

---

# Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie

---

## Species separation in warm dense matter

Zur Erlangung des Grades eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
genehmigte Dissertation von M. Sc. Simon Andreas Frydrych aus Lauterbach  
Darmstadt 2018 – D 17

1. Gutachten: Professor Dr. Markus Roth
2. Gutachten: Dr. Dominik Kraus



TECHNISCHE  
UNIVERSITÄT  
DARMSTADT

Fachbereich Physik  
Laser- und Plasmaphysik

Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie  
Species separation in warm dense matter

Genehmigte Dissertation von M. Sc. Simon Andreas Frydrych aus Lauterbach

1. Gutachten: Professor Dr. Markus Roth
2. Gutachten: Dr. Dominik Kraus

Tag der Einreichung: 27.09.2018

Tag der Prüfung: 19.11.2018

Darmstadt – D 17

Bitte zitieren Sie dieses Dokument als:

URN: urn:nbn:de:tuda-tuprints-82191

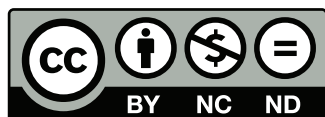
URL: <http://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de/id/eprint/8219>

Dieses Dokument wird bereitgestellt von tuprints,

E-Publishing-Service der TU Darmstadt

<http://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de>

[tuprints@ulb.tu-darmstadt.de](mailto:tuprints@ulb.tu-darmstadt.de)



Die Veröffentlichung steht unter folgender Creative Commons Lizenz:

Namensnennung – Keine kommerzielle Nutzung – Keine Bearbeitung 4.0 International

<https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>

---

# Erklärung zur Dissertation

Hiermit versichere ich, die vorliegende Dissertation ohne Hilfe Dritter nur mit den angegebenen Quellen und Hilfsmitteln angefertigt zu haben. Alle Stellen, die aus Quellen entnommen wurden, sind als solche kenntlich gemacht. Diese Arbeit hat in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen.

Darmstadt, den 24. November 2018

---

(Simon Andreas Frydrych)



---

# Zusammenfassung

Die Erforschung von warmer dichter Materie hat sich in den letzten zwei Jahrzehnten intensiviert. Der Zustand zeichnet sich durch hohe Drücke, Temperaturen und Dichten im Bereich der Festkörperdichte aus und ist ein Übergangsbereich zwischen Festkörpern und Plasmen, der mit theoretischen Modellen kaum beschreibbar ist. Durch die fortwährende Entwicklung neuer experimenteller Möglichkeiten kann warme dichte Materie inzwischen im Labor untersucht werden. Der Anstieg der verfügbaren Rechenleistung ermöglicht den Zugang mit Simulationen.

Warme dichte Materie tritt in astrophysikalischen Objekten wie Planeten auf und kann hier eine entscheidende Rolle in deren Formung einnehmen. Während zur Erforschung von warmer dichter Materie in den letzten Jahren häufig einelementige Materialien untersucht wurden, sind chemische Verbindungen aus mehreren Elementen von besonderem Interesse, da sie den größten Teil der bekannten Materie ausmachen. Mit zunehmendem Druck und Temperatur, wie sie etwa in tieferen Planetenschichten auftreten, steigt die thermische Energie und liegt in der Größenordnung der chemischen Bindungsenergie und darüber. Hier wird ein Auflösen der chemischen Verbindungen erwartet und eine Entmischung der Elemente ist möglich.

Für diese Arbeit wird Polystyrol mit lasergetriebenen Schockwellen in den Zustand der warmen dichten Materie gebracht. Die Entmischung der Elemente wird mit Röntgenstrahlung der Energie 8 180 eV untersucht, die mit dem Röntgen-Freie-Elektronen-Laser *Linac Coherent Light Source* am *SLAC National Accelerator Laboratory* in Kalifornien (USA) erzeugt wird.

Durch die Verwendung einer zweistufigen Laserpulsform werden zwei zeitlich versetzte Schockwellen erzeugt. Auf diese Weise kann im Vergleich zu einer einzelnen Schockwelle ein höherer Druck bei gleichzeitig niedrigerer Temperatur erreicht werden. Im Endzustand beträgt der Druck  $(150 \pm 15)$  GPa und die Temperatur  $(5\,000 \pm 500)$  K. Diese Werte stammen aus eindimensionalen hydrodynamischen HELIOS-Simulationen, deren Schockwellendynamik mit der experimentellen Messung des Schockausbruchs sowie den Ergebnissen aus der Röntgenbeugung und der Entstehung von Diamant übereinstimmen.

Zur Messung der Elemententmischung wird Röntgen-Thomson-Streuung eingesetzt. DFT-MD-Simulationen zeigen, dass die Rayleigh-Streuung für kleine Streuvektoren im Falle einer Entmischung stark abfällt. Daher wird ein Kristallspektrometer in Vorwärtsrichtung bei  $k = 1,23 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$  ( $\theta = 17^\circ$ ) eingesetzt. Um hier einen absoluten Wert der Rayleigh-Streuung zu bestimmen, wird die elastische Streuung auf ein zweites Kristallspektrometer in Rückwärtsrichtung bei  $k = 7,30 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$  ( $\theta = 123^\circ$ ) normiert. Aufgrund des großen Streuwinkels sind elastisch und inelastisch gestreute Röntgenstrahlung getrennt auflösbar und aus ihrem Verhältnis kann ein absoluter Wert der Rayleigh-Streuung berechnet werden.

Experimentell wird eine untere Grenze der Entmischung von bis zu  $(28,1_{-8,0}^{+7,5})$  % gemessen. Durch die Überlagerung der Röntgenbeugung an der (040) Ebene des im Experiment erzeugten Diamants mit der Position des Rückwärtsspektrometers ist die tatsächliche Entmischung zusätzlich um bis zu 25 % höher.



---

# Abstract

The number of experiments investigating warm dense matter has increased significantly over the last two decades. This state of warm dense matter is a transit regime between solids and plasmas. Its main characteristics are high pressures, temperatures and densities on the order of the solid density. Neither theoretical models of solid state physics nor those of plasma physics are valid here. The constant development of novel experimental techniques and the increasing computational power enable a simultaneous experimental and theoretical study of warm dense matter generated in the laboratory nowadays.

Warm dense matter occurs for example in the interior of planets or brown dwarfs and can participate in the shaping of astrophysical objects. Over the last years, investigations have been focussed mostly on materials consisting of one elemental species. However, the majority of materials consist of multiple species raising interest in their behavior in the warm dense matter state. Due to rising pressure and temperature in deeper layers of planets, the thermal energy is in the order of the chemical bond energy and above. This phenomenon enables dissociation and species separation.

In the framework of this thesis, polystyrene is compressed using laser-driven shock waves. X-rays, with an energy of 8180 eV generated by the x-ray free electron laser Linac Coherent Light Source at SLAC National Accelerator Laboratory in California (USA) are used to investigate the species separation in warm dense polystyrene.

Using a two-stage laser pulse shape, two staggered shock waves are generated. This method leads to a higher pressure while the temperature stays below temperatures achieved during a single shock. The final state reaches a pressure of  $(150 \pm 15)$  GPa and a temperature of  $(5000 \pm 500)$  K, which were extracted from a one-dimensional hydrodynamic HELIOS simulation. The predicted shock wave dynamic is consistent with the experimental measurement of the shock velocity and the x-ray diffraction of created diamond.

The species separation is measured using x-ray Thomson scattering. DFT-MD simulations show a significant drop-off in the Rayleigh scattering at low scattering angles in case of species separation. Therefore, a crystal spectrometer is used in forward direction at  $\theta = 17^\circ$  ( $k = 1.23 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ). To obtain an absolute value of the Rayleigh scattering, the elastic scattering is normalized to a second crystal spectrometer in backward direction at  $\theta = 123^\circ$  ( $k = 7.30 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ). Due to the large scattering angle, elastic and inelastic scattered x-rays are resolved separately and their ratio yields an absolute value of the Rayleigh scattering.

In the experiment, a species separation up to  $(28.1_{-8.0}^{+7.5})$  % has been measured. This value only represents a lower limit since the position of the backward spectrometer overlaps with x-ray diffraction of the (040) diamond layer. Therefore, the species separation could be higher by as much as additional 25 %.





---

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen der Plasmaphysik</b>	<b>5</b>
2.1	Einordnung und Charakterisierung von Plasmen und warmer dichter Materie . . .	5
2.2	Laser-Materie-Wechselwirkung . . . . .	7
2.2.1	Absorptionsbereich . . . . .	9
2.2.2	Transportbereich . . . . .	9
2.2.3	Kompressionsbereich . . . . .	10
2.3	Grundlagen von Schockwellen . . . . .	10
2.3.1	Maximale Kompression und Änderung der Entropie durch Schockwellen . .	12
2.3.2	Vermessung von Schockwellen mit einem Geschwindigkeitsinterferometer .	14
<b>3</b>	<b>Röntgenstreuung und -erzeugung</b>	<b>17</b>
3.1	Röntgen-Thomson-Streuung . . . . .	17
3.2	Dynamischer Strukturfaktor . . . . .	20
3.2.1	Elastische Streuung . . . . .	22
3.2.2	Inelastische Streuung an freien Elektronen . . . . .	24
3.2.3	Inelastische Streuung an gebundenen Elektronen . . . . .	25
3.2.4	Experimentelle Bestimmung der Rayleigh-Streuung für große Streuwinkel .	26
3.3	Streuung an Kristallstrukturen . . . . .	27
3.4	Messung von Röntgenstrahlung mit Kristallspektrometern . . . . .	29
3.5	Absorption von Röntgenstrahlung . . . . .	31
3.6	Erzeugung von Röntgenstrahlung mit einem Röntgen-Freie-Elektronen-Laser . . .	32
<b>4</b>	<b>Simulationen</b>	<b>35</b>
4.1	Hydrodynamische Simulationen mit HELIOS . . . . .	35
4.2	<i>Ab initio</i> Simulationen . . . . .	36
4.2.1	Dichtefunktionaltheorie (DFT) . . . . .	37
4.2.2	Zeitabhängige Dichtefunktionaltheorie (TD-DFT) . . . . .	38
4.2.3	Dichtefunktional-Molekulardynamik (DFT-MD) . . . . .	39
4.3	Multi-Component Scattering Spectra (MCSS) Thomson scattering analysis code . .	40
<b>5</b>	<b>Aufbau und Durchführung des Experiments</b>	<b>41</b>
<b>6</b>	<b>Messung des ungestörten Materialanteils</b>	<b>45</b>
6.1	Kalibrierung des Flächendetektors . . . . .	45
6.2	Signalkorrekturen des Flächendetektors . . . . .	48
6.3	Verifizierung der HELIOS-Simulationen und Bestimmung des ungestörten Anteils .	50

---

<b>7</b>	<b>Bestimmung der Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie</b>	<b>55</b>
7.1	Erstellung der Streuspektren und statistische Signalkorrekturen . . . . .	56
7.2	Kalibrierung der Spektrometer . . . . .	59
7.3	Energieabhängige Signalkorrekturen . . . . .	62
7.3.1	Proben- und Filtertransmission . . . . .	62
7.3.2	Raumwinkelkorrektur . . . . .	63
7.3.3	Quanteneffizienz . . . . .	65
7.3.4	Vollständige Flat-Field-Korrektur . . . . .	65
7.4	Subtraktion der Streubeiträge des ungestörten Probenmaterials . . . . .	67
7.5	Bestimmung der Rayleigh-Streuung in Rückwärtsrichtung . . . . .	68
7.6	Kreuzkalibrierung der Spektrometer . . . . .	70
7.7	Bestimmung der Rayleigh-Streuung und der Entmischung in Vorwärtsrichtung . .	72
<b>8</b>	<b>Ergebnisse und Ausblick</b>	<b>79</b>
8.1	Zusammenfassung der Ergebnisse . . . . .	79
8.2	Verbesserungsmöglichkeiten zukünftiger Experimente . . . . .	80
8.3	Ausblick . . . . .	81
<b>A</b>	<b>Anhang</b>	<b>83</b>
A.1	Modellwahl für MCSS . . . . .	83
A.2	Tabellierte Ergebnisse . . . . .	85
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>87</b>
	<b>Darstellungsverzeichnis</b>	<b>101</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>105</b>

---

# 1 Einleitung

Die fortwährende Entwicklung neuer experimenteller Möglichkeiten und der Anstieg der für Simulationen zur Verfügung stehenden Rechenleistung hat in den letzten zwei Jahrzehnten zu einer Intensivierung der Erforschung von sogenannter warmer dichter Materie geführt. Damit wird ein Zustandsbereich bezeichnet mit Temperaturen von einigen Tausend bis Millionen Kelvin, Drücken von Giga- bis Terrapascal sowie Dichten in der Größenordnung der Festkörperdichte. Die warme dichte Materie ist ein Übergangsbereich zwischen einem Festkörper und einem Plasma, der sich weder mit den theoretischen Modellen der Festkörperphysik noch mit denen der Plasmaphysik beschreiben lässt [Drake 2018, S. 2]. Von besonderer Bedeutung ist hier die Zustandsgleichung, die die thermodynamischen Eigenschaften Druck, Temperatur und Dichte miteinander verbindet.

Die Erforschung von warmer dichter Materie ist beispielsweise für das Verständnis unseres Planeten bedeutend. Der Erdkern besteht überwiegend aus Eisen und ist Drücken zwischen 136 GPa und 364 GPa ausgesetzt [Dziewonski und Anderson 1981]. Er lässt sich in einen festen inneren sowie einen flüssigen äußeren Kern unterteilen. Aufgrund von Konvektionsströmungen ist das flüssige Metall beständig in Bewegung und wird durch die Corioliskraft abgelenkt und auf Schraubenbahnen gezwungen. Diese Bewegung ist die Grundlage des Geodynamos, welcher für das Erdmagnetfeld verantwortlich ist [Buffett 2000]. Da nur der flüssige Teil des Erdkerns für den magnetohydrodynamischen Prozess verantwortlich ist, nimmt der Übergang zwischen äußerem und innerem Kern eine entscheidende Rolle in der theoretischen Beschreibung des Geodynamos ein. Die Bestimmung der Schmelztemperatur von Eisen unter hohem Druck ist daher für ein besseres Verständnis notwendig [Koenig *et al.* 2010; Wang *et al.* 2013].

Neben dem Magnetfeld der Erde sind auch jene von Uranus und Neptun von besonderem Interesse. Im Vergleich zu Erde, Jupiter und Saturn sind diese nicht axialsymmetrisch und weisen eine Quadrupolform anstelle einer Dipolform auf [Stanley und Bloxham 2004]. Eine mögliche Erklärung kann hier der Kohlenstoffanteil beider Planeten sein, der bereits bei Drücken um 100 GPa und Temperaturen von einigen Tausend Kelvin flüssig wird [J. Helfrich *et al.* 2015; Kraus, Vorberger, Gericke *et al.* 2013; Kraus, Vorberger, J. Helfrich *et al.* 2015]. Unter noch höheren Drücken wird die Existenz einer metallischen flüssigen Phase von Kohlenstoff vermutet [Bradley *et al.* 2004; Eggert *et al.* 2010; Heremans *et al.* 1988], die zum magnetischen Moment der Planeten beitragen kann.

Leichte Elemente kommen im Universum sehr häufig vor und Gasplaneten wie Saturn und Jupiter bestehen größtenteils aus Wasserstoff und Helium. Die Zustandsgleichungen der einzelnen Elemente wurden in den letzten Jahren kontinuierlich präzisiert [Militzer 2009; Preising *et al.* 2018; Sai Venkata Ramana und Singla 2018; Vorberger *et al.* 2004]. Doch für ein besseres Verständnis der Entstehung von Planeten sind nicht nur die einzelnen Elemente, sondern vielmehr eine Mischung aus ihnen zu betrachten [Guillot 1999]. Durch das Absinken des schwereren Heliums entsteht eine Grenzschicht zwischen einer heliumreichen und einer heliumarmen Schicht,

---

deren Lage entscheidend für die Interpretation der bisher gemessenen Daten ist, um daraus beispielsweise den Anteil von schwereren Elementen im Planeteninneren zu bestimmen [Lorenzen *et al.* 2009; Militzer *et al.* 2008; Nettelmann *et al.* 2008; Wilson und Militzer 2010].

Aufgrund der Häufigkeit ihrer elementaren Bestandteile zählen Kohlenwasserstoffe zu den häufigsten chemischen Verbindungen. Die einfachste Form ist Methan, welches auf Eisplaneten wie Uranus und Neptun in einer signifikanten Menge vorkommt [Baines *et al.* 1995]. In tieferen Schichten der Planeten steigen Druck und Temperatur an und die thermische Energie liegt in der Größenordnung der chemischen Bindungsenergie oder darüber [Guillot 1999]. Hier wird erwartet, dass sich Wasserstoff vom Methanmolekül abspaltet und das Restmolekül in tiefere Schichten absinkt und sich dort weiter zersetzt, bis nur noch elementarer Kohlenstoff und Wasserstoff übrig bleiben. Auf diesem Modell basiert die Vorhersage, dass sich in Uranus und Neptun Diamant gebildet haben kann [Ross 1981]. Damit die Entstehung von Diamant möglich wird, müssen sich Kohlenstoff und Wasserstoff entmischen, sodass eine kohlenstoffreiche Phase entsteht.

Die Erzeugung und Untersuchung von warmer dichter Materie ist experimentell herausfordernd. Bei der statischen Kompression mit Diamantstempelzellen wird die Probe in einem Gehäuse mechanisch unter Druck gesetzt. Der Zustand kann für einige Sekunden bis wenige Minuten gehalten werden. Typische Diamantstempelzellen können aufgrund der Zerstörschwelle von Diamant einen Druck von bis zu 200 GPa erreichen und mit ihnen daher nur ein kleiner Teil des Bereichs der warmen dichten Materie untersucht werden. In spezialisierteren Aufbauten wurden schon statische Drücke bis zu 770 GPa erzeugt [Dubrovinsky, Dubrovinskaia, Bykova *et al.* 2015; Dubrovinsky, Dubrovinskaia, Prakapenka *et al.* 2012]. Die Proben können extern etwa mit einem Laser auf Temperaturen von einigen Tausend Kelvin gebracht werden. Bei dieser Methode ist allerdings zu beachten, dass die Probe etwa mit den Diamantstempeln [Uzan-Saguy *et al.* 2002] oder dem Metallgehäuse [Hirai *et al.* 2009] interagieren kann und dass die der Probe hinzugefügten laserabsorbierenden Stoffe die notwendige Temperatur von chemischen Reaktionen beeinflussen kann [Ahmed *et al.* 2009].

Eine Alternative stellen dynamische Kompressionsmethoden wie Schockwellen dar [D. Riley 2018]. Mit ihnen wird das Material nicht nur komprimiert, sondern auch gleichzeitig geheizt. Die Realisierung kann mittels Sprengstoff [Nellis *et al.* 2001], Projektileinschlägen [Knudson *et al.* 2008], intensiven Teilchenstrahlen [Fortov *et al.* 1996] oder intensiven Lasersystemen [Batani *et al.* 2004] erfolgen. Mit lasergetriebenen Schockwellen beispielsweise wird der Zustand der warmen dichten Materie innerhalb weniger Nanosekunden erreicht, existiert aber auch nur auf einer Zeitskala in derselben Größenordnung. Daher kann die Probe als isoliert betrachtet werden und ein Austausch mit der Umgebung wird ausgeschlossen.

Die kurze Zeitskala, auf der warme dichte Materie in diesen Experimenten existiert, stellt hohe Anforderungen an die Diagnostik. Hier hat sich in den letzten Jahren die Streuung von Röntgenstrahlung hervor getan, die sogenannte Röntgen-Thomson-Streuung [García Saiz *et al.* 2008; Glenzer und Redmer 2009; Ma, Döppner *et al.* 2013; Ma, Fletcher *et al.* 2014]. Mit der Röntgen-Thomson-Streuung können nicht nur Plasmaparameter wie Elektronendichte, Temperatur und Ladungszustand gemessen werden [Glenzer und Redmer 2009], sondern auch der Phasenübergang von fest zu flüssig [J. Helfrich *et al.* 2015; Kraus, Vorberger, Gericke *et al.* 2013; Kraus, Vorberger, J. Helfrich *et al.* 2015]. Theoretische Rechnungen und Simulationen

---

gehen davon aus, dass die Röntgen-Thomson-Streuung zusätzlich sensitiv auf das Mischungsverhältnis verschiedener Elemente ist [Wünsch *et al.* 2011]. Aufgrund der Kurzlebigkeit der erzeugten warmen dichten Materie werden eine ausreichend hohe Anzahl an Röntgenphotonen in kürzester Zeit benötigt. Als Röntgenquellen werden daher Laserplasmen [Kritcher *et al.* 2007; D. Riley *et al.* 2002] oder Röntgen-Freie-Elektronen-Laser [Geloni *et al.* 2015; Huang und Kim 2007; Madey 1971; Vinko *et al.* 2012] verwendet.

Dieser Motivation folgend beschäftigt sich diese Arbeit mit der Messung der Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie. Dazu wurde im Mai 2016 ein Experiment am *SLAC National Accelerator Laboratory* (SLAC) in Kalifornien (USA) durchgeführt, in dem Polystyrol mit lasergetriebenen Schockwellen in den Zustand der warmen dichten Materie gebracht wurde. Dabei handelt es sich um ein Polymer mit einer gleichen Anzahl an Kohlenstoff- und Wasserstoffatomen. Als Diagnostik wurde Röntgen-Thomson-Streuung eingesetzt mit Röntgenstrahlung des Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers *Linac Coherent Light Source* (LCLS) [Emma *et al.* 2010].

Zu Beginn dieser Arbeit werden in Kapitel 2 die physikalischen Grundlagen von Plasmen und warmer dichter Materie sowie der Wechselwirkung eines intensiven Laserstrahls mit Materie vorgestellt. Der Fokus liegt dabei auf der Entstehung, Beschreibung und Messung von Schockwellen, die im Experiment zur Erzeugung der warmen dichten Materie verwendet wird. Kapitel 3 erläutert die als Diagnostik verwendete Röntgen-Thomson-Streuung und führt den dynamischen Strukturfaktor ein. Dieser ist ein Maß für die Streuung von Photonen und ermöglicht Rückschlüsse auf die interne Mikrostruktur der Probe und kann zur Messung der Elemententmischung genutzt werden. Die physikalischen Grundlagen zur Messung der Röntgenstrahlung sowie deren Erzeugung mit einem Röntgen-Freie-Elektronen-Laser schließen dieses Kapitel ab. Zur Auswertung der experimentellen Daten werden unterstützend Simulationen verwendet. Die dafür eingesetzten Werkzeuge und deren wichtigste Ergebnisse werden in Kapitel 4 vorgestellt.

Der experimentelle Aufbau zur Messung der Elemententmischung sowie die Durchführung des Experiments wird in Kapitel 5 beschrieben. Die Auswertung des Experiments erfolgt zweigeteilt: In Kapitel 6 werden die Messungen zur Röntgenbeugung thematisiert. Mit dieser erfolgte bereits der Nachweis der Diamantentstehung aus Polystyrol [Kraus, Vorberger, Pak *et al.* 2017]. Zusätzlich eignet sie sich dazu, den noch in der Probe vorliegenden ungestörten Materialanteil zu bestimmen, welcher im nachfolgenden Kapitel 7 wichtig ist. In diesem wird die Auswertungsmethode der verwendeten Kristallspektrometer beschrieben sowie die Rayleigh-Streuung bestimmt. Mit den Simulationsergebnissen aus Kapitel 4 kann daraus die prozentuale Entmischung bestimmt werden. Kapitel 8 fasst die experimentellen Ergebnisse zusammen und es wird ein Ausblick auf mögliche experimentelle Verbesserungen sowie zukünftige Anwendungen gegeben.



---

## 2 Grundlagen der Plasmaphysik

Als Plasma wird der (teil-)ionisierte Zustand von Materie bezeichnet, der nach außen hin quasineutral ist und kollektives Verhalten zeigt. Dies ist der vierte Materiezustand neben fest, flüssig und gasförmig. Zur Erzeugung eines Plasmas mit einem Laser sind Intensitäten größer als  $10^9 \text{ W/cm}^2$  nötig. Ab dieser Intensität können freie Elektronen des Probenmaterials durch das elektromagnetische Feld des Laserlichts beschleunigt werden, wodurch es zu Stoßionisation kommt und ein Plasma entsteht. Das Plasma ablatiert von der Probe, wodurch eine Schockwelle ausgelöst wird, die das Probenmaterial komprimiert. Dieser Vorgang wird im Rahmen dieser Arbeit zur Erzeugung der untersuchten warmen dichten Materie verwendet.

Dieses Kapitel widmet sich der allgemeinen Einordnung und Charakterisierung von Plasmen und warmer dichter Materie sowie der Einführung von grundlegenden Plasmagrößen. Anschließend wird die Wechselwirkung eines Lasers mit Materie beschrieben, unterteilt in einen Absorptions-, einen Transport- und einen Kompressionsbereich. Hierbei wird ein besonderes Augenmerk auf die Erzeugung von Schockwellen gelegt, die im Rahmen dieser Arbeit experimentell zur Erzeugung von warmer dichter Materie verwendet werden. Abschließend wird noch ein optisches System zur Vermessung von Schockwellen vorgestellt.

---

### 2.1 Einordnung und Charakterisierung von Plasmen und warmer dichter Materie

---

Die Eigenschaften eines Plasmas können abhängig von der Temperatur und der Elektronendichte stark variieren. Dies ist bei der theoretischen Modellierung zu berücksichtigen, da manche Plasmatheorien nur für bestimmte Bereiche gelten. Zur Einordnung werden vorrangig zwei dimensionslose Plasmaparameter verwendet, die im Folgenden vorgestellt werden. Diese sind auch bei der Charakterisierung von warmer dichter Materie hilfreich.

Befindet sich der mittlere Abstand zweier Teilchen in der Größenordnung der mittleren Unbestimmtheit des Orts oder darunter, so handelt es sich um ein entartetes System. Für eine quantitative Aussage zum Entartungszustand wird der mittlere Teilchenabstand  $d_\alpha$  über die Teilchendichte  $n_\alpha$  genähert, während die Unbestimmtheit des Orts mit der de-Broglie-Wellenlänge  $\Lambda_\alpha$  [Broglie 1927] angegeben wird

$$d_\alpha \approx \frac{1}{\sqrt[3]{n_\alpha}} \quad , \quad \Lambda_\alpha = \frac{h}{\sqrt{2\pi m_\alpha k_B T_\alpha}} \quad . \quad (2.1)$$

Dabei bezeichnet  $m_\alpha$  die Masse und  $T_\alpha$  die Temperatur der Teilchen der Sorte  $\alpha$ ,  $h$  das Plancksche Wirkungsquantum und  $k_B$  die Boltzmann-Konstante. Mit dem Produkt

$$n_\alpha \Lambda_\alpha^3 = n_\alpha \left( \frac{2\pi\hbar^2}{m_\alpha k_B T_\alpha} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (2.2)$$

lässt sich der Entartungszustand des Systems abschätzen, wobei das reduzierte Plancksche Wirkungsquantum  $\hbar = h/2\pi$  verwendet wird. Für  $n_\alpha \Lambda_\alpha^3 \gtrsim 1$  überlagern sich die Aufenthaltswahrscheinlichkeitswolken der Teilchen [Kremp *et al.* 2005, S. 11] und sie sind ununterscheidbar.

Die Kategorisierung des Entartungszustands eines Plasmas erfolgt anhand der Elektronen, den leichtesten Teilchen in einem Plasma. Für  $n_e \Lambda_e^3 \ll 1$  wird von einem nicht entarteten Plasma gesprochen, während Plasmen mit  $n_e \Lambda_e^3 \gg 1$  als stark entartet bezeichnet werden und das Quantenverhalten der Elektronen berücksichtigt werden muss. Aufgrund des Pauli-Prinzips können zwei ununterscheidbare Elektronen nicht den selben Quantenzustand bevölkern.

Der zweite wichtige Parameter zur Charakterisierung von Plasmen ist die Stärke der Wechselwirkung zwischen zwei Teilchen gleicher Art. Sie lässt sich durch den Kopplungsparameter

$$\Gamma_{\alpha\alpha} = \frac{E_{\text{pot}}^\alpha}{E_{\text{kin}}^\alpha} \quad (2.3)$$

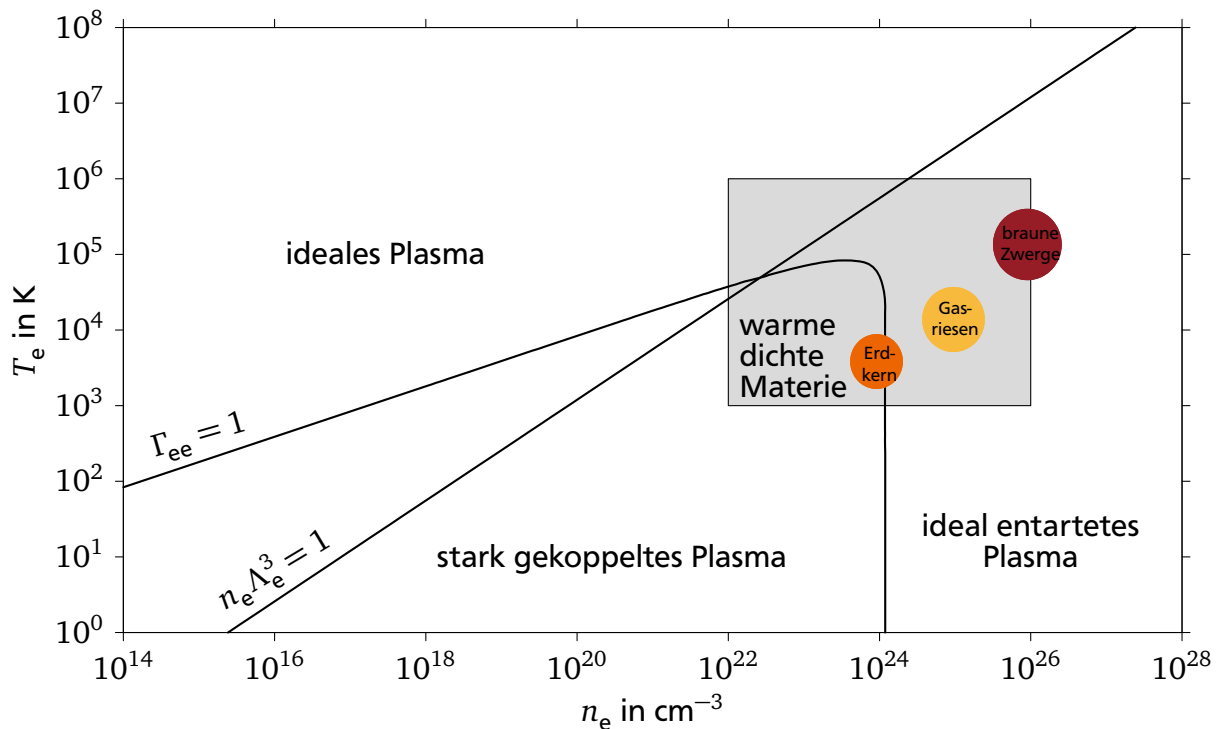
als Quotient aus potentieller Energie  $E_{\text{pot}}^\alpha$  und kinetischer Energie  $E_{\text{kin}}^\alpha$  quantifizieren. Für geladene Teilchen entspricht die potentielle Energie der Coulomb-Wechselwirkung zweier geladener Teilchen im Abstand  $r_\alpha = \sqrt[3]{3/(4\pi n_\alpha)}$  (Wigner-Seitz-Radius [Wigner und Seitz 1933])

$$E_{\text{pot}}^\alpha = \frac{Z_\alpha^2 e^2}{4\pi\epsilon_0 r_\alpha} \quad (2.4)$$

Hier ist  $Z_\alpha$  die Ladungszahl des Teilchens der Sorte  $\alpha$ ,  $e$  die Elementarladung und  $\epsilon_0$  die elektrische Feldkonstante. Analog zum Entartungsparameter wird auch die Kopplung eines Plasmas über die Wechselwirkung zwischen den Elektronen beschrieben. In einem nicht gekoppelten Plasma ( $\Gamma_{ee} \ll 1$ ) ist die kinetische Energie durch die thermische Energie  $E_{\text{th}} = 3/2 k_B T_e$  der Elektronen gegeben. Ist das Plasma zusätzlich nicht entartet, so wird von einem idealen Plasma gesprochen, das sich theoretisch als ideales Gas beschreiben lässt. In einem entarteten Plasma ist die kinetische Energie durch das Quantensystem stark beeinflusst.

