

FORTGESCHRITTENENPRAKTIKUM

RS – RÖNTGENSPEKTREN

Versuchsbeschreibung

Einführung

Eine Vielzahl von Effekten und daraus abgeleiteten experimentellen Messmethoden in der Atom-, Molekül- und Festkörperphysik beruhen auf der Emission von Röntgenphotonen infolge unterschiedlichster Anregungsprozesse sowie der Wechselwirkung einer anregenden Röntgenstrahlung mit Materie. Für viele dieser Prozesse und Methoden ist eine Analyse der spektralen Zusammensetzung der Strahlung erforderlich, da diese die wesentlichen Informationen über die Wechselwirkung und damit implizit auch die physikalische Natur der wechselwirkenden Materie enthält. Im Versuch werden exemplarisch das Spektrum einer Röntgenröhre und die Wechselwirkung der in der Röhre erzeugten Röntgenstrahlung mit Materie (Photoabsorption und Streuung) untersucht. Weiterhin werden verschiedene Möglichkeiten der Detektion von Röntgenstrahlung sowie die spezielle Methode der Röntgenspektralanalyse behandelt.

Grundlagen

Erzeugung von Röntgenstrahlung mit Röntgenröhren

Röntgenstrahlung bildet gemeinsam mit der γ -Strahlung den kurzwelligen Teil des elektromagnetischen Spektrums. Der Wellenlängenbereich von Röntgenstrahlung erstreckt sich circa von $0,1 \text{ \AA}$ bis 100 \AA ($1 \text{ \AA} = 0,1 \text{ nm}$). Über die Planck-Relation

$$\lambda[\text{\AA}] = \frac{hc}{E} = \frac{12,398}{E[\text{keV}]}$$

lässt sich der Wellenlänge eine entsprechende Photonenenergie zuordnen. Die Charakteristik eines Röntgenemissionsspektrums hängt von der Art der Anregung ab. Erfahren geladene Teilchen eine Abbremsung oder eine Beschleunigung (z. B. beim Umlauf relativistischer geladener Teilchen auf einer gekrümmten Bahn – Synchrotronstrahlung), so entsteht ein kontinuierliches Spektrum. Werden Atome durch Teilchenstoß oder durch Photoabsorption angeregt oder gar ionisiert, kommt es zur Emission eines für die angeregte Atomsorte charakteristischen Linienspektrums. Das in einer Röntgenröhre erzeugte Emissionsspektrum setzt sich zusammen aus einem kontinuierlichem Anteil (Bremspektrum) und der charakteristischen Strahlung des Anodenmaterials. Weiterhin treten im Spektrum Absorptionskanten auf. Das charakteristische Linienspektrum entsteht infolge der Abregung angeregter Atome in der Anode (Röntgenfluoreszenz, siehe dazu Abschnitt „Photoabsorption, Absorptionskanten, Röntgenfluoreszenz und Auger-Effekt“). Die Anregung erfolgt hierbei primär durch Elektronenstoß, zum Teil aber auch durch Reabsorption von bereits in der Anode erzeugten Röntgenphotonen (Photoabsorption). Das Bremspektrum entsteht durch Abbremsung der Elektronen im Anodenmaterial. Dabei erfahren diese eine negative Beschleunigung, welche nach den Gesetzmäßigkeiten der klassischen Elektrodynamik zur Abstrahlung elektromagnetischer Wellen führt. Die kurzwellige Grenze dieses kontinuierlichen Spektrums lässt sich berechnen. Dazu nimmt man an, dass das Elektron seine gesamte kinetische Energie $E_e = eU$ (e...Elementarladung, U...Anregungsspannung der Röntgenröhre), welche es nach der Beschleunigung im elektrischen Feld der Röntgenröhre besitzt, an ein Röntgenquant abgibt (Duane-Hunt'sches Gesetz):

$$E_e = h\nu_{\max} \Rightarrow \lambda_{\min} = \frac{hc}{eU}$$

Für die Abhängigkeit der Gesamtintensität I_B des Bremsspektrums von den Betriebsparametern der Röntgenröhre (Anregungsspannung U , Röhrenstrom i) und der Ordnungszahl des Anodenmaterials Z gilt:

$$I_B \sim iU^2Z.$$

Typischerweise werden mehr als 99 % der elektrischen Röhrenleistung als Wärme im Anodenmaterial freigesetzt, d. h. der Wirkungsgrad bezüglich der Bremsstrahlintensität $\eta = I_B/iU$ ist extrem gering.

Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie

Beim Durchdringen von Materie werden Röntgenstrahlen gemäß dem Lambert-Beerschen Schwächungsgesetz

$$I = I_0 e^{-\mu d}$$

geschwächt. Dabei sind I die Strahlungsintensität nach der Schwächung, I_0 die einfallende Strahlungsintensität, d die Schichtdicke des Absorbers und μ der lineare Schwächungskoeffizient. Der lineare Schwächungskoeffizient ist abhängig vom Absorbermaterial und der Energie der einfallenden Röntgenstrahlung. Die Schwächung beruht dabei im Wesentlichen auf der Wechselwirkung der Röntgenstrahlen mit den Elektronen der Atomhülle. Hierbei unterscheidet man drei Mechanismen: die Photoabsorption, die kohärente Streuung (Thomsonstreuung) und die inkohärente Streuung (Comptonstreuung). Eine prinzipiell auftretende vierte Art der Wechselwirkung, die Paarbildung, ist für Röntgenstrahlung nicht relevant, da hierzu Energien über 1 MeV vonnöten sind. Zusammengefasst lässt sich der lineare Schwächungskoeffizient also ausdrücken als

$$\mu = \mu_{photo} + \mu_{thomson} + \mu_{compton}.$$

Photoabsorption, Absorptionskanten, Röntgenfluoreszenz und Auger-Effekt

Bei der Photoabsorption werden Elektronen aus dem Atomverband herausgeschlagen, wenn die zugeführte Photonenenergie größer als die Bindungsenergie (Ionisierungsenergie) des betreffenden Elektrons ist. In Röntgenabsorptionsspektren ist dieser Effekt in Form von Absorptionskanten direkt sichtbar. Diese entstehen dann, wenn die Energie der Röntgenquanten die Ionisierungsenergie bestimmter Schalen eines Absorbers (Anodenmaterial, Luft etc.), welcher sich im Strahlengang befindet, überschreitet (siehe Abbildung 1).

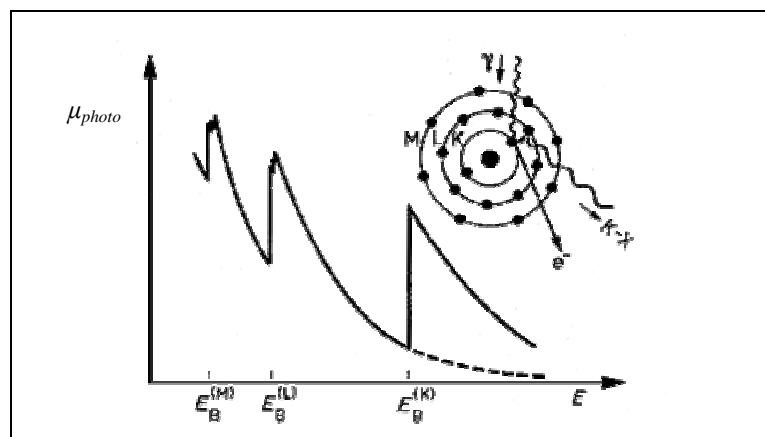


Abbildung 1: Prinzipieller Verlauf des Beitrags der Photoabsorption zum linearen Schwächungskoeffizienten für Röntgenphotonen der Energie E ($E_B^{(K)}$... Ionisierungsenergie der K -Schale).

Wird ein Elektron aus einer inneren Schale herausgeschlagen (z. B. infolge der Photoabsorption oder eines Elektronenstoßes in der Röntgenröhre), so befindet sich das Atom in einem angeregten Zustand, aus welchem es unter Energieabgabe wieder in den Grundzustand übergehen kann. Hierbei sind zwei Arten der Abregung möglich. Dies sind zum einen die Aussendung eines charakteristischen Röntgenfluoreszenzphotons und zum anderen die Emission eines Auger-Elektrons. Fällt ein Elektron von einem höherenergetischen Zustand in die entstandene Lücke auf einer unteren Schale (niederenergetischer Zustand), so wird im Falle der

