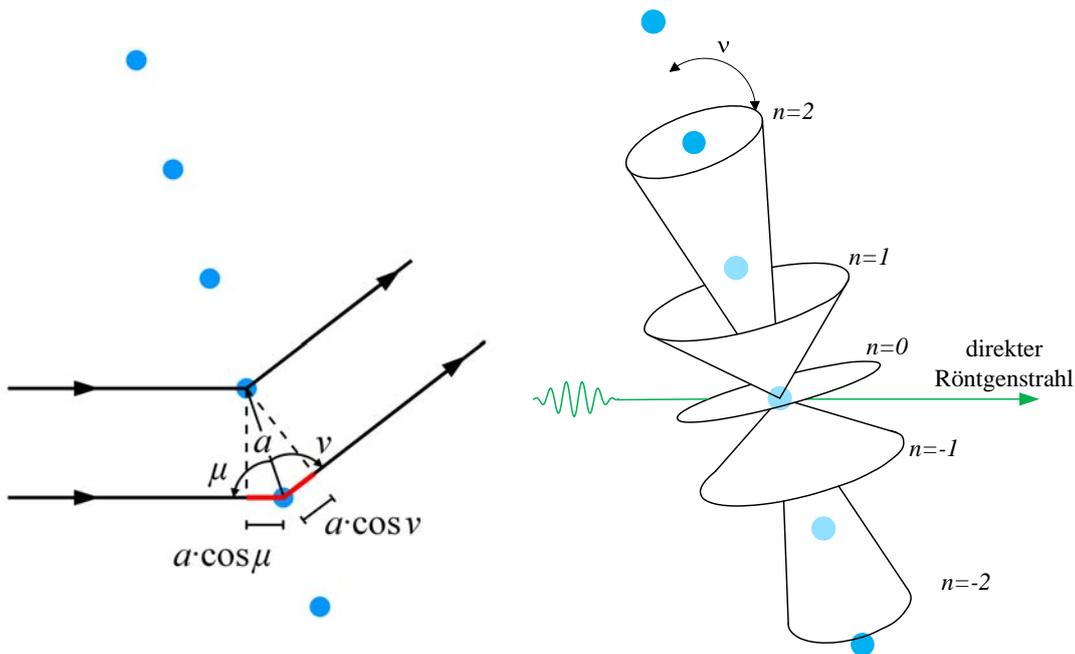


Fig. 2.2: Darstellung der Lauebedingung an einer Atomreihe

Fig. 2.3: Konstruktive Interferenz auf Lauekegeln

Wenn man nun die gleichen Überlegungen auf ein raumartiges Gitter überträgt, die Winkel und Abstände entsprechend mit den Kristallachsen bildet, so ergeben sich die Lauebedingungen für die Beugung an einer dreidimensionalen Anordnung von Atomen:

$$\begin{aligned}\cos \mu_x + \cos \nu_x &= \frac{m\lambda}{a} \\ \cos \mu_y + \cos \nu_y &= \frac{n\lambda}{b} \\ \cos \mu_z + \cos \nu_z &= \frac{p\lambda}{c}\end{aligned}$$

Auch hier gilt prinzipiell das Gleiche, wie im eindimensionalen Fall. Die gebeugte

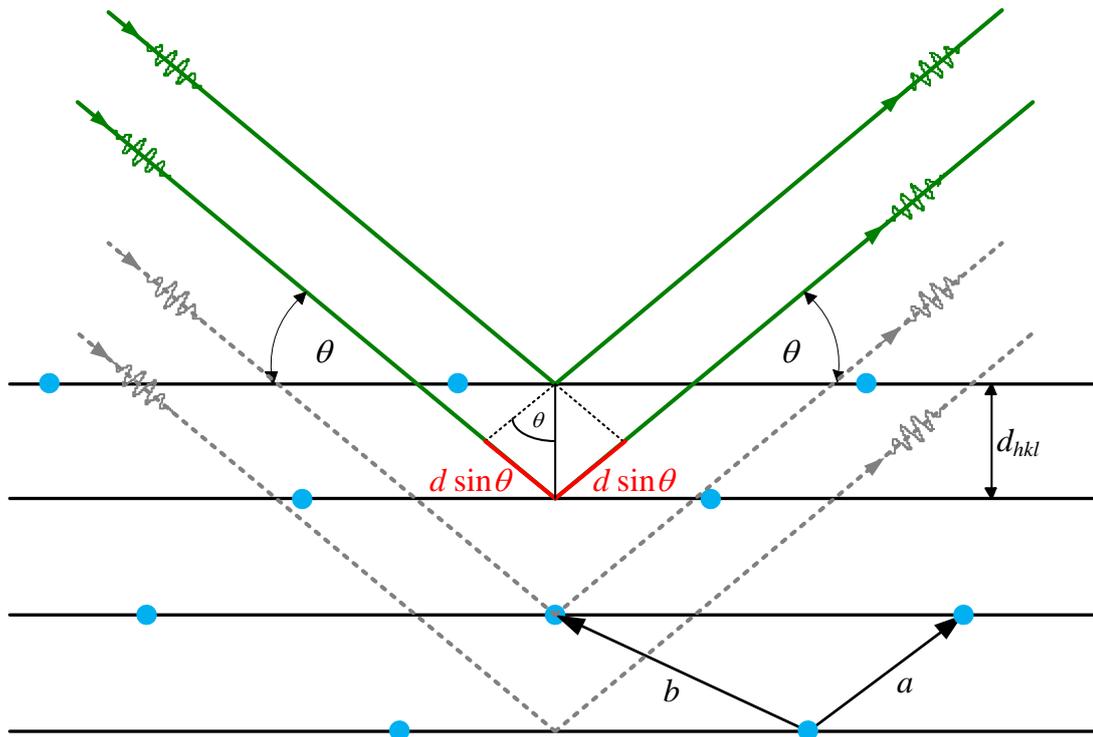


Fig. 2.4: Die Braggsche Bedingung für die Beugung am Translationsgitter; d_{hkl} ist der Abstand der Netzebenen, a und b sind die Kristallachsen

Welle ist nur in Phase, wenn sich drei Kegel - einer aus jedem der drei Systeme - in einem Punkt schneiden.

Es kann aber auch gezeigt werden, falls eine Röntgenwelle in den Laueordnungen m, n, p gestreut wird, dann müssen notwendig alle Punkte auf den kristallographischen Netzebenen des Satzes (mnp) mit gleicher Phasenlage streuen, was mit der Reflexion der Röntgenwelle an der kristallographischen Ebene (mnp) geometrisch gleichwertig ist [BW77]. Zur Bezeichnung von Ebenen in Kristallen wurde bereits eine einheitliche Bezeichnung mit Hilfe der Millerindizes eingeführt. Die Beugungsbedingungen für eine Reflexion in Phase, werden im Braggschen Gesetz definiert

$$n\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta_{hkl} \quad \forall n \in \mathbb{Z}, \quad (2.4)$$

wobei d_{hkl} den Abstand benachbarter Ebenen und θ_{hkl} den Glanzwinkel kennzeichnet (siehe Abb. 2.4).

Die Indizes des reflektierenden Netzebenensatzes stimmen mit den Beugungsordnungen dreier Lauekegel überein, wobei nun auch ausdrücklich höhere Ordnungen (gemeinsamer Faktor größer 1) erlaubt sind. So bezeichnet ein Indextripel in run-

den Klammern immer noch die Netzebenenschar, während bei Indextripeln ohne Klammern eine bestimmte Reflexion gemeint ist.

Bisher wurde davon ausgegangen, dass nur eine Atomsorte im Kristall vorhanden ist. In den meisten Fällen bilden allerdings mehrere Elemente einen Kristall. Da jede Basis identisch ist, ergibt sich auch für jedes einzelne Atom die gleiche Gitteranordnung und die gleichen Netzebenen - entsprechend für jedes Element um seinen Platz in der Basis verschoben. Dies kann geometrisch nach wie vor ein Maximum ergeben, allerdings kommt es bei der Reflexion an Netzebenen unterschiedlicher Atome zu Phasendifferenzen, welche die Amplitude verringern. Zur Berechnung der Amplitude geht man zur komplexen Wellenfunktion

$$\Psi = |A|e^{i\phi}$$

über. Die Phase ϕ lässt sich in Bezug auf eine bestimmte Ebene schreiben als $\phi = 2\pi(hx + ky + lz)$. An jeder Atomsorte wird Ψ gestreut und die resultierende Welle ist die vektorielle Summe:

$$F_{hkl} = f_1 \exp[2\pi i(hx_1 + ky_1 + lz_1)] + f_2 \exp[2\pi i(hx_2 + ky_2 + lz_2)]$$

Die im allgemeinen komplexe Größe F_{hkl} heißt Strukturamplitude, sein Betragsquadrat, $|F_{hkl}|^2$, ist der Strukturfaktor.

2.3 Das reziproke Gitter und die Ewaldsche Kugel

Die Aufnahme einer Röntgenbeugung ist das Abbild des *reziproken Gitters*. Hierbei handelt es sich um ein geometrisches Hilfsmittel, welches von dem Physiker Auguste Bravais (*1811, †1863) eingeführt wurde. Zunächst soll das Braggsche Gesetz 2.4 für das Maximum erster Ordnung ($n = 1$) nach Sinus umgeformt werden:

$$\sin \theta_{hkl} = \frac{\lambda}{2} \cdot \frac{1}{d_{hkl}}$$

Diese Gleichung ist in Abbildung 2.5a) geometrisch dargestellt. In einem Kreis mit dem Radius $1/\lambda$ wird ein Dreieck konstruiert. Der Durchmesser bildet eine Seite, vom Punkt A wird eine Sehne mit dem Winkel θ_{hkl} aufgetragen. Vervollständigt man das rechtwinklige Dreieck, so läßt sich mit Hilfe einfacher Trigonometrie direkt erkennen, dass hier das Braggsche Gesetz erfüllt wird und die Gegenseite die Länge $\frac{1}{d_{hkl}}$ haben muß.

Abbildung 2.5b) verdeutlicht die Situation bei einem Kristall. Die Hypotenuse \overline{AO} entspricht dem einfallenden Röntgenstrahl. Die parallel zur Sehne \overline{AP} , liegende Kristallebene (hkl) wird im Mittelpunkt C getroffen und reflektiert den Strahl mit dem Ausfallswinkel θ durch den Punkt P . Dieser Punkt P ist Teil des reziproken Gitters, dessen Ursprung in O liegt.

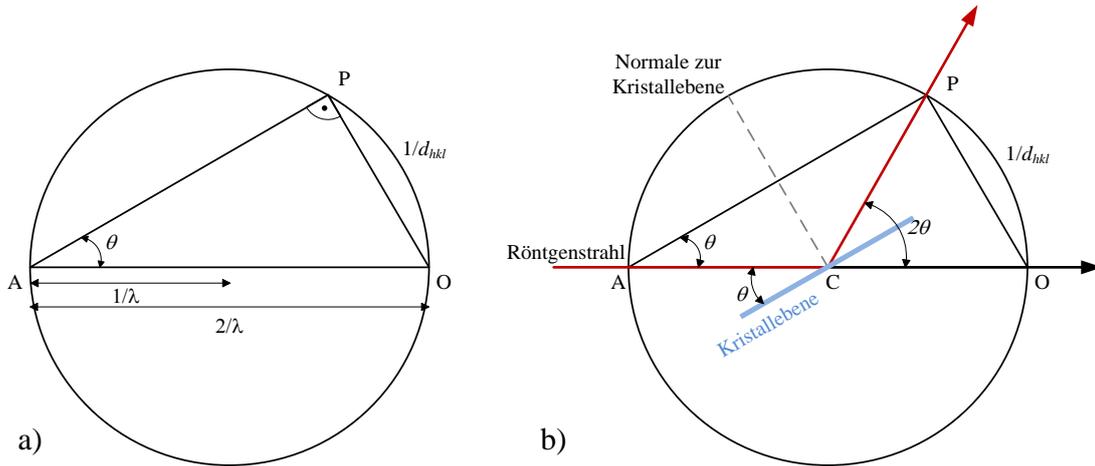


Fig. 2.5: Geometrische Darstellung der Braggschen Gleichung (a) und Konstruktion des reziproken Gitter (b)

Der Ebenenabstand d_{hkl} ist eine feste Größe des Kristalls und sein Kehrwert $\frac{1}{d_{hkl}}$ ein Vektor des reziproken Gitters mit der Einheit einer inversen Länge. Der Vektor verläuft $\frac{1}{d_{hkl}}$ parallel zum Normalenvektor der Ebene. Ein Gitterpunkt des reziproken Gitters kann sich immer nur auf einem Vielfachen von $\frac{1}{d_{hkl}}$ befinden. Für die geometrische Darstellung aus Abbildung 2.5b) bedeutet dies, dass bei einer festen Wellenlänge λ die Ebene (hkl) nur zu einem Punkt im reziproken Gitter führt, wenn die Spitze von $\frac{1}{d_{hkl}}$ (oder ein ganzzahliges Vielfaches) den Kreis berührt. Erweitert man den Kreis zu einer Kugel im dreidimensionalen Raum, so spricht man von einer *Ewaldkugel*.