Eine graphische Einordnung der verschiedenen Plasmazustände ist in Abbildung 2.1 zu sehen. Die Verläufe von  $n_e \Lambda_e^3 = 1$  und  $\Gamma_{ee} = 1$  sind ebenfalls eingezeichnet. Die warme dichte Materie nimmt hier als Übergangsbereich zwischen kondensierter Materie und heißen Plasmen eine Sonderrolle ein. Hier sind weder die Modelle der klassischen Festkörperphysik noch der Plasmaphysik uneingeschränkt gültig. Der eingezeichnete Bereich der warmen dichten Materie stellt lediglich eine grobe Einordnung dar, da für diesen Zustand bisher keine scharfe Definition der thermodynamischen Parameter existiert. Qualitativ umfasst er Temperaturen von einigen Tausend bis Millionen Kelvin, Drücke zwischen Giga- und Terrapascal sowie Dichten im Bereich der Festkörperdichte. Materie, die natürlich in diesem Parameterbereich vorliegt, ist beispielsweise in Planeteninneren oder in braunen Zwergen zu finden.





**Abbildung 2.1.:** Die Charakterisierung von Plasmen erfolgt an den dimensionslosen Größen  $n_e \Lambda_e^3$  und  $\Gamma_{ee}$ . Der Bereich der warmen dichten Materie ist qualitativ skizziert, da für diesen Bereich keine scharfe Definition der thermodynamischen Parameter existiert. Zum Vergleich sind einige astrophysikalische Objekte eingezeichnet. Elektronendichte  $n_e$  und -temperatur  $T_e$  sind logarithmisch aufgetragen.

## 2.2 Laser-Materie-Wechselwirkung

Die Erzeugung von warmer dichter Materie im Labor kann durch laserinduzierte Schockwellen erfolgen. Da bei der Wechselwirkung des Lasers mit Materie zuerst ein Plasma entsteht und der Laser nur noch mit diesem interagiert, werden in diesem Abschnitt zuerst einige Plasmagrößen eingeführt, die für die Grundlagen der Wechselwirkung eines Lasers mit Materie wichtig sind. Anschließend wird auf die Erzeugung von Schockwellen eingegangen.

In einem Plasma können lokale Ladungsdichten entstehen, denen die Coulombkraft entgegen wirkt. Die Ladungsträger beginnen dann, mit der Plasmafrequenz [Froula *et al.* 2011, S. 10]

$$\omega_p^2 = \sum_{\alpha} \omega_{p,\alpha}^2 = \sum_{\alpha} \frac{Z_{\alpha}^2 e^2 n_{\alpha}}{m_{\alpha} \epsilon_0} \quad (2.5)$$

um ihre Ruhelage zu oszillieren. Da die Elektronenmasse deutlich kleiner ist als die der Ionen, wird die Plasmafrequenz von den Elektronen dominiert und die Betrachtung von  $\omega_{p,e}$  ist ausreichend.

Das entstandene Plasma kann nur von Photonen durchdrungen werden, deren Frequenz  $\omega_{ph}$  größer als die Plasmafrequenz ist. Andernfalls werden die Photonen durch das Plasma stark

gedämpft oder reflektiert. Daher wird eine sogenannte kritische Dichte  $n_{\text{krit}}$  definiert als die Elektronendichte, für die  $\omega_{\text{ph}} = \omega_{\text{p,e}}$  gilt

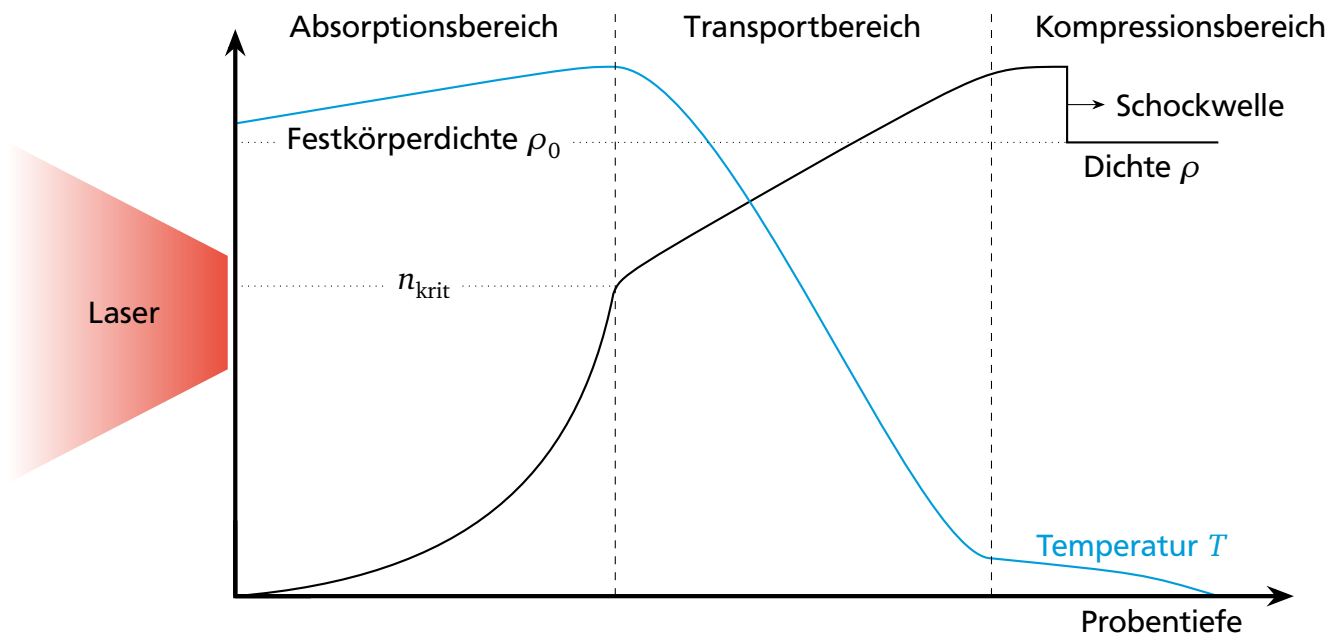
$$n_{\text{krit}} = \frac{\omega_{\text{ph}}^2 m_e \epsilon_0}{e^2} . \quad (2.6)$$

Eine weitere wichtige Oszillation in Plasmen sind die longitudinalen ionenakustischen Wellen. Sie treten durch Dichtemodulationen der Ionen auf und können nicht nur über Stöße, sondern auch über das elektrische Feld miteinander wechselwirken. Ihre Ausbreitungsgeschwindigkeit, die aufgrund der Ähnlichkeit zum klassischen Schall auch als Schallgeschwindigkeit bezeichnet wird, lässt sich mit

$$c_s = \sqrt{\frac{\gamma_e \bar{Z} k_B T_e + \sum_{\alpha} \gamma_{\alpha} k_B T_{\alpha} \frac{m_{\alpha}}{M}}{M}} \quad (2.7)$$

berechnen. Hier ist  $\bar{Z}$  der mittlere Ionisationsgrad und  $M$  die gemittelte Gesamtionenmasse unter Berücksichtigung der relativen Häufigkeiten der verschiedenen Ionensorten.  $\gamma$  ist der Adiabatenkoeffizient, der aufgrund der guten Wärmeleitfähigkeit für Elektronen häufig als  $\gamma_e = 1$  angenommen wird. Der Adiabatenkoeffizient der verschiedenen Ionensorten kann als gleich angenommen werden und im eindimensionalen Fall gilt  $\gamma_{\alpha} = \gamma_i = 3$  [Drake 2018, S. 41].

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchte warme dichte Materie wird mit lasergetriebenen Schockwellen erzeugt, die durch die Ablation des Plasmas entstehen. Die Wechselwirkung ei-



**Abbildung 2.2.:** Die Wechselwirkung eines Hochenergielasers mit Materie wird in drei Bereiche eingeteilt. Im Absorptionsbereich überträgt der Laser Energie an das Plasma. Dieser Bereich wird auch Korona genannt. Die dort deponierte Energie wird im Transportbereich in tiefere Schichten der Probe transportiert. Das abströmende Material erzeugt eine Schockwelle, die im Kompressionsbereich das verbliebene Material komprimiert.

nes intensiven Laserstrahls mit Materie lässt sich grundsätzlich in die drei Bereiche Absorption, Transport und Kompression einteilen (siehe Abbildung 2.2) [Eliezer 2002, S. 43]. Sie werden in den folgenden Abschnitten weiter ausgeführt.

---

### 2.2.1 Absorptionsbereich

---

Die Wechselwirkung des Lasers mit dem Plasma findet ausschließlich in der Korona statt. Dies ist der Bereich, in dem die Elektronendichte unterhalb der kritischen Dichte für die verwendete Laserfrequenz liegt. Für Laserintensitäten  $I < 10^{15} \text{ W/cm}^2$  ist die inverse Bremsstrahlung der dominierende Effekt, mit dem Energie aus dem Laserstrahl auf das Plasma übertragen wird [Eliezer 2002, S. 74–79]. Hierbei absorbiert ein Elektron ein Photon, während es mit einem Ion oder einem anderen Elektron stößt. Die Dämpfungsrate der Laserenergie durch die inverse Bremsstrahlung in einem Plasma mit nur einer Atomsorte ist näherungsweise durch

$$\kappa_{\text{ib}} = \frac{4\sqrt{2\pi}}{3c} \left( \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 m_e} \right)^2 \left( \frac{m_e}{k_B T_e} \right)^{\frac{3}{2}} n_i \left( \frac{n_e}{n_{\text{krit}}} \right)^2 \left( 1 - \frac{n_e}{n_{\text{krit}}} \right)^{-\frac{1}{2}} \ln \Lambda \quad (2.8)$$

gegeben [Eliezer 2002, S. 76; Mulser und Bauer 2010, S. 21]. Hier ist  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und der Coulomb-Logarithmus  $\ln \Lambda$  beschreibt das Verhältnis der Wahrscheinlichkeit, dass ein Teilchen durch viele kumulative kleine Streuwinkel um  $90^\circ$  abgelenkt wird, zur Wahrscheinlichkeit, dass die Ablenkung durch einen einzigen Streuprozess erfolgt. Der Energieübertrag aus dem Laserstrahl auf das Plasma ist im Bereich der kritischen Dichte für inverse Bremsstrahlung am höchsten.

---

### 2.2.2 Transportbereich

---

Die vom Laser deponierte Energie wird von den Elektronen über Stöße in tiefere Schichten hinter der kritischen Dichte transportiert. Ein sehr einfaches Modell hierfür ist der flussbegrenzte Wärmetransport [Drake 2018, S. 408]. Es geht davon aus, dass der maximal mögliche Energiefluss  $j$  sich mit der thermischen Geschwindigkeit der freien Elektronen  $v_{\text{th}} = \sqrt{3k_B T_e/m_e}$  ausbreitet. Experimentell wird jedoch nur ein Bruchteil dieses Maximums tatsächlich transportiert, sodass ein Flussbegrenzer  $f$  eingeführt wurde

$$j = f n_e^f k_B T_e v_{\text{th}} \quad , \quad (2.9)$$

der meist zwischen 0,01 und 0,1 liegt.

Die Korona erreicht Temperaturen von einigen 100 eV und emittiert ein thermisches Bremsstrahlungsspektrum mit Photonenenergien im Bereich der Röntgenstrahlung. Bereits ab  $T > 100 \text{ eV}$  beginnt der Strahlungstransport wichtiger zu werden als der durch Elektronenstöße [Eliezer 2002, S. 212]. Zusätzlich ist auch zu beachten, dass sich die Strahlung mit Lichtgeschwindigkeit ausbreitet und daher wesentlich schneller als die Elektronen in noch tiefer liegende Bereiche der Probe vordringt und diese aufheizen kann.

---

### 2.2.3 Kompressionsbereich

---

Durch den Wärmeeintrag in die Probe lösen sich weitere Teilchen aus dem Material und tragen zur Expansion der Korona bei. Verantwortlich dafür ist der thermische Druck des Plasmas

$$pV = Nk_B T \quad . \quad (2.10)$$

Hier ist  $p$  der Druck und  $N$  die Anzahl Teilchen im Volumen  $V$ . Den ablatierenden Teilchen wirkt ein gleich großer Impuls entgegen, der vom verbliebenen Material aufgenommen wird und für eine Kompression sorgt. Dies ist der Ablationsdruck.

Die vom Laser deponierte Energie hält auf der einen Seite den Elektronenwärmestrom aufrecht und trägt auf der anderen Seite dazu bei, dass sich das Material in Richtung der Korona verdünnt. Diese beiden Effekte sind für den hier relevanten Parameterbereich dominierend und es kann angenommen werden, dass sich die deponierte Energie gleichmäßig auf beide Phänomene verteilt [Drake 2018, S. 412]. Unter Verwendung des flussbegrenzten Wärmetransports von Elektronen aus Gleichung (2.9) gilt

$$\frac{1}{2}I_L = f n_{\text{krit}} k_B T_e \sqrt{\frac{k_B T_e}{m_e}} \quad . \quad (2.11)$$

Für  $f = 0,05$  lässt sich hieraus die Elektronentemperatur in Abhängigkeit der Laserintensität  $I_L$  und der -wellenlänge  $\lambda_L$  mit

$$T_e = 2,6 \left[ \left( \frac{I_L}{10^{14} \text{ W/cm}^2} \right) \left( \frac{\lambda_L}{1 \mu\text{m}} \right)^2 \right]^{2/3} \text{ keV} \quad (2.12)$$

berechnen [Drake 2018, S. 412]. Der Ablationsdruck am Ort der kritischen Dichte, der auf das Material wirkt, entspricht dem Impuls des abströmenden Materials. Für  $T_e = T_i$  gilt [Drake 2018, S. 412]

$$p_{\text{abl}} = n_{\text{krit}} k_B T_e \frac{Z+1}{Z} = 610 \left( \frac{I_L}{10^{14} \text{ W/cm}^2} \right)^{2/3} \left( \frac{\lambda_L}{1 \mu\text{m}} \right)^{-2/3} \text{ GPa} \quad . \quad (2.13)$$

---

## 2.3 Grundlagen von Schockwellen

---

Durch den Ablationsdruck entsteht eine Schockwelle, die mit der Schockgeschwindigkeit  $v_s$  Energie transportiert. Sie beschleunigt und komprimiert das Material und am Übergang zwischen ungestörtem und komprimiertem Material entsteht eine Diskontinuität. Der Schockprozess lässt sich mit den Euler-Fluidgleichungen [Drake 2018, S. 118]

$$\text{Masse} \quad \frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) = 0 \quad (2.14)$$

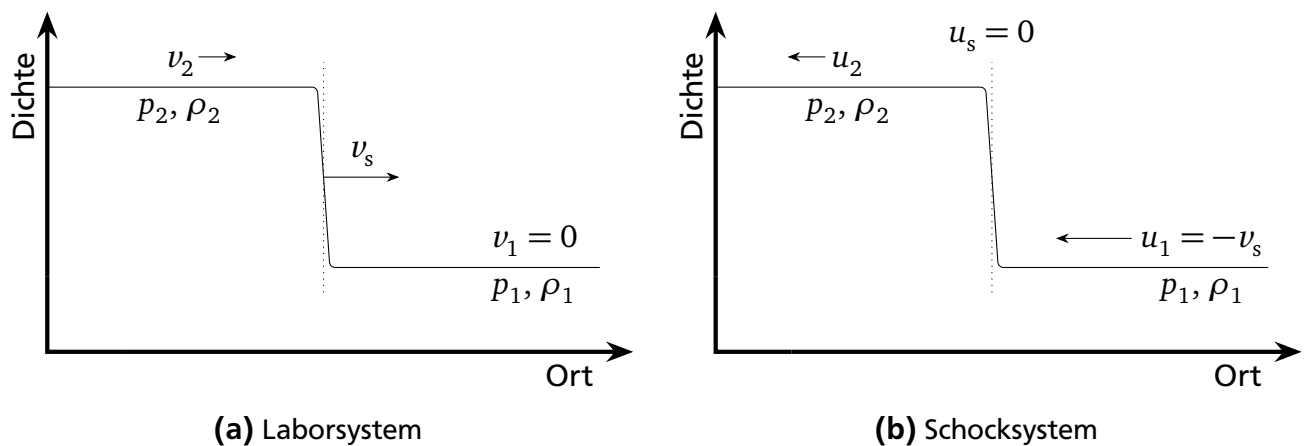
$$\text{Impuls} \quad \frac{\partial}{\partial t} (\rho \mathbf{v}) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} \cdot \mathbf{v}) + \nabla p = \mathbf{f}_{\text{ext}} \quad (2.15)$$

$$\text{Energie} \quad \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{\rho u^2}{2} + \rho \epsilon \right) + \nabla \cdot \left[ \rho \mathbf{v} \left( \epsilon + \frac{u^2}{2} \right) + p \mathbf{v} \right] = E_{\text{qs}} \quad (2.16)$$

beschreiben. Dabei wird angenommen, dass auch über die Diskontinuität hinweg Masse, Impuls und Energie erhalten bleiben. Die Entropie hingegen ist nicht erhalten, weshalb durch eine Schockwelle die Temperatur steigt. In den Gleichungen (2.14) – (2.16) ist  $\mathbf{v}$  die Fluidgeschwindigkeit,  $\rho$  die Dichte,  $\epsilon$  die spezifische innere Energie und  $p$  der Druck.  $\mathbf{f}_{\text{ext}}$  ist die externe Kraftdichte und  $E_{\text{qs}}$  beschreibt Quell- und Senkterme der Energie, die durch den Energieübertrag des Lasers auf die Probe, die Wärmeleitung sowie den Strahlungstransport gegeben sind. Wenn der Radius des Laserfokus mindestens der zweifachen Probendicke entspricht, kann eine lasergetriebene Schockwelle als eindimensional betrachtet werden [McKenna *et al.* 2013, S. 59f]. Weiterhin wird für diesen Fall angenommen, dass externe Kräfte sowie Energiequellen und -senken vernachlässigt werden können, sodass  $\mathbf{f}_{\text{ext}} = 0$  und  $E_{\text{qs}} = 0$  gelten.

Im Laborsystem betrachtet ruht das ungestörte Material mit der Dichte  $\rho_1$  und dem Druck  $p_1$  und die Schockwelle breitet sich mit der Geschwindigkeit  $v_s$  aus. Die Schockgeschwindigkeit muss gemäß den Euler-Fluidgleichungen größer als die Schallgeschwindigkeit des Ausgangszustands sein, da sonst keine stabile Lösung existiert. Das komprimierte Material erreicht den Druck  $p_2$  und die Dichte  $\rho_2$  und folgt der Schockfront mit der Teilchengeschwindigkeit  $v_2 < v_s$  (siehe Abbildung 2.3a). In Bezug auf das komprimierte Material bewegt sich die Schockwelle mit einer relativen Geschwindigkeit, die kleiner als die Schallgeschwindigkeit ist.

Zur vereinfachten Berechnung wird ein Koordinatensystem gewählt, dass sich mit der Geschwindigkeit  $v_s$  bewegt. In diesem Schocksystem (siehe Abbildung 2.3b) ruht die Schockfront und das ungestörte Material strömt mit der Geschwindigkeit  $u_1 = -v_s$  in die Schockfront hinein



**Abbildung 2.3.:** Schematische Darstellung einer Schockwelle, die sich durch ein Material mit dem Druck  $p_1$  und der Dichte  $\rho_1$  bewegt. Das Material erreicht durch die Schockwelle den Druck  $p_2$  und die Dichte  $\rho_2$ . Im Laborsystem (a) ruht das Ausgangsmaterial ( $v_1 = 0$ ) und die Schockwelle bewegt sich mit der Geschwindigkeit  $v_s$ . Das komprimierte Material wird auf die Geschwindigkeit  $v_2$  beschleunigt. Im Schocksystem (b) bewegt sich das Koordinatensystem mit der Schockfront ( $u_s = 0$ ), sodass das Ausgangsmaterial mit der Geschwindigkeit  $u_1 = -v_s$  in die Schockfront hinein- und mit der Geschwindigkeit  $u_2$  herausströmt.

und mit der Geschwindigkeit  $u_2 = v_2 - v_s$  aus ihr heraus. Auch in diesem System gelten die Erhaltungssätze von Masse, Impuls und Energie. Gleichungen (2.14) – (2.16) ergeben dann die Rankine-Hugoniot-Gleichungen [Drake 2018, S. 118]:

$$\rho_1 u_1 = \rho_2 u_2 \quad (2.17)$$

$$\rho_1 u_1^2 + p_1 = \rho_2 u_2^2 + p_2 \quad (2.18)$$

$$\rho_1 u_1 \left( \epsilon_1 + \frac{u_1^2}{2} \right) + p_1 u_1 = \rho_2 u_2 \left( \epsilon_2 + \frac{u_2^2}{2} \right) + p_2 u_2 \quad (2.19)$$

Aus diesen Gleichungen kann eine geschwindigkeitsunabhängige Form gebildet werden, die den thermodynamischen Zustand des Materials nach dem Schock ( $p_2, \rho_2, \epsilon_2$ ) mit dem initialen Zustand ( $p_1, \rho_1, \epsilon_1$ ) in Verbindung bringt

$$\epsilon_2 - \epsilon_1 = \frac{p_1 + p_2}{2} \left( \frac{1}{\rho_1} - \frac{1}{\rho_2} \right) . \quad (2.20)$$

Dies ist die Hugoniot-Gleichung. Unter Verwendung der materialabhängigen Zustandsgleichung kann die spezifische innere Energie ersetzt werden. Die sich daraus ergebene Kurve im Phasenraum wird als Hugoniot-Kurve bezeichnet. Sie beschreibt ausgehend von einem initialen Zustand, welche thermodynamischen Endzustände möglich sind. Die Zustände entlang einer Hugoniot-Kurve können nicht sukzessiv erreicht werden. Stattdessen muss der bereits komprimierte Zustand als Ausgangspunkt für die Hugoniot-Gleichung verwendet werden.

Ist der Anfangszustand bekannt, lassen sich drei Gleichungen mit fünf Unbekannten aufstellen. Zwei der Größen müssen daher experimentell bestimmt werden. Dafür gibt es verschiedene Messmethoden. Beispielsweise können Geschwindigkeitsinterferometer (siehe Abschnitt 2.3.2) zur Bestimmung der Schockgeschwindigkeit  $v_s$  und der Teilchengeschwindigkeit  $v_2$  verwendet werden. Die Dichte kann durch Röntgenbeugung an festen Strukturen bestimmt werden (siehe Abschnitt 3.3). Alternativ kann eine Radiographie der Probe [Antonelli *et al.* 2017] sowohl Aufschluss über die Dichte als auch über die Schockwellengeschwindigkeit geben.

---

### 2.3.1 Maximale Kompression und Änderung der Entropie durch Schockwellen

---

Die mögliche Kompression durch eine Schockwelle ist begrenzt und hängt vom Ausgangszustand ab. Die maximale Kompression lässt sich mit der Zustandsgleichung eines idealen Plasmas (das als ideales Gas angenommen werden kann) berechnen

$$\epsilon = \frac{p}{\rho(\gamma - 1)} . \quad (2.21)$$

Wird diese Zustandsgleichung in Gleichung (2.20) eingesetzt, lässt sich das Dichteverhältnis

$$\frac{\rho_2}{\rho_1} = \frac{(\gamma + 1)p_2 + (\gamma - 1)p_1}{(\gamma + 1)p_1 + (\gamma - 1)p_2} \quad (2.22)$$

zwischen Ausgangs- und Endzustand berechnen [Drake 2018, S. 121]. Für den Fall einer starken Kompression  $p_2 \gg p_1$  erreicht die Kompression ein Maximum, das nur von  $\gamma$  abhängt [Drake 2018, S. 122]

$$p_2 \gg p_1 \quad \Rightarrow \quad \left( \frac{\rho_2}{\rho_1} \right)_{\max} = \frac{\gamma + 1}{\gamma - 1} . \quad (2.23)$$

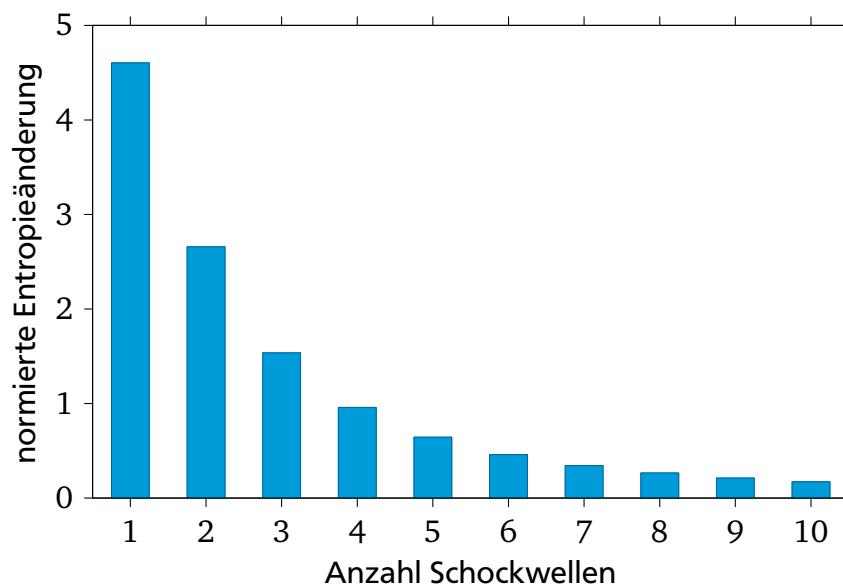
Für eine planare Schockwelle in einem Medium mit  $\gamma = 5/3$  gilt  $\rho_2^{\max} = 4\rho_1$ . Höhere Dichten können nur durch die Nutzung von mehreren Schockwellen erreicht werden, da für jede Schockwelle der komprimierte Zustand der vorherigen Welle der Ausgangszustand ist.

Die Nutzung von mehreren Schockwellen ermöglicht nicht nur eine höhere Kompression, sie hat auch Einfluss auf die Temperatur des Systems. Während Masse, Impuls und Energie über die Diskontinuität der Schockwelle erhalten bleiben, gilt dies nicht für die Entropie  $S$ . Die Änderung der Entropie zwischen ungestörtem und komprimiertem Zustand kann mit

$$\Delta S = S_2 - S_1 = c_V \ln \left[ \frac{p_2}{p_1} \left( \frac{\rho_1}{\rho_2} \right)^\gamma \right] \quad (2.24)$$

berechnet werden [Drake 2018, S. 126; Eliezer 2002, S. 226].  $c_V$  ist die isochore Wärmekapazität. Um ausgehend vom initialen Druck  $p_i$  den finalen Druck  $p_f$  mit  $n$  Schockwellen zu erreichen, erzeugt jede Schockwelle das Druckverhältnis  $R_p = (p_f/p_i)^{1/n}$  sowie das Dichteverhältnis  $R_\rho$ , welches die Grenze der maximalen Kompression aus Gleichung (2.23) erreichen kann, aber nicht muss. Für die Entropieänderung gilt [Drake 2018, S. 127]

$$\Delta S = S_2 - S_1 = n c_V \ln \left[ R_p \left( \frac{1}{R_\rho} \right)^\gamma \right] = c_V \ln \left[ \frac{p_f}{p_i} \left( \frac{1}{R_\rho} \right)^{n\gamma} \right] . \quad (2.25)$$



**Abbildung 2.4.:** Für eine Erhöhung des Drucks um den Faktor  $R_p = 1000$  ist die normierte Entropieänderung  $\Delta S/c_V$  über die Anzahl der dazu verwendeten Schockwellen aufgetragen

---

Abbildung 2.4 zeigt die Entropieänderung für  $R_p = 1000$  in Abhängigkeit der Anzahl von verwendeten Schockwellen. Das Dichteverhältnis  $R_\rho$  wurde mit Gleichung (2.22) berechnet. Bereits mit einer zweiten Schockwelle ist im Vergleich zu einer einzelnen die Entropieänderung deutlich kleiner, woraus sich eine niedrigere Endtemperatur im System ergibt. Für  $n \rightarrow \infty$  findet eine adiabatische Kompression statt, bei der keine Entropie erzeugt wird und sich die Temperatur des Systems nicht ändert.