Fluoreszenzabregung die Energiedifferenz der am Übergang beteiligten Zustände vollständig an das Fluoreszenzphoton abgegeben ($\Delta E = h\nu$). Die emittierte Fluoreszenzstrahlung ist charakteristisch für das jeweilige Element sowie für den jeweiligen Energieübergang innerhalb der Atomhülle. In erster Näherung folgt sie dem Gesetz von Moseley, welches den Zusammenhang zwischen Strahlungsenergie $h\nu$, Ordnungszahl Z des Elements sowie den Hauptquantenzahlen n_i der beteiligten Schalen empirisch beschreibt:

$$h\nu = Ry \cdot hc (Z - \sigma)^2 \left(\frac{1}{n_1^2} - \frac{1}{n_2^2} \right)$$

Hierbei sind Ry die Rydberg-Konstante und σ die Abschirmungskonstante. Die quantenmechanische Beschreibung der im Atom gebundenen Elektronen führt zu einer Aufspaltung (Spin-Bahn-Wechselwirkung) der energetischen Zustände, welche quantenmechanisch korrekt neben der Hauptquantenzahl n noch durch die Nebenquantenzahl l und die Spinquantenzahl s (bzw. die Gesamtdrehimpulsquantenzahl j) beschrieben werden. Aus der Betrachtung der quantenmechanischen Übergangswahrscheinlichkeiten ergibt sich, dass Elektronen nicht von einem beliebigen Zustand großer Energie zu einem Zustand niedriger Energie übergehen können. Es gelten Auswahlregeln für Energie, Bahndrehimpuls und Gesamtdrehimpuls:

$$\Delta n \geq 1 \quad \text{und} \quad \Delta l = \pm 1 \quad \text{und} \quad \Delta j = \Delta(l + s) = 0, \pm 1 \quad (\text{Übergang } j=0 \rightarrow j=0 \text{ ist verboten}).$$

Die allgemein übliche, historische Nomenklatur (nach Siegbahn) der erlaubten elektronischen Übergänge, die zur Emission charakteristischer Röntgenstrahlung führen, ist aus Abbildung 2 ersichtlich. Die charakteristischen Linien haben feste Intensitätsverhältnisse zueinander. Experimentell ermittelte Werte für Wellenlängen, Energien und Intensitätsverhältnisse der charakteristischen Linien stehen in verschiedenen Quellen zur Verfügung (siehe Literaturliste: *Bearden, Cauchois*, Webadressen).

Bei dem in Konkurrenz zur Fluoreszenzanregung auftretenden Auger-Effekt wird die beim Übergang eines angeregten Atoms in den Grundzustand frei werdende Energie ΔE auf ein Elektron aus einer äußeren Schale (Auger-Elektron) übertragen. Dabei handelt es sich nicht um eine innerhalb des Atoms stattfindende Photoabsorption eines Fluoreszenzphotons, sondern um einen direkten Energieübertrag durch Coulomb-Wechselwirkung. Das Auger-Elektron verlässt aufgrund der Energieaufnahme den Atomverbund, womit das Atom anschließend also zweifach ionisiert ist. Die kinetische Energie des emittierten Auger-Elektrons beträgt

$$E_{kin} = \Delta E - E_B.$$

Diese Energie ist ebenfalls charakteristisch für den entsprechenden Übergang in der Hülle einer bestimmten Atomsorte und wird zur spektroskopischen Elementanalyse genutzt. Ein Resultat des Auger-Effekts ist, dass die Fluoreszenzausbeute, also das Verhältnis der Anzahl emittierter Röntgenphotonen einer Serie zu den entstandenen Lücken in der jeweiligen Schale, verringert wird. Für Elemente mit niedriger Ordnungszahl, also mit nur schwach gebundenen Elektronen, ist die Fluoreszenzausbeute am geringsten.

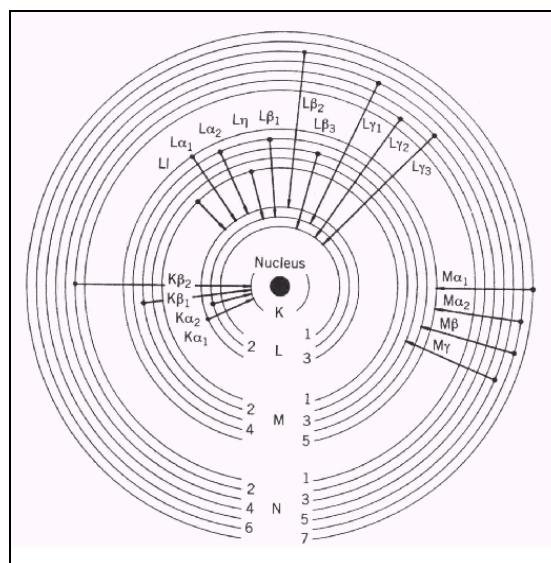


Abbildung 2: Termschema, Übergänge die zu verschiedenen Spektrallinien führen (intensivste Linien).