Mathematisch ist das reziproke Gitter die Fouriertransformierte des Bravaisgitters, d. h. der Satz aller Vektoren \vec{K} für die gilt

$$e^{i\vec{R}\vec{K}} = 1 \quad \text{bzw.} \quad \vec{R} \cdot \vec{K} = 2\pi n, \quad n \in \mathbb{Z}.$$

\vec{R} ist der Gittervektor aus 2.1, \vec{K} sein Pendant im reziproken Raum. Das reziproke Gitter ist selbst wieder ein Bravaisgitter, die Fouriertransformierte des reziproken Gitters ergibt wieder das ursprüngliche Bravaisgitter. Wurden die Millerindizes des realen Gitters soeben noch über ihre Kehrwerte eingeführt, so erschließt sich nun, dass es sich bei (hkl) im reziproken Gitter direkt um die Koeffizienten von \vec{K} handelt.

Mit Hilfe des reziproken Gittervektors \vec{K} und den Wellenvektoren \vec{k} und \vec{k}' der einfallenden und rückgestreuten Welle lässt sich die Lauebedingung kürzer formulieren:

$$\Delta\vec{k} = \vec{K}$$

In Worten: Der Gangunterschied muss ein Vektor des reziproken Gitters sein.

Bei einer Aufnahme des reziproken Gitters und einigen bekannten Größen der Anlage, wie z. B. der Abstand Probe-Schirm, lassen sich aus dem Bild Werte wie Abstand oder Winkel zwischen Atomen des realen Gitters berechnen. Es ist allerdings zu beachten, dass auf dem flachen Fotofilm eine Projektion zu sehen ist. Das eigentliche reziproke Gitter liegt auf der Oberfläche der Ewaldkugel. Es handelt sich um eine stereographische Projektion. Dabei bleiben Winkel erhalten. Das Projektionszentrum liegt auf der Ewaldkugel, der Schirm ist eine Tangentialebene dazu (siehe Abb.2.6).

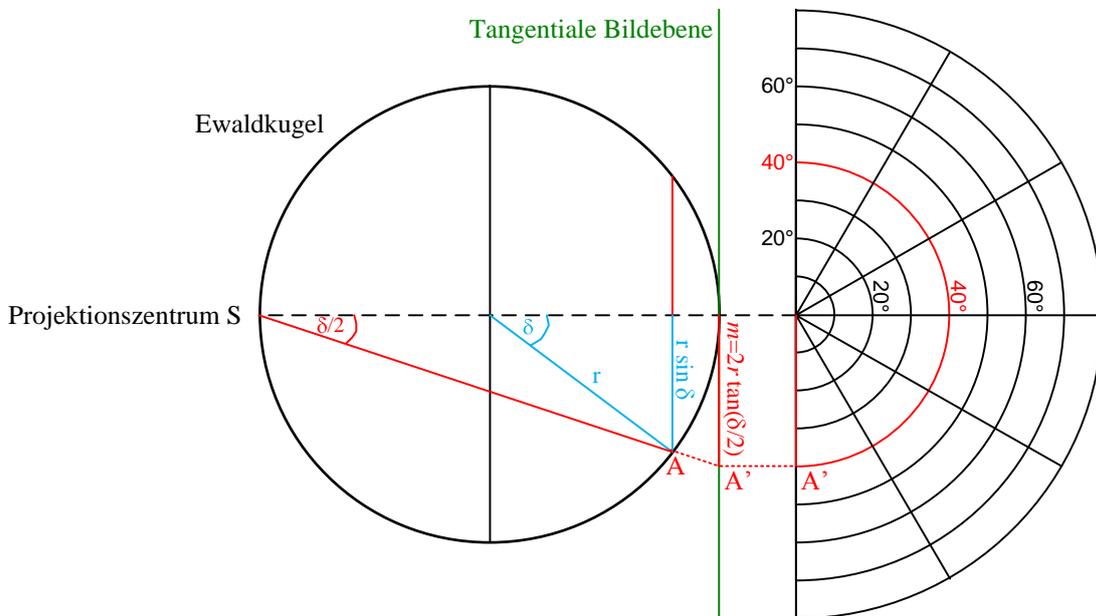


Fig. 2.6: Stereographische Projektion

Auch wenn Längen in der Projektion der Ewaldkugel verzerrt werden, lassen sich im Falle eines primitiven kubischen Gitters die Kantenlängen des Würfels leicht berechnen. In diesem Spezialfall ist das reziproke Gitter selbst wieder ein primitives kubisches Gitter. Bei bekannter Wellenlänge λ und einem gemessenen Winkel 2θ zum einfallenden Strahl, ergibt sich d_{hkl} aus dem Braggschen Gesetz (2.4). Kann man einen Reflex seiner Ebene (hkl) zuzuordnen, so ergibt sich die Gitterkonstante a durch

$$\frac{1}{d_{hkl}^2} = \frac{h^2 + k^2 + l^2}{a^2}.$$

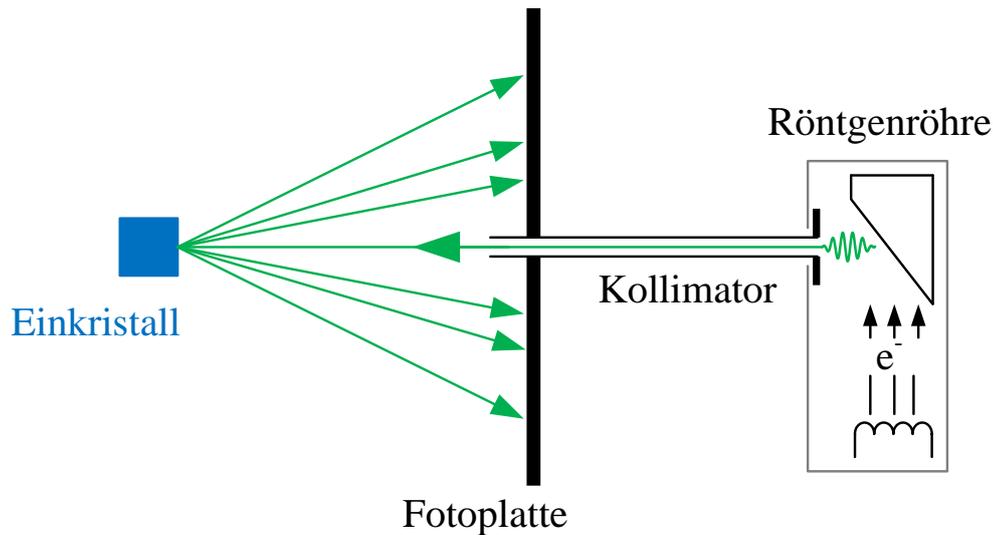


Fig. 2.7: Skizze zum Aufbau des Rückstrahlverfahrens nach Laue; die Pfeile kennzeichnen den Verlauf der Röntgenstrahlen für die Reflexion

2.4 Röntgenstrukturanalyseverfahren

Es haben sich drei grundlegende Methoden zur Untersuchung von Kristallen mit Röntgenstrahlung etabliert. Die Merkmale und Hauptunterschiede sollen hier kurz vorgestellt werden:

- Beim **Debye-Scherrer-Verfahren** verwendet man monochromatisches Röntgenlicht. Die polykristalline Probe beugt den einfallenden Strahl zu Interferenzkegeln. Auf einem Film, welcher rund um die Probe angebracht ist, werden Ringe (Kegelschnitte) beobachtet.
- Beim **Braggschen Drehkristall-Verfahren** wird ein Einkristall bei monochromatischem Röntgenlicht untersucht. Um bei einer festen Wellenlänge ausreichend Punkte des reziproken Gitters zu sehen (siehe Abb. 2.5b), wird der Einfallswinkel θ variiert.
- Für das **Laue-Verfahren** benötigt man einen Einkristall und polychromatische Röntgenstrahlung (kontinuierliches Spektrum). Abhängig vom Aufbau erhält man dahinter (Durchstrahlverfahren) oder zwischen Röntgenröhre und Kristall (Rückstrahlverfahren 2.7) ein punktförmiges Interferenzmuster auf dem Film.

Da diese Arbeit sich im folgenden nur mit der Laue-Methode im Rückstrahlverfahren beschäftigt, soll hierauf näher eingegangen werden. Der einfallende Strahl

hat einen festen Winkel zu jeder Netzebenenschar (hkl). Hätte man nur eine Wellenlänge zur Verfügung, wie in der Konstruktion 2.5b), würden unter Umständen nur wenige oder keine Reflexe zu sehen sein. Durch die Verwendung polychromatischer Strahlung, die bei jeder Röntgenröhre als Bremsstrahlung vorhanden ist, ergeben sich ineinanderliegende Ewaldkugeln, die sich im Ursprung des reziproken Gitters berühren. In Abbildung 2.8 wird der erfassbare Bereich des reziproken Gitters durch die blaue Menge verdeutlicht.

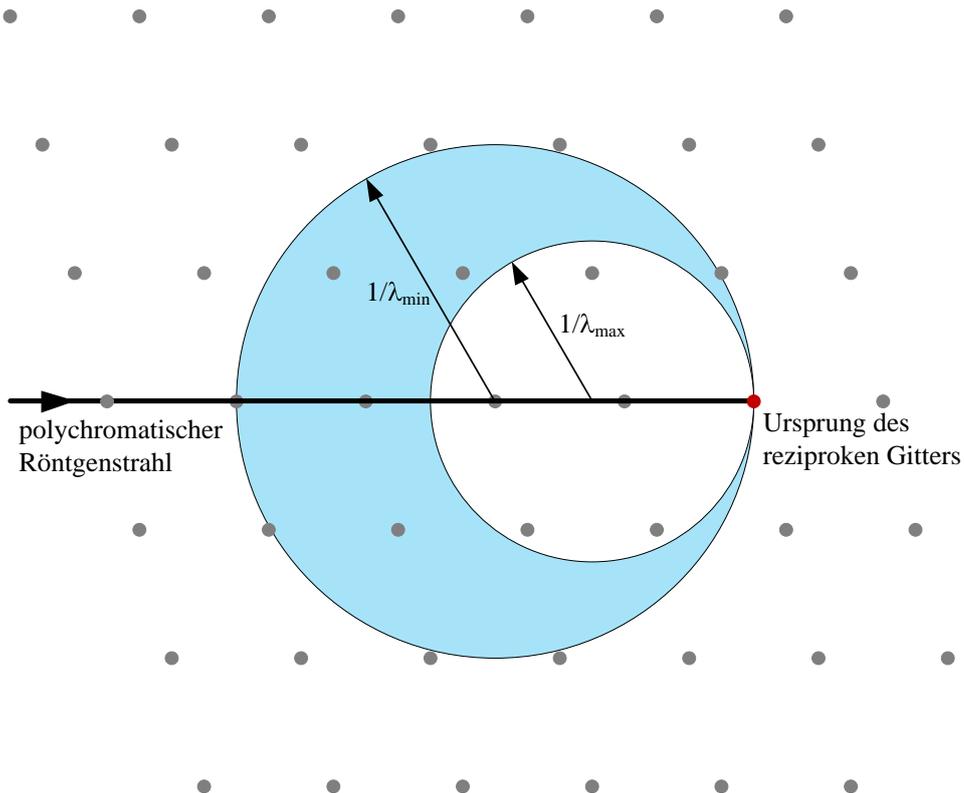


Fig. 2.8: Konstruktion des reziproken Gitters bei Anwendung der Laue-Methode; die Punkte markieren das reziproke Gitter; die Punkte im blauen Bereich führen zu Reflexen

Eine Formel zur Berechnung der minimalen Wellenlänge λ_{min} wurde in 2.2 angegeben. Weshalb zumeist keine Reflexe in der Nähe des Ursprungs des reziproken Gitters zu beobachten sind, lässt sich in Abbildung 2.8 ebenfalls erkennen.

3. Komponenten des Aufbaus

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Umstellung von Fotofilm auf ein Speicherfoliensystem vorgenommen. Dadurch wurde es notwendig, die bestehende Filmkassette zu ersetzen. Für das Auslesen der Speicherfolie wird ein spezieller Scanner benötigt, der die Daten an einen Computer weitergibt. Zur Auswertung am PC sind entsprechende Programme vorhanden. Zur Verbesserung der Sicherheit wurde eine Positionierungshilfe aufgebaut. Beschädigte Teile wurden erneuert und weitere Komponenten wurden für ein optimales Arbeiten justiert. Hier sollen nun alle Komponenten des Aufbaus besprochen werden, die beim Erstellen einer Laue-Aufnahme für den Experimentator von Bedeutung sind.

3.1 Röntgenröhre

Zum Durchführen von Experimenten am Röntgenarbeitsplatz im Helmholtz-Institut muss die Person zunächst vom zuständigen Strahlenschutzbeauftragten über die möglichen Gefahren und Sicherheitsvorkehrungen belehrt worden sein. Dabei wird auch die korrekte Bedienung der Anlage erklärt. Alle fest verbauten Komponenten unterliegen der Überwachung durch den TÜV und dürfen nicht verändert werden.