---

### 2.3.2 Vermessung von Schockwellen mit einem Geschwindigkeitsinterferometer

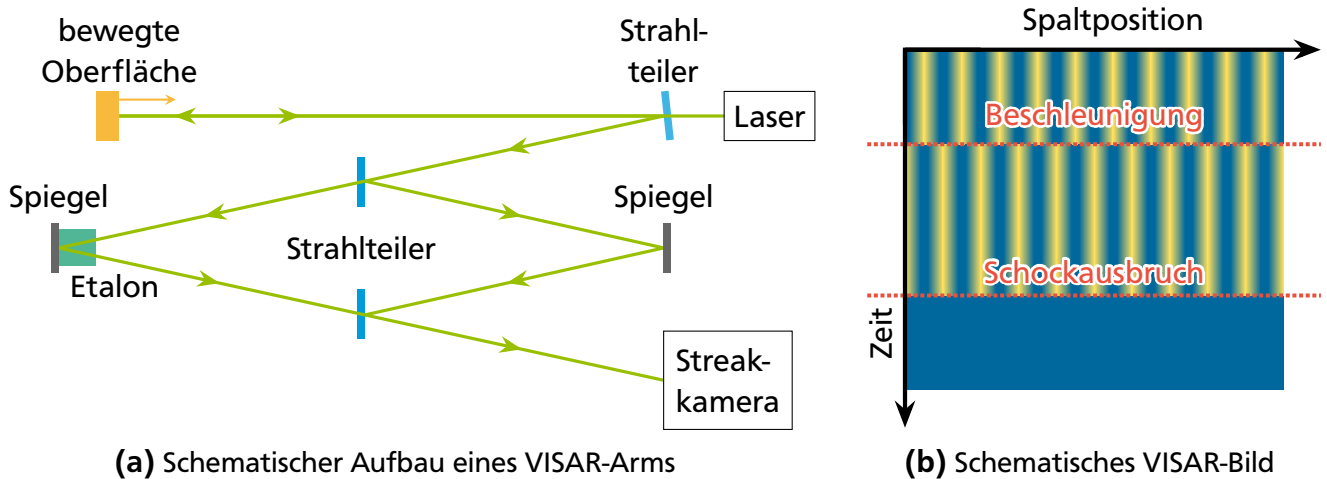
---

In Schockwellenexperimenten ist die Bestimmung der makroskopischen thermodynamischen Größen Druck, Dichte und Temperatur notwendig, um den erreichten Endzustand des Systems bestimmen zu können. Mit den Rankine-Hugoniot-Gleichungen (2.17) – (2.19) sowie einer Zustandsgleichung lässt sich ein Gleichungssystem aus drei Gleichungen mit fünf Unbekannten aufstellen. Aus diesen müssen zwei Parameter im Experiment gemessen werden. Mit Röntgenbeugung kann die Dichte bestimmt werden, sofern feste Strukturen vorliegen (siehe Abschnitt 3.3). Die Schockgeschwindigkeit  $v_s$  ist die wohl am einfachsten zugängliche Größe, da sie sich in guter Näherung aus der Proben Dicke und der Durchlaufzeit der Schockwelle berechnen lässt. Der Ausbruch der Schockwelle auf der Probenrückseite ist mit einer Plasmaexpansion verbunden, deren Photonenemission zur Messung des Ausbruchzeitpunkts verwendet werden kann. Eine aufwendigere Methode zur Messung der Schockwellengeschwindigkeit ist die Radiographie [Antonelli *et al.* 2017], die zusätzlich noch Informationen über die Form der Schockwelle bereitstellt und auch die Messung der Dichte ermöglicht.

Seit einigen Jahren wird häufig ein *Velocity Interferometer System for Any Reflector* (VISAR) [Barker und Hollenbach 1972] in (Laser-)Schockexperimenten eingesetzt [Celliers *et al.* 2004; Falk *et al.* 2014; D. Riley 2018]. Die Probenrückseite wird mit einem Laser bestrahlt, der an dieser reflektiert wird. Das reflektierte Licht wird in einem Mach-Zehnder-Interferometer in zwei Strahlarme aufgespalten (siehe Abbildung 2.5a). In einem der Strahlarme ist ein sogenanntes Etalon eingebracht, welches das Licht aufgrund eines höheren Brechungsindex zeitlich zum anderen Strahlarm verzögert. Die anschließende Überlagerung beider Strahlarme erzeugt ein Interferenzbild, das von einer Streakkamera aufgenommen wird (siehe Abbildung 2.5b). Eine Streakkamera ist in der Lage, das auf den Eingangsspalt einfallende Licht eindimensional und zeitlich mit einer Auflösung im Pikosekundenbereich aufzunehmen [Demtröder 2013, S. 259ff].

Breitet sich die Schockwelle in einem transparenten Medium aus, so kann mit einem VISAR die Oberflächengeschwindigkeit  $v_{of}$  der Schockwelle bestimmt werden. Für Schockexperimente mit einem Druck von  $\lesssim 300$  GPa [Benuzzi-Mounaix *et al.* 2002] ist die Oberflächengeschwindigkeit in guter Näherung mit der Teilchengeschwindigkeit über  $v_2 = 0,5v_{of}$  verknüpft [Zel'dovich und Raizer 2002, S. 723; Eliezer 2002, S. 230]. Das reflektierte Laserlicht wird durch die Bewegung der Oberfläche dopplerverschoben und im Vergleich zu einer ruhenden Oberfläche verschieben sich die gemessenen Interferenzstreifen (siehe Abbildung 2.5b). Die Oberflächengeschwindigkeit kann aus der relativen Verschiebung der Interferenzstreifen bestimmt werden [Barker und Schuler 1974]. Ändert sich die Geschwindigkeit der Oberfläche beispielsweise durch eine Schockwelle sehr schnell, erfolgt eine abrupte Verschiebung der Interferenzstreifen und es ist nicht auszuschließen, dass das Interferenzbild um eine oder mehrere Streifenbreiten verschoben wird. Aus diesem Grund werden in einem VISAR zwei Mach-Zehnder-Interferometer





**Abbildung 2.5.:** (a) zeigt schematisch einen Arm des VISARs. Von einer Oberfläche reflektiertes Laserlicht wird in ein Mach-Zehnder-Interferometer eingebracht und dort in zwei Strahlarme aufgeteilt. Beide Strahlarme werden zur Interferenz gebracht, indem einer der optischen Wege durch ein Etalon verlängert wird. Der zweite VISAR-Arm (hier nicht dargestellt) unterscheidet sich in der Wahl des Etalons. Das eindimensionale Interferenzmuster wird von einer Streakkamera über die Zeit aufgenommen. Das Bild ist schematisch in (b) zu sehen. Eine abrupte Beschleunigung der Oberfläche, beispielsweise durch eine Schockwelle, resultiert in einer Verschiebung des Interferenzmusters. Bricht die Schockwelle in ein Vakuum aus, so wird die reflektierende Oberfläche oft zerstört und das Interferenzbild bricht ab.

parallel eingesetzt, die über unterschiedliche Etalons verfügen. Einen Vergleich beider Interferenzbilder ermöglicht so die Bestimmung der Oberflächengeschwindigkeit.

Bricht die Schockwelle in ein Vakuum aus, so geht die Reflektivität der Oberfläche oft aufgrund der Plasmaexpansion verloren. Auf diese Weise kann sowohl bei transparenten als auch bei intransparenten Medien die Schockwellengeschwindigkeit gemessen werden. Bei intransparenten Medien fällt der Zeitpunkt der Beschleunigung und der Zeitpunkt des Schockausbruchs zusammen und eine Verschiebung des Interferenzbilds ist nicht zu beobachten. Um trotzdem die Schockwelle vermessen zu können, kann ein transparentes Material mit der Probenrückseite in Kontakt gebracht werden. Die Schockwelle breitet sich dann aus der Probe in dieses sogenannte Fenster aus.



---

## 3 Röntgenstreuung und -erzeugung

Eine effektive Methode zur Untersuchung von Plasmen und warmer dichter Materie ist die Streuung von Photonen. Hiermit lassen sich Größen wie Elektronen- und Massendichte, Temperatur, Ionisation und der Übergang von einer festen in eine flüssige Phase messen [Glenzer, Landen *et al.* 2007; Glenzer und Redmer 2009; J. M. Helfrich 2016; Kraus 2012; D. Riley 2018]. Damit Photonen als Diagnostik eingesetzt werden können, muss ihre Frequenz höher als die Plasmafrequenz sein, andernfalls werden sie an der kritischen Dichte reflektiert. Aufgrund der hohen Dichte von warmer dichter Materie ist sichtbares Licht zur Untersuchung der Mikrostruktur nicht mehr ausreichend und der Einsatz von Röntgenstrahlung ist erforderlich. Als Röntgenstrahlung wird elektromagnetische Strahlung mit Energien von 100 eV bis etwa 200 keV bezeichnet, die aus energiereichen Elektronenprozessen entsteht.

Allgemein wird der einfallenden Röntgenstrahlung der Wellenvektor  $\mathbf{k}_i$  zugeordnet, der senkrecht auf der Wellenfront steht und dessen Betrag  $|\mathbf{k}_i| = 2\pi/\lambda$  durch die Wellenlänge  $\lambda$  bestimmt ist. Der Röntgenstrahlung kann zusätzlich der Impuls  $\hbar\mathbf{k}_i$  und die Energie  $\hbar\omega_i$  zugeordnet werden. Ein unter dem Winkel  $\theta$  gestreutes Photon wird mit dem Wellenvektor  $\mathbf{k}_s$  und der Frequenz  $\omega_s$  analog beschrieben. Für Streuexperimente ist häufig nur der Streuvektor  $\mathbf{k} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s$  wichtig sowie die Änderung des Impulses  $\hbar\mathbf{k} = \hbar(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_i)$  und der Energie  $\hbar\omega = \hbar(\omega_s - \omega_i)$ . Sind die Beträge der Wellenvektoren der einlaufenden und der auslaufenden Welle ungefähr gleich groß, so gilt für die Änderung

$$k = |\mathbf{k}| = \frac{2\omega_i}{c} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad . \quad (3.1)$$

Die Streuung von Röntgenstrahlung an Plasmen und warmer dichter Materie wird als Röntgen-Thomson-Streuung bezeichnet und beinhaltet die Streuung an freien sowie an schwach und stark gebundenen Elektronen. Dieser Prozess wird in diesem Kapitel einleitend vorgestellt und eine Beziehung zwischen der gestreuten Strahlungsleistung sowie dem dynamischen Strukturfaktor hergeleitet, der ein Maß für die Streufähigkeit ist. Im Anschluss wird auf den dynamischen Strukturfaktor detaillierter eingegangen, insbesondere auf seine Bestandteile aus Streuung an freien, schwach und stark gebundenen Elektronen. Die Streuung an Kristallstrukturen stellt einen Spezialfall dar und ist die Basis von Kristallspektrometern, die im Rahmen dieser Arbeit im Experiment verwendet werden. Die Absorption von Röntgenstrahlung in Materie sowie die Erzeugung mittels eines Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers schließen das Kapitel ab.

---

### 3.1 Röntgen-Thomson-Streuung

---

Die Streuung von Photonen in Plasmen erfolgt an freien, schwach sowie stark gebundenen Elektronen. Während die einzelnen Streuvorgänge beispielsweise als Compton-, Raman-

und Rayleigh-Streuung bekannt sind, wird der Gesamtstreuprozess als Thomson-Streuung zusammengefasst, auch wenn die Thomson-Streuung ursprünglich lediglich den Grenzfall der Compton-Streuung für kleine Photonenenergien beschreibt. Im Rahmen dieser Arbeit wird der Begriff Röntgen-Thomson-Streuung für die gesamtheitliche Streuung von Röntgenstrahlung an Plasmen und warmer dichter Materie verwendet [Glenzer und Redmer 2009]. Zur Herleitung der gestreuten Leistung von einem Volumenelement  $V$  wird die einfallende Röntgenstrahlung als ebene elektromagnetische Welle

$$\mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t) = E_{i0} \hat{\mathbf{p}}_i \exp[i(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}(t) - \omega_i t)] \quad (3.2)$$

betrachtet mit der Feldamplitude  $E_{i0}$ , die in Richtung des Polarisationsvektors  $\hat{\mathbf{p}}_i$  zeigt. Eine schematische Darstellung des Streuprozesses ist in Abbildung 3.1a zu sehen. Trifft diese Welle auf ein Teilchen mit der Ladung  $Z_\alpha e$  und der Masse  $m_\alpha$ , wird dieses durch das Feld entsprechend der Bewegungsgleichung

$$m_\alpha \frac{d\mathbf{v}}{dt} = -Z_\alpha e \mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t) \quad (3.3)$$

beschleunigt und emittiert dadurch selbst ein Strahlungsfeld, das als Dipolstrahlung genähert werden kann [Jackson 2006, S. 767]. Das von einem Detektor am Ort  $\mathbf{R}_{\text{Det}}$  wahrgenommene gestreute elektrische Feld ist unter Verwendung der Gleichungen (3.2) und (3.3) nichtrelativistisch ( $|\mathbf{v}| \ll c$ ) durch

$$\mathbf{E}_{s\alpha}(\mathbf{R}_{\text{Det}}, t) = \frac{Z_\alpha^2 E_{i0} r_e m_e}{m_\alpha R} [\hat{\mathbf{n}}_s \times (\hat{\mathbf{n}}_s \times \hat{\mathbf{p}}_i)] \exp[i(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}(t^{\text{ret}}) - \omega_i t^{\text{ret}})] \quad (3.4)$$

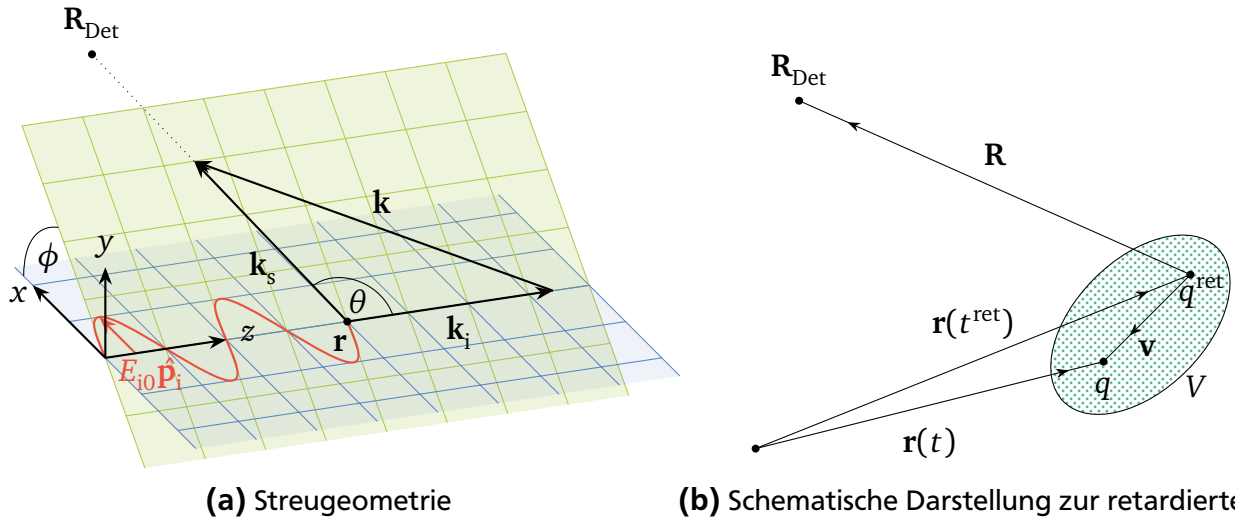
gegeben. Hier ist  $r_e = e^2/(4\pi\epsilon_0 m_e c^2)$  der klassische Elektronenradius und der Abstand des Detektors zum Teilchen beträgt  $R = |\mathbf{R}| = |\mathbf{R}_{\text{Det}} - \mathbf{r}(t^{\text{ret}})|$ . Hier wurde die retardierte Zeit

$$t^{\text{ret}} = t - \frac{|\mathbf{R}_{\text{Det}} - \mathbf{r}(t^{\text{ret}})|}{c} \stackrel{R \gg L}{\approx} t - \frac{R - \hat{\mathbf{n}}_s \cdot \mathbf{r}(t^{\text{ret}})}{c} \quad (3.5)$$

eingeführt (siehe Abbildung 3.1b) [Froula *et al.* 2011, S. 37]. Sie berücksichtigt den Zeitunterschied zwischen der Emission der elektromagnetischen Welle vom streuenden Teilchen zum Zeitpunkt der Messung am Ort des Detektors. Die Ausdehnung des Streuvolumens  $L = \sqrt[3]{V}$  wird als klein im Vergleich zum Abstand  $R$  angenommen. Die Strahlung wird in Richtung des Einheitsvektors  $\hat{\mathbf{n}}_s$  gestreut. Gleichung (3.4) zeigt auch die Dominanz der Elektronen im Streuprozess, denn für alle Elemente gilt  $Z_\alpha^2 m_e / m_\alpha \ll 1$ . Daher werden in den weiteren Rechnungen nur Elektronen betrachtet mit  $m_\alpha = m_e$  und  $Z_\alpha = 1$ . Weiterhin wird deutlich, dass die gestreute Strahlung von der Polarisation der einfallenden Strahlung abhängt. Deren Einfluss ist durch

$$\mathcal{P}(\theta, \phi) = [\hat{\mathbf{n}}_s \times (\hat{\mathbf{n}}_s \times \hat{\mathbf{p}}_i)] = \begin{cases} 1 - \sin^2 \theta \cos^2 \phi & \text{linear polarisiert} \\ 1 - \frac{1}{2} \sin^2 \theta = \frac{1}{2} (1 + \cos^2 \theta) & \text{nicht polarisiert} \end{cases} \quad (3.6)$$

gegeben. Gleichung (3.4) ist nur für das abgestrahlte elektrische Feld eines einzelnen geladenen Teilchens gültig. Das gesamte gestreute elektrische Feld  $\mathbf{E}_s^T(\mathbf{R}_{\text{Det}}, t)$  ergibt sich aus der Über-



(a) Streugeometrie

(b) Schematische Darstellung zur retardierten Zeit

**Abbildung 3.1.:** (a) zeigt die Streuung einer einfallenden ebenen Welle (siehe Gleichung (3.2)) an einem Teilchen am Ort  $\mathbf{r}$ . Die Strahlung wird unter dem Winkel  $\theta$  zur einfallenden Strahlung in Richtung des Detektors  $\mathbf{R}_{\text{Det}}$  gestreut. Die Detektorebene ist um den Winkel  $\phi$  zur Polarisationsrichtung  $\hat{\mathbf{p}}_i$  der einfallenden Strahlung geneigt. Der Streuvektor  $\mathbf{k} = \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_i$  ist die Änderung des Wellenvektors. Die in (b) zum Zeitpunkt  $t$  vom Detektor am Ort  $\mathbf{R}_{\text{Det}}$  gemessene Strahlung ist bereits zu einem früheren Zeitpunkt  $t^{\text{ret}}$  am Teilchen gestreut worden. Dies ist die retardierte Zeit (siehe Gleichung (3.5)). Für eine einfachere Berechnung wird die Ausdehnung des Streuvolumens  $V$  als klein angenommen im Vergleich zur Entfernung zum Detektor  $|\mathbf{R}|$ .

lagerung der Streuteile aller Teilchen im Volumen  $V$ , wobei die Elektronenverteilung durch die Elektronendichte  $n_e(\mathbf{r}, t^{\text{ret}})$  berücksichtigt wird [Froula *et al.* 2011, S. 38]. Da die im Rahmen dieser Arbeit im Experiment eingesetzte Spektrometer die Streufrequenz  $\omega_s$  im Bereich  $[-d\omega_s/2, d\omega_s/2]$  akzeptieren, ist es sinnvoll, das Fourier-transformierte elektrische Streufeld

$$\begin{aligned}
 \mathbf{E}_s^T(\mathbf{R}_{\text{Det}}, \omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_s^T(\mathbf{R}_{\text{Det}}, t) \exp(i\omega_s t) dt \\
 &= \frac{r_e}{R} E_{i0} \mathcal{P}(\theta, \phi) \int_{-\infty}^{\infty} \int_V n_e(\mathbf{r}, t) \exp\left[-i\omega_s \left(t^{\text{ret}} + \frac{R - \hat{\mathbf{n}}_s \cdot \mathbf{r}}{c}\right)\right] \\
 &\quad \times \exp[i(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t^{\text{ret}})] d\mathbf{r} dt \quad .
 \end{aligned} \tag{3.7}$$

einzuführen. Dafür wurde die retardierte Zeit aus Gleichung (3.5) eingesetzt. Unter Verwendung von  $\int \exp[i(x - x_0)y] dy = 2\pi\delta(x - x_0)$ ,  $\mathbf{k} = \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_i$ ,  $\omega = \omega_s - \omega_i$  sowie  $k_s = \omega_s/c$  lässt sich Gleichung (3.7) zu

$$\mathbf{E}_s^T(\mathbf{R}_{\text{Det}}, \omega) = \frac{r_e}{R} E_{i0} \mathcal{P}(\theta, \phi) n_e(\mathbf{k}, \omega) \exp(ik_s R) \tag{3.8}$$

vereinfachen [Froula *et al.* 2011, S. 41]. Der konstante Phasenfaktor  $\exp(ik_s R)$  wird im Weiteren vernachlässigt.

Die im Experiment leichter zugängliche Größe ist die gestreute Leistung  $dP_s(\mathbf{R}_{\text{Det}}, t)$  pro Raumwinkelelement  $d\Omega$  am Ort des Detektors. Dazu wird der Poynting-Vektor  $\mathbf{S}_s = \epsilon_0 c^2 \mathbf{E}_s \times \mathbf{B}_s$  benötigt, der die Richtung des Energieflusses der gestreuten Welle angibt.  $\mathbf{B}_s(\mathbf{r}, t) = \hat{\mathbf{n}}_s \times \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t)/c$  beschreibt das magnetische Feld. Für die gestreute Leistung gilt dann

$$\frac{dP_s(\mathbf{R}_{\text{Det}}, t)}{d\Omega} = R^2 \mathbf{S}_s \cdot \hat{\mathbf{n}}_s = R^2 \epsilon_0 c |\mathbf{E}_s(\mathbf{R}_{\text{Det}}, t)|^2 \quad (3.9)$$

$$\frac{dP_s(\mathbf{R}_{\text{Det}})}{d\Omega} = \frac{dP_s(\mathbf{R}_{\text{Det}}, t)}{d\Omega} = R^2 \epsilon_0 c \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} |\mathbf{E}_s(\mathbf{R}_{\text{Det}}, t)|^2 dt \quad (3.10)$$

$$= R^2 \epsilon_0 c \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-\infty}^{\infty} |\mathbf{E}_s^T(\mathbf{R}_{\text{Det}}, t)|^2 dt \quad (3.11)$$

Das zeitliche Mittel wird über die Periode der Strahlung  $T$  durchgeführt und der Grenzwert  $T \rightarrow \infty$  ist gültig unter der Annahme, dass  $T$  groß ist im Vergleich zur Zeitspanne der Elektronenwechselwirkungen. Einsetzen von Gleichung (3.8) in Gleichung (3.11) und die Verwendung des Satzes von Parseval [K. F. Riley *et al.* 2006, S. 426] liefern für die vom Detektor gemessene Strahlungsleistung

$$\frac{d^2 P_s(\mathbf{R}_{\text{Det}})}{d\Omega d\omega_s} = \frac{3\sigma_T}{2\pi} I_i \mathcal{P}(\theta, \phi) N_e S(\mathbf{k}, \omega) \quad (3.12)$$

$$\text{mit} \quad S(\mathbf{k}, \omega) = \lim_{V, T \rightarrow \infty} \frac{1}{VT} \left\langle \frac{|n_e(\mathbf{k}, \omega)|^2}{2\pi n_e} \right\rangle \quad (3.13)$$

Hier ist  $\sigma_T = 8\pi/3r_e^2 = 6,65 \cdot 10^{-29} \text{ m}^2$  der klassische Thomson-Wirkungsquerschnitt eines freien Elektrons,  $I_i = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E_{i0}^2$  die Intensität der einfallenden Strahlung,  $N_e$  die Anzahl der Elektronen und  $\langle \dots \rangle$  der Ensemblemittelwert.  $S(\mathbf{k}, \omega)$  ist der dynamische Strukturfaktor und wird im nächsten Abschnitt detaillierter behandelt.

## 3.2 Dynamischer Strukturfaktor

Der in Gleichung (3.13) eingeführte dynamische Strukturfaktor ist ein Maß für die Streuung von Photonen [Gregori, Glenzer, Rogers *et al.* 2004] oder Neutronen [Lovesey 1984a,b]. Die Streufähigkeit eines Systems ist von der Paarverteilungsfunktion

$$G_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') = \frac{1}{\sqrt{N_\alpha N_\beta}} \langle \varrho_\alpha(\mathbf{r} + \mathbf{r}', t + t') \varrho_\beta(\mathbf{r}', t') \rangle \quad (3.14)$$

abhängig [Chávez-Rojo und Medina-Noyola 2006]. Diese beschreibt die Wahrscheinlichkeit, dass ausgehend von einem Teilchen der Sorte  $\alpha$  am Ort  $\mathbf{r} + \mathbf{r}'$  zum Zeitpunkt  $t + t'$ , ein Teilchen der Sorte  $\beta$  am Ort  $\mathbf{r}'$  zum Zeitpunkt  $t'$  zu finden ist. Werden die Teilchen als Punktteilchen betrachtet, so ist die zeitliche Verteilung der Teilchensorte  $\alpha$  im Raum klassisch durch  $\varrho_\alpha(\mathbf{r}, t) = \sum_i^{N_\alpha} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i(t))$  gegeben mit der Gesamtteilchenanzahl  $N_\alpha$ , der Delta-Funktion  $\delta$

sowie der Position  $\mathbf{r}_j(t)$  des  $j$ -ten Teilchens zum Zeitpunkt  $t$ . Im Gleichgewicht kann  $t' = 0$  gesetzt werden und durch eine Integration über  $\mathbf{r}'$  wird Gleichung (3.14) unabhängig vom Koordinatensystem. Der dynamische Ion-Ion-Strukturfaktor lässt sich aus der Paarverteilungsfunktion mittels Fourier-Transformation berechnen

$$S_{\alpha\beta}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi\sqrt{N_\alpha N_\beta}} \int \int G_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, t) \exp(\mathbf{i}\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \exp(i\omega t) d\mathbf{r} dt \quad . \quad (3.15)$$

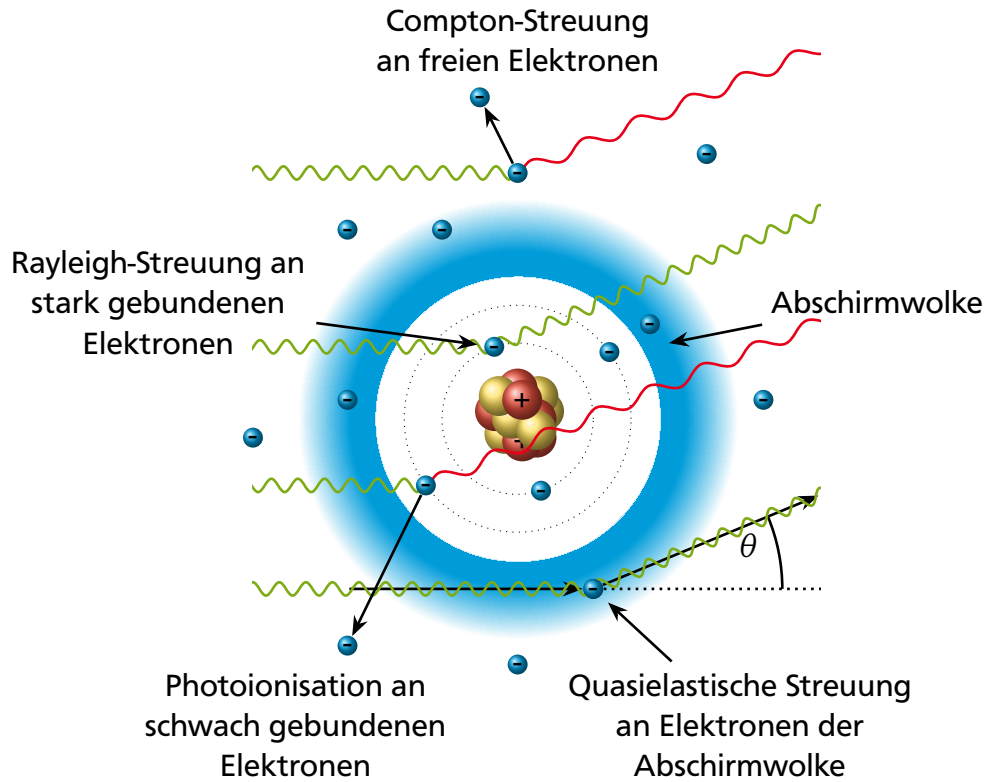
Im Rahmen dieser Arbeit findet die Streuung der Photonen an den Elektronen statt. Daher ist der dynamische Strukturfaktor von der Elektronenverteilung abhängig und beinhaltet alle Informationen über das mikroskopische System der zu untersuchenden Probe. Dabei ist zu beachten, dass es in einem teilionisierten Plasma eine Mischung aus freien, schwach sowie stark gebundenen Elektronen gibt, die untereinander sowie mit den Ionen wechselwirken. Die möglichen Streuvorgänge sind in Abbildung 3.2 skizziert. Der dynamische Strukturfaktor lässt sich durch die Beiträge der elastischen Streuung, der inelastischen Streuung an freien Elektronen sowie der inelastischen Streuung an gebundenen Elektronen darstellen [Chihara 1987, 2000; Wunsch *et al.* 2011; Wunsch 2011].

$$S(\mathbf{k}, \omega) = \underbrace{\sum_{\alpha,\beta} \sqrt{x_\alpha x_\beta} [f_\alpha^I(\mathbf{k}) + q_\alpha(\mathbf{k})] [f_\beta^I(\mathbf{k}) + q_\beta(\mathbf{k})] S_{\alpha\beta}(\mathbf{k}, \omega)}_{\text{elastische Streuung}} + \underbrace{\bar{Z} S_{ee}^0(\mathbf{k}, \omega)}_{\text{inelastische Streuung an freien Elektronen}} + \underbrace{\sum_{\alpha} x_\alpha Z_\alpha^b \int \tilde{S}_\alpha^{be}(\mathbf{k}, \omega - \omega') S_\alpha^s(\mathbf{k}, \omega') d\omega'}_{\text{inelastische Streuung an schwach gebundenen Elektronen}} \quad . \quad (3.16)$$

Gleichung (3.16) gilt für eine Zusammensetzung aus verschiedenen Elementen, die über die Summationen über  $\alpha$  und  $\beta$  dargestellt sind. Der Strukturfaktor ist direkt proportional zur gestreuten Strahlung (siehe Gleichung (3.12)). Insgesamt gibt es drei Beiträge, die durch die einzelnen Terme des dynamischen Strukturfaktors charakterisiert werden können. Ihre physikalischen Bedeutungen sowie die verwendeten Definitionen werden in den folgenden Abschnitten 3.2.1 – 3.2.3 detaillierter erläutert. Auf eine Herleitung von Gleichung (3.16) wird an dieser Stelle verzichtet. Sie ist beispielsweise in der Dissertation von Wunsch [2011] enthalten und basiert auf der Analyse der einzelnen auftretenden Wechselwirkungen, wobei für die Elektrodichten

$$n_e(\mathbf{k}, t) = \sum_{\alpha} n_{\alpha}^b(\mathbf{k}, t) + n^f(\mathbf{k}, t) \\ = \sum_{\alpha} \sum_{a=1}^{N_{\alpha}} \sum_{l=1}^{Z_{\alpha}^b} \exp[\mathbf{i}\mathbf{k}(\mathbf{R}_a^{\alpha}(t) + \mathbf{r}_{la}^{\alpha}(t))] + \sum_{\alpha} \sum_l^{N_{\alpha} Z_{\alpha}^f} \exp(\mathbf{i}\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_l^{\alpha}(t)) \quad (3.17)$$

verwendet wird.  $n_{\alpha}^b(\mathbf{k}, t)$  und  $n^f(\mathbf{k}, t)$  beschreiben die Dichten der gebundenen sowie freien Elektronen und die Summation über  $\alpha$  berücksichtigt die verschiedenen Ionensorten. Weiterhin ist  $N_{\alpha}$  die Anzahl der Ionen und  $Z_{\alpha}^b$  die Anzahl der gebundenen Elektronen pro Ionensorte.