Röntgendetektoren

Szintillationszähler

Im Kopf des Szintillationszählers befindet sich ein gegen äußeren Lichteinfall (und Feuchtigkeit - z. B. bei Verwendung von sehr hygroskopischem Natriumiodid) geschützter Szintillator, in dem durch die ionisierende Strahlung ein Lichtblitz ausgelöst wird. Dieser sehr schwache Lichtblitz setzt aus der Photokathode des dahinter angebrachten Photomultipliers Elektronen frei (Photoeffekt). Diese Elektronen werden durch Stöße an den Elektroden im Photomultiplier lawinenartig vervielfacht (siehe Schema in Abbildung 3). An der Anode kann dann ein gut messbarer Stromimpuls abgenommen werden. Ein Pulshöhenanalysator wird dazu eingesetzt, eine grobe Trennung von Untergrund, Signal und Strahlung anderer Wellenlänge vorzunehmen. Abbildung 4 zeigt den verwendeten elektronischen Nachweiskanals.

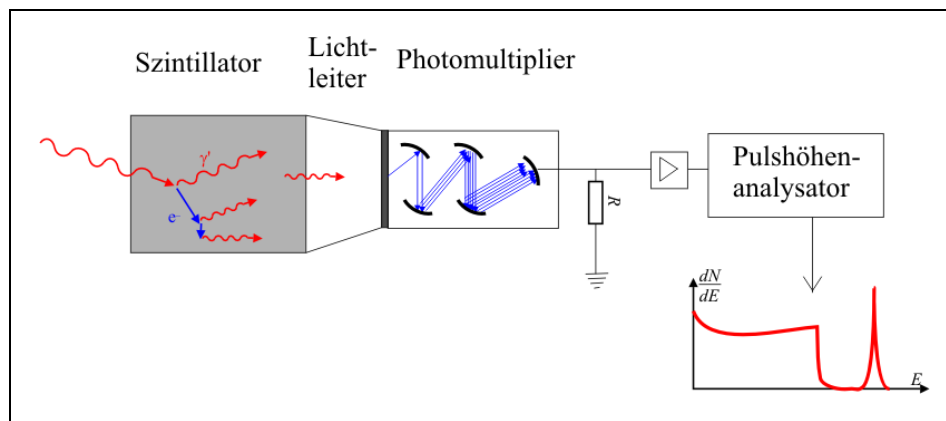


Abbildung 3: Schematischer Aufbau eines Szintillationszählers.

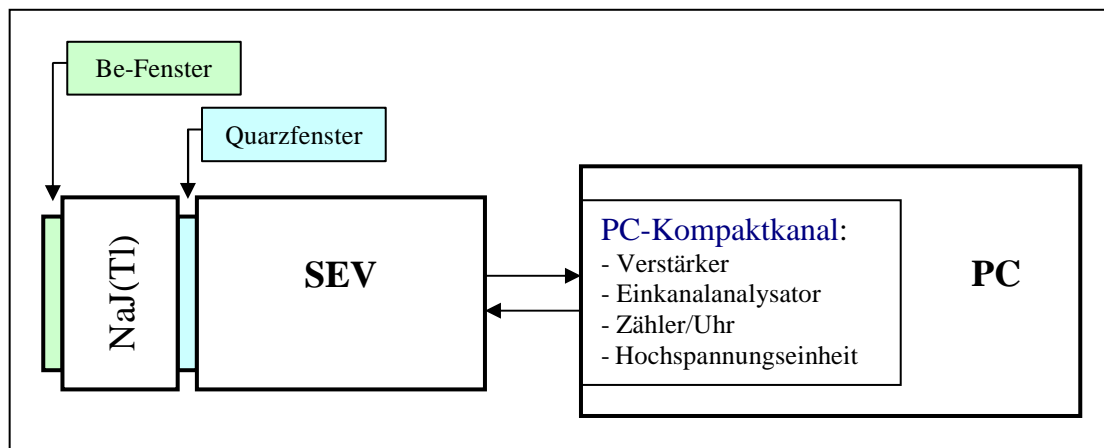


Abbildung 4: Elektronischer Nachweiskanal für Röntgenstrahlung mit einem Szintillationszähler.