Die Röntgenröhre ist in einem massiven Block mit vier möglichen Öffnungen eingebaut. Zum Orientieren von Kristallen wird ausschließlich das Fenster Eins benutzt. Zur Zeit dieser Arbeit wurde eine Philips Fine Focus Wolfram-Röhre des Typs PW 2214/20 verwendet¹. Diese bietet jeweils zwei schlitzen- und zwei punktförmige Öffnungen. Für das genutzte Fenster Eins wurde ein punktförmiges Strahlprofil gewählt, welches vom Hersteller mit einer Größe von $0,4 \text{ mm} \times 0,8 \text{ mm}$ angegeben wird. Filter zum Modifizieren des Röntgenspektrums wurden nicht verwendet. Die K_α - und K_β -Linien der charakteristischen Röntgenstrahlung von Wolfram liegen um 59 keV bzw. 67 keV . Bei den üblicherweise gewählten Betriebsspannungen von unter 30 kV bei Strömen bis 25 mA sollten die charakteristischen Emissionen des Wolframs keine entscheidende Rolle spielen (siehe Abbildung 3.1).

¹ <http://www.healthcare.philips.com/>

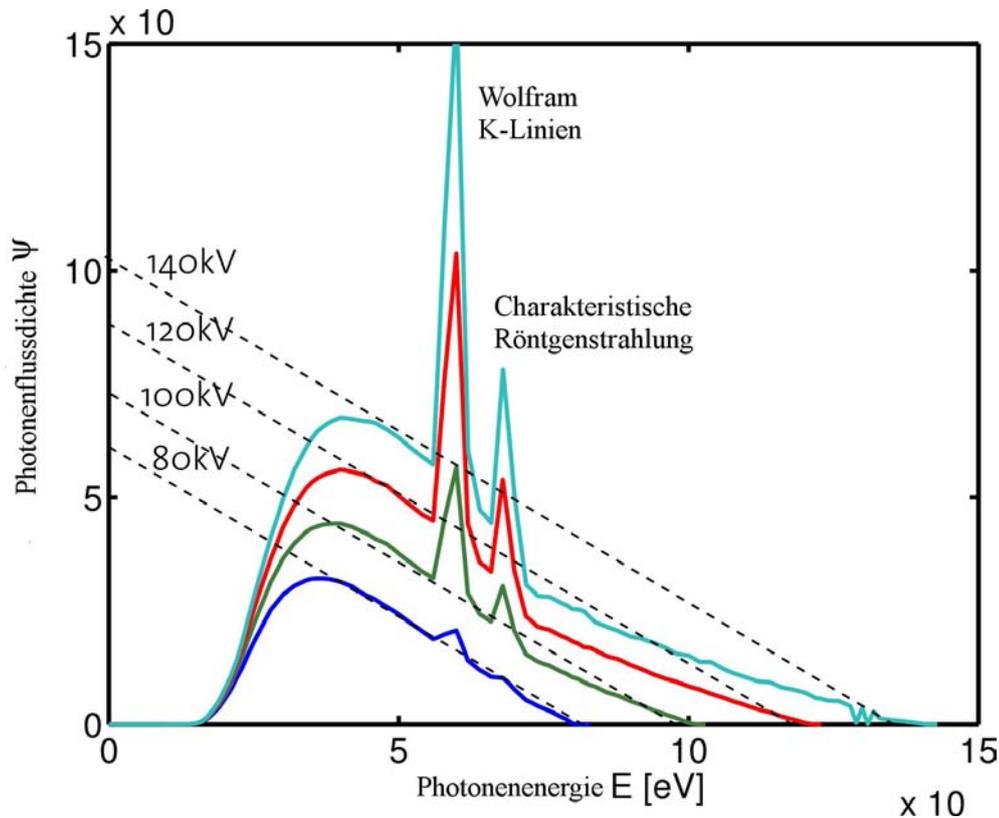


Fig. 3.1: Röntgenspektrum des Wolframs für unterschiedliche Anregungsenergien [Quelle: Prof. Cattin, MIAC, Universität Basel]

3.1.1 Die optische Bank

Die Röntgenröhre strahlt ihre maximale Intensität aufgrund der schräg stehenden Anode nicht orthogonal ab, sondern in einem Winkel, der vom Hersteller mit 6° angegeben wird. Im Zuge der Justierung der optischen Bank wurde die Intensität vermessen und für die Anlage optimiert. Dafür wurde die Methode der Röntgenfluoreszenzanalyse verwendet. Als Detektor diente ein AMPTEK XR-100CR². Mit diesem Si-Detektor wurde zuerst eine Energieeichung mit Hilfe der charakteristischen Röntgenlinien einiger Metalle durchgeführt. Anschließend wurde ein Stück Kupfer an die Position des Kristalls im Aufbau gebracht. Die reflektierte Röntgenstrahlung wurde detektiert. Um vergleichbare Messwerte zu erhalten, wurde die K_α -Linie des Kupfers (etwa 8 keV) betrachtet. Es wurden Messungen in 5-Minuten-Intervallen bei vergleichbar kleinen Totzeiten des Detektors durchgeführt und dabei die Neigung der optischen Bank variiert. Eine Tabelle der Messwerte befindet sich im Anhang (A.2), die Graphik 3.2 zeigt die gemessenen Intensitäten. Es wurde eine bestmögliche Einstellung bei etwa 5° ermittelt. Die

² <http://www.amptek.com/xr100cr.html>

geringe Abweichung vom Wert des Herstellers kann durch den Einbau der Röhre, Messtoleranzen in der Bestimmung des absoluten Winkels und der zusätzlichen Strahlführung durch den Kollimator begründet werden.

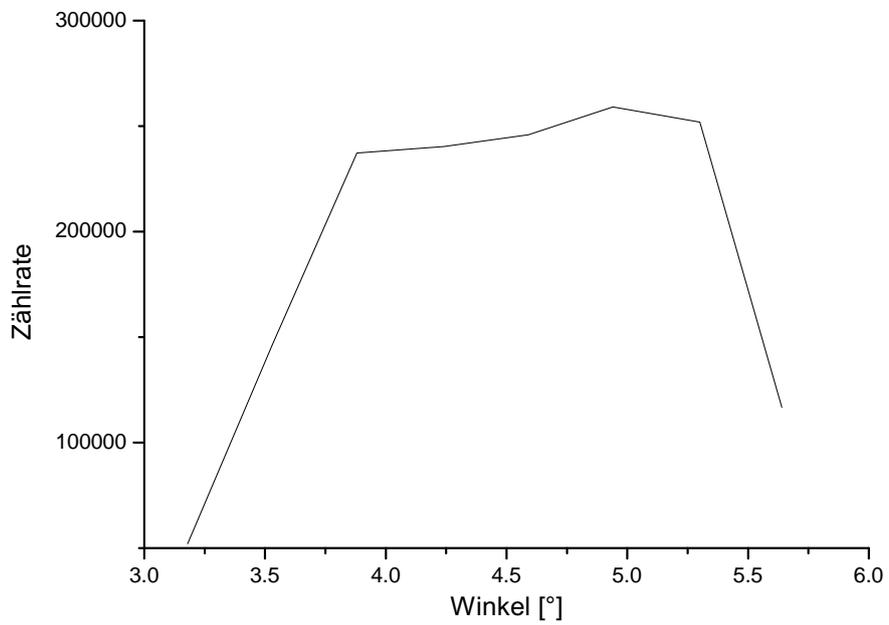


Fig. 3.2: Intensität für verschiedene Neigungen der optischen Bank

3.2 Die Probenhalter

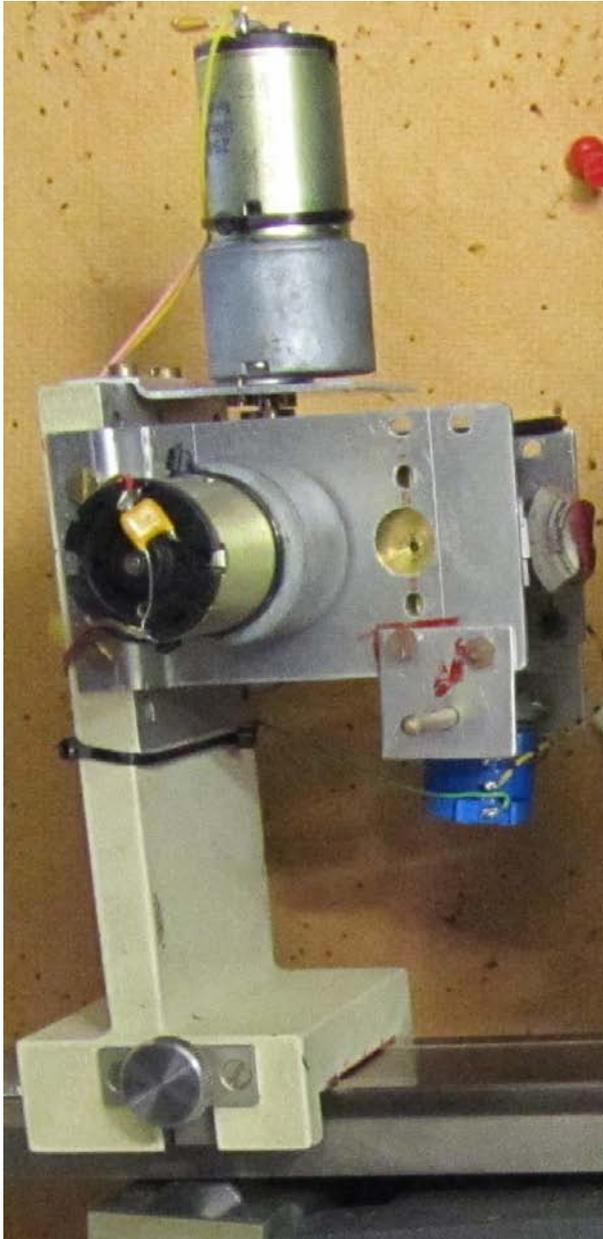


Fig. 3.3: Goniometer mit motorbetriebener Ansteuerung

Als Probenhalter kommen zur Zeit zwei unterschiedliche Lösungen zum Einsatz. Zum einen besteht die Möglichkeit, den Kristall auf einem Goniometer anzubringen (siehe Abb. 3.3). Mit diesem lassen sich die Winkel zum einfallenden Röntgenstrahl präzise einstellen und ablesen. Mit Hilfe einer angeschlossenen Steuereinheit kann die Position der Probe bequem in der Höhe und in der seitlichen Ausrichtung dem Strahlengang angepasst werden. Das bedeutet, dass ein besonders kleiner Kristall, der zunächst auf dem Goniometerkopf befestigt wurde, nun einfach mit der motorgesteuerten X- und Y-Achsenbewegung in den Röntgenstrahl bewegt werden kann. Das Einstellen der Winkel geschieht über einen passenden Vierkantschlüssel. Die Kristalle können zum Beispiel mit doppelseitigem Klebeband oder mit Hilfe von Plastilin befestigt werden. Natürlich ist bei mit Knetmasse angebrachten Einkristallen eine präzise Winkeleinstellung nur bedingt möglich.

Für unbekannte Proben oder Kristalle, bei denen die Lage der Achsen nicht bereits durch Herstellerangaben bekannt ist, hat sich die Halterung aus Abbildung 3.4, welche ursprünglich für Channeling Experimente konstruiert wurde, als äußerst hilfreich erwiesen.

Ist der Kristall mittig im Strahlengang platziert, so lassen sich Drehungen um den Strahl (Winkel ϕ) und Verkippungen um die z-Achse (Winkel θ) leicht be-

werkstelligen.

Da die Halterung eine Aussparung an der Stelle hat, an der der Röntgenstrahl auftrifft, wird entweder ein ausreichend großen Kristalls oder eine zusätzlichen Fixierung auf einem Objektträger benötigt. Es hat sich jedoch herausgestellt, dass gerade dies ein Vorteil sein kann. Häufig sind die zu untersuchenden Kristalle bereits auf Objektträgern für weitere Arbeitsschritte befestigt und sind damit zu schwer, um sie am Goniometer anzubringen. Wird der Probenhalter aus Abbildung 3.4 während einer Kristallorientierung weit verkippt, so kann auch ein Schatten des konischen Halters und der Feststellschraube auf den Schirm projiziert werden (siehe Abbildung A.3 im Anhang). Will man diesen Effekt verhindern, so kann die flache Seite der Halterung benutzt werden. Der Kristall muss aber immer zentriert angebracht werden, da man ihn ansonsten bei Verkippungen aus dem Strahlengang dreht.

Die korrekte Wahl ist vom gewünschten Ziel abhängig. Soll eine schnelle Kontrollaufnahme der vorhandenen Orientierung erstellt werden, bietet sich häufig das Goniometer an, da auch kleine Proben einfach in den Strahlengang gebracht werden können. Das Einstellen der Winkel ist hingegen bei der anderen Halterung einfacher zu handhaben. Dafür ist unter Umständen das Anbringen im Strahlengang mit mehreren Arbeitsschritten verbunden.