**Abbildung 3.2.:** In einem teilionisierten Plasma wird die elektrische Ladung der einzelnen Ionen nach außen hin durch freie Elektronen abgeschirmt. Die Streuung an diesen Elektronen sowie an stark gebundenen Kernelektronen erfolgt elastisch, da der Impulsübertrag vom Ion aufgenommen wird. Schwach gebundene Elektronen mit einer Bindungsenergie kleiner als der Coulomb-Energie können durch den Energieübertrag in das Kontinuum gehoben werden. Die Streuung an freien Elektronen folgt dem Compton-Effekt.

$\mathbf{R}_a^\alpha(t)$  beschreibt die Position des  $a$ -ten Ions und  $\mathbf{r}_{l\alpha}^\alpha(t)$  den Ort des  $l$ -ten gebundenen Elektrons des Ions  $a$ . Die Anzahl der freien Elektronen pro Ionensorte ist durch  $N_\alpha Z_\alpha^f$  gegeben und  $\mathbf{r}_l^\alpha(t)$  ist der Ort des  $l$ -ten freien Elektrons.

### 3.2.1 Elastische Streuung

Der erste Term von Gleichung (3.16) wird als Rayleigh-Streuung oder auch elastische Streuung bezeichnet. Er beschreibt die Streuung von elektromagnetischer Strahlung an Elektronen, die der Ionenbewegung dynamisch folgen. Dies sind zum einen stark gebundene Elektronen aus den inneren Elektronenschalen und zum anderen freie Elektronen, die die positive Ladung der Ionen nach außen hin abschirmen. Der Photonenimpuls wird vom Ion aufgenommen und aufgrund der deutlich größeren Masse im Vergleich zum Elektron findet quasi kein Energieaustausch statt, weshalb der Prozess als elastisch bezeichnet wird. Für die Rayleigh-Streuung gilt

$$W_R(\mathbf{k}, \omega) = \sum_{\alpha, \beta} \sqrt{x_\alpha x_\beta} [f_\alpha^I(\mathbf{k}) + q_\alpha(\mathbf{k})] [f_\beta^I(\mathbf{k}) + q_\beta(\mathbf{k})] S_{\alpha\beta}(\mathbf{k}, \omega) \quad . \quad (3.18)$$

Hier ist  $x_\alpha = n_\alpha / \sum_\alpha n_\alpha$  die Konzentration der Ionensorten,  $f_\alpha^I(\mathbf{k})$  der Ionformfaktor,  $q_\alpha(\mathbf{k})$  der Beitrag der abschirmenden Elektronen und  $S_{\alpha\beta}(\mathbf{k}, \omega)$  der dynamische Ion-Ion-Strukturfaktor,



der sich aus der Fourier-Transformation der Paarverteilungsfunktion (siehe Gleichung (3.15)) ergibt. Sie sind definiert als

$$f_a^l(\mathbf{k}) = \left\langle \sum_{l=1}^{Z_a^b} \exp(\mathbf{i}\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{la}^\alpha(t)) \right\rangle \quad (3.19)$$

$$q_a(\mathbf{k}) = \left\langle \sum_{l=1}^{Z_a^f} \exp(\mathbf{i}\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_l^\alpha(t)) \right\rangle \quad (3.20)$$

$$S_{\alpha\beta}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi\sqrt{N_\alpha N_\beta}} \int \sum_a^{N_\alpha} \sum_b^{N_\beta} \left\langle \exp(\mathbf{i}\mathbf{k} [\mathbf{R}_a^\alpha(t) - \mathbf{R}_b^\beta(0)]) \right\rangle \exp(i\omega t) dt \quad (3.21)$$

Der Ionformfaktor stellt die Fourier-Transformation der Ladungsverteilung des Ions dar und beschreibt die Abhängigkeit der Streuung vom Impulsübertrag. Eine relativ exakte numerische Berechnung ist mit einem Hartree-Fock-Ansatz möglich [James 1982, S. 117–123]. Alternativ werden auch numerische Fits an experimentelle Daten verwendet [Waasmaier und Kirfel 1995]. Unter der Annahme, dass sich jedes gebundene Elektron in einem wasserstoffähnlichen Feld bewegt, können die Wasserstoffwellenfunktionen als Näherung zur Berechnung des Ionformfaktors genutzt werden. In diesem Modell ergeben sich die Ionformfaktoren der K- und L-Schalenelektronen analytisch zu [Pauling und Sherman 1932]

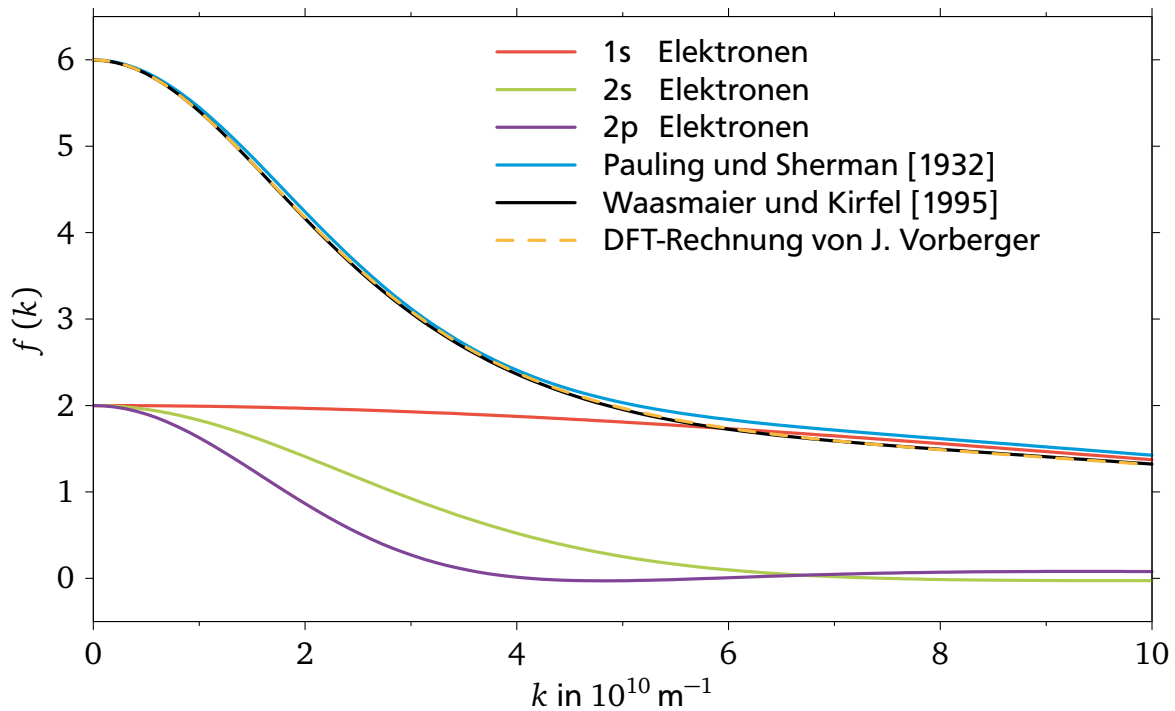
$$f_{1,0}(k) = \frac{1}{\left[1 + (ka_B/2Z_{1,0}^\alpha)^2\right]^2} \quad (3.22)$$

$$f_{2,0}(k) = \frac{1 - (ka_B/Z_{2,0}^\alpha)^2}{\left[1 + (ka_B/Z_{2,0}^\alpha)^2\right]^4} \quad (3.23)$$

$$f_{2,1}(k) = \frac{\left[1 - 2(ka_B/Z_{2,1}^\alpha)^2\right] \left[1 - (ka_B/Z_{2,1}^\alpha)^2\right]}{\left[1 + (ka_B/Z_{2,1}^\alpha)^2\right]^4} \quad (3.24)$$

$$\text{mit} \quad f(k) = \sum_{n,l} f_{n,l}(k) \quad (3.25)$$

Hier ist  $a_B = 4\pi\epsilon_0\hbar^2/(m_e e^2)$  der Bohrsche Radius und  $Z_{n,l} = Z - z_{n,l}$  die effektive Kernladung, die ein Elektron mit der Hauptquantenzahl  $n$  und der Nebenquantenzahl  $l$  sieht. Die Abschirmkonstante  $z_{n,l}$  ist abhängig von der Anzahl der gebundenen Elektronen und wurde von Pauling und Sherman [1932] für Atome und unterschiedlich geladene Ionen berechnet. Im Rahmen dieser Arbeit können die Ionformfaktoren durch die Atomformfaktoren genähert werden (siehe Abschnitt 3.2.4). Für die verwendeten Elemente Wasserstoff und Kohlenstoff betragen die effektiven Kernladungen im nicht ionisierten Zustand  $Z_{1,0}^H = 1$ ,  $Z_{1,0}^C = 5,812$ ,  $Z_{2,0}^C = 3,957$  und  $Z_{2,1}^C = 3,086$ . Aus diesen effektiven Kernladungen lässt sich mit den Gleichungen (3.22) – (3.25) der Atomformfaktor für ein Atom berechnen. In Abbildung 3.3 sind die Atomformfaktoren für die einzelnen Elektronen nach Gleichungen (3.22) – (3.24) sowie die Summe aller Elektronen dargestellt. Als Vergleich wird der Atomformfaktor noch nach dem Modell von Waasmaier und



**Abbildung 3.3.:** Im Vergleich ist der Atomformfaktor für Kohlenstoff nach Pauling und Sherman [1932], nach Waasmaier und Kirfel [1995] sowie als Ergebnis aus der Dichtefunktionaltheorie (siehe Kapitel 4.2) von Jan Vorberger (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf) zu sehen. Die Beiträge der einzelnen Elektronen wurden mit den Gleichungen (3.22) – (3.24) berechnet.

Kirfel [1995] berechnet sowie mittels Dichtefunktionaltheorie (siehe Kapitel 4.2.1). Alle drei Methoden zeigen einen sehr ähnlichen Verlauf.

### 3.2.2 Inelastische Streuung an freien Elektronen

Trifft ein Photon auf ein freies Elektron, so nimmt dieses die Photonenenergie auf und wird zur Schwingung angeregt. Es emittiert dann ein Photon, dessen Energie um die gewonnene Bewegungsenergie des Elektrons reduziert ist. Für große Werte von  $k$  entspricht dieser Vorgang dem Compton-Effekt. Die Streuung erfolgt an Dichtefluktuationen der freien Elektronen im Plasma und bietet eine Möglichkeit, die Elektronendichte oder auch die Elektronentemperatur zu messen [Glenzer, Landen *et al.* 2007; Glenzer und Redmer 2009]. Die Streuung an freien Elektronen ist in Gleichung (3.16) der zweite Term  $\bar{Z}S_{ee}^0(\mathbf{k}, \omega)$ . Hier ist  $\bar{Z} = \sum_{\alpha} n_{\alpha}Z_{\alpha} / \sum_{\alpha} n_{\alpha}$  der mittlere Ionisationsgrad und  $S_{ee}^0(\mathbf{k}, \omega)$  der dynamische Strukturfaktor eines freien Elektronengases. Er berechnet sich aus dem dynamischen Elektron-Elektron-Strukturfaktor  $S_{ee}(\mathbf{k}, \omega)$ , der alle ungebundenen Elektronen beinhaltet. Dies schließt auch die Elektronen in den Abschirmwolken mit ein, die bereits einen Beitrag zur elastischen Streuung liefern

$$S_{ee}^0(\mathbf{k}, \omega) = S_{ee}(\mathbf{k}, \omega) - \sum_{\alpha, \beta} \sqrt{x_{\alpha}x_{\beta}} q_{\alpha}(\mathbf{k}) q_{\beta}(\mathbf{k}) S_{\alpha\beta}(\mathbf{k}, \omega) \quad (3.26)$$

$$S_{ee}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi Z^f N} \int \left\langle \sum_{\alpha} \sum_{l,m}^{N_{\alpha} Z_{\alpha}^f} \exp(i\mathbf{k}[\mathbf{r}_l^{\alpha}(t) - \mathbf{r}_m^{\alpha}(0)]) \right\rangle \exp(i\omega t) dt \quad (3.27)$$

Das Fluktuations-Dissipations-Theorem [Kubo 1957, 1966] besagt, dass die mit dem Strukturfaktor beschriebenen Dichtefluktuationen im Plasma im Zusammenhang mit der durch die dielektrische Funktion  $\epsilon(\mathbf{k}, \omega)$  beschriebenen Dissipation von Energie stehen. Daher kann der Strukturfaktor allgemein auch geschrieben werden als [Glenzer und Redmer 2009]

$$S(\mathbf{k}, \omega) = \frac{\epsilon_0 \hbar k^2}{\pi e^2 n_e} \frac{1}{1 - \exp[\hbar\omega / (k_B T_e)]} \text{Im} \epsilon^{-1}(\mathbf{k}, \omega) \quad . \quad (3.28)$$

Die Berechnung der dielektrischen Funktion für ein freies Elektronengas kann mit der *Random Phase Approximation* (RPA) [Bohm und Pines 1951, 1953; Pines und Bohm 1952] erfolgen. Eine Verbesserung dieser Methode ist mit der Verwendung des Born-Mermin-Ansatzes für Stöße [Gregori, Glenzer, Rozmus *et al.* 2003; Höll *et al.* 2004; Redmer *et al.* 2005] möglich. Da der Beitrag freier Elektronen im Rahmen dieser Arbeit vernachlässigt werden kann (siehe Abschnitt 3.2.4), wird an dieser Stelle auf eine detaillierte Ausführung verzichtet.

### 3.2.3 Inelastische Streuung an gebundenen Elektronen

Der dritte Term von Gleichung (3.16) beschreibt die inelastische Streuung an den gebundenen Elektronen der äußeren Elektronenschalen. Abhängig vom Energieübertrag können die Elektronen in einen höheren gebundenen Zustand angeregt werden. Dies wird als Raman-Streuung bezeichnet. Ist der Energieübertrag größer als die Ionisationsenergie des Elektrons, geht es als freies Elektron in das Kontinuum über. Der Beitrag der Streuung an äußeren Elektronen zum Strukturfaktor berechnet sich nach

$$S_{\text{bf}}(\mathbf{k}, \omega) = \sum_{\alpha} x_{\alpha} Z_{\alpha}^b \int \tilde{S}_{\alpha}^{\text{be}}(\mathbf{k}, \omega - \omega') S_{\alpha}^{\text{s}}(\mathbf{k}, \omega') d\omega' \quad . \quad (3.29)$$

Hier beschreibt  $\tilde{S}_{\alpha}^{\text{be}}(\mathbf{k}, \omega)$  die Wechselwirkung der Elektronen desselben Nukleons untereinander und  $S_{\alpha}^{\text{s}}(\mathbf{k}, \omega)$  die Ioneneigenbewegung mit

$$\tilde{S}_{\alpha}^{\text{be}}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi N_{\alpha}} \int \sum_{l,m=1}^{Z_{\alpha}^b} \langle \exp(i\mathbf{k}[\mathbf{r}_{la}(t) - \mathbf{r}_{ma}(0)]) \rangle \exp(i\omega t) dt - \frac{1}{Z_{\alpha}^b} |f_{\alpha}(\mathbf{k})|^2 \delta(\omega) \quad (3.30)$$

$$S_{\alpha}^{\text{s}}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi N_{\alpha}} \int \sum_{a=1}^{N_{\alpha}} \langle \exp(i\mathbf{k}[\mathbf{R}_{\alpha}^a(t) - \mathbf{R}_{\alpha}^a(0)]) \rangle \exp(i\omega t) dt \quad . \quad (3.31)$$

In Experimenten mit leichten Elementen ist der Beitrag der Raman-Streuung oft nicht von Bedeutung [Gregori, Glenzer, Rogers *et al.* 2004; Gregori, Glenzer, Rozmus *et al.* 2003] und wird daher auch hier vernachlässigt. Zur Beschreibung des Beitrags der in das Kontinuum übergehenden Elektronen wird häufig die *Impulse Approximation* [Eisenberger und Platzman 1970; Gregori, Glenzer, Rogers *et al.* 2004] verwendet. Diese Näherung geht davon aus, dass die Dauer der Wechselwirkung klein ist, sodass sich das vom Elektron gesehene nukleare Potential nicht ändert und die Elektronen als frei betrachtet werden können. Die Dopplerverbreiterung der gestreuten Photonen ist durch die initiale Geschwindigkeitsverteilung der Elektronen gegeben. Im

einfachsten Fall können die Elektronen durch Wasserstoffwellenfunktionen beschrieben werden [Bloch und Mendelsohn 1975]. Dieser Ansatz ist nur gültig für schwach gebundene Elektronen, für die  $|E_b/E_c|^2 \ll 1$  gilt. Hier ist  $E_b$  die Bindungsenergie der Elektronen und  $E_c = \hbar^2 k^2 / (2m_e)$  die Compton-Energie.

Die Elektronen der  $L$ -Schale von Kohlenstoff besitzen eine Ionisationsenergie zwischen 11,26 eV und 64,49 eV [Haynes 2016, S. 10-204], während die Comptonenergie im Experiment bis zu 200 eV beträgt. Die Nutzung von Wasserstoffwellenfunktionen ist daher ungenau und Störungsterme höherer Ordnung müssen berücksichtigt werden [Gregori, Glenzer, Rogers *et al.* 2004]. Alternativ können auch Coulombwellenfunktionen verwendet werden [Schumacher *et al.* 1975]. Der dynamische Strukturfaktor der Streuung an schwach gebundenen Elektronen kann in der Impulse Approximation als

$$\tilde{S}_\alpha^{\text{be}}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{r_k}{Z_\alpha^b B^3} \sum_{n,l} \sum_s J_{n,l}^s(k, \omega) \quad (3.32)$$

geschrieben werden [Glenzer und Redmer 2009; Gregori, Glenzer, Rogers *et al.* 2004]. Hier bezeichnet  $Z_\alpha^b$  die Anzahl der gebundenen Elektronen und  $J_{n,l}^s(k, \omega)$  je nach gewähltem Ansatz die Wellenfunktion des  $s$ -ten Elektrons in den Haupt- und Nebenquantenzahlen  $n$  und  $l$ . Die Normierungskonstante  $r_k$  berücksichtigt die Möglichkeit von kohärenter Streuung [Paakkari und Suortti 1974] und ist durch

$$r_k = 1 - \frac{1}{Z_\alpha^b} \sum_{n,l} f_{n,l}^2(k) \quad (3.33)$$

gegeben [James 1982, S. 260]. Der Beitrag  $f_{n,l}(k)$  der einzelnen Elektronen zum Ionformfaktor wird für Elektronen der  $K$ - und  $L$ -Schale gemäß den Gleichungen (3.22) – (3.24) berechnet. Der Faktor  $B$  in Gleichung (3.32) ist nur bei großen Impulsüberträgen relevant und wird mit der Breit-Dirac-Formel bestimmt [James 1982, S. 260]

$$B = 1 + \frac{1}{\omega} \frac{\hbar k^2}{2m_e} \quad (3.34)$$

---

### 3.2.4 Experimentelle Bestimmung der Rayleigh-Streuung für große Streuwinkel

---

Die Messung der Rayleigh-Streuung, die einen direkten Zugang zum Ion-Ion-Strukturfaktor und der mikroskopischen Struktur des Systems darstellt, ist das Ziel dieser Arbeit. In diesem Abschnitt werden daher einige experimentspezifische Näherungen vorgestellt, die die Bestimmung der Rayleigh-Streuung aus den gemessenen Daten vereinfachen.

In einem isotropen System hängt der dynamische Strukturfaktor (siehe Gleichung (3.16)) und alle seine Teilbeiträge nur vom absoluten Wert des Streuvektors  $|\mathbf{k}| = k$  ab. Weiterhin sind die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Streuexperimente nicht in der Lage, die Ionenbewegung in der elastischen Streuung aufzulösen. Daher ist die Betrachtung des statischen anstelle des dynamischen Ion-Ion-Strukturfaktor ausreichend und es gilt  $S_{\alpha\beta}(k, \omega) = S_{\alpha\beta}(k) \delta(\omega)$ .

Die im Experiment erreichten Elektronentemperaturen sind mit  $T_e < 1$  eV niedrig und weit unterhalb der ersten Ionisationsenergie von Kohlenstoff. Daher ist von einer geringen Ionisation auszugehen und Beiträge von freien Elektronen können vernachlässigt werden. Dies gilt auch für den Beitrag  $q_\alpha(k)$  der freien Elektronen zur Abschirmung der Ionen, für den bei hinreichend großen Streuwinkeln sowieso ein Wert von  $q_\alpha(k) \approx 0$  zu erwarten ist [Wünsch 2011].

Für große Streuwinkel kann der Beitrag der inelastisch streuenden gebundenen Elektronen zu

$$Z_\alpha^b \int \tilde{S}_\alpha^{\text{be}}(\mathbf{k}, \omega - \omega') S_\alpha^s(\mathbf{k}, \omega') d\omega' = \sum_{n=1}^{Z_\alpha^{\text{wb}}} (1 - f_{n,\alpha}^2(k)) \quad (3.35)$$

umgeschrieben werden [James 1982, S. 99]. Die inelastische Streuung ist nur noch von den Beiträgen zu den Formfaktoren aller schwach gebundenen Elektronen  $Z_\alpha^{\text{wb}}$  abhängig. Aufgrund der niedrigen Ionisation und des großen Streuwinkels entspricht der Ionformfaktor näherungsweise dem Atomformfaktor  $f_\alpha^A(k) \approx f_\alpha^I(k) + q_\alpha(k) \approx f_\alpha^I(k)$  und in den Gleichungen (3.22) – (3.24) können die effektiven Kernladungen des Atomgrundzustands verwendet werden.

Mit diesen Näherungen kann der statische Strukturfaktor  $S(k)$  und die Rayleigh-Streuung  $W_R(k)$  unter Vernachlässigung von freien Elektronen und bei großen Streuwinkeln mit

$$S(k) = \underbrace{\sum_{\alpha,\beta} \sqrt{x_\alpha x_\beta} f_\alpha(k) f_\beta(k) S_{\alpha\beta}(k)}_{W_R(k), I_{\text{el}}} + \underbrace{\sum_\alpha x_\alpha \left[ \sum_{n=1}^{Z_\alpha^{\text{wb}}} (1 - f_{n,\alpha}^2(k)) \right]}_{I_{\text{inel}}} \quad (3.36)$$

$$W_R(k) = \sum_\alpha x_\alpha \left[ \sum_{n=1}^{Z_\alpha^{\text{wb}}} (1 - f_{n,\alpha}^2(k)) \right] \frac{I_{\text{el}}}{I_{\text{inel}}} \quad (3.37)$$

bestimmt werden.  $I_{\text{el}}$  und  $I_{\text{inel}}$  sind die gemessenen Intensitäten der elastischen und inelastischen Streuung. Bei hinreichend großen Streuwinkeln sind diese Anteile getrennt auflösbar und die Rayleigh-Streuung ist direkt aus dem Quotienten der gemessenen elastischen und inelastischen Streuung zugänglich. Für Gleichung (3.37) werden die Atomformfaktoren der einzelnen Elektronen benötigt, die schwach gebunden sind. Da mit dem Modell der Atomformfaktoren nach Waasmaier und Kirfel [1995] keine Beiträge der einzelnen Elektronen berechnet werden können und keine Ergebnisse aus der Dichtefunktionaltheorie vorliegen, werden die Atomformfaktoren nach dem Modell von Pauling und Sherman [1932] berechnet.

### 3.3 Streuung an Kristallstrukturen

Ein Spezialfall der Streuung von Photonen an Materie tritt an (teil-)kristallinen Festkörpern auf. Ein Kristall ist definiert durch die Elementarzelle, deren Form durch die Längen der Basisvektoren  $a$ ,  $b$  und  $c$  sowie den Winkeln  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$  zwischen den Basisvektoren gegeben ist. Es existieren sieben Gruppen mit insgesamt 14 Untergruppen von Kristallstrukturen, den sogenannten Bravais-Gittern. Sie unterscheiden sich in der Symmetrie der Basisvektoren und der Winkel

sowie in der Positionierung der Atome im Kristallgitter. Die Kristallstruktur mit der höchsten Symmetrie ist das kubische Kristallsystem, das durch  $a = b = c$  und  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$  gegeben ist. Der eigentliche Kristall ist aus einer Wiederholung der Elementarzelle in allen Raumrichtungen aufgebaut [Hunklinger 2009].

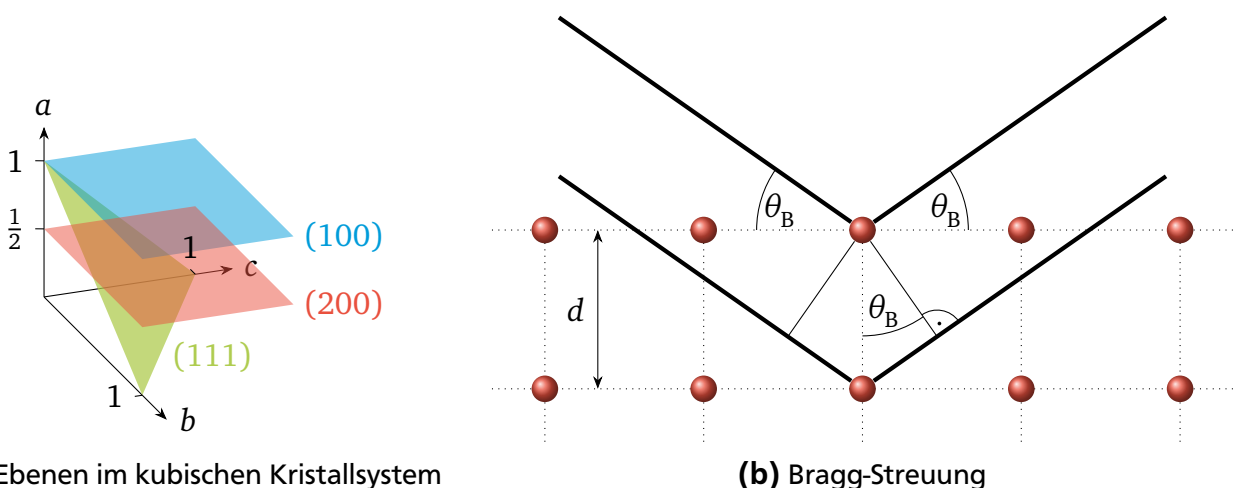
Innerhalb eines Kristallgitters existieren verschiedene Kristallebenen. Diese Ebenen sind eindeutig durch die millerschen Indizes in der Form  $(hkl)$  identifizierbar. Um die millerschen Indizes zu bestimmen, werden die Schnittpunkte der Ebene mit den Basisvektoren betrachtet. Diese werden um gemeinsame Faktoren gekürzt und dann der Kehrwert gebildet. Multipliziert mit dem kleinsten gemeinsamen Vielfachen ergeben sich die drei ganzen, teilerfremden Zahlen  $h$ ,  $k$  und  $l$ . Negative Zahlen wie  $-3$  werden als  $\bar{3}$  geschrieben. Die  $(111)$ ,  $(100)$  und  $(200)$  Ebene in einem kubischen Kristallsystem sind schematisch in Abbildung 3.4a gezeigt. Aufgrund der Periodizität der Elementarzelle wiederholen sich auch die Ebenen in einem festen Abstand  $d_{hkl}$ . Für eine kubische Kristallstruktur berechnet sich der Ebenenabstand mit

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (3.38)$$

Elektromagnetische Strahlung kann an einer solchen Ebene reflektiert werden, wenn der Ebenenabstand in der Größenordnung der Wellenlänge liegt. Für Kristalle trifft dies für Röntgenstrahlung zu. Sie wird an den Elektronenhüllen der Atome gestreut und zwischen den ausgehenden Wellen der einzelnen Atome kommt es zu Interferenz, die abhängig vom Ebenenabstand und dem Einfallswinkel konstruktiv sein kann und dann ein Beugungsmaximum, den Bragg-Peak, bildet [W. H. Bragg und W. L. Bragg 1913]. Dies ist der Fall, wenn die Gleichung

$$n\lambda = 2d \sin(\theta_B) \quad (3.39)$$

erfüllt ist. Hier ist  $n$  die Beugungsordnung,  $\lambda$  die Wellenlänge der Strahlung,  $d$  der Ebenenabstand und  $\theta_B$  der Bragg-Winkel.



**Abbildung 3.4.:** Abbildung (a) zeigt schematisch die Kristallebenen  $(111)$ ,  $(100)$  und  $(200)$  für ein kubisches Kristallsystem. Treffen Photonen unter dem Bragg-Winkel  $\theta_B$  auf Kristallebenen im Abstand  $d$ , so werden die Photonen reflektiert und interferieren konstruktiv. Dieser Prozess wird als Bragg-Streuung bezeichnet und ist schematisch in (b) zu sehen.

Das Volumen  $V = a^3$  der Elementarzelle (für ein kubisches Kristallsystem) ist über

$$\rho_2 = \frac{V_1}{V_2} \rho_1 \quad (3.40)$$

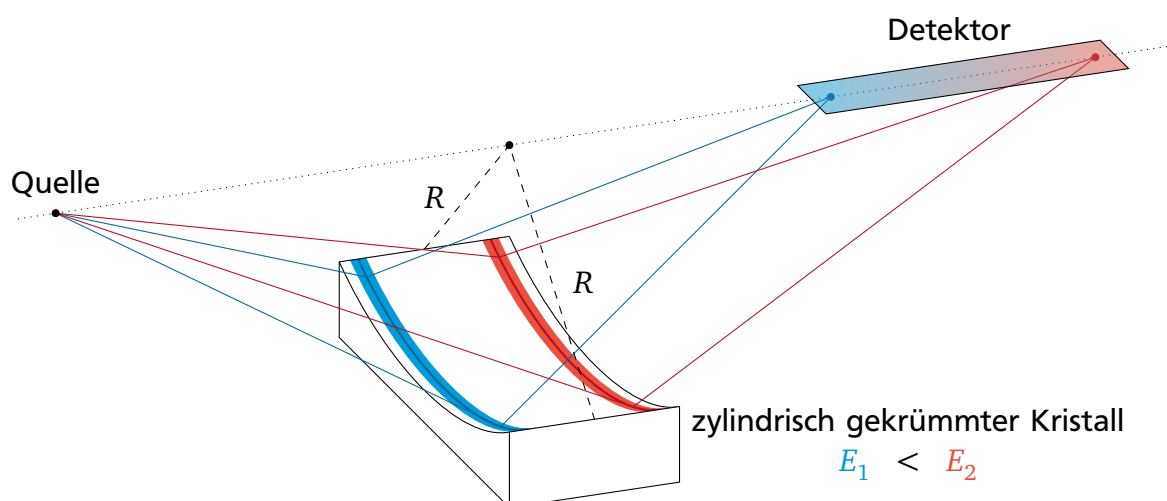
mit der Dichte  $\rho$  des Materials verknüpft. Der Bragg-Winkel ist nach Gleichung (3.39) vom Ebenenabstand abhängig, welcher nach Gleichung (3.38) mit den Basisvektoren der Elementarzelle zusammenhängt. Sind Dichte und Volumen der Elementarzelle unter Normalbedingungen bekannt, so lässt sich mit der Messung des Bragg-Winkels die Dichte eines Systems messen, sofern die Beugungsebene bekannt ist.