Si(Li)-Detektor

Dieser Detektortyp ist im Wesentlichen eine in Sperrrichtung betriebene Silizium-Diode. Röntgenstrahlung wird in der Sperrschicht absorbiert und erzeugt dort Elektron-Loch-Paare. Die an der Anode gesammelte Ladung wird durch einen JFET oder einen ähnlichen Verstärker in eine Spannung umgewandelt. Das Resultat ist ein Spannungsimpuls, der proportional zur Anzahl der erzeugten Paare ist und demnach der Energie des einfallenden Röntgenstrahles entspricht. Um einen höchstmöglichen Wirkungsquerschnitt für die Röntgenabsorption zu gewährleisten, muss das Volumen der Verarmungszone so groß wie möglich gemacht werden. Dies geschieht durch die Erzeugung einer isolierenden Schicht zwischen der Anode und der Kathode. Solche Detektoren sind auch als pin-Dioden bekannt. Allerdings ist intrinsisches Silizium ein p-Typ-Halbleiter, so dass es immer einen leichten Überschuss an Löchern gibt. Folglich erzeugen thermisch erzeugte Ladungsträger Leckströme durch die

Verarmungszone, die das Detektieren von durch Röntgenphotonen erzeugten Spannungspulsen schwierig machen. Dotieren kann den Überschuss an Elektronenakzeptoren aufheben, wobei es allerdings schwer ist, ein derart großes Volumen gleichmäßig zu dotieren. Lithium diffundiert leicht in Silizium ein und kann somit die geforderte Kompensation leisten. Die isolierende Li-Drift-Schicht ist folglich die für Röntgenstrahlung empfindliche Region (siehe Abbildung 5). Ein Nachteil von Si(Li)-Detektoren ist, dass diese in flüssigem Stickstoff gelagert werden müssen, da sonst das Lithium aus der Sperrschicht herausdiffundiert. Auch eine Peltier-Kühlung ist möglich, was aber zu leichten Einbußen bei der Energieauflösung führt.

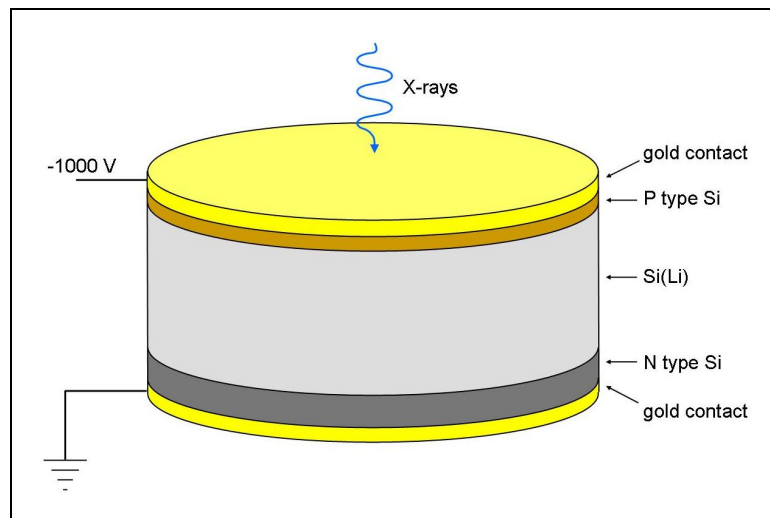


Abbildung 5: Schematischer Aufbau des empfindlichen Bereichs eines Si(Li)-Detektors.

Silizium-Drift-Detektor (SDD)

Ein Silizium-Drift-Detektor besteht aus einem Silizium-Wafer, der an der Oberseite mit ringförmigen Elektroden belegt ist, wobei die angelegten Spannungen vom äußersten Ring zum innersten Ring hin abnehmen. Im Zentrum des Si-Wafers kann direkt ein Feldeffekttransistor (JFET) aufgebracht werden, der als Vorverstärker mit sehr niedriger Eingangskapazität dient (siehe Abbildung 6). Die zu detektierende Strahlung trifft durch die dünne Rückelektrode auf das Detektormaterial.