Fig. 3.4: Goniometer mit Zählwerk für Winkeleinstellungen

Strahlengang mit mehreren Arbeitsschritten

3.3 Folienrahmen und Positionierungshilfe

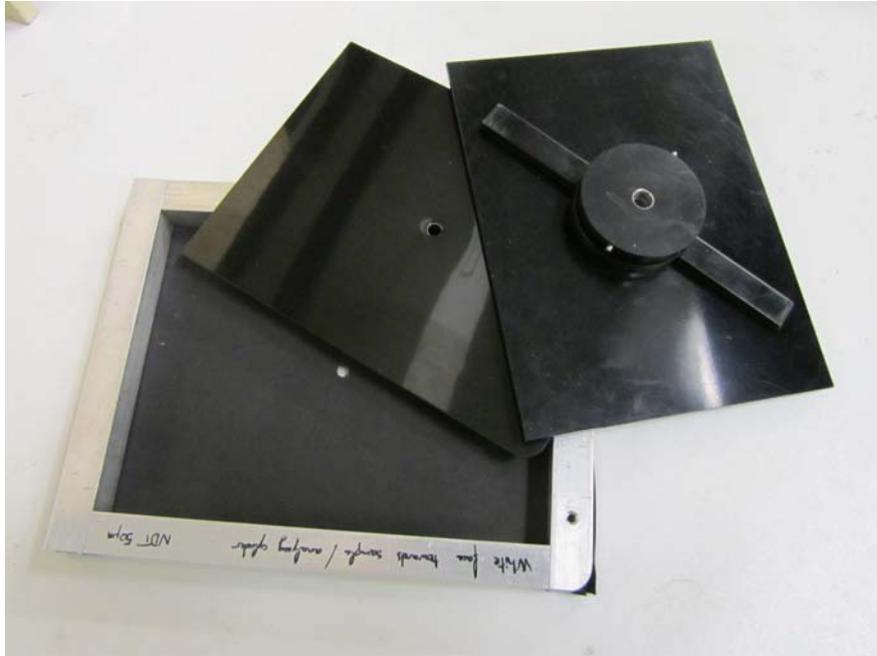


Fig. 3.5: Rahmen (unten), Folie und Verschluss (oben); Von der Folie ist nur die schwarze Rückseite zu sehen

Im ursprünglichen Aufbau wurde ein Polaroidfilm in einer Kassette mit Verstärkerfolie vor dem Kollimator angebracht. Für das neue Verfahren ist diese nicht mehr zu gebrauchen. Als Ersatz wurde ein Aluminiumrahmen gefertigt, auf dessen Vorderseite dünne schwarze Pappe festgeklebt wurde. Versuche mit dünnen Kunststoffen führten entweder zu starker Absorption der Röntgenstrahlen oder lieferten zu wenig Stabilität, um die Bildplatte zu fixieren. Zum Kennzeichnen der Ausrichtung der Speicherfolie wurde eine Ecke mit Aluminiumfolie bedeckt, um dort in der Aufnahme eine erhöhte Absorption zu beobachten. Abgeschlossen wird der Rahmen durch einen Plastikdeckel mit drehbarem Verschlussmechanismus (siehe Abbildung 3.5). Es wurde bewusst Polyvinylchlorid (PVC)³ gewählt, um mögliche Reflexionen oder sekundäre Röntgenstrahlen zu vermeiden. Die zurechtgeschnittene Folie muss mit der weißen Seite nach unten, also zum Kristall hin, eingelegt werden. Alle Komponenten sind in der Mitte mit einem kleinen Loch versehen, um den Kollimator durchzuführen zu können. Der Verschlussmechanismus dient gleichzeitig auch zum Einhängen des Rahmens in den entsprechenden Reiter der optischen Bank.

Zusätzlich wurde eine Positionierungshilfe mit zwei Lasern angebracht. Bisher musste die Position des Kristalls

³ Absorptionskoeffizient $\mu = 6,437$

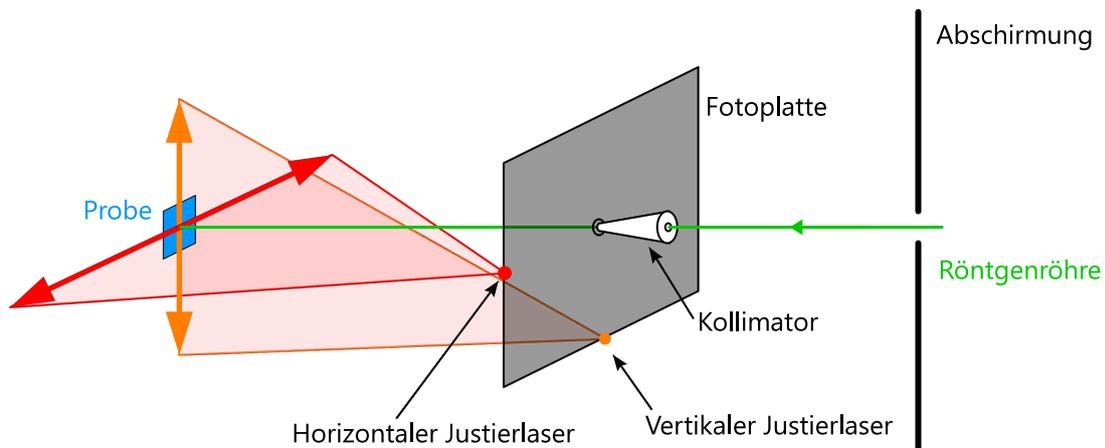


Fig. 3.6: Prinzip der Positionierungshilfe mit zwei Strichlasern

mit einem Fluoreszenzschirm bei laufender Röntgenröhre überprüft werden. Dies stellt eine mögliche Gefahrenquelle dar. In der neuen Vorgehensweise wird bereits vor dem Einschalten der Röntgenröhre angezeigt, wo der Strahl den Kristall treffen wird. Realisiert ist das durch zwei Diodenlaser mit einem langen Strich als Profil. Wie in Abbildung 3.6 zu erkennen ist, wurde ein Laser genau unterhalb der Kollimatorspitze angebracht. Dieser erzeugt einen lotrechten Strich auf der Probe. Der zweite Laser ist auf der gleichen Höhe wie die Kollimatorspitze befestigt und emittiert einen Strich in der Horizontalen. Der Schnittpunkt der beiden Laserstriche ist demnach der Ort des Röntgenstrahls.

Die Laser sind fest mit dem Reiter, der auch den Rahmen trägt, verbunden. Zusätzlich sind die Fassungen der Laser so gefertigt, dass der Rahmen in seiner Position stabilisiert wird. Dadurch sind unerwünschte Verkippen der Bildebene minimiert. Da das Strahlprofil der Strichlaser für eine exakte Positionierung von kleinen Kristallen

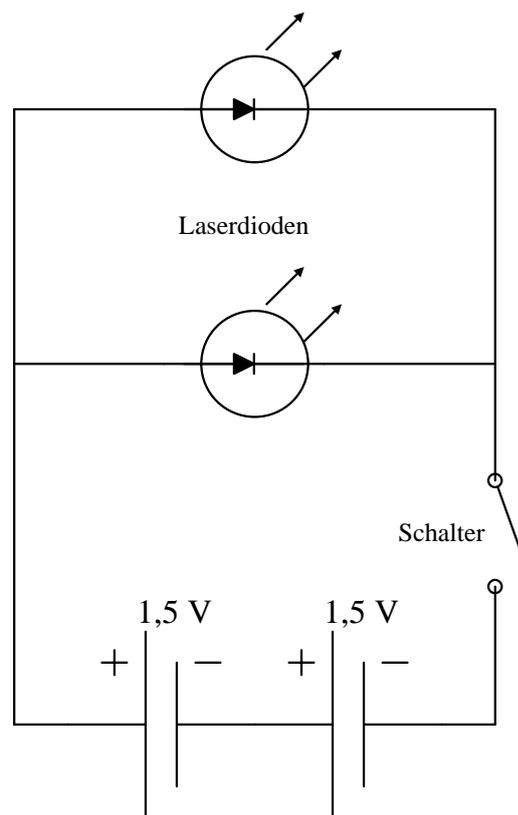


Fig. 3.7: Schaltplan der Laser

Da das Strahlprofil der Strichlaser für eine exakte Positionierung von kleinen Kristallen

zu breit ist, sind zusätzlich feine Strichblenden montiert. Die Laser werden durch zwei Batterien mit der nötigen Spannung von 3 V versorgt. Diese befinden sich hinter dem Ein/Aus-Schalter. In Abbildung 3.7 ist die Schaltung beschrieben.

3.4 Speicherfolie

Eine Speicherfolie der Firma Fuji⁴ ersetzt die Fotoplatte als Detektor. Sie besteht aus Polyester (schwarze Seite), welches mit einer dünnen Schicht $BaFBr : Eu^{2+}$ überzogen ist (weiße Seite). Die Folie ist ausgesprochen robust und muss weder gekühlt noch abgedunkelt gelagert werden.

Der Hauptvorteil ist sicherlich die Wiederverwendbarkeit. Wird die Folie nach dem Scanvorgang gelöscht oder ausreichend lange Zeit Tageslicht ausgesetzt, so gehen alle gespeicherten Informationen verloren und man erhält eine unbeschriebene Folie für den nächsten Arbeitsschritt. Die ursprüngliche Folie hatte die Maße 20 cm \times 30 cm. Für die Laue-Aufnahmen wurden Rechtecke von 10 cm \times 13,3 cm herausgeschnitten. Die Funktionsweise der Folie ist die der photostimulierten Lumineszenz. In Abbildung 3.8 ist die Kristallstruktur von $BaFBr : Eu$ dargestellt. Durch die Dotierung mit Europium entstehen Leerstellen im Brom-Gitter, welche als Farbzentren bezeichnet werden und für die besonderen Eigenschaften des Stoffes verantwortlich sind. Für Übergänge zwischen verschiedenen energetischen Zuständen der angeregten Elektronen müssen Auswahlregeln eingehalten werden. So muss der Gesamtdrehimpuls des Systems erhalten bleiben. Das heißt, dass die Multiplizität des angeregten Elektrons sich nicht ändern darf. Unter bestimmten kristallchemischen Voraussetzungen, wie hier, werden diese Regeln jedoch teilweise aufgehoben und ursprünglich verbotene Übergänge werden möglich. Dieser

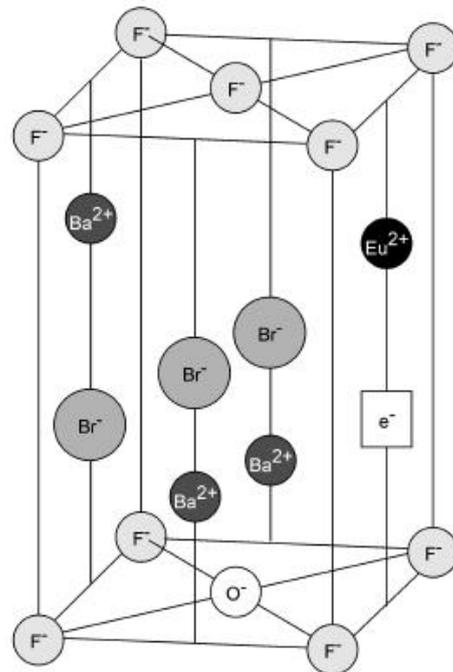


Fig. 3.8: Kristallstruktur von $BaFBr : Eu$; Eu setzt sich an Ba -Stellen und erzeugt Leerstellen im Br -Gitter [Quelle: Prof. C. Blendl, IMP, FH Köln]

⁴ http://www.fujifilm.com/products/medical/products/computed_radiography/imaging_plate_cassette/

Vorgang wird mit Inter System Crossing (ISC) bezeichnet. Im $BaFBr : Eu$ existiert ein Energieniveau, welches ohne Verletzung der Auswahlregeln nicht besetzt werden kann, das sogenannte Farbzentrum. Durch Anregung mit ultravioletter oder Röntgenstrahlung kommt es zu einer Besetzung dieses Niveaus. Es wird auch als Trap bezeichnet, da die angeregten Elektronen aufgrund der Auswahlregeln dort gefangen sind. Das Energieschema des $BaFBr : Eu$ ist in Abbildung 3.9 dargestellt. Durch Röntgeneinstrahlung werden die Elektronen des Europium entweder direkt ins Farbzentrum gehoben oder relaxieren nach Anregung ins Leitungsband in dieses. Die gefangenen Elektronen werden erst durch eine weitere Anregung mit rotem Licht (Wellenlänge $\lambda = 635 \text{ nm}$) in ein metastabiles Niveau des Eu^{3+} gehoben. Aus diesem relaxieren die Elektronen wieder in den Grundzustand unter Emission von blauen Photonen (Wellenlänge $\lambda = 390 \text{ nm}$). Photostimulierte Lumineszenz bezeichnet also das durch Lichteinstrahlung angelegte Nachleuchten des Stoffes.

Für die technische Anwendung eines solchen Stoffes ist es allgemein wünschenswert, dass er eine hohe Röntgenabsorption, eine möglichst hohe Trapping-Rate und eine deutliche spektrale Trennung von anregendem zu emittiertem Licht hat. All diese Eigenschaften werden von $BaFBr : Eu$ bestmöglich erfüllt.