Der dynamische Strukturfaktor (siehe Gleichung (3.16)) ist nicht nur für Plasmen und warme dichte Materie gültig, er kann auch für Festkörper und Kristalle verwendet werden. Die Bragg-Peaks entsprechen dabei einer Delta-Funktion im Strukturfaktor.

### 3.4 Messung von Röntgenstrahlung mit Kristallspektrometern

Die im vorherigen Abschnitt 3.3 vorgestellte Bragg-Streuung wird im Rahmen dieser Arbeit in zwei Kristallspektrometern gezielt eingesetzt, um Röntgen-Thomson-Streuung energieaufgelöst zu messen. Da der Bragg-Winkel nach Gleichung (3.39) abhängig ist von der Wellenlänge der verwendeten Röntgenstrahlung, werden die Photonen mit der Energie  $E_1$  unter einem anderen Winkel reflektiert als Photonen mit der Energie  $E_2$  und damit von einem anderen Ort auf dem Kristall. Dies ist in Abbildung 3.5 schematisch dargestellt.

Zusätzlich zeigt Abbildung 3.5 auch die von-Hámos-Geometrie [Hámos 1933], die Photonen einer divergenten Photonenquelle auf eine Linie fokussieren kann. Hierzu werden zylindrisch

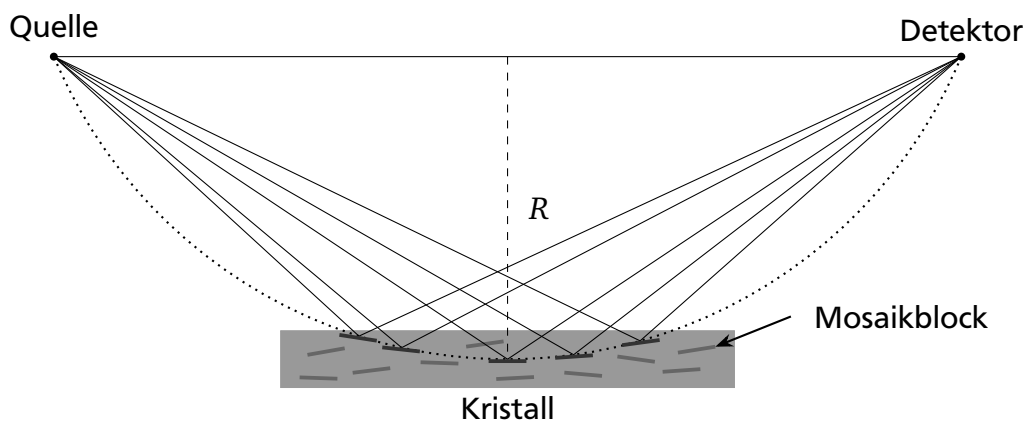


**Abbildung 3.5.:** In einer von-Hámos-Geometrie wird ein zylindrisch gekrümmter Kristall mit Krümmungsradius  $R$  verwendet. Liegen Quelle und Detektor auf der Krümmungsachse im gleichen Abstand zum Kristall, so wird ein divergenter Röntgenstrahl am Ort des Detektors fokussiert.

gekrümmte Kristalle mit dem Krümmungsradius  $R$  verwendet und sowohl Quelle als auch Detektor befinden sich auf der Zylinderachse. Weiterhin ist der Abstand zwischen Quelle und Kristall identisch mit dem Abstand zwischen Kristall und Detektor.

Für die im Experiment verwendete Röntgenenergie von 8180 eV besitzen Graphitkristalle die höchste integrale Reflektivität [Renninger 1956]. Die Reflexion der Photonen erfolgt an der (002) Ebene mit einem Ebenenabstand von 3,354 Å. Die verwendeten Kristalle werden *Highly Annealed Pyrolytic Graphite* (HAPG) genannt [Legall *et al.* 2006]. Sie bestehen aus synthetischen Mikrokristallen, sogenannten Mosaikblöcken, die in einer Schicht angeordnet sind. Durch dieses Verfahren haben die Blöcke jeweils eine leicht unterschiedliche Ausrichtung, deren Abweichung als Mosaizität bezeichnet wird.

Durch die Mosaizität können Photonen gleicher Energie auch dann noch reflektiert werden, wenn sie unter leicht verschiedenen Winkeln auf den Kristall treffen. Sie dringen so weit ein, bis sich an einem der unterschiedlich orientierten Mosaikblöcke die Bragg-Bedingung für sie erfüllt und das Photon reflektiert wird. Dies ist in Abbildung 3.6 schematisch dargestellt. Die Mosaizität führt daher zu einer Verschlechterung der Fokussierung. Diesem Effekt kann in Dispersionsrichtung zumindest teilweise entgegen gewirkt werden, wenn die Abstände zwischen Quelle und Kristall sowie zwischen Kristall und Detektor genau gleich groß gewählt werden. Dann befinden sich die an der Reflexion beteiligten Mosaikblöcke auf dem energieabhängigen Rowlandkreis und die Photonen treffen im selben Punkt auf die Detektoroberfläche. Dieser Effekt wird als Mosaikfokussierung bezeichnet und ist durch die Dicke des Kristalls begrenzt [Mizogawa 1997; Rio, Gambaccini *et al.* 1998]. Die Mosaizität der im Experiment verwendeten Kristalle ist kleiner als  $0,1^\circ$  [Zastrau *et al.* 2013].



**Abbildung 3.6.:** Bei Mosaikkristallen sind mehrere Mosaikblöcke an der Reflexion der Röntgenstrahlung beteiligt. Aufgrund ihrer unterschiedlichen Orientierungen kann die Bragg-Bedingung für einen größeren Akzeptanzbereich des Streuwinkels erfüllt werden. Sind die Abstände zwischen Quelle und Detektor zum Kristall gleich groß, liegen die an der Streuung beteiligten Mosaikblöcke auf dem Rowlandkreis und fokussieren die Röntgenstrahlung in Dispersionsrichtung auf einen Punkt.



### 3.5 Absorption von Röntgenstrahlung

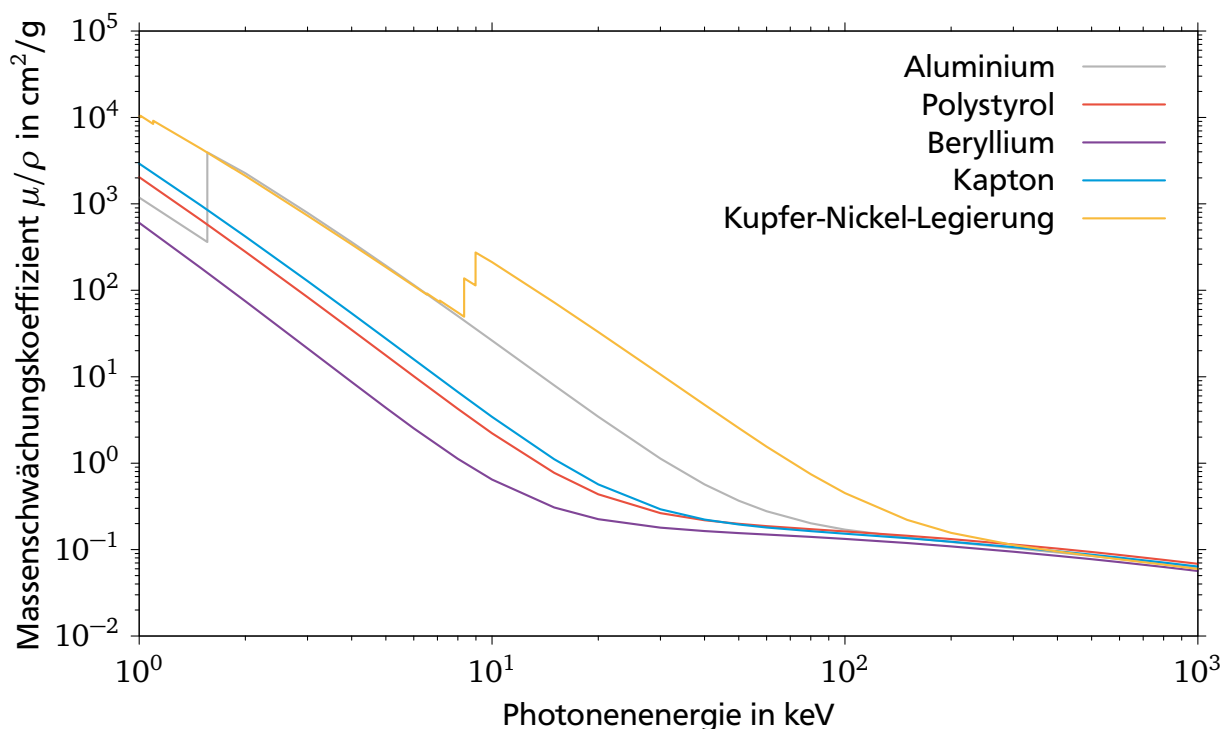
Im Experiment wird Röntgenstrahlung als Diagnostik verwendet und durchdringt dabei das Probenmaterial sowie die als Schutz vor den Röntgendetektoren montierten Filterfolien. Die Intensität von elektromagnetischer Strahlung reduziert sich abhängig von Material und Materialstärke gemäß dem Lambert-Beer'schen Gesetz

$$I(E, d) = I_0 \exp\left(-\frac{\mu(E)}{\rho} \rho d\right) \quad . \quad (3.41)$$

Dabei ist  $I(E, d)$  die Signalintensität der Röntgenstrahlung mit der Energie  $E$  nach dem Durchdringen von Materie der Dicke  $d$ ,  $I_0$  die ursprüngliche Intensität der Röntgenstrahlung und  $\mu(E)$  der energieabhängige Absorptionskoeffizient, der häufiger in Form des Massenschwächungskoeffizienten  $\mu(E)/\rho$  angegeben wird. In Abbildung 3.7 sind die Massenschwächungskoeffizienten aller für diese Arbeit relevanten Materialien zu sehen [Hubbell und Seltzer 2004, Tabelle 3]. Typischerweise werden in der Literatur nur die Massenschwächungskoeffizienten der einzelnen Elemente angegeben. Für Mischungen oder Legierungen kann daraus mittels

$$\frac{\mu}{\rho} = \sum_i w_i \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i \quad (3.42)$$

der gesamte Massenschwächungskoeffizient berechnet werden. Dabei ist  $(\mu/\rho)_i$  der Massenschwächungskoeffizient und  $w_i$  der Masseanteil des  $i$ -ten Elements [Hubbell und Seltzer 2004,



**Abbildung 3.7.:** Massenschwächungskoeffizienten von Proben- und Filtermaterialien [Hubbell und Seltzer 2004, Tabelle 3]

---

Kapitel 2]. Die Absorption von Röntgenstrahlung in Materie ist in der Auswertung der Röntgendetektoren in den Kapiteln 6 und 7 relevant.

---

### 3.6 Erzeugung von Röntgenstrahlung mit einem Röntgen-Freie-Elektronen-Laser

---

Die in dieser Arbeit untersuchte warme dichte Materie ist ein Zustand, der im Labor nur für wenige Nanosekunden auf Größenskalen von einigen 10 bis wenige 100 Mikrometer erzeugt werden kann. Um an diesem Materiezustand Streuexperimente durchführen zu können, sind hohe Photonenzahlen in einem möglichst definierten engbandigen Energiebereich erforderlich. Weiterhin muss die Frequenz der verwendeten Strahlung größer als die kritische Dichte des Plasmas sein (siehe Gleichung (2.6)). Die im Experiment verwendete Röntgenstrahlung mit einer Energie von 8180 eV wird mit einem Röntgen-Freie-Elektronen-Laser erzeugt, dessen Funktionsweise hier erläutert wird.

Die Erzeugung von intensiver Röntgenstrahlung mit einem Röntgen-Freie-Elektronen-Laser basiert auf dem Effekt, dass ein geladenes Teilchen Strahlung emittiert, wenn sich sein Impuls ändert. Die abgestrahlte Leistung kann mit der Larmor-Formel berechnet werden [Larmor 1897]. Ein im elektrischen Feld eines Atomkerns beschleunigtes Elektron emittiert sogenannte Bremsstrahlung. Sie zeichnet sich durch ein kontinuierliches Spektrum aus.

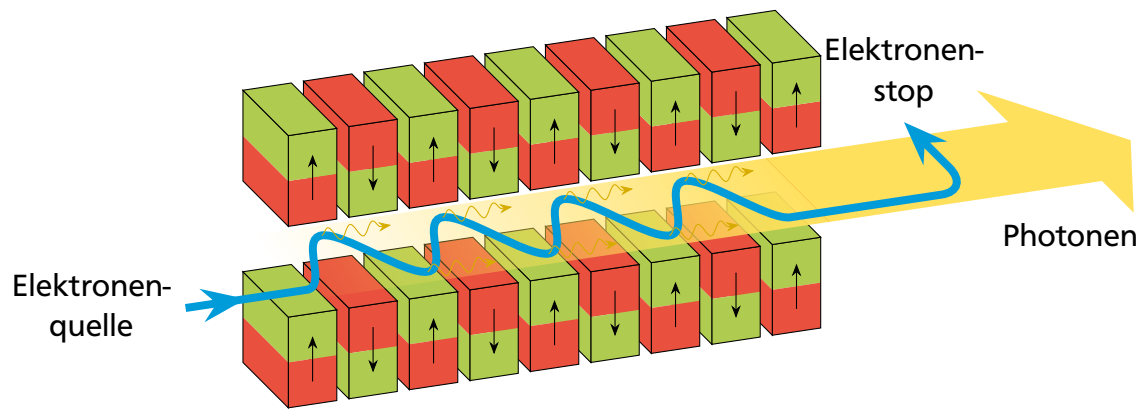
Wird ein geladenes Teilchen mit relativistischer Geschwindigkeit durch ein Magnetfeld auf eine Kreisbahn abgelenkt, entsteht Synchrotronstrahlung. Da die abgegebene Energie der elektromagnetischen Strahlung abhängig ist von der Impulsänderung, kann die Energie der emittierten Strahlung durch die Magnetfeldstärke und die Teilchengeschwindigkeit frei gewählt werden. Dieser Effekt wird bei einem Röntgen-Freie-Elektronen-Laser verwendet [Madey 1971]. Durch das alternierende Magnetfeld eines Undulators werden die einzelnen Elektronenpakete eines Elektronenstrahls auf eine Schlangenlinie gezwungen, wie es in Abbildung 3.8 schematisch dargestellt ist. Die Wellenlänge der emittierten Strahlung ist durch

$$\lambda = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left( 1 + \frac{K^2}{2} \right) \quad (3.43)$$

$$K = \frac{eB_0\lambda_u}{2\pi m_e c} \quad (3.44)$$

gegeben mit dem Lorentzfaktor  $\gamma$ , der Undulatorperiode  $\lambda_u$  sowie dem dimensionslosen Undulatorparameter  $K$  mit dem Magnetfeld des Undulators  $B_0$  [Huang und Kim 2007].

Die Emission der Strahlung erfolgt aufgrund der relativistischen Elektronenbewegung nahezu vollständig entlang der Elektronenbahn, die allerdings zu Beginn nicht kohärent ist. Daher sind die Undulatoren eines Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers sehr lang, sodass die emittierte Strahlung mit den Elektronenpaketen wechselwirkt. Dadurch werden die Pakete mikrostrukturiert und es entstehen dünne Scheiben senkrecht zur Bewegungsrichtung. Der Abstand der Scheiben entspricht der Wellenlänge  $\lambda$ , sodass die Emission eines mikrostrukturierten Elektronenpakets kohärent erfolgt und sich die Amplituden der Strahlung addieren. Auf diese Weise kann sehr intensive und energetisch schmalbandige Röntgenstrahlung erzeugt werden mit sehr kurzen Pulslängen im Femtosekundenbereich.



**Abbildung 3.8.:** In einem Röntgen-Freie-Elektronen-Laser werden Elektronenpakete auf nahezu Lichtgeschwindigkeit beschleunigt und bewegen sich anschließend durch einen Undulator, bestehend aus alternierenden Magnetfeldern. Durch die radiale Ablenkung wird periodisch elektromagnetische Strahlung ausgesendet, die wiederum mit den Elektronenpaketen wechselwirkt und diese mikrostrukturiert. Durch die Mikrostruktur ist die neu emittierte Strahlung kohärent. Der Elektronenstrahl wird abschließend vom Photonenstrahl getrennt.

Zusätzlich ist die Strahlung eines Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers zu einem sehr hohen Grad polarisiert. Für einen planaren Undulator, in dem sich die Elektronen horizontal bewegen (wie in Abbildung 3.8 gezeigt), ist die erzeugte Röntgenstrahlung horizontal polarisiert. Der Anteil an vertikal polarisierter Strahlung ist theoretisch kleiner als 1:1 000 000 [Geloni *et al.* 2015].



---

## 4 Simulationen

Mit steigender Komplexität von Experimenten ist es zunehmend erforderlich, sowohl für deren Planung als auch deren Auswertung auf Simulationen zurückzugreifen. Dies gilt insbesondere für warme dichte Materie, da es hier bisher keine einfach anwendbaren theoretischen Modelle gibt. Makroskopische Aussagen beispielsweise über Druck oder Temperatur des Endzustands können mit hydrodynamischen Simulationen getroffen werden. Diese bieten auch eine Einschätzung des Verlaufs von Schockwellen. Die interne Mikrostruktur kann hingegen nur mit *ab initio* Simulationen bestimmt werden. Beide Simulationsarten werden in diesem Kapitel kurz vorgestellt und die wichtigsten Ergebnisse erläutert. Weiterhin wird der Analysecode *Multi-Component Scattering Spectra* beschrieben, der für die Analyse von Röntgen-Thomson-Streuexperimenten entwickelt wurde und im Rahmen dieser Arbeit eingesetzt wird.

---

### 4.1 Hydrodynamische Simulationen mit HELIOS

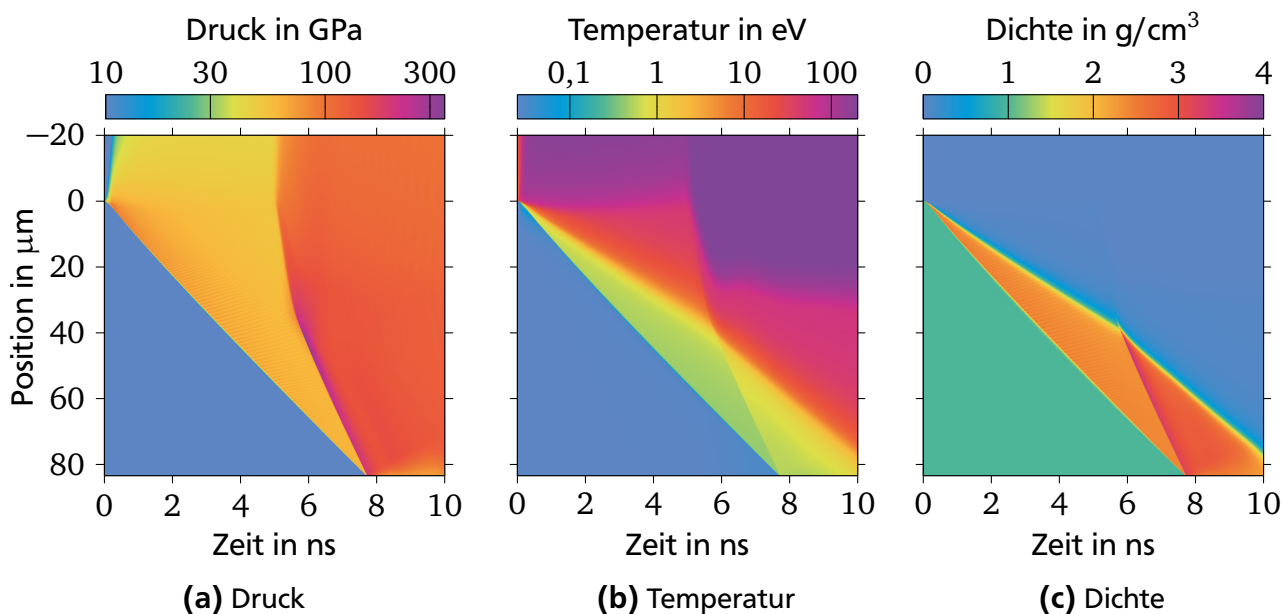
---

Eine vergleichsweise einfache Methode, eine Aussage über makroskopische Größen wie Druck, Temperatur und Dichte in Experimenten zu treffen, ist die Durchführung einer hydrodynamischen Simulation. Ihre Grundlage bilden die eulerschen Gleichungen (2.14) – (2.16), die vereinfacht eindimensional gelöst werden. Durch Berücksichtigung der Quell- und Senkterme in Gleichung (2.16) können auch Laserexperimente modelliert werden.

Um die eulerschen Gleichungen lösen zu können, sind zusätzliche Informationen notwendig. Dies ist zum einen die Zustandsgleichung und zum anderen die Opazität des Materials. Beides ist für extreme Materiezustände nur unzureichend genau bekannt und wird daher mit semiempirischen Modellen berechnet und als Datenbank zur Verfügung gestellt. Sehr verbreitet ist etwa die SESAME Datenbank [Lyon und Johnson 1992] für Zustandsgleichungen und PrOpacEOS [MacFarlane *et al.* 2006] für Zustandsgleichungen und Opazitäten.

Für hydrodynamische Simulationen kann das Programm HELIOS von PRISM Computational Science, Inc. [MacFarlane *et al.* 2006] eingesetzt werden. Das Programm ermöglicht die Festlegung der Laserintensität und -pulsform sowie des Probenmaterials. Dieses kann auch aus mehreren aufeinanderfolgenden Materialien bestehen. Die Simulation verteilt die Probenmasse auf ein Lagrange-Gitter, in dem die einzelnen Zellen sich bewegen und verformen können, jedoch immer dieselbe Menge an Masse beinhalten. Die Temperatur wird mit dem Spitzer-Modell [Spitzer und Härm 1953] als Ein- oder Zweitemperaturmodell umgesetzt. Alternativ ist auch eine konstante Wärmeleitfähigkeit oder ein Hybridmodell möglich.

Zur Bestimmung der makroskopischen thermodynamischen Parameter Druck, Temperatur und Dichte im Experiment wurden von Dominik Kraus (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf) Simulationen mit HELIOS durchgeführt. In den Simulationen wird eine initiale Laserintensität von  $2,25 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  angesetzt, die nach 5 ns auf  $6,7 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  ansteigt [Kraus, Vorberger, Pak



**Abbildung 4.1.:** In diesen HELIOS-Simulationen strahlt der Laser von oben auf die Probe, die an der Position 0 beginnt und eine Dicke von  $83,6 \mu\text{m}$  besitzt. Die Laserintensität beträgt anfänglich  $2,25 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  und löst eine Schockwelle aus, die nach  $7,6 \text{ ns}$  die Probenrückseite erreicht. Die Laserintensität steigt nach  $5 \text{ ns}$  auf  $6,7 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  an, sodass eine zweite Schockwelle entsteht, die das bereits komprimierte Material etwa zum Zeitpunkt  $t = 6 \text{ ns}$  erreicht und zum Zeitpunkt  $t = 7,6 \text{ ns}$  sich mit der ersten Schockwelle an der Probenrückseite vereinigt. Zum Zeitpunkt des Schockausbruchs wird ein Druck von  $(150 \pm 15) \text{ GPa}$ , eine Temperatur von  $(5000 \pm 500) \text{ K}$  sowie eine Massendichte von  $(3,0 \pm 0,1) \text{ g/cm}^3$  erwartet.

*et al.* 2017]. Diese Laserintensitäten sind an die im Experiment gemessenen Schockausbruchzeiten angepasst. Zur Berechnung wurde die Zustandsgleichung SESAME 7590 für Polystyrol verwendet und die Ergebnisse sind in Abbildung 4.1 dargestellt. Die erste Schockwelle bricht nach  $7,6 \text{ ns}$  auf der Rückseite aus, während die zweite Schockwelle etwa  $6 \text{ ns}$  nach dem Beginn der Simulation das bereits komprimierte Material erreicht und sich zum Zeitpunkt  $t = 7,6 \text{ ns}$  mit der ersten an der Probenrückseite vereint. Zum Zeitpunkt des Schockausbruchs wird ein Druck von  $(150 \pm 15) \text{ GPa}$ , eine Temperatur von  $(5000 \pm 500) \text{ K}$  sowie eine Massendichte von  $(3,0 \pm 0,1) \text{ g/cm}^3$  erwartet.

## 4.2 *Ab initio* Simulationen

Die Entmischung von verschiedenen Atomsorten innerhalb einer Probe im Zustand der warmen dichten Materie ist eine signifikante Änderung der Mikrostruktur des Materials. Zur Unterstützung der Auswertung werden daher sogenannte *ab initio* Simulationen verwendet, bei denen die Schrödingergleichung mittels quantenmechanischer Näherungen gelöst wird. Für diese Arbeit werden Simulationen mit zeitabhängiger Dichtefunktionaltheorie sowie mit Dichtefunktionaltheorie in Verbindung mit Monte-Carlo-Simulationen für Molekulardynamik verwendet. Beide Methoden werden hier nach einer kurzen Einführung in die Dichtefunktionaltheorie vorgestellt.

---

## 4.2.1 Dichtefunktionaltheorie (DFT)

---

Die Grundlage der Dichtefunktionaltheorie (DFT) bilden die Theoreme von Hohenberg und Kohn [1964]. Sie besagen, dass für jedes System von  $N$  wechselwirkenden Teilchen, das sich in einem externen Potential  $V_{\text{ext}}(\mathbf{r})$  befindet, dieses Potential bis auf eine Konstante eindeutig durch die Grundzustandsdichte  $n_0(\mathbf{r})$  bestimmt ist. Die Energie des Systems lässt sich dann als Funktional von  $n_0(\mathbf{r})$  darstellen. Die Überführung dieser Theoreme auf ein Ensemble mit einer thermischen Gleichgewichtsverteilung wurde von Mermin [1965] durchgeführt. Mit dieser Erweiterung lassen sich beispielsweise die Entropie oder die spezifische Wärme als Funktional der Gleichgewichtsdichte darstellen. Die praktische Umsetzung erfolgt mit dem Kohn-Sham-Ansatz [Kohn und Sham 1965], der davon ausgeht, dass die Grundzustandsdichte des ursprünglichen wechselwirkenden Systems gleich der eines gewählten nicht wechselwirkenden Systems ist. Ein nicht wechselwirkendes System ist exakt lösbar. Die Wechselwirkungen zwischen den Teilchen wird in ein Funktional der Austausch- und Korrelationsenergie ausgelagert. Das Kohn-Sham-Potential ist durch

$$V_{\text{KS}}(\mathbf{r}) = V_{\text{ext}}(\mathbf{r}) + V_{\text{Hartree}}(\mathbf{r}) + V_{\text{xc}}(\mathbf{r}) \quad (4.1)$$

$$V_{\text{Hartree}}(\mathbf{r}) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{n_0(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}' \quad (4.2)$$

$$V_{\text{xc}}(\mathbf{r}) = \frac{\delta E_{\text{xc}}[n_0(\mathbf{r})]}{\delta n_0(\mathbf{r})} \quad (4.3)$$

gegeben [Martin 2004, S. 139]. Der erste Term  $V_{\text{ext}}(\mathbf{r})$  beschreibt das externe Potential, das auf die Elektronen wirkt. Dies kann beispielsweise das Coulomb-Potential der Nukleonen sein. Der zweite Term  $V_{\text{Hartree}}(\mathbf{r})$  gibt das durch die Elektronenverteilung erzeugte mittlere Potential wieder. Der letzte Term  $V_{\text{xc}}(\mathbf{r})$  beschreibt die Austausch- und Korrelationswechselwirkung des Systems. Die Genauigkeit des Kohn-Sham-Ansatzes hängt maßgeblich von der Näherung des Austauschwechselwirkungspotentials ab. Mit Gleichung (4.1) kann für ein System mit  $N$  Elektronen ein Satz von  $N$  Ein-Teilchen-Schrödingergleichungen gelöst werden

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla^2 + V_{\text{KS}}(\mathbf{r}) \right] \Psi_i(\mathbf{r}) = E_i \Psi_i(\mathbf{r}) \quad , \quad i = 1, \dots, N \quad (4.4)$$

$E_i$  sind die Energieeigenwerte der Ein-Teilchen-Wellenfunktionen  $\Psi_i(\mathbf{r})$  des Kohn-Sham-Potentials. Die Lösung dieses Gleichungssatzes erfolgt iterativ und selbstkonsistent. Für gegebene Anfangswerte werden die Wellenfunktionen bestimmt, aus denen sich dann die Grundzustandsdichte berechnen lässt [Martin 2004, S. 137]

$$n_0(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^N |\Psi_i(\mathbf{r})|^2 \quad (4.5)$$

Die neue Grundzustandsdichte ändert auch die Funktionale, die auf ihr basieren. Dieser Rechenvorgang wird so lange iterativ wiederholt, bis eine Lösung für die Grundzustandsdichte

konvergiert. Zur Bestimmung der Austausch- und Korrelationsenergie kann die lokale Dichtenäherung (*local density approximation*, LDA)

$$E_{xc}^{LDA}[n_0(\mathbf{r})] = \int n_0(\mathbf{r}) \epsilon_{xc}(n_0(\mathbf{r}), \mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (4.6)$$

verwendet werden [Martin 2004, S. 140]. Dabei ist  $\epsilon_{xc}(n_0(\mathbf{r}), \mathbf{r})$  die Energie pro Elektron am Ort  $\mathbf{r}$ , die durch die Dichte  $n_0(\mathbf{r})$  gegeben ist. Das Funktional ist nur abhängig von der Dichte an dem Ort, an dem es ausgewertet wird. Eine genauere Betrachtung ermöglicht die generalisierte Gradientennäherung (*generalized gradient approximation*, GGA). Hier ist die Energie pro Elektron zusätzlich noch vom Dichtegradienten  $\nabla n(\mathbf{r})$  abhängig

$$E_{xc}^{GGA}[n_0(\mathbf{r})] = \int n_0(\mathbf{r}) \epsilon_{xc}(n_0(\mathbf{r}), \nabla n_0(\mathbf{r}), \mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad . \quad (4.7)$$

---

#### 4.2.2 Zeitabhängige Dichtefunktionaltheorie (TD-DFT)

---

Die zeitabhängige Dichtefunktionaltheorie (*time-dependent density functional theory*, TD-DFT) wird zur Untersuchung von Vielteilchensystemen in zeitabhängigen Potentialen genutzt. Dies können beispielsweise Wechselwirkungen mit dem elektromagnetischen Feld eines Lasers oder Streuprozesse sein [Marques *et al.* 2012, Part I]. Die Grundlage hierfür stellen ebenfalls die Theoreme von Hohenberg und Kohn [1964] dar, die für ein zeitabhängiges externes Potential auch für eine zeitabhängige Dichte gelten [Dhara und Ghosh 1987; Runge und Gross 1984].