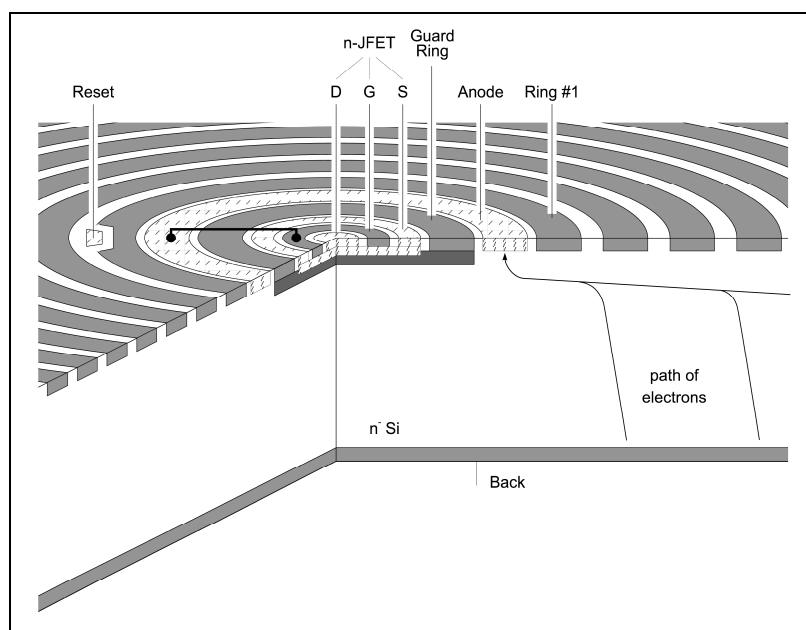


Abbildung 6: Schematischer Aufbau eines SDD.

Wenn die Vorspannung an Vorder- und Rückseite des SDD angelegt ist, kommt es zu einer Verarmung über die gesamte Dicke des Halbleiters. Die in Abbildung 7 gezeigte dünne Linie inmitten der Sperrschicht repräsentiert die Grenze zwischen beiden Sperrschichten, welche dem Pfad des minimalen Elektronenpotentials entspricht. In der Abbildung treffen drei Röntgenphotonen den Detektor zur gleichen Zeit an unterschiedlichen Punkten. Entsprechend entstehen drei Ladungswolken von Elektron-Loch-Paaren, die unter Wirkung des elektrischen Feldes getrennt werden. Die positiv geladenen Löcher (rot) bewegen sich zur Elektrode und die Elektronen (blau) driften entlang des Potentialminimums zur Anode. Wie bei allen energieauflösenden Röntgendetektoren kommt entsprechende Auswertelektronik zum Einsatz, die entsprechend der Höhe der registrierten Spannungspulse die Signale in Energiekanäle aufteilt.

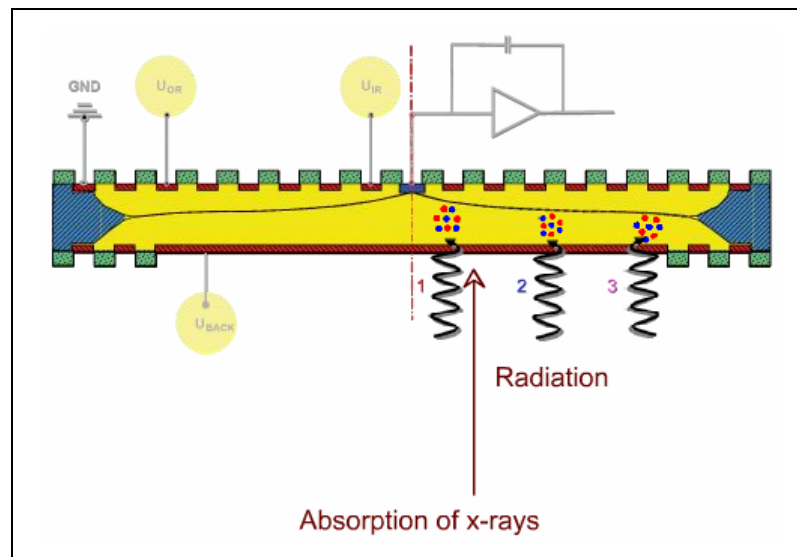


Abbildung 7: Veranschaulichung der Prozesse in einem SDD.