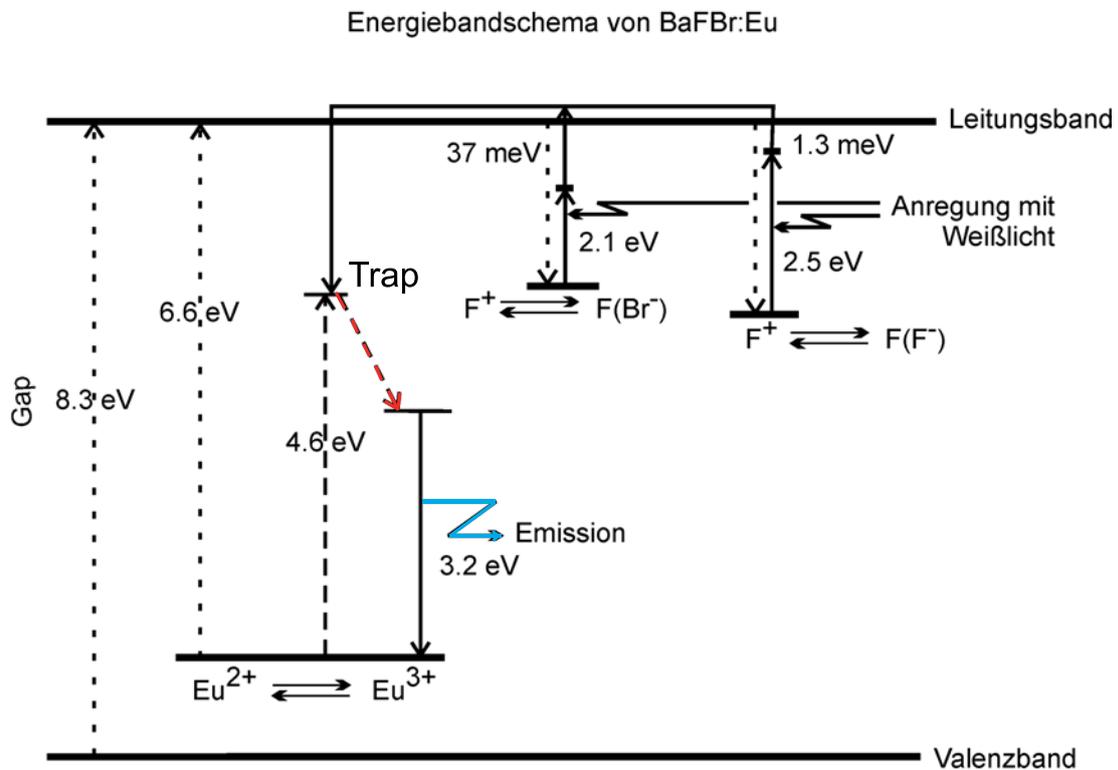


Fig. 3.9: Energieschema $BaFBr : Eu$; Trap bezeichnet das Farbzentrum [Quelle: Prof. C. Blendl, IMP, FH Köln]

3.5 Scanner



Fig. 3.10: Foto des CR 35 Bio in K55

Zum Auslesen der Speicherfolie wurde ein CR 35 Bio Speicherfolienscanner des Herstellers Raytest⁵ angeschafft (siehe Foto 3.10). Seine Funktionsweise ist schematisch in Abbildung 3.11 skizziert. Die belichtete Speicherfolie wird mit der weißen Seite nach unten auf die gewölbte Auflagefläche gelegt und bis zum Anschlag hinein geschoben. Nun wird die Folie durch den Scanner gezogen. Während des Transports rastert ein roter Laser der Wellenlänge $\lambda = 635 \text{ nm}$ die Folie ab und initiiert damit die soeben beschriebene photostimulierte Lumineszenz. Zum Abtasten der Folie wird der Laserstrahl über einen sich schnell drehenden Spiegel abgelenkt. Die emittierten Photonen der Wellenlänge $\lambda = 390 \text{ nm}$ werden in einem Sekundärelektronenvervielfacher (SEV) gesammelt und als digitales Signal an den Computer übermittelt. Zum Ansteuern des CR 35 Bio ist die Software CR-Reader auf dem Laborcomputer installiert. Nach dem Einschalten des Scanners wird empfohlen, unter CR-Config einen Kommunikationstest durchzuführen, da Windows XP den USB-Treiber nicht als Plug and Play unterstützt. Startet man

⁵ <http://www.raytest.com/>

einen Scanvorgang, so öffnet sich ein Fenster, in welchem die Auflösung gewählt werden kann.

Dies entspricht der Feinheit des Abrasterns und kann bis zu einer Pixelgröße von $25 \mu\text{m}$ eingestellt werden. Da die minimale Laserfokussierung vom Hersteller mit $30 \mu\text{m}$ angegeben ist, kann die zusätzliche Auflösung nur durch Interpolation erreicht werden. Beim Erstellen von Laue-Aufnahmen benötigt man aber keine so hohe Auflösung, da die zu beobachtenden Reflexe in der Größenordnung von Millimetern liegen. Zumeist wurde eine Einstellung von $50 \mu\text{m}$ als guter Kompromiss

von Genauigkeit und Scangeschwindigkeit gewählt. Desweiteren kann mit dem Programm CR-Reader eine spezielle Löscheinheit ein- oder abgeschaltet werden, je nachdem ob die Folie danach leer oder die Informationen für einen alternativen Scanvorgang erhalten bleiben sollen. Der hohe Dynamikumfang von 16 bit wird sich bei der Auswertung als äußerst nützlich erweisen.

Bei der Handhabung des CR 35 Bio ist darauf zu achten, dass er im eingeschalteten Zustand nicht bewegt und keinen Erschütterungen ausgesetzt wird. Außerdem kann es zu Problemen kommen, wenn zu viel fremdlicht in den Scanner einfällt. Das Programm wird dann die Arbeit verweigern. Es empfiehlt sich, das Deckenlicht während des Scanvorgangs zu löschen.

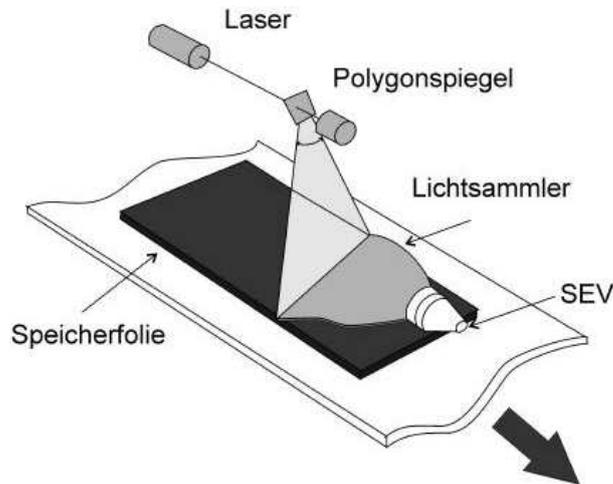


Fig. 3.11: Funktionsprinzip des Raytest CR 35

3.6 AIDA

Nachdem der Scanvorgang beendet wurde, läßt sich direkt im Programm CR-Reader das Bild mit der Software AIDA⁶ öffnen. Dieses Programm wurde mit dem CR 35 Bio Scanner mitgeliefert und ist für die Weiterverarbeitung dieser Daten optimiert. Zum Starten von AIDA muss an dem Computer der zugehörige USB-Dongle angeschlossen sein. Als einen der ersten Arbeitsschritte empfiehlt es sich, die Aufnahme lokal zu speichern. Dabei wird der Datei eine fortlaufende Nummer gegeben, die in das Logbuch der Röntgenanlage mit eingetragen werden kann, um zu einem späteren Zeitpunkt leichter Experimentator, Datum und gewählte Einstellungen einer Aufnahme zuordnen zu können.

Innerhalb des Programms AIDA (siehe Abbildung 3.12) wird für die Auswertung der Reiter „Display Controll“ geöffnet. Hier lässt sich die Aufnahme untersuchen. Durch Rotieren kann die Ausrichtung auf dem Monitor, mit der Position der Folie zum Kristall eingestellt werden. Dabei hilft die erwähnte Aluminiummarkierung einer Ecke bei geeigneter Kontrasteinstellung (nicht auf Bild 3.12 zu sehen). Des Weiteren können mit Hilfe des Histogramms (im Screenshot oben rechts) die verschiedenen Bereiche unterschiedlicher Beleuchtung im Einzelnen untersucht werden. Variiert man den Umfang (Range) der Grauabstufungen, so lassen sich nacheinander Reflexe nah am stark beleuchteten Mittelpunkt und am äußeren Rand beobachten. Eine zusätzliche Hilfe ist die Möglichkeit das Bild zu invertieren, falls es leichter fällt, schwarze Punkte auf weißem Hintergrund auszumachen. Soll die Aufnahme mit den gewählten Einstellungen weiter ausgewertet oder für die eigenen Unterlagen archiviert werden, so lässt sich das gescannte Bild in einem gebräuchlichen Dateiformat (tiff, jpg) exportieren.

⁶ Hersteller ebenfalls <http://www.raytest.com/>

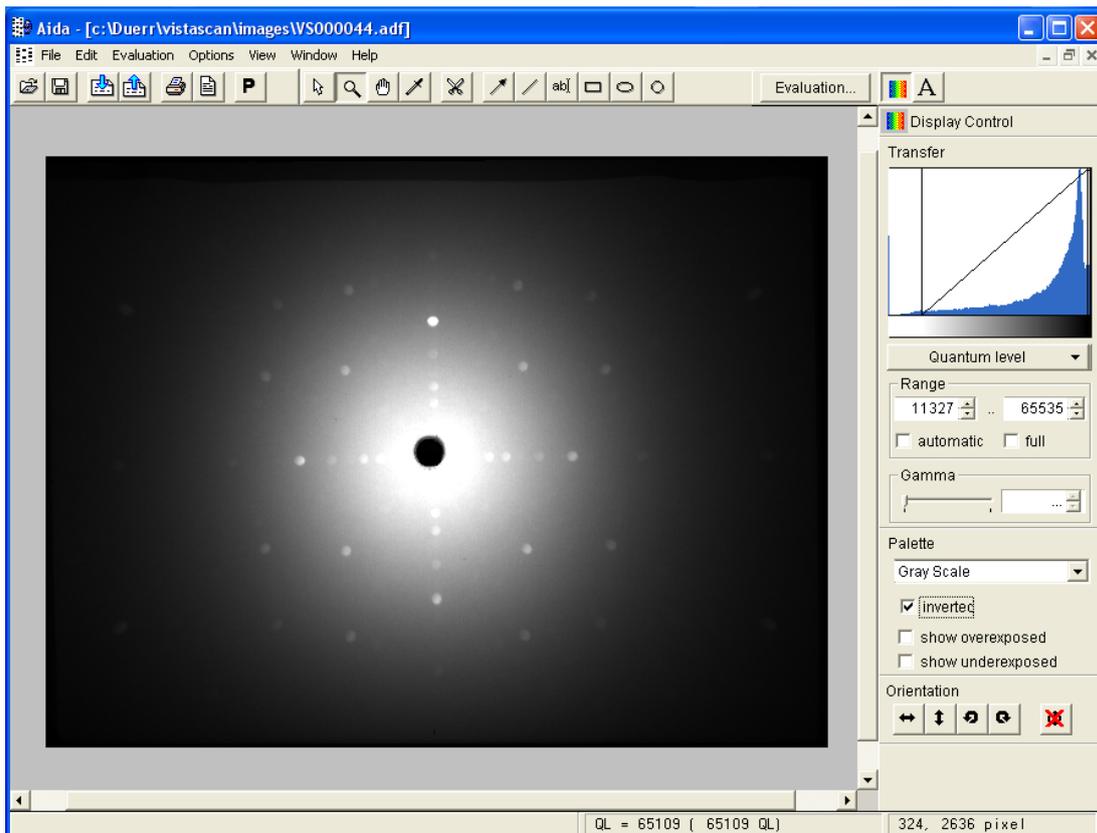


Fig. 3.12: Bearbeitung einer Laue-Aufnahme mit dem Programm AIDA; auf der rechten Seite sind unter Display control die wichtigsten Werkzeuge zusammengefasst

3.7 Cologne Laue Indexation Program

Um das erhaltene Punktmuster des reziproken Gitters einer Orientierung zuzuordnen oder auch um einzelne Reflexe zu benennen, benutzt man klassischer Weise den Laue-Atlas [PKUB74]. In diesem Buch sind alle Laue-Diagramme zu allen Hauptachsen der verschiedenen Bravaisgitter abgebildet. In einfachen Fällen ist es ausreichend durch Vergleichen die gemessene Orientierung zu bestimmen. Für genauere Untersuchungen wurden Laue-Diagramme auf Klarsichtfolien gedruckt. Da diese Methode aber mit einer großen Ungenauigkeit behaftet ist (z.B. berücksichtigt sie nicht die Skalierung bei unterschiedlichen Größen der Aufnahme oder den Abstand von Kristall und Schirm) und die Bildinformation nun digital auf einem Computerbildschirm vorliegen, bietet es sich an eine geeignete Softwarelösung heranzuziehen.