Zur Berechnung wird auch hier ein wechselwirkungsfreies Kohn-Sham-Potential bestimmt

$$V_{KS}(\mathbf{r}, t) = V_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t) + V_{\text{Hartree}}(\mathbf{r}, t) + V_{xc}[n(\mathbf{r}', t')](\mathbf{r}, t) \quad , \quad (4.8)$$

welches die zeitabhängige Schrödingergleichung

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla^2 + V_{KS}(\mathbf{r}, t) \right] \Psi_i(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{d\Psi_i(\mathbf{r}, t)}{dt} \quad (4.9)$$

löst [Martin 2004, S. 148; Marques *et al.* 2012, S. 62]. Während sich  $V_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t)$  und  $V_{\text{Hartree}}(\mathbf{r}, t)$  von ihren Definitionen in Abschnitt 4.2.1 lediglich durch die Zeitabhängigkeit in der Dichte unterscheiden, beschreibt  $V_{xc}[n(\mathbf{r}', t')](\mathbf{r}, t)$  ein Funktional von  $n(\mathbf{r}', t')$  und ist gleichzeitig eine Funktion von  $\mathbf{r}$  und  $t$ . Dieses Funktional gilt daher nur für die Zeiten  $t' < t$ .

Im Rahmen dieser Arbeit werden TD-DFT-Rechnungen verwendet, um die dielektrische Funktion der inelastischen Streuung von Photonen mit einer Eingangsenergie von 8180 eV für Diamant mit einer Dichte von 4,1 g/cm<sup>3</sup> für  $k = 1,28 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$  zu berechnen und daraus das zu erwartende Streusignal des Vorwärtsspektrometers in Kapitel 7.7 zu bestimmen (siehe Gleichung (3.28)). Diese Rechnungen wurden von Kushal Ramakrishna (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf) durchgeführt.

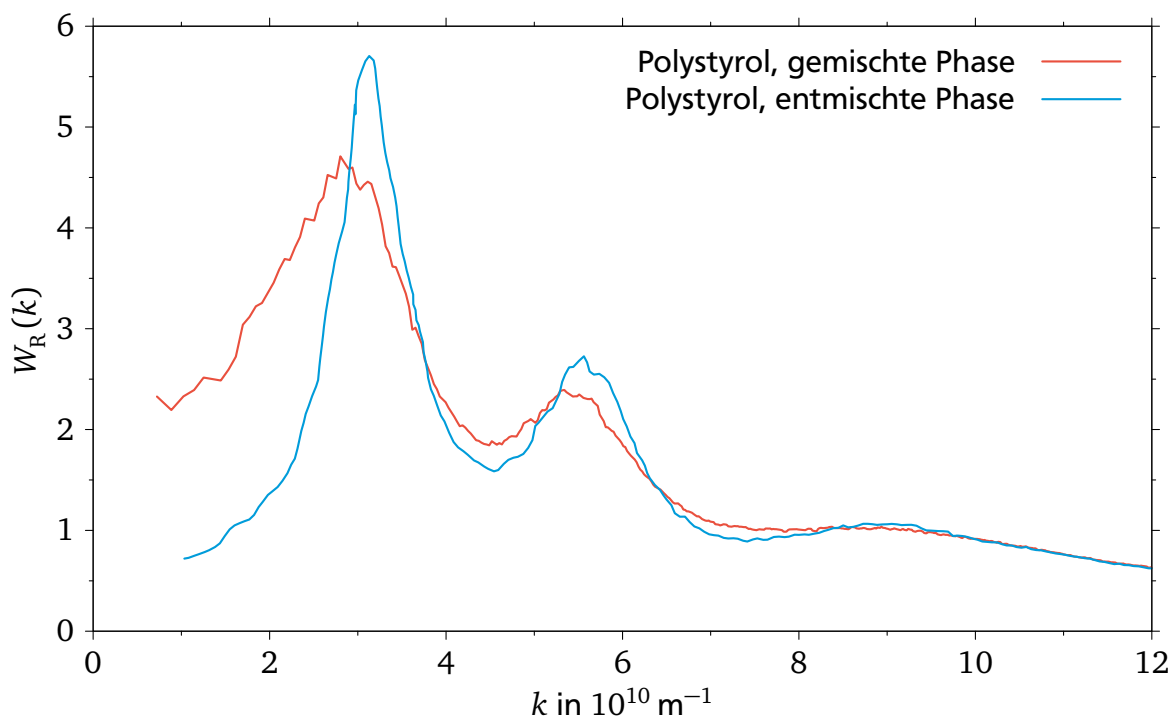


### 4.2.3 Dichtefunktional-Molekulardynamik (DFT-MD)

Um komplexe flüssige Systeme oder dichte Plasmen zu beschreiben, muss die Bewegung der Atomkerne berücksichtigt werden. Dazu werden die auf die Atomkerne wirkenden Kräfte benötigt, die aus der Elektronendichteverteilung berechnet werden. Dieses Verfahren wird als Dichtefunktional-Molekulardynamik (DFT-MD) bezeichnet, die auf die Arbeit von Car und Parrinello [1985] zurückgeht. Für das Elektronensystem wird Dichtefunktionaltheorie verwendet, die Molekulardynamik wird mit Monte-Carlo-Simulationen bestimmt.

Die Berechnungen mit DFT-MD erfolgen iterativ. Nachdem aus der anfänglichen Position der Atomkerne der instantane Zustand des elektrischen Systems bestimmt ist (Born-Oppenheimer-Näherung [Born und Oppenheimer 1927]), erfolgt die Berechnung der klassischen Kräfte auf die Atomkerne als Summe der Elektron-Nukleon- und Nukleon-Nukleon-Beiträge. Diese Kräfte erlauben das Ausführen eines einzelnen Molekulardynamikschritts für die Nukleonen. Dies resultiert in einem neuen externen Potential für die Elektronen, für das in einem neuen DFT-Schritt wieder die optimale Elektronenverteilung ausgerechnet wird [Gericke *et al.* 2010].

Die in dieser Arbeit verwendeten DFT-MD-Simulationen wurden von Jan Vorberger (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf) mit dem *Vienna Ab initio Simulation Package* (VASP) erstellt [Kresse und Furthmüller 1996a,b; Kresse und Hafner 1993, 1994]. Die Molekulardynamik wird in Zeitschritten von 0,2 fs berechnet mit einer Teilchenanzahl von etwa 500 Atomen. Die Simulationsbox hat abhängig von der Dichte eine Kantenlänge von bis zu 20 Å. Die Simulationen



**Abbildung 4.2.:** DFT-MD-Simulationen für gemischtes und entmischtes Polystyrol zeigen für kleine Streuvektorbeträge  $k$  einen unterschiedlich hohen Anteil der Rayleigh-Streuung  $W_R(k)$ . Die von Jan Vorberger (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf) durchgeführten Simulationen gelten für einen Druck von 146 GPa und eine Temperatur von 5 000 K.

---

finden im kanonischen Ensemble unter Verwendung eines Nose-Hoover-Thermostat [Hoover 1985; Nosé 1984] zur Regulierung der Temperatur statt. Die Wellenfunktionen werden in der Dichtefunktionaltheorie mit ebenen Wellen entwickelt bis zu einer Maximalenergie von 1 000 eV. Dabei wird das Mermin-Funktional zur Optimierung der freien Energie sowie die Perdew-Burke-Ernzerhof-Näherung als generalisierte Gradientennäherung zur Beschreibung der Korrelations- und Austauschenergie verwendet. Die Elektron-Nukleon-Wechselwirkung wird durch *projector augmented-wave* (PAW) Pseudopotentiale [Blöchl 1994] dargestellt.

Für einen Druck von 146 GPa und eine Temperatur von 5 000 K wurden DFT-MD Simulationen durchgeführt und die Rayleigh-Streuung bestimmt, die in Abbildung 4.2 zu sehen sind. Druck und Temperatur entsprechen dem von HELIOS vorhergesagten thermodynamischen Bereich von Polystyrol im Experiment (siehe Abschnitt 4.1). In der entmischten Phase von Polystyrol befindet sich der Kohlenstoff auf der einen Seite der Simulationsbox und der Wasserstoff auf der anderen, während die gemischte Phase von einer gleichmäßigen Verteilung beider Elemente ausgeht. Im Vergleich dieser beiden Simulationen ist besonders bei kleinen Werten von  $k$  ein deutlicher Unterschied zu sehen, der im Experiment dafür verwendet wird, die Entmischung der Elemente zu bestimmen.

---

### 4.3 Multi-Component Scattering Spectra (MCSS) Thomson scattering analysis code

---

Bei der Auswertung von Streuspektren stellt die theoretische Modellierung dieser eine große Hilfe dar. Mit ihnen lassen sich beispielsweise bereits kleine Verunreinigungen des Probenmaterials nachweisen, die bei ansonsten gleichen Parametern einen erheblichen Einfluss auf die Form des Streuspektrums haben [Saunders *et al.* 2018]. Im Rahmen dieser Arbeit wird für diesen Zweck der *Multi-Component Scattering Spectra* (MCSS) Code verwendet, der von Dave Chapman für das Atomic Weapons Establishment (AWE) in Großbritannien entwickelt wurde [Chapman 2015, 2017]. Der Code stellt eine Vielzahl an verschiedenen theoretischen Modellen für elastische und inelastische Streuung zur Verfügung, die weit über die in den Abschnitten 3.2.1 – 3.2.3 vorgestellte Auswahl hinausgehen. Aus ihnen muss eine für das Experiment passende Kombination gewählt werden. Das Probenmaterial wird über die atomare Zusammensetzung, den erwarteten Ladungszustand pro Atomsorte, die Massendichte sowie die Elektronen- und Iontemperatur definiert.

Die Stärken von MCSS liegen in der Modellierung von Röntgen-Thomson-Streuspektren an Plasmen, kann aber auch prinzipiell für warme dichte Materie eingesetzt werden. Die theoretischen Modelle gelangen hier allerdings an ihre Grenzen. Dies zeigt sich sehr gut an der von MCSS berechneten Rayleigh-Streuung, die von den Ergebnissen der DFT-MD-Simulationen massiv abweichen. Um dennoch einigermaßen passende Streuspektren zu berechnen, kann der Wert der Rayleigh-Streuung manuell als Parameter gesetzt werden und die elastischen und inelastischen Streuanteile werden von MCSS entsprechend skaliert. Die für MCSS-Rechnungen im Rahmen dieser Arbeit verwendete Modellauswahl ist in Anhang A.1 zu finden.

---

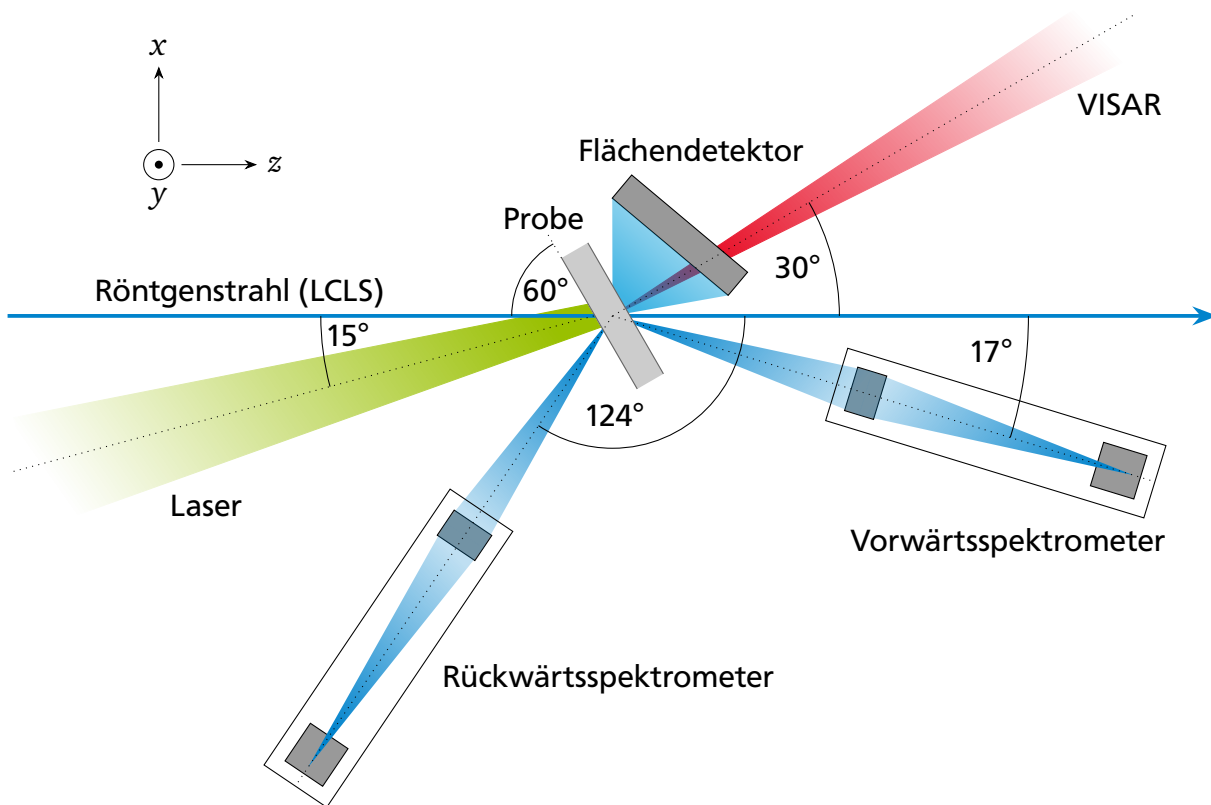
## 5 Aufbau und Durchführung des Experiments

Der Einfluss der Elemententmischung auf die Rayleigh-Streuung in warmer dichter Materie wurde bisher lediglich durch Theorie und Simulationen vorhergesagt (siehe Abbildung 4.2) [Wünsch *et al.* 2011]. Um diese Aussage zu bestätigen oder zu widerlegen, wurde im Mai 2016 ein Experiment am *SLAC National Accelerator Laboratory* (SLAC) in Kalifornien (USA) durchgeführt. Dazu wurde eine Polystyrolfolie mit lasergetriebenen Schockwellen in den Zustand der warmen dichten Materie gebracht und mit Röntgenstrahlung der *Linac Coherent Light Source* (LCLS) [Emma *et al.* 2010], einem Röntgen-Freie-Elektronen-Laser, am Messplatz *Matter in Extreme Conditions* (MEC) [Nagler *et al.* 2015] untersucht. Für das Experiment standen an drei aufeinanderfolgenden Tagen jeweils Schichten von je 12 Stunden Länge zur Verfügung, die im Weiteren als Messtag 1–3 bezeichnet werden. In diesem Kapitel wird der Aufbau und die Durchführung des Experiments beschrieben. Der schematische Aufbau des Experiments ist als Draufsicht in Abbildung 5.1 dargestellt.

Als Probe wird eine Polystyrolfolie  $(C_8H_8)_n$  mit einer Dicke von  $(83,4 \pm 1,0) \mu\text{m}$  verwendet. Die chemische Struktur des Ausgangsmaterials ist in Abbildung 5.2a zu sehen. Da das Material transparent ist, sind Vorder- und Rückseite mit je 100 nm Aluminium beschichtet, um einen definierten Interaktionspunkt für den VISAR und den schocktreibenden Laser zu schaffen. Die Proben sind auf einem um  $30^\circ$  zur Röntgenstrahlachse gedrehten Probenhalter befestigt. Die Geometrie des experimentellen Aufbaus wird an der Röntgenstrahlachse als  $z$ -Achse sowie dem Interaktionspunkt zwischen der Röntgenstrahlung mit der Probe als Ursprung ausgerichtet.

Das zum Komprimieren der Proben verwendete Lasersystem hat eine fundamentale Wellenlänge von 1 054 nm, welche auf 527 nm frequenzverdoppelt wird. Der Laserstrahl wird initial auf zwei Laserarme aufgeteilt und durch zwei unabhängige Nd:Glas-Verstärkerketten auf eine Laserenergie von bis zu 18 J pro Laserarm verstärkt. Die Laserpulslänge beträgt 10 ns. Einer der beiden Laserarme wird durch eine optisch längere Wegstrecke relativ zum anderen um 4,5 ns verzögert. Bei der anschließenden räumlichen Überlagerung mittels eines Strahlkombinators entsteht so ein Stufenprofil mit einer anfänglichen Laserintensität von  $(2,67 \pm 0,25) \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ , die dann auf  $(7,32 \pm 0,49) \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  steigt (siehe Abbildung 5.2c). Der kombinierte Laserstrahl trifft unter einem Winkel von  $15^\circ$  zur Probennormalen mit einem Fokusbereich von 200  $\mu\text{m}$  auf die Probe. Die Intensität in den Laserarmen wird durch Hybridphasenplatten [Pepler *et al.* 1993] möglichst homogen über die Fläche des Fokus verteilt. Das Lasersystem kann alle 7 Minuten mit beiden Armen oder abwechselnd alle 3,5 Minuten mit je einem Arm betrieben werden, dann allerdings ohne Stufenprofil.

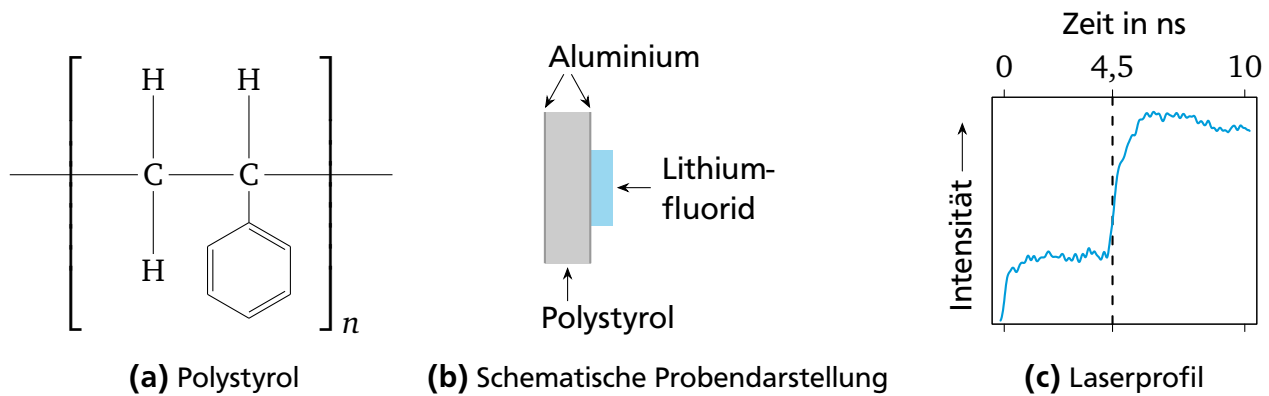
Ein VISAR wird verwendet, um den zeitlichen Schockausbruch im Experiment zu messen. Eine Beschreibung der Funktionsweise eines VISARs befindet sich in Abschnitt 2.3.2. Der VISAR-Laser nutzt eine Wellenlänge von  $\lambda_{\text{VISAR}} = 532 \text{ nm}$  und die Etalons beider Mach-Zehnder-Interferometer bestehen aus Quarzglas mit einer Dicke von 5 mm beziehungsweise 8 mm.



**Abbildung 5.1.:** Diese schematische Darstellung zeigt die Draufsicht auf den experimentellen Aufbau. Der schocktreibende Laser trifft unter einem Winkel von  $15^\circ$  zur Probennormale auf die Probe. Der Ausbruch der Schockwelle wird mit einem VISAR gemessen. Die erzeugte warme dichte Materie wird durch einen Röntgenstrahl des Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers LCLS untersucht. Die Röntgenstrahlung, hier in blau dargestellt, wird in einem Rückwärts- und einem Vorwärtsspektrometer aufgenommen, die jeweils über einen HAPG-Kristall als dispersives Element verfügen. Die detaillierteren Seitenansichten der Röntgenspektrometer sind in Abbildung 5.3 zu sehen. Mit einem Flächendetektor werden Debye-Scherrer-Ringe gemessen. Dieser befindet sich oberhalb des VISAR-Strahls.

Aufgrund der Aluminiumbeschichtung auf der Probenrückseite ist während des Experiments mit dem VISAR nur die Messung der Schockwellengeschwindigkeit möglich. Vor Beginn des eigentlichen Experiments werden Proben verwendet, auf deren Rückseite sich ein zusätzliches transparentes Lithiumfluorid-Fenster befindet (siehe Abbildung 5.2b). Die Schockwelle kann auf diese Weise aus dem Polystyrol weiter in das Lithiumfluorid propagieren und dort vom VISAR beobachtet werden. Auf diese Weise werden die Laserintensitäten aufeinander abgestimmt, sodass die Vereinigung beider Schockwellen an der Probenrückseite erfolgt.

Als Hauptdiagnostik wird Röntgenstrahlung des Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers LCLS mit einer Energie von 8 180 eV, einer Pulslänge von 50 fs und einer Fokusgröße von  $20\ \mu\text{m}$  bis  $30\ \mu\text{m}$  verwendet. Die Funktionsweise eines Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers ist in Abschnitt 3.6 beschrieben. Der Polarisationsgrad der Röntgenstrahlung wird von den LCLS-Ingenieuren mit mindestens 99 % in horizontaler Richtung angegeben. Der Interaktionszeitpunkt der Röntgenstrahlung mit der Probe kann relativ zum Beginn des Laserpulses frei gewählt werden und



**Abbildung 5.2.:** (a) zeigt die chemische Struktur von Polystyrol. In (b) ist der schematische Aufbau der Probe dargestellt. Die  $83,4 \mu\text{m}$  dicke Polystyrolfolie ist auf beiden Seiten mit einer je  $100 \text{ nm}$  dicken Aluminiumschicht bedampft. Zur Justage der Laserintensitäten ist ein Lithiumfluorid-Fenster auf der Rückseite angebracht, um die Ausbreitung der Schockwellen zu messen. (c) zeigt das verwendete Stufenprofil der Laserintensität.

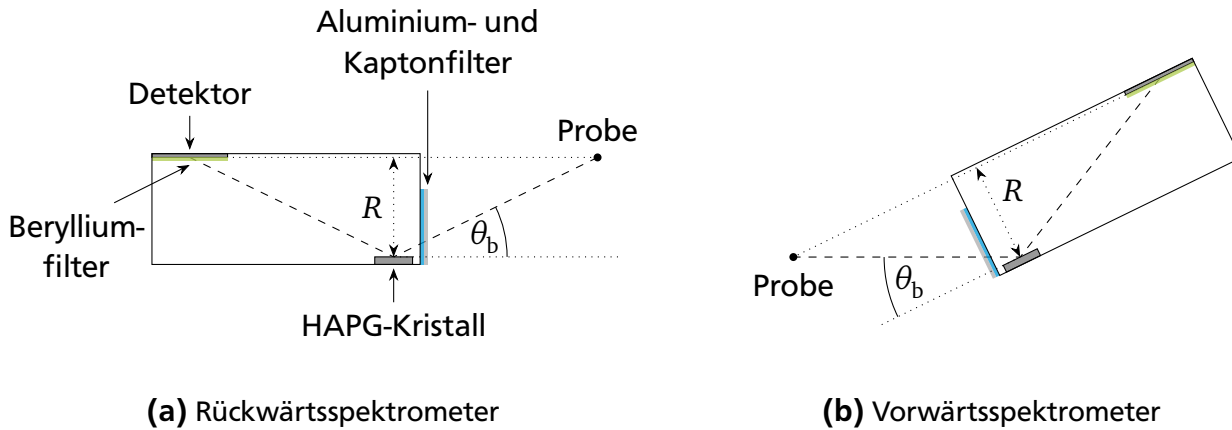
beträgt während des Experiments bis zu  $15 \text{ ns}$ . Aufgrund eines technischen Problems ist der Messzeitpunkt mit einer Unsicherheit von  $150 \text{ ps}$  behaftet.

Die Detektion der Röntgenstrahlung erfolgt mit *Cornell-SLAC Pixel Array Detector* (CSPAD) [Blaj *et al.* 2015]. Jedes CSPAD ist  $194 \times 185$  Pixel groß mit einer Pixelgröße von  $110 \times 110 \mu\text{m}^2$ , die maximale Ausleserate ist auf die Frequenz des Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers von  $120 \text{ Hz}$  ausgelegt. Jeder Detektor besteht aus einem Array von CSPADs nebeneinander, die baulich bedingt durch kleine Lücken getrennt sind.

Zur Aufnahme von Debye-Scherrer-Ringen wird ein Flächendetektor mit einer Größe von  $90,2 \times 90,2 \text{ mm}^2$  verwendet, der aus  $4 \times 4$  CSPADs besteht. Er ist so positioniert, dass er größtenteils den 1.  $xy$ -Quadranten abdeckt. Seine genaue Position und Ausrichtung wird in Abschnitt 6.1 mathematisch anhand der detektierten und bekannten Beugungsringe von Cerdioxid ( $\text{CeO}_2$ ) und Lanthanhexaborid ( $\text{LaB}_6$ ) bestimmt. Zum Schutz des Detektors vor sichtbarem Licht und UV-Strahlung, die durch die Wechselwirkung des Lasers mit der Probe entsteht, ist der Detektor mit einem  $50 \mu\text{m}$  dicken Aluminiumfilter geschützt.

Zur Messung der Röntgen-Thomson-Streuung wird je ein Kristallspektrometer in Rückwärts- und Vorwärtsrichtung verwendet. Das Rückwärtsspektrometer befindet sich unter einem Winkel von  $124^\circ$  horizontal zur Röntgenstrahlachse, der vertikale Detektionswinkel entspricht dem Bragg-Winkel  $\theta_b \approx 13^\circ$  der verwendeten Röntgenenergie am Kristall (siehe Abbildung 5.3a). Der Gesamtwinkel der detektierten Strahlung zur Röntgenstrahlachse beträgt  $123^\circ$ . Das Vorwärtsspektrometer ist unter einem Winkel von  $17^\circ$  horizontal eingebaut. Das gesamte Vorwärtsspektrometer ist um den Bragg-Winkel  $\theta_b$  geneigt (siehe Abbildung 5.3b). Die Abstände zwischen Probe und Kristall sowie zwischen Kristall und Detektor sind bei beiden Spektrometern gleich groß und erfüllen die in Abschnitt 3.4 vorgestellte von-Håmos-Geometrie sowie die Mosaikfokussierung.

Die in den Spektrometern eingebauten HAPG-Kristalle sind auf einem Glassubstrat aufgebracht. Dieses hat einen Krümmungsradius von  $R = 51,7 \text{ mm}$ , ist in Dispersionsrichtung  $32 \text{ mm}$  lang und transversal  $30 \text{ mm}$  breit. Die Dicke der Kristalle beträgt  $40 \mu\text{m}$  in Rückwärts- und  $100 \mu\text{m}$



**Abbildung 5.3.:** Die beiden verwendeten Kristallspektrometer sind abgesehen von der Dicke der HAPG-Kristalle baugleich und hier in der Seitenansicht gezeigt. Der vertikale Winkel des Rückwärtsspektrometers zur Röntgenstrahlachse ist durch den Bragg-Winkel  $\theta_b \approx 13$  der gestreuten Strahlung gegeben. Das Vorwärtsspektrometer ist um den Bragg-Winkel geneigt. Beide Spektrometer nutzen einen HAPG-Kristall mit einem Krümmungsradius von  $R = 51,7$  mm. Der Abstand zwischen Probe und Kristall sowie zwischen Kristall und Detektor ist identisch und entspricht der von-Hámos-Geometrie. Vor dem Kristall sowie vor dem Detektor sind zum Schutz des Detektors und zur Rauschunterdrückung noch Filterfolien angebracht.

in Vorwärtsrichtung. In dieser Größenordnung hat die Kristalldicke einen signifikanten Einfluss auf die zum Detektor reflektierte Intensität. Je dicker der Kristall ist, desto mehr Strahlung kann reflektiert werden. An den Spektrometern sind  $5 \mu\text{m}$  Aluminium und  $10 \mu\text{m}$  Kapton als Filter vor den Kristallen sowie weitere  $200 \mu\text{m}$  Beryllium vor den Detektoren angebracht, um diese sowohl vor sichtbarem Licht als auch vor UV-Strahlung zu schützen, die durch die Wechselwirkung des Lasers mit der Probe erzeugt wird.

Am ersten Messtag werden überwiegend die Detektoren getestet, justiert und kalibriert. Dabei stellte sich heraus, dass das Rückwärtsspektrometer so positioniert ist, dass ein Teil der inelastisch gestreuten Strahlung nicht mehr vom Kristall reflektiert wird. Daher wird das Rückwärtsspektrometer am zweiten Tag um  $(14,03 \pm 0,01)$  mm näher zur Probe bewegt. Die von-Hámos-Geometrie blieb dabei erhalten.

Aufgrund der hohen gemessenen Intensität am Vorwärtsspektrometer wird dieses am dritten Tag um  $(20,00 \pm 0,01)$  mm näher zur Probe bewegt, um die Röntgenstrahlung auf dem Detektor zu defokussieren und zu vermeiden, dass das Messsignal die Sättigungsschwelle des Detektors überschreitet.

---

## 6 Messung des ungestörten Materialanteils

Die Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie hat besonders bei kleinen Streuvektoren großen Einfluss auf die Rayleigh-Streuung (siehe Abbildung 4.2). Sie wird daher im Vorwärtsspektrometer unter einem Winkel von  $17^\circ$  ( $k = 1,23 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ) zur Röntgenstrahlachse gemessen. In diesem Bereich zeigt sich experimentell eine hohe Streuintensität der amorphen Struktur von ungestörtem Polystyrol. Aus diesem Grund muss vor einer Auswertung der Spektrometer in Kapitel 7 der ungestörte Materialanteil in der Probe bestimmt werden. Dieser Anteil variiert zwischen den verschiedenen Datensätzen aufgrund unterschiedlicher Messzeitpunkte sowie der Fluktuation der Laserenergie.

Die Messung der verbliebenen Menge an ungestörtem Polystyrol zum Messzeitpunkt wird mit dem Flächendetektor durchgeführt. Dieser nimmt ein zweidimensionales Bild der Röntgenstrahlung auf, in dem für Festkörper Beugungsringe entstehen können. Diese Debye-Scherrer-Ringe dienen etwa dem Nachweis von Diamant [Kraus, Vorberger, Pak *et al.* 2017]. Die Entstehung von Diamant aus Polystyrol ist nicht Teil dieser Arbeit und wird in diesem Kapitel nur so weit beschrieben, wie es zum Verständnis der Messung des verbliebenen ungestörten Materialanteils notwendig ist.