Experimente

1. Röntgenspektralanalyse mit einem Kristallspektrometer

Mit einem Bragg-Kristallspektrometer (siehe Abbildung 8) wird das Spektrum einer Röntgenröhre untersucht. Dabei wird ein schmal ausgeblendeter Strahl unter dem variablen Winkel θ (Glanzwinkel) auf einen Einkristall gerichtet. Der Kristall „reflektiert“ bei dem Einstrahlwinkel θ nur die Komponenten des Spektrums, für welche die Bragg'sche Gleichung erfüllt ist (siehe dazu auch die Anleitung zum Versuch Röntgeninterferenzen RI):

$$2d \sin \theta = n\lambda .$$

Hierbei sind θ der Winkel zwischen Strahl und reflektierender Netzebenenchar (liegt in Abbildung 8 parallel zur Kristalloberfläche), d der Netzebenenabstand und n die Beugungsordnung. Der im Versuch verwendete Analysatorkristall ist ein LiF-Einkristall mit 001-Orientierung ($2d = 4,028 \text{ \AA}$).

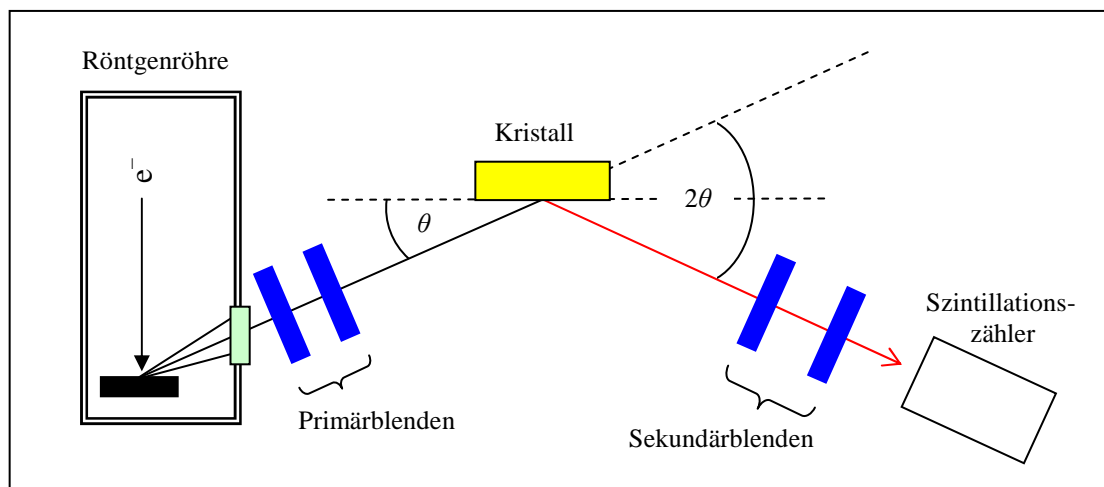


Abbildung 8: Prinzipskizze des Bragg-Kristallspektrometers.

Aus dem Intensitätsverlauf $I(\theta)$ erhält man Informationen über:

- die kurzwellige Grenze des Röntgenbremspektrums θ_{min} : Hieraus lässt sich das Planck'sche Wirkungsquantum ermitteln,
- die Winkellage der Intensitätsmaxima (Wellenlänge der charakteristischen Linien): Man kann damit die Ordnungszahl des Anodenmaterials der Röntgenröhre (sowie von Verunreinigungen desselben) bestimmen,
- Winkellagen, bei denen sich die Intensität sprunghaft ändert (Absorptionskanten): Damit erhält man die Ordnungszahl von Absorbern, welche sich im Strahlengang befinden.

Das gemessene Spektrum ist ein modifiziertes Spektrum. Um daraus das wahre Emissionsspektrum der Röntgenröhre zu erhalten, müssten verschiedene energieabhängige Korrekturen ausgeführt werden. So führen z. B. das Reflexionsvermögen des Analysatorkristalls, die Schwächung in der Luft und die energieabhängige Quantennachweeffektivität des Detektors dazu, dass die gemessenen Intensitäten um mehrere Größenordnungen kleiner sein können als die wahren Intensitäten (entsprechende Korrekturen werden im Versuch nicht ausgeführt).