Die Software Cologne Laeue Indexation Program, kurz Clip⁷, ersetzt den Laue-Atlas. Die erstellten Laueaufnahmen lassen sich in einem Fenster zur Analyse öffnen. Entweder kennt man die Kristallklasse, Winkel und Achsenabschnitte des Kristalls und kann die Informationen mit dem Bild abgleichen oder man identifiziert eine Orientierung in dem man einige markante Reflexe für eine Zuordnung durch das Programm markiert. Wichtig ist es den Abstand von Kristall und Schirm hier einzutragen. Desweiteren können Verkippungen der Bildebene eingestellt werden. Da diese durch den neuen Aufbau aber weitestgehend auszuschließen sind, treten nur kleine Winkel auf.

Der Vorteil einer Orientierungsbestimmung mit Clip wird deutlich, wenn das vermutete Diagramm per Mausbewegung deckungsgleich zum Punktmuster gebracht wird und die Software die zugehörigen Daten ausgibt. Ein Beispiel, wie eine Bestimmung mit Hilfe von Clip aussehen kann, ist in Abbildung 3.13 zu sehen.

Für eine detaillierte Bedienungsanleitung soll auf die umfangreiche Beschreibung der Software vom Hersteller verwiesen werden.

⁷ <http://clip.berlios.de/>

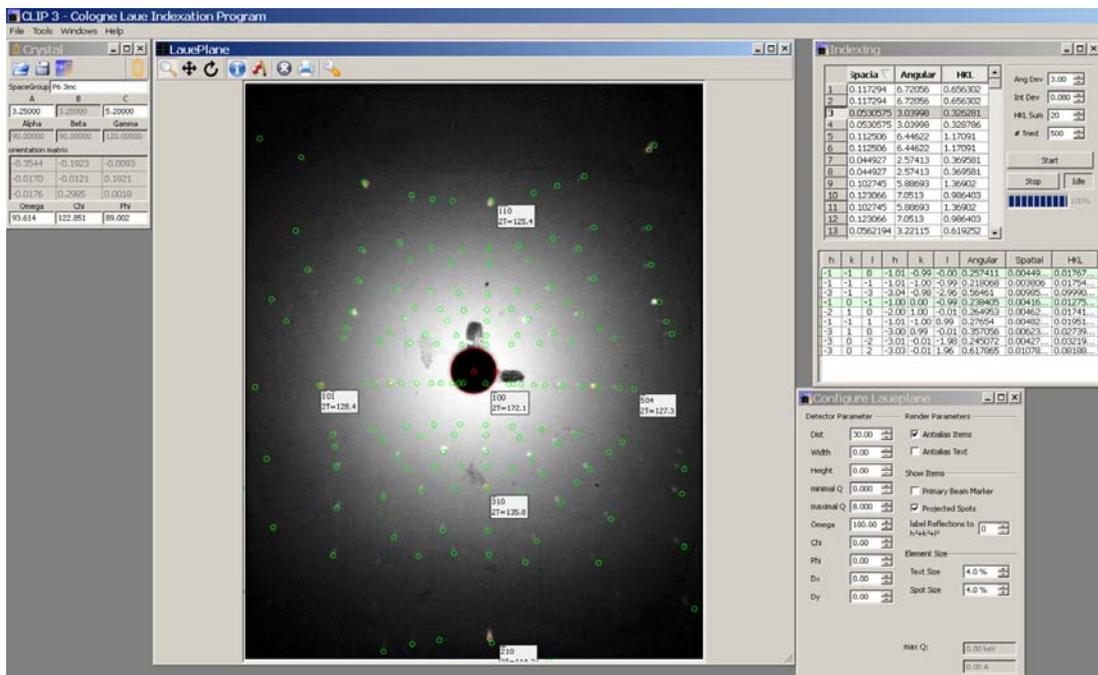


Fig. 3.13: Beispiel einer Auswertung von ZnO mit dem Programm Clip; im Bild wurden einige Reflexe zugeordnet, im oberen rechten Fenster werden berechnete Winkel und Abstände der Ebenen ausgegeben

4. Messungen

Während der gesamten Zeit des Umbaus der Anlage wurden weiterhin Messungen durchgeführt. Dies hat zum Ergebnis, dass nicht alle Aufnahmen des letzten Jahres von gleicher Qualität sind. So finden sich Aufnahmen in denen Randbereiche deutlich stärker absorbiert sind, da dort gut zu erkennen ein Klebestreifen verläuft. Hier sollen lediglich zwei ganz unterschiedliche Messungen kurz vorgestellt werden, um die Leistungsfähigkeit und Vielseitigkeit des neuen Aufbaus zu demonstrieren.

4.1 Orientierung von Co_3TeO_6

Frau Diplomphysikerin Vera Carolus hat einen Co_3TeO_6 Kristall mit Ausmaßen von nur wenigen mm orientiert. Der monokline Kristall der C_c^2 Raumgruppe hatte eine raue Oberfläche und sollte in Ausrichtung seiner Achsen zugeschnitten bzw. poliert werden. Zum Befestigen wurde die Halterung aus Abbildung 3.4 benutzt. Das Verfahren zum schrittweise Orientieren eines vollständig un- ausgerichteten Kristalls wurde laut den Anweisungen im Laue-Atlas [PKUB74] durchgeführt. Hierfür wird eine beliebige Aufnahme erstellt. Anschließend sucht man einen Punkt hoher Symmetrie, das heißt einen Reflex an dem sich zwei ausgeprägte Linien von Reflexen schneiden (siehe 4.1). Ein besonders heller Reflex ist zu bevorzugen, da dieser vermutlich zu einer Ebene kleiner Millerindizes gehört. Aufgrund der Bauweise des gewählten Goniometers, muss der gewünschte Punkt zuerst mit einer Drehung um den Winkel ϕ auf die gleiche Höhe, wie der Mittelpunkt gebracht werden. Anschließend bewegt man den angewählten Reflex mit einer Drehung um die zweite Achse des Goniometers bis ins Zentrum. Dabei kann es schnell passieren, dass der kleine Kristall nicht mehr im Strahlengang liegt und nachjustiert werden muss. Die Bildausschnitte A-D der Abbildung 4.1 illustrieren, den hier beschriebenen Vorgang.

Das Ergebnis zeigt eine Ausrichtung in $\langle 010 \rangle$ -Richtung. Die vollständigen Aufnahmen ohne eingezeichneten Hilfslinien finden sich im Anhang unter A.4, A.5, A.6 und A.7.

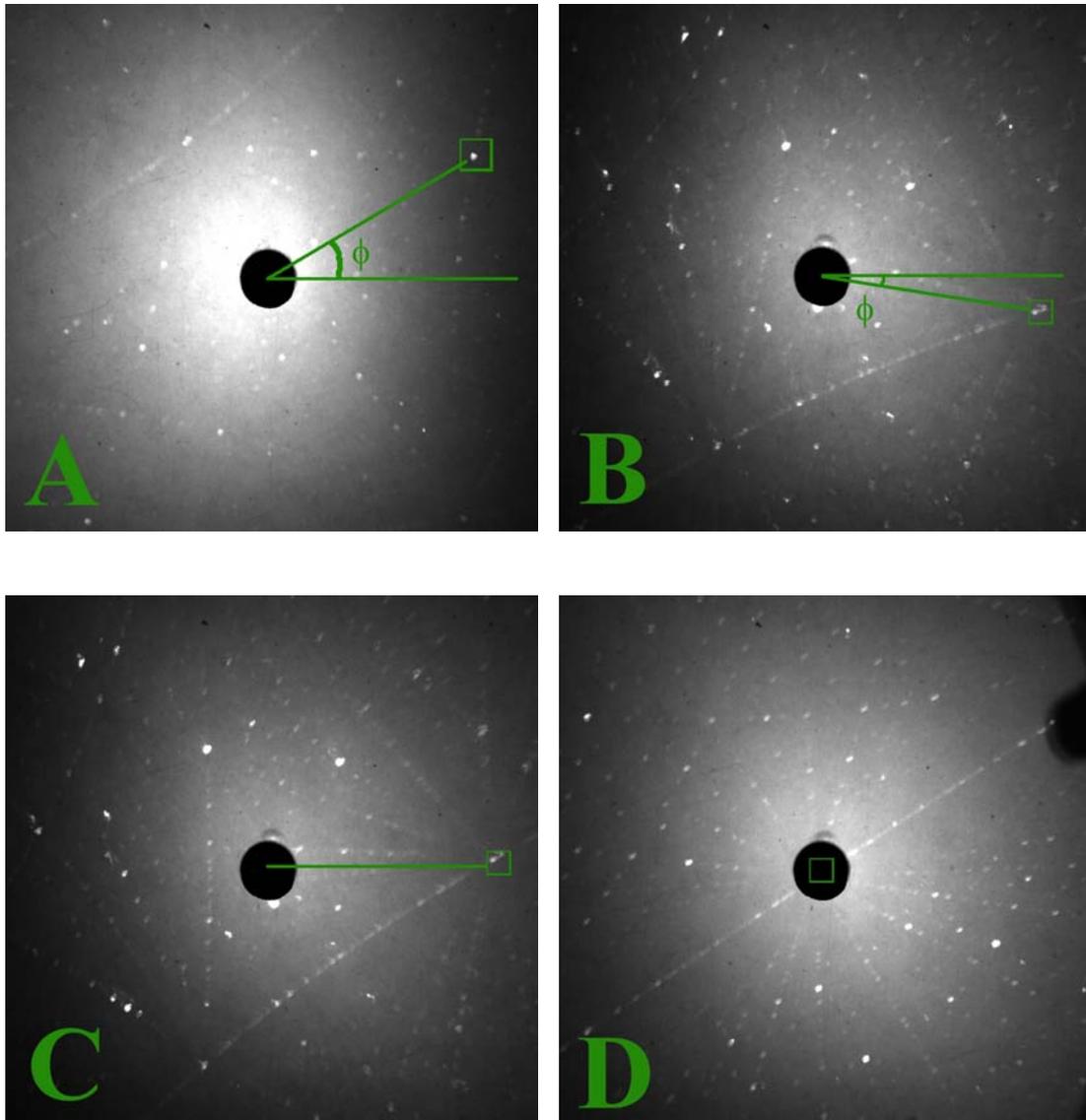


Fig. 4.1: Orientierung von Co_3TeO_6 ; Die Aufnahme A entstand als erstes: der mit einem grünen Viereck markierte Reflex soll in die Mitte gedreht werden, dafür muss um den Winkel ϕ rotiert werden; In Bild B wurde der Reflex über die Horizontale hinaus gedreht; In Bild C hat man eine mittige Position und muss nun den Abstand zur Mitte durch die Verkipfung mit dem Winkel θ korrigieren; In Bild D blickt man in Richtung einer Achse.

4.2 Szintigraphie mit ^{111}In

Aufgrund der Eigenschaft der Speicherfolie für Strahlung bis zu Energien von 100 keV sensitiv zu sein, eignet sie sich auch zur Erstellung von Szintigrammen. Dieses Bildgebungsverfahren aus der Medizin gehört zu den Hauptanwendungsgebieten des CR 35 Bio und der Speicherfolie neben der Kristallographie.

Unter Szintigraphie versteht man die Detektion ionisierender Strahlung auf einer Bildplatte. Dabei ist der Ursprung der ionisierenden Strahlung innerhalb eines größeren Körpers und es ergibt sich ein Abbild der örtliche Verteilung. Neben den medizinischen Anwendungsmöglichkeiten ist es auch in der Physik von Interesse die Verteilung einer Aktivität zu kennen. So wurden Galliumnitridproben für Messungen mit gestörten γ - γ -Winkelkorrelation mit dieser Methode auf die Verteilung des implantierten Indiums untersucht. Frau Dr. Lena Jentjens hat im Rahmen ihrer Doktorarbeit flüssiges Indiumchlorid über einen Ring in Lithiumniobat-Kristalle diffundieren lassen. Abbildung 4.2 zeigt dieses Szintigramm, auf dem deutlich die Form des Ringes zu erkennen ist. Der Kristall selbst war rechteckig.

Um ein solches Szintigramm zu erstellen, wurde die Speicherfolie mit der weißen Seite nach oben auf einen stabilen Untergrund gelegt. Darüber wurde eine Cellophanfolie gespannt, um unerwünschte Verunreinigungen zu verhindern und ein weiteres Diffundieren der Aktivität in die Speicherfolie auszuschliessen. Die Schutzfolie wurde faltenfrei gespannt, um optische Verzerrungen durch unebenes Aufliegen zu vermeiden. Über die Probe und den gesamten Schirm wurde ein lichtdichter Karton gestülpt. Dieser sollte ein zeitgleiches Löschen der Speicherfolie durch Tageslicht verhindern. Als Belichtungsdauer wurde für die verschiedenen Aufnahmen, die gemacht wurden, zwischen einer Stunde und einem Tag variiert. Ein längeres Belichten brachte keine Verbesserung, aufgrund der geringen Aktivität und einer Halbwertszeit des ^{111}In von $t_{1/2} = 2,81$ Tagen. Natürlich muss der Arbeitsplatz in einem dafür zugelassenen Labor gesichert und entsprechend gekennzeichnet werden.