Die Auswertung des Flächendetektors erfolgt mit dem Programm Dioptas in Version 0.4.1 [Precher und Prakapenka 2015]. Dieses wird für die Echtzeitanalyse von Beugungsbildern entwickelt und bietet eine einfach zu bedienende Oberfläche zur Kalibrierung und Erstellung von integrierten Intensitätsverteilungen über den Beugungswinkel  $2\theta$ . Zusätzlich können einzelne Bereiche der Bilder aus der Auswertung ausgeschlossen werden, um eine Verfälschung der Signalintensität etwa durch defekte Pixel oder die Lücken zwischen den einzelnen CSPADs zu vermeiden. Zur Erstellung der Beugungsprofile aus den Detektorbildern nutzt Dioptas die Pythonbibliothek pyFAI [Kieffer und Wright 2013], welche eine schnelle azimutale Integration ermöglicht.

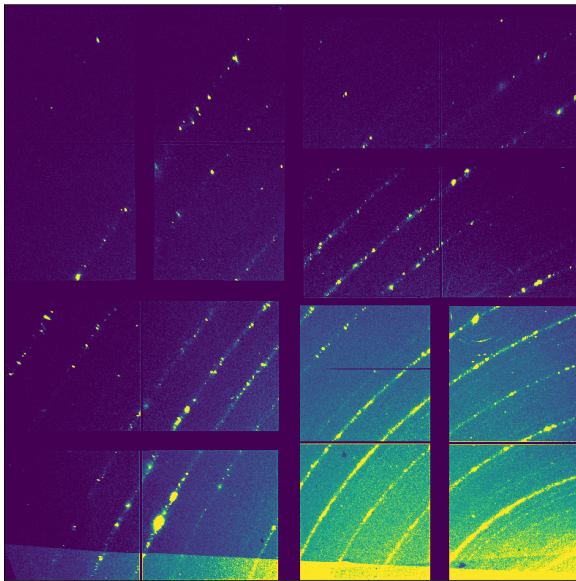
In diesem Kapitel wird zuerst die Kalibrierung des Flächendetektors beschrieben. Anschließend wird eine Absorptionskorrektur berechnet, um die ortsabhängige Reduktion der Röntgenstrahlung durch die Probe und den Aluminiumfilter auszugleichen. Mit den integrierten Beugungsprofilen können die Ergebnisse der HELIOS-Simulationen verifiziert und – für die Auswertung der Kristallspektrometer besonders wichtig – der ungestörte Materialanteil bestimmt werden.

---

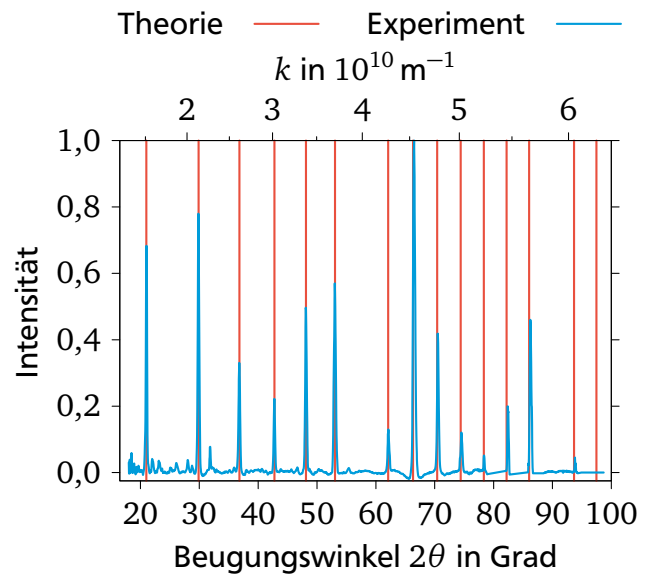
### 6.1 Kalibrierung des Flächendetektors

---

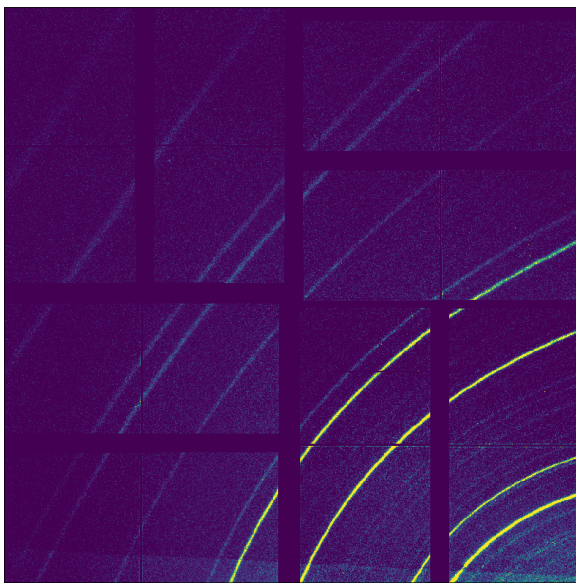
Zur Kalibrierung des Flächendetektors werden je eine  $\text{LaB}_6$ - und eine  $\text{CeO}_2$ -Probe verwendet. Aufgrund ihrer Kristallstruktur bilden sich viele Debye-Scherrer-Ringe, die die komplette Detektorfläche abdecken. Diese sind für  $\text{LaB}_6$  in Abbildung 6.1a und für  $\text{CeO}_2$  in 6.1c zu sehen, die daraus erstellten Beugungsprofile in den Abbildungen 6.1b und 6.1d. Auf einem nicht normal zur Röntgenstrahlachse stehenden Detektor sind die Ringe zu Ellipsen verzerrt. Aus der Form



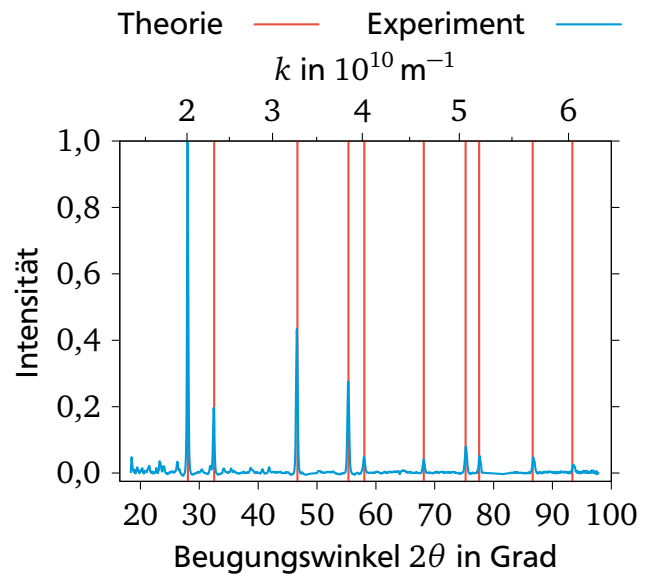
(a) Beugungsbild von  $\text{LaB}_6$



(b) Beugungsprofil von  $\text{LaB}_6$



(c) Beugungsbild von  $\text{CeO}_2$



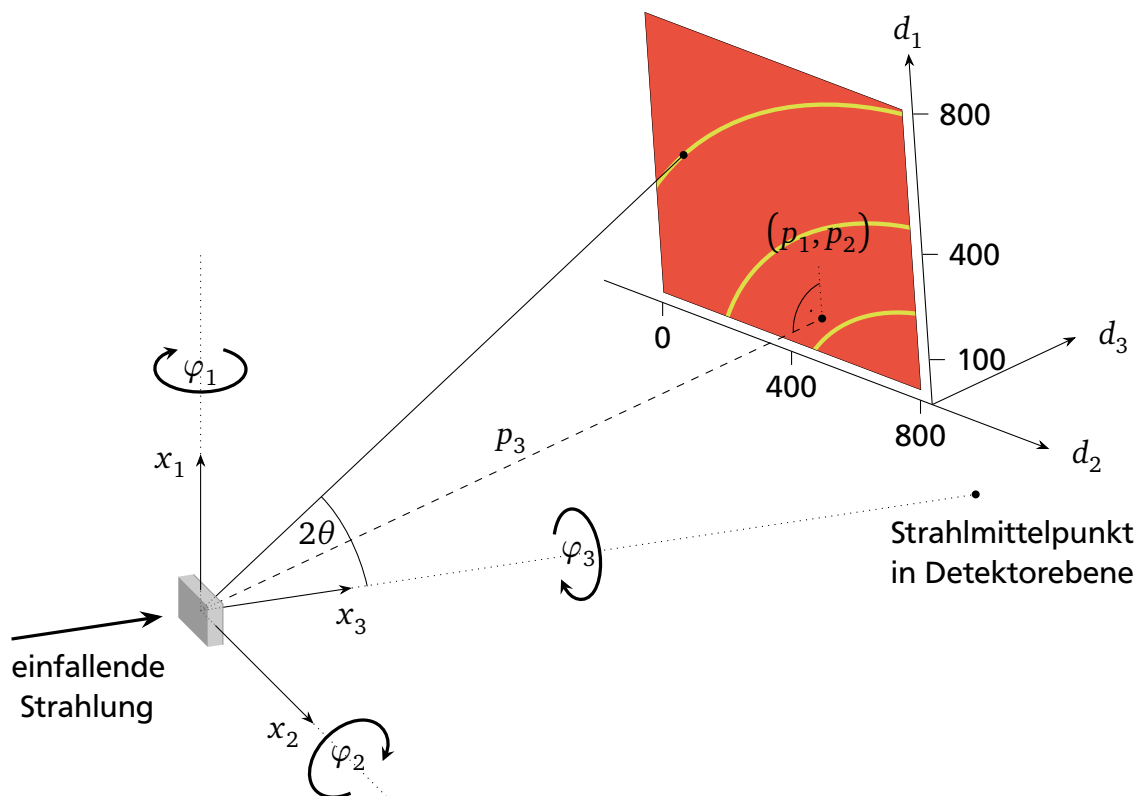
(d) Beugungsprofil von  $\text{CeO}_2$

**Abbildung 6.1.:** Zur Kalibrierung des Flächendetektors werden die Materialien Lanthanhexaborid ( $\text{LaB}_6$ ) sowie Cerdioxid ( $\text{CeO}_2$ ) verwendet. Die vom Detektor aufgenommenen Beugungsbilder sind in (a) und (c) gezeigt. Gerade in (a) ist an der unteren Bildkante eine Stufe in der gemessenen Intensität zu sehen, der durch eine unzureichende Abdeckung mit dem Aluminiumfilter entsteht. Weiterhin sind in beiden Beugungsbildern weitere intensitätsärmere Beugungsringe zu sehen, die durch das Kapton erzeugt werden, das beide Proben umgibt. Die Abbildungen (b) und (d) zeigen für  $\text{LaB}_6$  und  $\text{CeO}_2$  die mit Dioplas erstellten und untergrundbereinigten Beugungsprofile sowie die theoretisch erwarteten Beugungspositionen.



der Beugungsbilder und den bekannten Beugungswinkeln können der Abstand und die Drehung des Detektors relativ zum Interaktionspunkt der Röntgenstrahlung mit der Probe berechnet werden. Die verwendeten Proben zur Kalibrierung sind mit Kapton ummantelt. Dadurch entstehen weitere, von der Intensität jedoch deutlich schwächere Beugungsringe, die für die Kalibrierung nicht berücksichtigt werden. Weiterhin ist besonders in Abbildung 6.1a am unteren Rand eine Stufe in der gemessenen Intensität zu sehen. In diesem Bereich ist der Aluminiumfilter nicht ausreichend dick, weshalb dieser sowie die Lücken zwischen den einzelnen CSPAD-Segmenten von der Integration ausgeschlossen werden.

Die Kalibration wird mit Dioptas durchgeführt. Dafür werden pro Beugungskurve einige Punkte per Hand ausgewählt und der zugehörige Beugungswinkel angegeben. Mit diesen Daten erfolgt eine Mustererkennung der Linien, die pyFAI zur Berechnung der Position und Verkippung des Detektors nutzt. Die von pyFAI durchgeführte Koordinatentransformation ist schematisch in Abbildung 6.2 dargestellt und beinhaltet sechs Parameter:  $p_1$  und  $p_2$  beschreiben die Koordinaten des Punkts auf dem Detektor, dessen Verbindungslinie zum Beugungsvolumen normal zur Detektoroberfläche verläuft. Dieser Ort auf dem Detektor wird als *point of normal incidence* (PONI) bezeichnet. Das Beugungsvolumen (mit einer Ausdehnung von wenigen zehn Mikrometern) kann aufgrund des vergleichsweise großen Abstands zum Detektor von einigen zehn Millimetern als Punktquelle angenommen werden.  $p_3$  entspricht dem Abstand des PONI zur Probe. Die



**Abbildung 6.2.:** Die Form der Beugungsringe auf dem Flächendetektor wird von pyFAI genutzt, um die Rotationen  $\varphi_1, \varphi_2$  und  $\varphi_3$  um die Koordinatenachsen  $x_1, x_2$  und  $x_3$  des Laborsystems zu bestimmen. Der Abstand der Beugungsringe zueinander und die Kenntnis der zugehörigen Beugungswinkel  $2\theta$  ermöglicht die Berechnung des Abstands  $p_3$  zwischen der Probe und dem Punkt  $(p_1, p_2)$  auf dem Detektor, deren Verbindungslinie senkrecht zur Detektoroberfläche verläuft.

---

Winkel  $\varphi_1$ ,  $\varphi_2$  und  $\varphi_3$  beschreiben die Rotationstransformationen des Detektorkoordinatensystems zum Laborsystem um die Achsen  $x_1$ ,  $x_2$  und  $x_3$ . Im Detektorkoordinatensystem mit den Achsen  $d_1$ ,  $d_2$  und  $d_3$  werden Positionen in Pixeln und im Laborsystem in Metern angegeben.

Mit der gefundenen Koordinatentransformation in die PONI-Darstellung kann pyFAI eine azimutale Integration ausführen, um aus dem zweidimensionalen Bild ein eindimensionales Profil der Intensitätsverteilung über den Beugungswinkel  $2\theta$  zu erstellen. Die unterschiedliche Anzahl der Pixel pro Beugungswinkel wird durch eine automatische Intensitätskorrektur ausgeglichen.

---

## 6.2 Signalkorrekturen des Flächendetektors

---

Bevor eine Integration der Detektordaten ausgeführt werden kann, sind Korrekturen am Signal notwendig. Aufgrund der Größe und der räumlichen Abdeckung des Detektors sind beispielsweise Polarisierungseffekte und die Transmission der Röntgenstrahlung durch Materie abhängig von der geometrischen Position der einzelnen Pixel. Die Korrektur dieser Einflüsse auf das Signal wird in diesem Abschnitt durchgeführt.

Die Polarisation der eingehenden Strahlung ist nach Gleichung (3.6) vom Streuwinkel abhängig. Zusätzlich decken die Pixel des Flächendetektor durch dessen planare Bauweise unterschiedliche Raumwinkel ab. Beide Einflüsse werden automatisch von Dioplas im Signal ausgeglichen. Nicht berücksichtigt wird hingegen der statische Untergrund des Detektors, der sich zum einen aus dem Dunkelstrom des Detektors und zum anderen aus dem Signal zusammensetzt, das durch die Wechselwirkung des Lasers mit der Probe erzeugt wird. Der Dunkelstrom wird aus 516 Messungen pixelweise gemittelt, die ohne Röntgenstrahlung und ohne aktiven Laser aufgenommen wurden. Zur Bestimmung des Einflusses der Laser-Proben-Wechselwirkung werden an jedem Messtag ein Laserschuss auf eine Probe ohne Röntgenstrahlung durchgeführt.

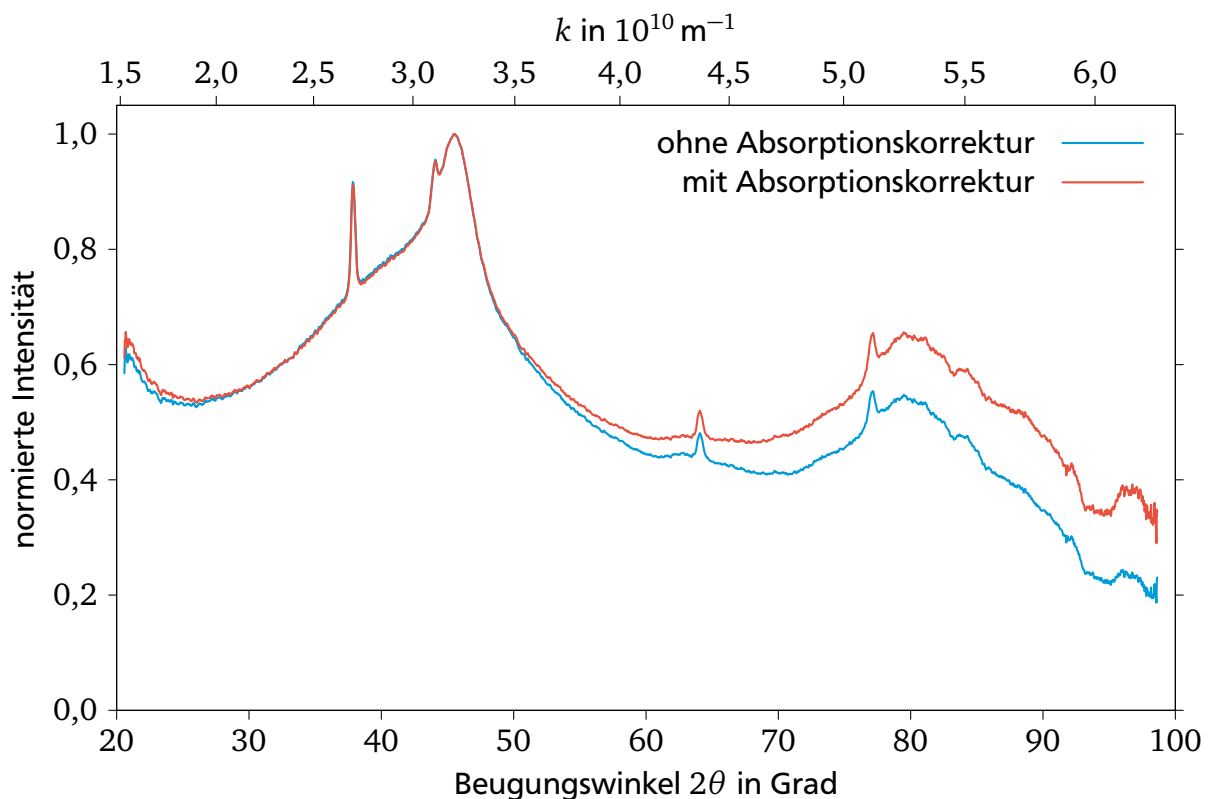
Da elektromagnetische Strahlung beim Durchdringen von Materie teilweise absorbiert wird, ist noch eine Absorptionskorrektur sowohl für die Probe als auch für den verwendeten Aluminiumfilter notwendig, die nach dem Lambert-Beer'schen Gesetz berechnet wird (siehe Abschnitt 3.5). Durch die Kompression einer Schockwelle steigt die Dichte im Material um einen Faktor an, während sich gleichzeitig unter Annahme der Massenerhaltung das Volumen der Probe um denselben Faktor reduziert. Abhängig vom Messzeitpunkt sind die beiden Schockwellen unterschiedlich weit durch die Probe propagiert und es existieren unterschiedliche Dichtebereiche mit zeitabhängigen Dicken. Dies ist sehr gut in der HELIOS-Simulation der Probendichte zu sehen (siehe Abbildung 4.1c). Solange die Gesamtmasse erhalten bleibt, ist die Absorption der dünneren komprimierten Probe gleich der ungestörten Probe mit der ursprünglichen Dicke [Henke *et al.* 1993]. Aus diesem Grund wird für die Berechnung der durchdrungenen Probendicke die Ausgangsdichte und -dicke der Probe verwendet. Weiterhin wird angenommen, dass ein Röntgenphoton nur einmal in der Probe in Richtung eines Detektorpixels gestreut oder gebeugt wird und dass dies in der Mitte der Probe erfolgt.

Die Position der Detektorpixel kann aus der Detektorgeometrie berechnet werden. Die Detektion des Photons kann auf der gesamten Pixelfläche erfolgen. Daher werden für die Berechnung der Trajektorie von Probenmitte zum Detektorpixel die vier Eckpunkte des Pixels jeweils als

Streurichtung verwendet und aus den Ergebnissen die mittlere durchdrungene Probendicke bestimmt. Für die Absorption innerhalb des Filters wird eine weitere Streuung im Filtermaterial vernachlässigt.

Zur Vereinfachung der Absorptionsberechnung wird angenommen, dass alle gemessenen Photonen ihre ursprüngliche Energie von 8 180 eV beibehalten. Dies ist jedoch nicht zutreffend, da durch inelastische Streuung in der Probe und im Filter eine Energieverteilung entsteht, die vom Streuwinkel abhängt. Für größere Streuwinkel steigt der Anteil der inelastischen Streuung und auch die Breite der gesamten Energieverteilung nimmt zu. Dies ist sehr gut in Kapitel 7, Abbildung 7.5 im Vergleich der Spektren in Rückwärts- sowie Vorwärtsrichtung zu sehen. Da der Flächendetektor über kein dispersives Medium verfügt und daher nur eine integrierte Strahlung messen kann, muss zur Bestimmung der energieabhängigen Absorption das Röntgenspektrum mit theoretischen Modellen oder Simulationen berechnet werden. Hierfür kann beispielsweise der MCSS-Code (siehe Abschnitt 4.3) eingesetzt werden. Die Rayleigh-Streuung wird durch DFT-MD-Simulationen vorgegeben, sodass MCSS das Verhältnis zwischen elastischer und inelastischer Streuung korrekt skaliert.

Für den größten vom Detektor abgedeckten Winkel ( $2\theta_{\max} = 98,72^\circ$ ,  $k \approx 6,3 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ) wird mit MCSS ein Streuspektrum berechnet. Die Rayleigh-Streuung wird von einer DFT-MD-Simulation vorgegeben, die für flüssiges, nicht entmischtes Polystyrol bei einer Temperatur von 5 000 K und einem Druck von 146 GPa gilt. Die energieabhängige Absorption durch Probe und Filter beträgt insgesamt  $73,70\% \pm 0,34\%$ . Im Vergleich dazu wird die Absorption monoenergie-



**Abbildung 6.3.:** Der Einfluss der Absorptionskorrektur wird im Vergleich des korrigierten mit dem ursprünglichen Beugungsprofil sichtbar. Beide Profile sind zur Veranschaulichung auf ihr jeweiliges Maximum normiert.

---

tisch für 8 180 eV berechnet und erreicht  $72,69\% \pm 0,34\%$ . Da der Unterschied zwischen beiden Methoden für den größten detektierten Winkel etwa 1 % beträgt und die Abweichungen hin zu kleineren Winkeln abnimmt, rechtfertigt dies die Nutzung der monoenergetischen Absorptionskorrektur und die Abweichung zwischen beiden Methoden wird als Unsicherheit berücksichtigt. In Abbildung 6.3 ist der Vergleich eines Beugungsprofils mit und ohne Absorptionskorrektur gezeigt.

---

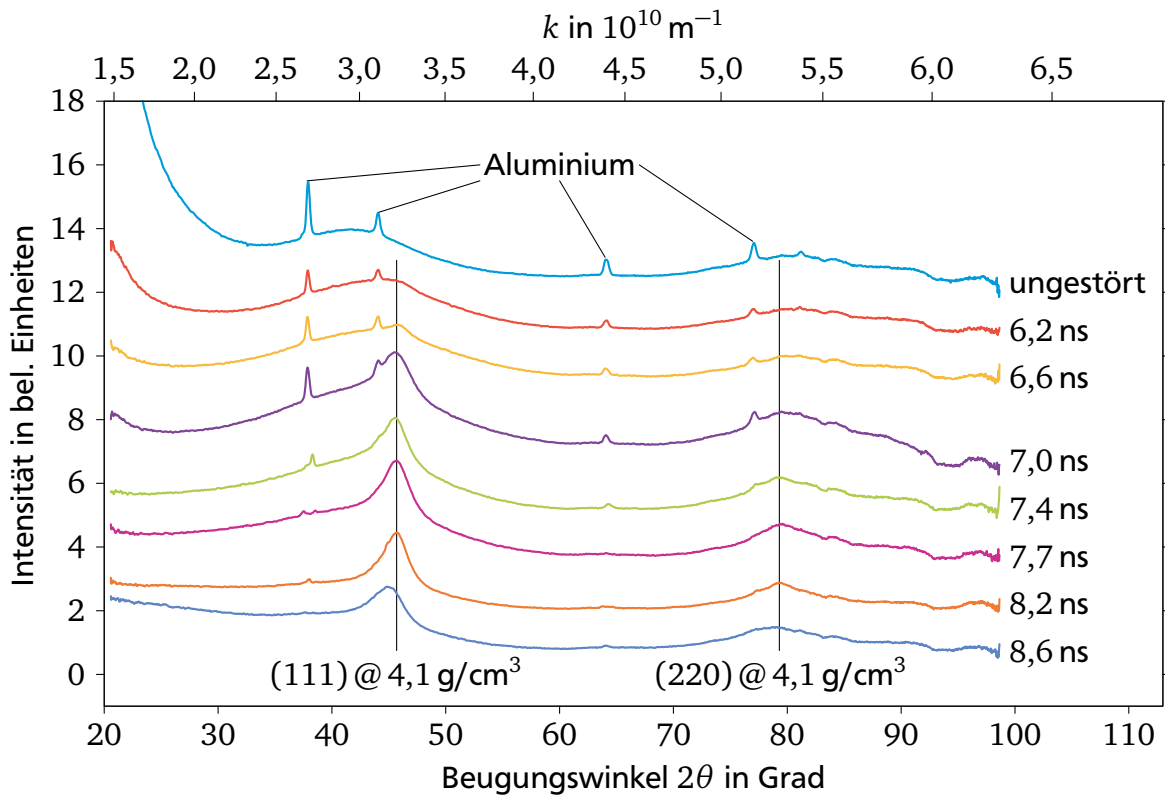
### 6.3 Verifizierung der HELIOS-Simulationen und Bestimmung des ungestörten Anteils

---

Die Messungen der Röntgenbeugung zu verschiedenen Zeitpunkten bietet eine gute Möglichkeit, die Aussagen der HELIOS-Simulationen (siehe Abschnitt 4.1) zu verifizieren, wie Kraus, Vorberger, Pak *et al.* [2017] für das hier behandelte Experiment bereits zeigten. In Abbildung 6.4 sind die zu verschiedenen Zeitpunkten gemessenen Beugungsprofile von Polystyrol zu sehen. Alle angegebenen Messzeiten haben eine Unsicherheit von 150 ps. Da die Wechselwirkung des Lasers mit der Probe die Aluminiumschicht auf der Vorderseite der Probe instantan zerstört, reduzieren sich die Beugungssignale von Aluminium im Vergleich zu einer ungestörten Probe. Für Zeiten zwischen 7,4 ns und 7,7 ns verschwinden die Beiträge des Aluminiums vollständig, da die Schockwellen die Probenrückseite erreichen und durch die dortige Expansion in das Vakuum die rückseitige Aluminiumschicht zerstört wird. Dies ist konsistent mit dem von HELIOS vorhergesagten Schockausbruch bei 7,6 ns. Weiterhin ist zu beobachten, dass sich zwischen 6,2 ns und 6,6 ns die ersten Anzeichen der Beugung an den Diamantebenen (111) und (220) für eine Diamantdichte von  $(4,14 \pm 0,06) \text{ g/cm}^3$  [Kraus, Vorberger, Pak *et al.* 2017] bilden, die stetig anwachsen, bis sie ihr Maximum zwischen 7,4 ns und 7,7 ns erreichen. Dies stimmt ebenso mit der Vorhersage von HELIOS überein, dass die zweite Schockwelle nach etwa 6 ns das bereits einfach komprimierte Material erreicht. Erst durch die zweite Schockwelle werden die zur Diamantentstehung notwendigen thermodynamischen Parameter erreicht. Durch den Schockausbruch sinkt der Druck und ab 8,6 ns ist eine Verschiebung der Diamantpeaks hin zu niedrigeren Beugungswinkeln und damit niedrigeren Diamantdichten zu sehen. Dieser Prozess setzt sich fort, bis nach 14,4 ns die Beugungswinkel konsistent sind mit der Beugung an Diamant unter Normalbedingungen mit einer Dichte von  $3,5 \text{ g/cm}^3$  [Kraus, Vorberger, Pak *et al.* 2017].

Besonders für kleine Streuwinkel ist für ungestörte Proben in Abbildung 6.4 ein hoher Signalbeitrag von der amorphen Polystyrolstruktur zu sehen. Dieser Beitrag reduziert sich mit der zeitlichen Propagation der Schockwellen und ist bei Messzeitpunkten nahe des Schockausbruchs nahezu vollständig verschwunden. Da die Bestimmung der Elemententmischung bei einem noch kleineren Streuwinkel erfolgt, muss der ungestörte Materialanteil bestimmt werden, um dessen Streubeitrag aus den Streusignalen herausrechnen zu können.

Das gemessene Beugungsprofil stellt eine Überlagerung verschiedener Streu- und Beugungsbeiträge dar, die abhängig vom Messzeitpunkt existieren. Die Propagation der ersten Schockwelle durch das Material wandelt das ungestörte Ausgangsmaterial in einfach komprimiertes Material um. Zum Zeitpunkt des Schockausbruchs ist daher idealisiert kein ungestörtes Polystyrol mehr vorhanden. Sobald die zeitlich versetzte zweite Schockwelle durch das vorkomprimierte Material propagiert, wird dieses zu zweifach komprimiertem Polystyrol, in dem zusätzlich Diamantstrukturen entstehen. Zu Messzeitpunkten nach dem Schockausbruch expandiert die Probe von der Probenrückseite aus, wobei sich der Druck reduziert.