2. Schwächung der Röntgenstrahlungsintensität beim Durchgang durch Materie

Mithilfe des Kristallspektrometers soll das Röhrenspektrums unter Verwendung eines Absorptionsfilters zur weitgehenden Unterdrückung der $K\beta$ -Strahlung des Anodenmaterials aufgenommen werden. Aus den Intensitätsverhältnissen I/I_0 (I ...geschwächte Intensität nach Durchgang durch den Filter, I_0 ...ungeschwächte Intensität) der intensivsten charakteristischen Linien und den Tabellenwerten der entsprechenden Schwächungskoeffizienten μ lässt sich die Dicke des durchstrahlten Filtermaterials berechnen.

3. Charakterisierung des Detektors

Bei Winkellagen ausgewählter charakteristischer Linien des Anodenmaterials soll eine Detektorcharakteristik $I(U_D)$ (U_D ...SEV-Spannung) und Impulshöhenverteilung $I(U_A)$ (U_A ...Analysatorspannung) des NaJ(Tl)-Szintillationszählers aufgenommen werden. Anhand dieser Abhängigkeiten können die Messbedingungen (Arbeitsspannung des Detektors, Diskriminatorschwelle) überprüft und die Halbwertsbreiten der Impulshöhenverteilungen als Maß der Energieauflösung des Detektors ermittelt werden. Ein Vergleich der Energieauflösung des Detektors mit der Halbwertsbreite der charakteristischen Linien $K\alpha_1$, $K\alpha_2$ und $K\beta$, welche mit Hilfe des Kristallspektrometers aufgenommen wurden, soll vorgenommen werden.

4. Röntgenspektralanalyse mit energieauflösenden Detektoren

Als Alternative zu dem im Punkt 1 verwendeten Aufbau kann das Spektrum der Röntgenröhre auch direkt unter Einsatz entsprechender energieauflösender Detektoren gemessen werden (siehe Abschnitt „Röntgendetektoren“). Diese detektieren direkt die Energie der auftreffenden Photonen und ordnen jedes Ereignis in einen entsprechenden Energiekanal ein, so dass als Detektorsignal direkt ein Spektrum ausgegeben wird. Zum einen soll mit zwei verschiedenen energieauflösenden Detektoren das Spektrum der Röntgenröhre aufgenommen werden, wobei ein Vergleich zu dem im Punkt 1 erhaltenen Ergebnis anzufertigen ist. Zum anderen kann wie unter Punkt 3 die Energieauflösung der verschiedenen Detektoren verglichen werden.

Literatur

Zu den Grundlagen:

- W. Demtröder*: Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper, Springer Verlag, Berlin 2000, Kap. 7.5
R. Glocker: Materialprüfung mit Röntgenstrahlen: unter besonderer Berücksichtigung der Röntgenmetallkunde, Springer Verlag, Berlin 1985
B. K. Agarwal: X-Ray Spectroscopy, Springer Verlag, Berlin 1991

Bildquellen:

- Szintillationszähler: <http://de.wikipedia.org/wiki/Szintillationszähler>
Si(Li)-Detektor: http://en.wikipedia.org/wiki/X-ray_fluorescence
SDD-Detektor: *Microscopy and Microanalysis 4 (2005) 622* und <http://www.ketek.net/index.php?id=207>

Zur praktischen Durchführung des Versuchs:

- J. A. Bearden*: X-Ray Wavelengths, Oak Ridge 1964
Y. Cauchois, C. Senemaud: Wavelengths of X-Ray Emission Lines and Absorption Edges, Pergamon Press, Oxford 1978
<http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayTrans/Html/search.html> – X-ray transition energies
<http://cars9.uchicago.edu/software/xafs.html> – verschiedene Programme und Datenbanken zur Röntgenabsorptionsspektroskopie, u. a. Hephaestus (IFEFFIT)

Versuchsbeginn: 8:00 Uhr, **Ort:** Physikgebäude, Raum PHY C119, **Versuchsdauer:** 8 h
Betreuer: H. Stöcker (PHY B108, Tel. 0351/463-42109, E-Mail: stoecker@physik.tu-dresden.de)