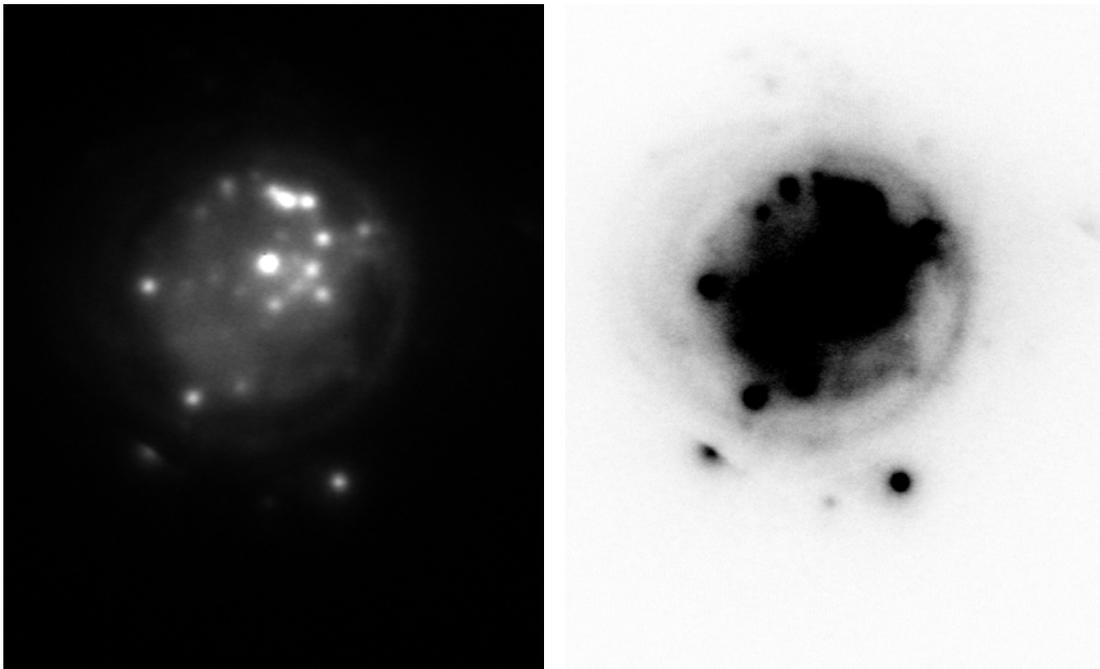


Fig. 4.2: Szintigramm von LiNbO_3 mit Indium (links invertiert); an den hellen Punkten hat sich besonders viel Aktivität abgelagert; außerhalb des Rings ist keine Aktivität zu erkennen

5. Zusammenfassung

Abschließend lässt sich festhalten, dass in jedem Bereich der Anlage, an dem gearbeitet wurde, eine Verbesserung erzielt wurde. Die Ausbeute der Röntgenstrahlung wurde durch Justieren optimiert (siehe Abschnitt 3.1.1). Die Positionierung der Probe ist im Sinne des Strahlenschutzes sicherer geworden (siehe Abschnitt 3.3) und für den Experimentator bequemer.



Fig. 5.1: Foto der Anlage zur Kristallorientierung mit Hilfe des Laue-Verfahrens aus Labor K55

Am wichtigsten ist aber mit Sicherheit die verbesserte Qualität der neuen Aufnahmen und die Geschwindigkeit, mit der diese erstellt werden können. So wurde zum Beispiel die komplette Orientierung aus Abschnitt 4.1 innerhalb von nur wenigen Stunden eines Nachmittags durchgeführt, wobei noch mehr Aufnahmen gemacht wurden, als die in dieser Arbeit präsentierten. Der Umgang mit der Speicherfolie ist im Vergleich zum Fotofilm einfacher und weniger fehleranfällig. Die digitale Aufbereitung und Nachbearbeitung der Laue-Aufnahmen vereinfacht die Auswertung erheblich. Außerdem besteht die Möglichkeit Szintigramme (Abschnitt 4.2) mit der neuen Anlage zu erstellen.

Anhang

A. Tabellen und Bilder

Die 230 Raumgruppen (mit Kristallsystemen, Punktgruppen, Bravaisgittertypen)

Kristallsystem	Punktgruppe	Gitterkonstanten	Bravaisgittertypen				Blickrichtung			Raumgruppen
			P x, y, z	C x, y, z $x + \frac{1}{2}, y + \frac{1}{2}, z$	I x, y, z $x + \frac{1}{2}, y + \frac{1}{2}, z + \frac{1}{2}$	F x, y, z $x + \frac{1}{2}, y + \frac{1}{2}, z$ $x + \frac{1}{2}, y, z + \frac{1}{2}$ $x, y + \frac{1}{2}, z + \frac{1}{2}$	1.	2.	3.	
triklin	1	$a \neq b \neq c$					-	-	-	P1
	$\bar{1}$	$\alpha \neq \beta \neq \gamma \neq 90^\circ$								$P\bar{1}$
monoklin	2	$a \neq b \neq c$					[010]	-	-	P2, P2 ₁ , C2
	m 2/m	$\alpha = \gamma = 90^\circ$ $\beta \neq 90^\circ$								Pm, Pc, Cm, Cc P2/m, P2 ₁ /m, C2/m, P2/c, P2 ₁ /c, C2/c
orthorhomb	222	$a \neq b \neq c$					[100]	[010]	[001]	P222, P222 ₁ , P2 ₁ 2 ₁ 2, P2 ₁ 2 ₁ 2 ₁ , C222 ₁ , C222, F222, I222, I2 ₁ 2 ₁ 2 ₁ , Pmm2, Pmc2 ₁ , Pcc2, Pma2 ₁ , Pca2 ₁ , Pnc2 ₁ , Pmn2 ₁ , Pba2, Pna2 ₁ , Pnn2, Cmm2, Cmc2 ₁ , Ccc2, Amm2, Abma, Ama2, Aba2, Fmm2, Fdd2, Imm2, Iba2, Ima2
	mm2	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$								
bisch	mmm									Pmmm, Pnmm, Pccm, Pban, Pmma, Pnna, Pmna, Pcca, Pbam, Pccn, Pbcm, Pnmn, Pmnn, Pbcn, Pbca, Pnma, Cmcm, Cmca, Cmmm, Cccm, Cmma, Ccca, Fmmm, Fddd, Immm, Ibam, Ibca, Imma
tetragonal	4	$a = b \neq c$					[001]	[100]	[110]	P4, P4 ₁ , P4 ₂ , P4 ₃ , I4, I4 ₁
	$\frac{4}{m}$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$						[010]	[$\bar{1}10$]	P4, I4
	422									P4/m, P4 ₂ /m, P4/n, P4 ₂ /n, I4/m, I4 ₁ /a
	4mm									P422, P4 ₂ 2 ₂ , P4 ₁ 22, P4 ₁ 2 ₁ 2, P4 ₂ 22, P4 ₂ 2 ₁ 2, P4 ₃ 22, P4 ₃ 2 ₁ 2, I422, I4 ₁ 22
	4m									P4mm, P4bm, P4 ₂ cm, P4 ₂ nm, P4cc, P4nc, P4 ₂ mc, P4 ₂ bc, I4mm, I4cm, I4 ₁ md, I4 ₁ cd
	4/mmm									P4 ₂ m, P4 ₂ c, P4 ₂ m, P4 ₂ 1c, P4 ₂ m2, P4 ₂ c2, P4 ₂ b2, P4 ₂ n2, I4 ₂ m2, I4 ₂ c2, I4 ₂ m, I4 ₂ d
trigonal	3	$a = b = c$					[111]	[110]	-	P3, P3 ₁ , P3 ₂ , R3
	$\bar{3}$	$\alpha = \beta = \gamma \neq 90^\circ$						[011]		P3, R3
	32							[101]		P312, P321, P3 ₁ 12, P3 ₂ 12, P3 ₂ 21, R32
	3m									P3m1, P31m, P3c1, P31c, R3m, R3c
hexagonal	6	$a = b \neq c$					[001]	[100]	[110]	P6, P6 ₁ , P6 ₅ , P6 ₃ , P6 ₂ , P6 ₄
	$\frac{6}{m}$	$\alpha = \beta = 90^\circ$ $\gamma = 120^\circ$						[010]	[120]	P6
	622							[110]	[210]	P6/m, P6 ₃ /m
	6mm									P622, P6 ₁ 22, P6 ₅ 22, P6 ₂ 22, P6 ₄ 22, P6 ₃ 22
	6m									P6mm, P6cc, P6 ₃ cm, P6 ₃ mc P6m2, P6c2, P62m, P62c
	6/mmm									P6/mmm, P6/mcc, P6 ₃ /mcm, P6 ₃ /mmc
kubisch	23	$a = b = c$					[100]	[111]	[110]	P23, F23, I23, P2 ₁ 3, I2 ₁ 3
	m3	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$					[010]	[$\bar{1}11$]	[010]	Fm3, Pn3, Fm3, Fd3, Im3, Pa3, Ia3
	432						[001]	[$\bar{1}11$]	[101]	P432, P4 ₂ 32, F432, F4 ₁ 32, I432, P4 ₃ 32, P4 ₁ 32, I4 ₁ 32
	43m							[$\bar{1}11$]	[110]	F43m, F43m, I43m, F43n, F43c, I43d
	m3m							[011]	[101]	Fm3m, Pn3n, Pm3n, Pn3m, [101] Fm3m, Fm3c, Fd3m, Fd3c, Im3m, Ia3d

Fig. A.1: Tabelle der Raumgruppen [Quelle: Chemieskript Uni Freiburg]

Höhe [mm]	Winkel [°]	Total [#]	Netto (ohne Untergrund)
89	5.64	116734	110414
90	5.3	251972	237341
91	4.94	259048	244248
92	4.59	245875	232975
93	4.24	240266	226246
94	3.88	237227	223047
95	3.53	146548	138368
96	3.18	52040	49010

Fig. A.2: Messwerte der Röntgenfluoreszenzanalyse

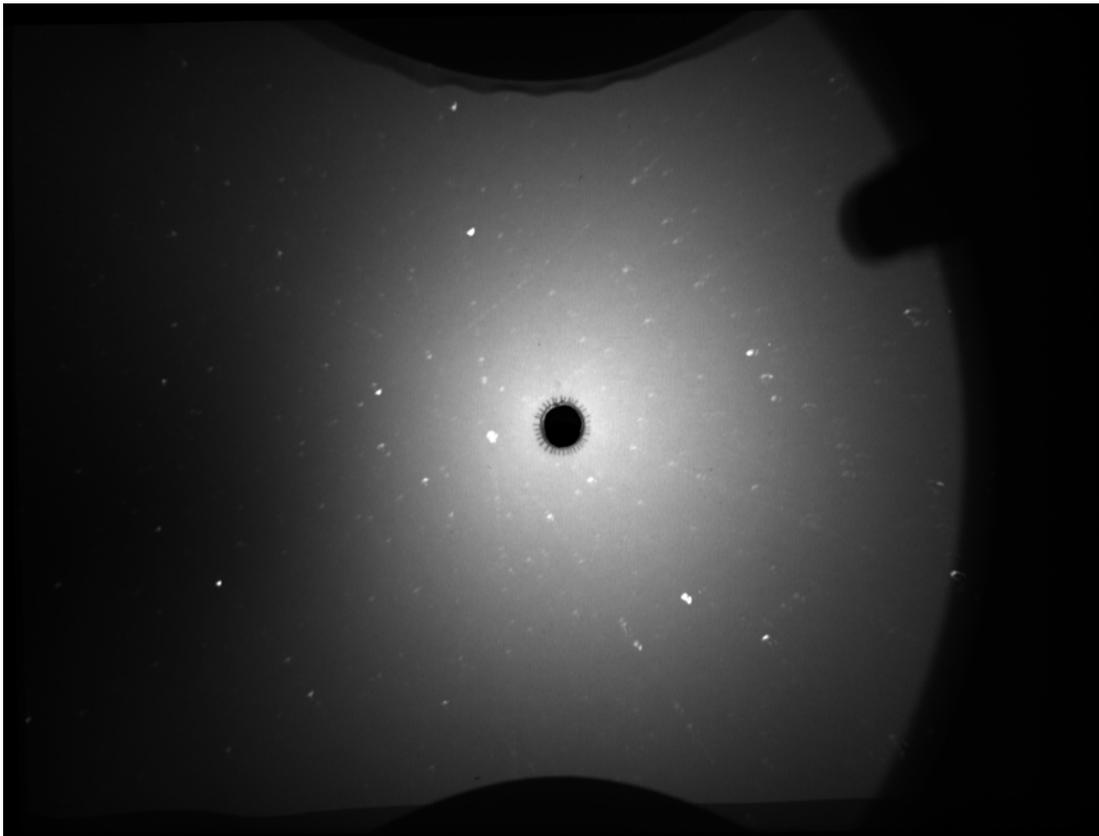


Fig. A.3: Laue-Aufnahme mit Schatten einer Feststellschraube des Goniometers

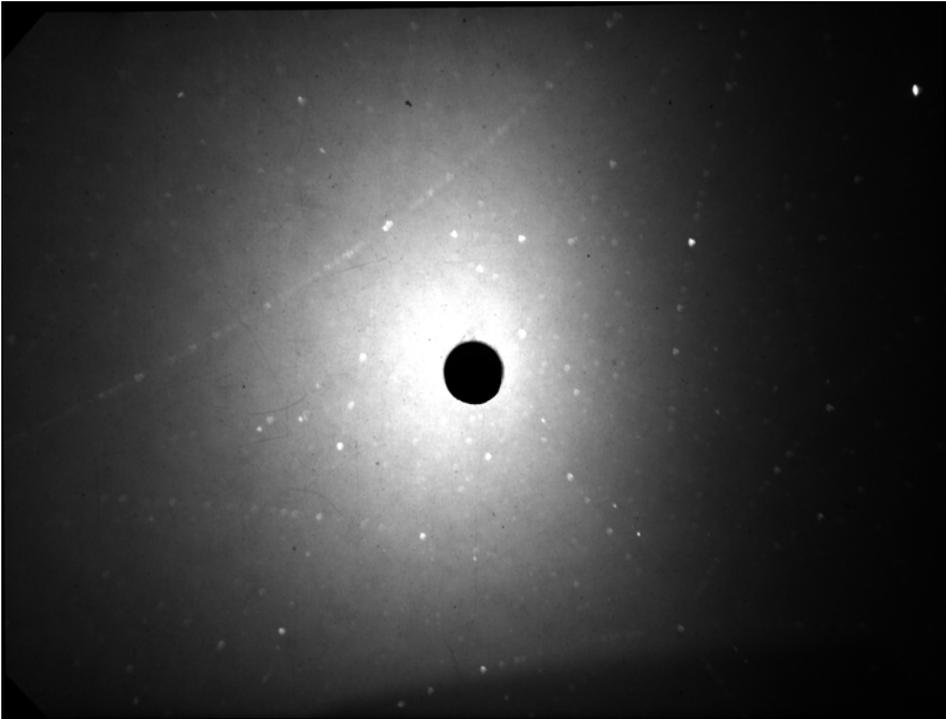


Fig. A.4: Orientierung Schritt 1

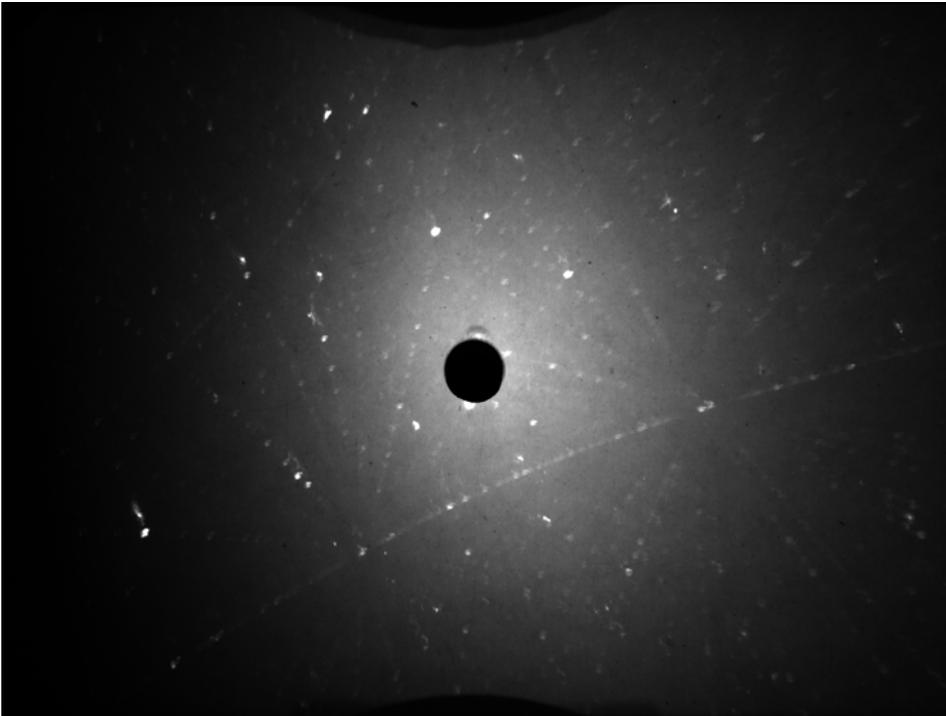


Fig. A.5: Orientierung Schritt 2

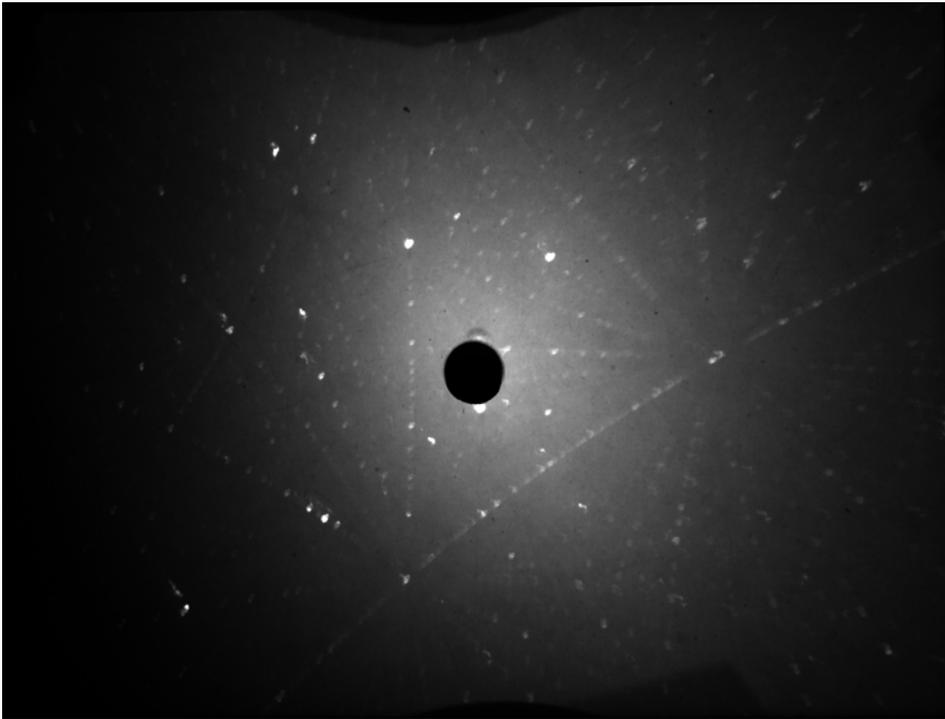


Fig. A.6: Orientierung Schritt 3

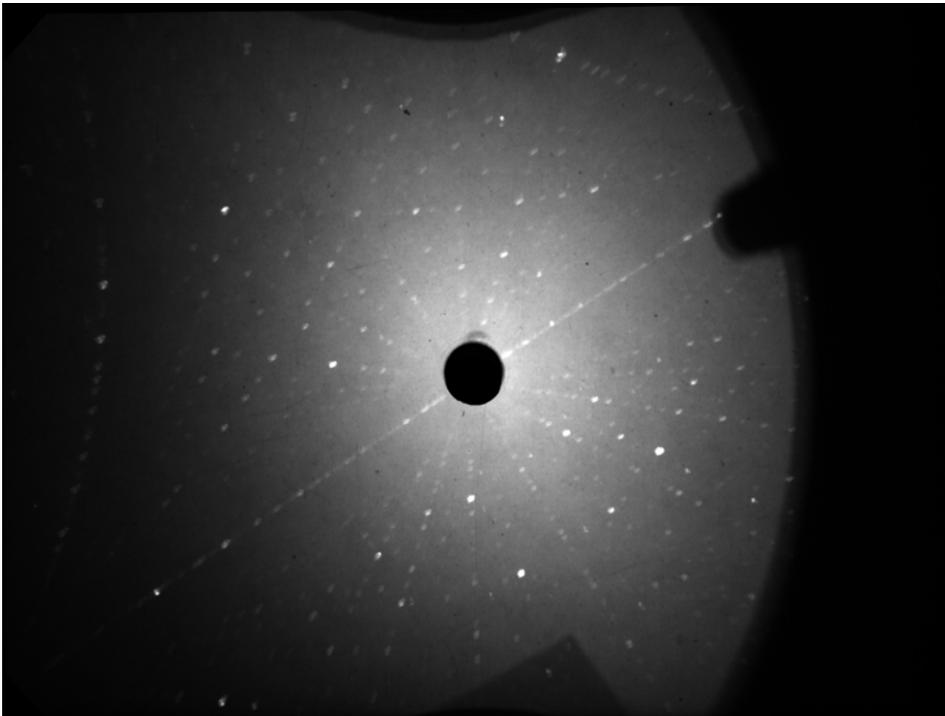


Fig. A.7: Orientierung Schritt 4

Abbildungsverzeichnis

2.1	Die 14 Bravaisgitter	5
2.2	Darstellung der Lauebedingung an einer Atomreihe	7
2.3	Konstruktive Interferenz auf Lauekegeln	7
2.4	Braggsches Gesetz	8
2.5	Geometrische Darstellung der Braggschen Gleichung	10
2.6	Stereographische Projektion	11
2.7	Skizze zum Aufbau des Rückstrahlverfahrens nach Laue	12
2.8	Konstruktion des reziproken Gitters	13
3.1	Röntgenspektrum des Wolframs	16
3.2	Intensität für verschiedene Neigungen der optischen Bank	17
3.3	Goniometer mit motorbetriebener Ansteuerung	18
3.4	Goniometer mit Zählwerk für Winkeleinstellungen	19
3.5	Folienrahmen	20
3.6	Prinzip der Positionierungshilfe	21
3.7	Schaltplan der Laser	21
3.8	Kristallstruktur von $BaFBr : Eu$	22
3.9	Energieschema $BaFBr : Eu$	23
3.10	Foto des CR 35 Bio in K55	24
3.11	Funktionsprinzip des Raytest CR 35	25
3.12	AIDA	27
3.13	ZnO mit Clip	29
4.1	Orientierung von Co_3TeO_6	32

4.2	Szintigramm von LiNbO_3 mit Indium	34
5.1	Foto der Anlage	35
A.1	Tabelle der Raumgruppen [Quelle: Chemieskript Uni Freiburg] . .	40
A.2	Messwerte der Röntgenfluoreszenzanalyse	41
A.3	Laue-Aufnahme mit Schatten einer Feststellschraube des Goniometers	41
A.4	Orientierung Schritt 1	42
A.5	Orientierung Schritt 2	42
A.6	Orientierung Schritt 3	43
A.7	Orientierung Schritt 4	43

Literaturverzeichnis

- [BW77] M.J. Buerger and M. Weber. *Kristallographie: eine Einführung in die geometrische und röntgenographische Kristallkunde*. Gruyter - de Gruyter Lehrbücher. Walter de Gruyter, 1977.
- [Mar76] Hartmut Martin. Aufnahme und Auswertung von Laue - Diagrammen zur Untersuchung der Orientierung und Güte von Einkristallen. Staatsexamensarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 1976.
- [PKUB74] E. Preuss, B. Krahl-Urban, and R. Butz. *Laue Atlas: plotted-reflection patterns of the elements and compounds RX and RX₂*. Ed. by Kernforschungsanlage Jülich. Bertelsmann, 1974.

B. Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Privatdozent Dr. Reiner Vianden für die Möglichkeit diese Diplomarbeit anfertigen zu können und für die ausgezeichnete Betreuung. Desweiteren möchte ich mich bei Privatdozentin Dr. Elisabeth Soergel für die Übernahme des Koreferats herzlichst bedanken.

Vielen Dank an die gesamte Arbeitsgruppe Nukleare Festkörperphysik: Marius Arenz, Pavel Cojocaru, Valentin Germic, Thomas Gerschke, Sahar Hamidi, Christian Karrasch, Patrick Keßler, Krystyna Müller, Jakob Penner, Maqsud Rasulbayev, Nicole Santen, Dirk Schwarze, Ronnie Simon, Michael Steffens und Riccardo Valentini. Ein jeder hat durch seine Hilfe einen Anteil zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Ich möchte mich auch an dieser Stelle bei den vielen Abteilungen des Instituts, wie Feinwerkstatt, Elektroniklabor und Sekretariat für die freundliche Unterstützung bedanken.

Auch den Mitgliedern aus anderen Arbeitsgruppen möchte ich meinen Dank für die gute Zusammenarbeit und die hilfreichen Kommentare aussprechen. Besonders zu erwähnen sind hier Vera Carolus und Mathieu Gentile.

Zuletzt möchte ich mich noch bedanken, bei Kerstin Enders-Brehm, die mich während meines gesamten Studiums unterstützt und diese Arbeit bis zur letzten Minute Korrektur gelesen hat.