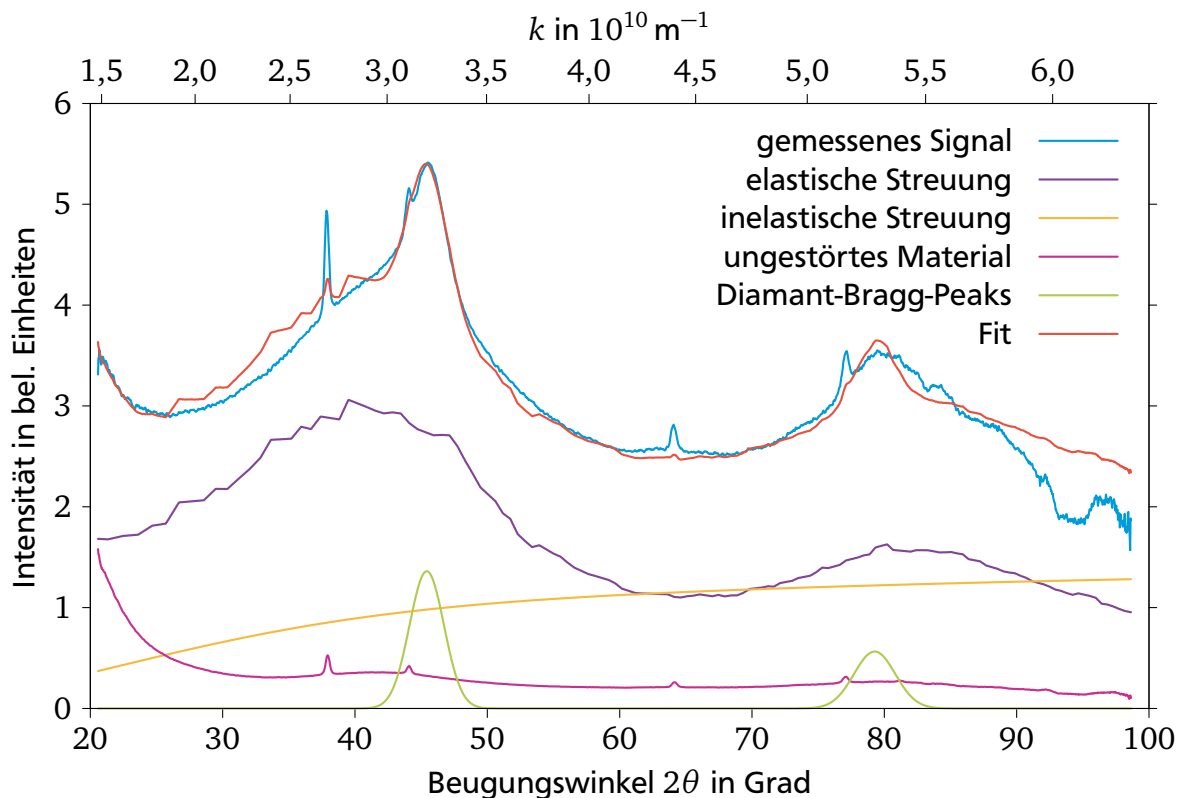


**Abbildung 6.4.:** Der zeitliche Verlauf der Röntgenbeugung zeigt, dass die Bragg-Peaks der Aluminiumbeschichtung mit dem Anschalten des Lasers kleiner werden und mit dem Ausbruch der Schockwelle auf der Rückseite zwischen 7,4 ns und 7,7 ns verschwinden. Ab 6,2 ns ist die Entstehung von Bragg-Peaks zu beobachten, die den Diamantebenen (111) und (220) mit einer Dichte von  $(4,14 \pm 0,06) \text{ g/cm}^3$  zugeordnet werden können [Kraus, Vorberger, Pak et al. 2017]. Diese Zeitpunkte verifizieren die von HELIOS vorhergesagten Propagationszeiten der Schockwellen (siehe Abschnitt 4.1). Bei kleinen Beugungswinkeln ist der Beitrag der amorphen Polystyrolstruktur zu sehen, die mit dem Fortschreiten der Schockwellen verschwindet. Hieraus kann der Anteil des verbliebenen ungestörten Materials bestimmt werden.

Zur Bestimmung des ungestörten Probenanteils wird ein Fit an das gemessene Signal durchgeführt, der die Beiträge der verschiedenen Materiezustände enthält. Zu jeder Probe existiert ein gemessenes Beugungsprofil des ungestörten Materials, das mit einem Skalierungsfaktor versehen für den noch vorhandenen ungestörten Probenanteil verwendet wird. Die Diamantpeaks werden jeweils mit einer Gaußkurve genähert. Mit der Scherrer-Formel [Patterson 1939] können prinzipiell aus der Peakbreite Rückschlüsse auf die beugende Strukturgröße getroffen werden. Da beide Peaks ihren Ursprung in denselben Diamantstrukturen haben, müssen ihre Standardabweichungen  $\sigma_{1,2}$  korreliert sein und es gilt

$$\sigma_{1,2} = \frac{A}{\cos(\theta_{1,2})} \quad (6.1)$$

$A$  ist hier ein für beide Gaußpeaks identischer freier Skalierungsparameter und  $\theta_{1,2}$  sind die Bragg-Winkel der Beugungsebenen. Wie im vorherigen Abschnitt 6.2 beschrieben, kann der Flächendetektor keine Unterscheidung in der gemessenen Röntgenenergie vornehmen. Das gemessene

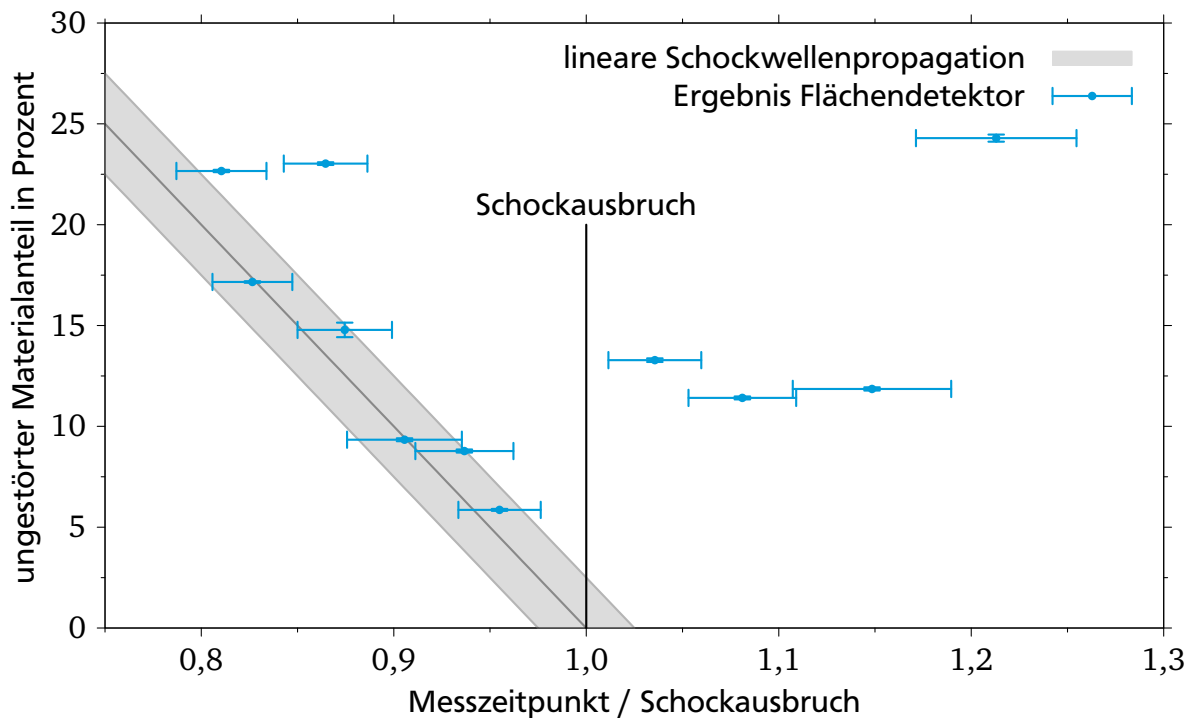


**Abbildung 6.5.:** Der verbliebene amorphe Materialanteil in der Probe zum Messzeitpunkt wird mit einem Fit bestimmt. Für den hier gezeigten Datensatz zum Messzeitpunkt  $t = (7,00 \pm 0,15)$  ns besteht der Fit aus elastischer sowie inelastischer Streuung an zweifach komprimiertem Polystyrol, dem Beitrag der Diamant-Bragg-Peaks sowie dem Messsignal des ungestörten Polystyrols.

sene Signal besteht daher aus den integrierten Anteilen der elastischen und inelastischen Streuung. Unter Verwendung der mit DFT-MD-Simulationen bestimmten Rayleigh-Streuung (siehe Abbildung 4.2) werden mit dem MCSS-Code die winkelabhängigen Anteile der elastischen und inelastischen Streuung berechnet und integriert.

Die Streubeiträge von einfach und zweifach komprimiertem Polystyrol sind vom Verlauf her sehr ähnlich, sodass der Fit diese Anteile nicht selbstständig bestimmen kann und immer einen Anteil vollständig unterdrückt. Die Vorgabe eines festen Verhältnisses zwischen beiden Anteilen umgeht dieses Problem, benötigt allerdings ein Modell für die zeitliche Propagation der Schockwellen. Dieses kann prinzipiell aus den HELIOS-Simulationen (siehe Abschnitt 4.1) erstellt werden, ist jedoch nicht ausreichend genau durch experimentelle Daten gestützt. Schwankungen in der Laserenergie beeinflussen direkt die Schockwellengeschwindigkeiten und damit die Anteile beider Zustände in der Probe. Daher wird im Fit der Anteil des einfach komprimierten Beitrags vernachlässigt. Dieser Schritt ist besonders für Messzeiten nahe des Schockausbruchs eine gute Näherung. Abbildung 6.5 zeigt den Fit an einen Datensatz zum Zeitpunkt  $t = (7,00 \pm 0,15)$  ns mit einem ermittelten ungestörten Materialanteil von  $9,34\% \pm 0,07\%$ . Weitere Ergebnisse sind in Abbildung 6.6 zu sehen.

Eine alternative Methode zur Bestimmung des ungestörten Materialanteils ist durch die experimentelle Messung des Schockausbruchs mit dem VISAR möglich (siehe Abschnitt 2.3.2). Unter



**Abbildung 6.6.:** Der verbliebene ungestörte Materialanteil in der Probe wird mit einem Fit aus den gemessenen Beugungsprofilen des Flächendetektors bestimmt (siehe Abbildung 6.5). Die Messzeiten sind jeweils auf den mit dem VISAR gemessenen Zeitpunkt des Schockausbruchs normiert. Die grau gefärbte Fläche zeigt im Vergleich den ungestörten Materialanteil, der sich linear aus dem Schockausbruch ergibt. Beide Methoden stimmen für Messzeiten vor dem Schockausbruch gut überein.

der Annahme, dass sich die zweite Schockwelle nicht bereits innerhalb der Probe mit der ersten vereinigt, ist der Schockausbruch allein durch die erste Schockwelle bestimmt. Aufgrund der auftretenden Schwankungen der Laserintensität ist diese Annahme nicht immer zutreffend, die entstehenden Unsicherheiten jedoch klein. Weiterhin muss angenommen werden, dass sich die Schockwelle zwischen dem Zeitpunkt  $t = 0$  und dem Schockausbruch linear ausbreitet. Gemäß den HELIOS-Simulationen in Abschnitt 4.1 ist diese Annahme für den experimentellen Parameterbereich weitestgehend zutreffend. Als letzte Annahme geht diese Methode davon aus, dass die Auflösung der amorphen Struktur durch die Änderung von Druck, Temperatur und Dichte instantan erfolgt.

Abbildung 6.6 zeigt im Vergleich beider Methoden innerhalb der Unsicherheiten eine gute Übereinstimmung für Zeitpunkte vor dem Schockausbruch. Danach expandiert und dekomprimiert die Probe und der Fit an die Beugungsprofile ist erwartungsgemäß schlecht. Da die Messung des Schockausbruchs nicht für alle Datensätze zuverlässig arbeitete, wird der verbliebene ungestörte Materialanteil aus den Beugungsprofilen bestimmt.





---

## 7 Bestimmung der Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie

Die Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie soll nach theoretischen Rechnungen [Wünsch *et al.* 2011] und Simulationen (siehe Abbildung 4.2) zu einer Reduzierung der Rayleigh-Streuung bei kleinen Werten von  $k$  führen. Um diese Vorhersage experimentell zu überprüfen, befindet sich im Experiment in Vorwärtsrichtung ein Spektrometer unter  $17^\circ$  zur Röntgenstrahlachse ( $k = 1,23 \text{ m}^{-1}$ ). Unter diesem Winkel ist die Bestimmung der Rayleigh-Streuung aus dem gemessenen Spektrum nicht direkt möglich. Daher steht ein zweites Spektrometer in Rückwärtsrichtung unter einem Winkel von  $123^\circ$  zur Röntgenstrahlachse ( $k = 7,30 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ). Unter diesem Winkel ist jedoch keine signifikante Änderung im Falle einer Entmischung zu erwarten, doch durch den großen Streuwinkel sind elastisch und inelastisch gestreute Röntgenphotonen energetisch getrennt aufgelöst. Für die Rayleigh-Streuung, die der elastischen Streuung entspricht, kann durch die Normierung auf den inelastischen Streuanteil gemäß Abschnitt 3.2.4 ein absoluter Wert bestimmt werden. Dieses Ergebnis ermöglicht eine anschließende Normierung des Vorwärtsspektrometers auf das Rückwärtsspektrometer

$$\frac{W_R^v}{W_R^r} = \frac{I_{el}^v \epsilon^r}{I_{el}^r \epsilon^v} x_c \quad . \quad (7.1)$$

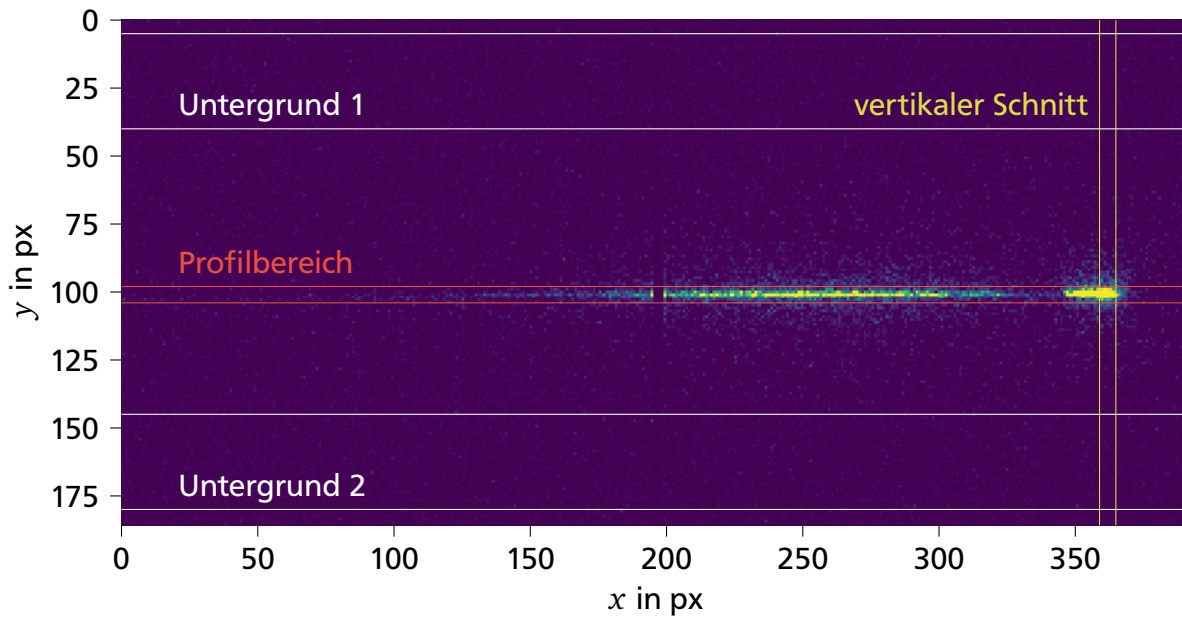
Hier ist  $W_R$  die Rayleigh-Streuung,  $I_{el}$  die integrierte elastische Streuung und  $\epsilon$  der Polarisations-einfluss des Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers nach Gleichung (3.6) jeweils für das <sup>r</sup> Rückwärts-beziehungsweise <sup>v</sup> Vorwärtsspektrometer.  $x_c$  ist der Kreuzkalibrationsfaktor zwischen beiden Spektrometern, der systematische Intensitätsunterschiede berücksichtigt.

Beide Spektrometer sind bis auf die Dicke der verwendeten HAPG-Kristalle baugleich. Während im Rückwärtsspektrometer ein  $40 \mu\text{m}$  dünner Kristall verwendet wird, ist der im Vorwärtsspektrometer  $100 \mu\text{m}$  dick. Aufgrund des dickeren Kristalls in Vorwärtsrichtung wird durch die Mosaikfokussierung mehr Strahlung zum Detektor reflektiert (siehe Abbildung 3.6). Zusätzlich ist die Polarisation des Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers zu beachten. Durch diese wird um einen Faktor 2,9 mehr Strahlung in Vorwärtsrichtung gestreut (siehe Gleichungen (3.12) und (3.6)). Dadurch ist insgesamt eine höhere Intensität in Vorwärtsrichtung zu erwarten.

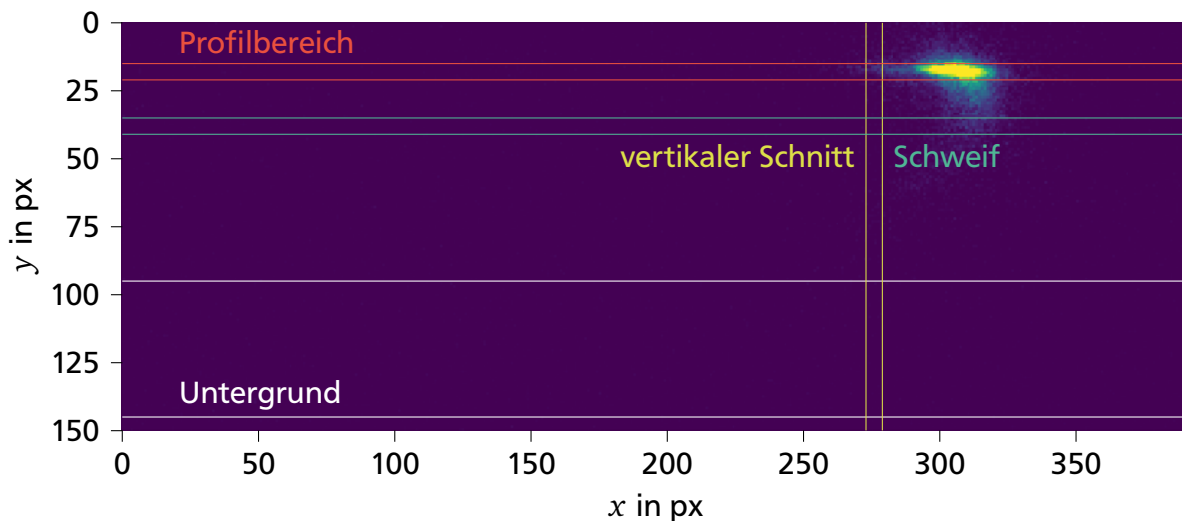
Die mit den Spektrometern aufgenommenen Daten liegen als zweidimensionale Bilder vor. In diesem Kapitel werden die notwendigen Schritte zur Erstellung der Spektren aus den Detektorbildern sowie die angewendeten statistischen und energieabhängigen Korrekturen auf das Signal vorgestellt. Mit den in Abschnitt 6.3 bestimmten ungestörten Materialanteilen kann schließlich nach einer Kreuzkalibrierung die Rayleigh-Streuung des warmen dichten Polystyrols für beide Spektrometer bestimmt werden.

## 7.1 Erstellung der Streuspektren und statistische Signalkorrekturen

In Abbildung 7.1 ist ein Datensatz beider Spektrometer zu sehen. Während das Rückwärtspektrometer eine gut fokussierte Linie aufweist, ist das Signal in Vorwärtsrichtung aus der Fokusebene heraus verschmiert. Dies ist durch den Aufbau des Spektrometers nicht zu erklären.



(a) Rückwärtspektrometer

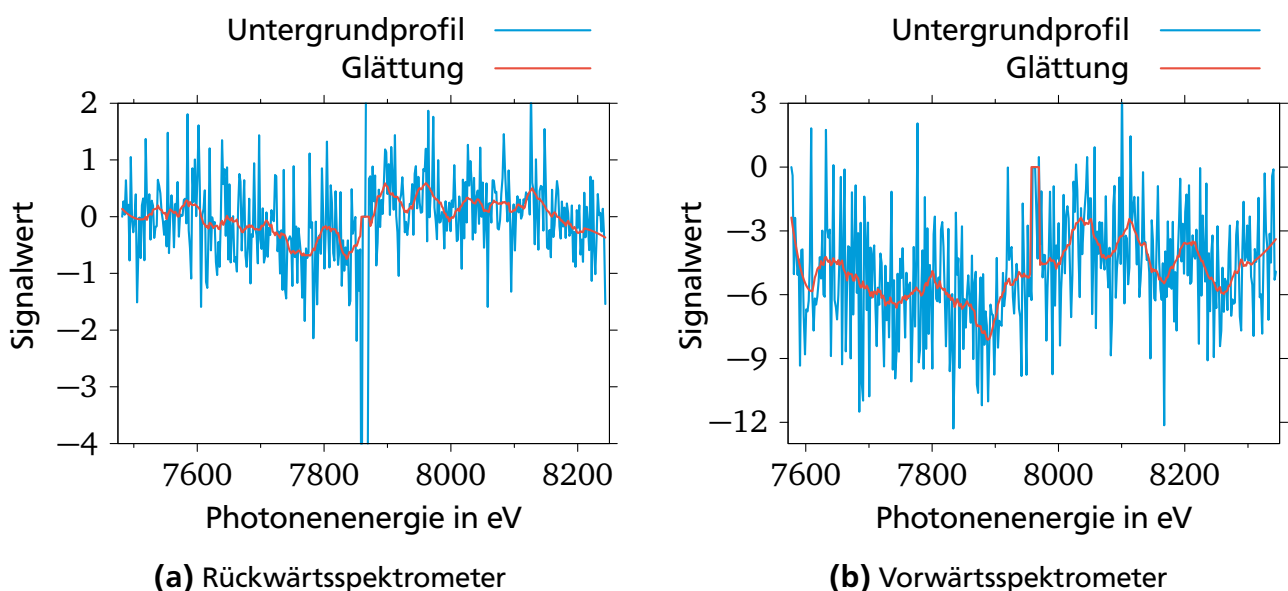


(b) Vorwärtspektrometer

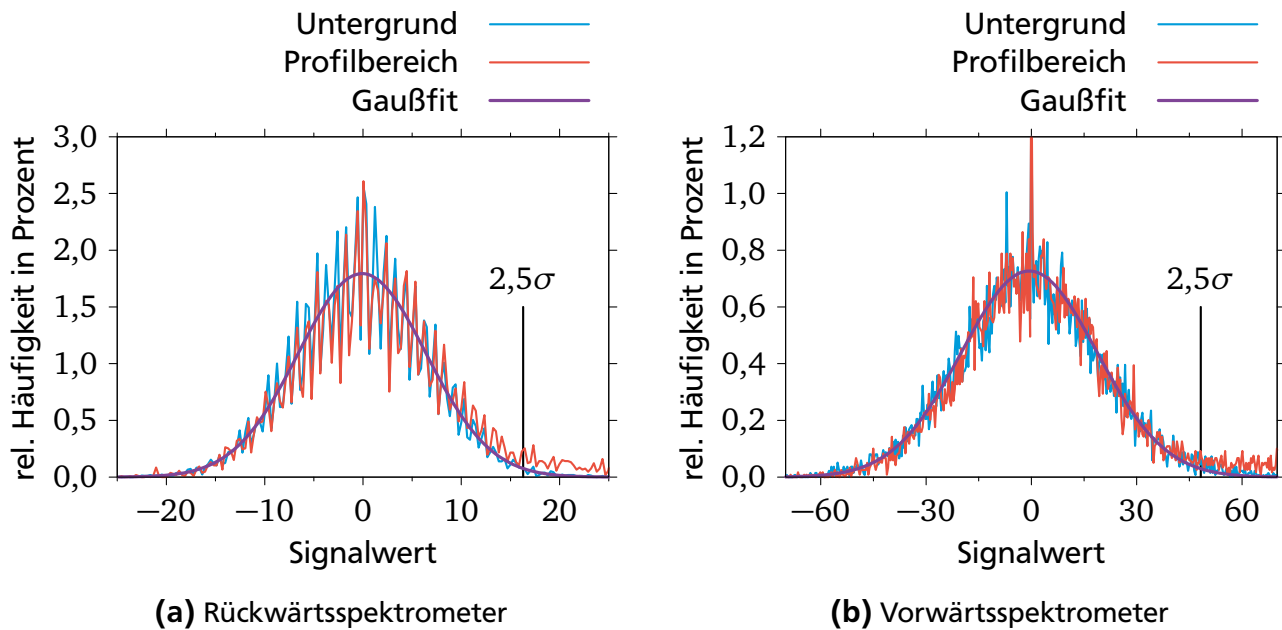
**Abbildung 7.1.:** Mit einem vertikalen Schnitt wird die Lage des Steusignals  $y_z$  auf dem Detektor bestimmt. Um diese Position wird das Streusignal mit einer Breite von  $(7 \pm 2)$  px in horizontaler Richtung erstellt. Für die angewendete Untergrundkorrektur des Signals werden die in weiß markierten Bereiche verwendet. Der in (b) türkis markierte Schnitt durch den ausgeschmierten Schweif des Signals wird in Abschnitt 7.4 zur Bestimmung des Streusignals des ungestörten Materials verwendet.

Analog zum Flächendetektor werden für beide Spektrometer die Streuspektren um den Dunkelstrom sowie um das Signal einer reinen Laserwechselwirkung mit der Probe ohne Röntgenstrahlung korrigiert (siehe Abschnitt 6.2). Zusätzlich wird eine Untergrundkorrektur durchgeführt, um statistisches Rauschen auf den Detektoren zu minimieren. Dafür werden im Rückwärtsspektrometer zwei Profile bei  $y = 5 \text{ px}$  und bei  $y = 145 \text{ px}$  mit einer Breite von je  $35 \text{ px}$  erstellt und addiert. Aufgrund der Lage des Signals im Vorwärtsspektrometer wird hier nur ein Profil bei  $y = 95 \text{ px}$  mit einer Breite von  $50 \text{ px}$  erstellt. Die Lage und Breite des Untergrundprofils in Vorwärtsrichtung ist so gewählt, dass es sich nicht mit dem ausgeschmierten Signal überschneidet. Die gewählten Bereiche für die Untergrundkorrektur sind in Abbildung 7.1 jeweils eingezeichnet. Das so bestimmte Untergrundprofil wird mit einem Savitzky-Golay-Filter geglättet [Savitzky und Golay 1964], um statistische Schwankungen im Signal zu vermeiden. Der Filter führt eine polynomiale Regression  $n$ -ter Ordnung über eine Breite von  $m$  Werten durch. Für die Glättung der Untergrundprofile werden die Parameter  $n = 2$  und  $m = 35$  verwendet. Der geglättete Untergrund wird auf eine Profilbreite von  $1 \text{ px}$  gemittelt und vom gesamten Detektorbild subtrahiert. Die Untergrundkorrektur für beide Spektrometer ist in Abbildung 7.2 zu sehen.

Um die Streuspektren aus den gemessenen Bildern zu extrahieren, wird zuerst die vertikale Lage  $y_z$  der Signale in den Detektorbildern bestimmt. Dazu wird im Rückwärtsspektrometer um den Ort der maximalen Intensität ein vertikaler Schnitt gebildet. Die vertikale Lage wird mit einem Gaußfit an diesen Schnitt bestimmt. Für das Vorwärtsspektrometer ist der vertikale Schnitt um  $30 \text{ px}$  zum niederenergetischeren Bereich verschoben, um Einflüsse des ausgeschmierten Signals auf die Lagebestimmung auszuschließen. Die Bereiche der vertikalen Schnitte sind in Abbildung 7.1 eingezeichnet. Anschließend werden die Streuspektren horizontal um die vertikale Position  $y_z$  mit einer Breite von  $(7 \pm 2) \text{ px}$  extrahiert. Dies ist der Profilbereich in Abbildung 7.1.



**Abbildung 7.2.:** Aus den in Abbildung 7.1 eingezeichneten Untergrundbereichen wird für jedes Detektorbild ein Untergrundprofil erstellt und auf eine Profilbreite von  $1 \text{ px}$  skaliert. Dieses wird mit einem Savitzky-Golay-Filter [Savitzky und Golay 1964] zweiter Ordnung über einen Bereich von  $35 \text{ px}$  geglättet und als Untergrundkorrektur auf das gesamte Detektorbild angewendet.

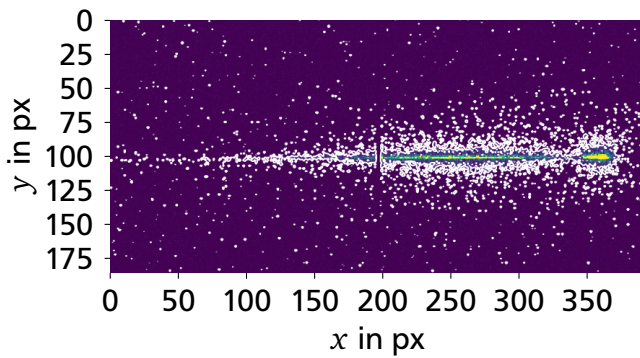


**Abbildung 7.3.:** Die Histogramme der Signalwerte in den Untergrund- und Profilbereichen weisen für Werte um 0 herum identische Gaußformen auf. Hieraus wird der Grenzwert zur Bestimmung der Gesamtintensität auf das 2,5-fache der Standardabweichung bestimmt, da für höhere Werte erste Einflüsse des Streusignals auf das Histogramm zu sehen sind.

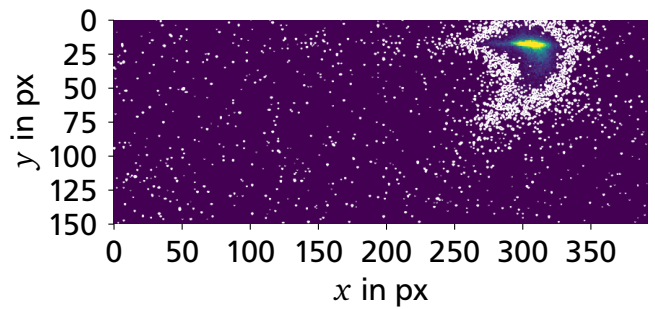
Da besonders im Vorwärtsspektrometer deutlich sichtbar ein großer Anteil des Röntgensignals außerhalb des Profilbereichs liegt, wird die Intensität der Streuspektren auf die Gesamtintensität der aufgenommenen Detektorbilder skaliert.

Die Gesamtintensität der Detektorbilder bestimmt sich jeweils aus der Summe des Messsignals aller Pixel, deren Signal oberhalb eines Grenzwerts liegt. Um die Grenzwerte zu ermitteln, werden für die zur Untergrundkorrektur verwendeten Bereiche Histogramme erstellt (siehe Abbildung 7.3). Diese zeigen eine gaußförmige Verteilung des gemessenen Signals um den Wert 0. Ein Vergleich der Histogramme der Untergrundbereiche mit den Histogrammen der Profilbereiche zeigt in der Form der Gaußkurve keine signifikante Änderung. Der Grenzwert zur Bestimmung der Gesamtintensität wird daher als das 2,5-fache der Standardabweichung  $\sigma$  eines Gaußfits an das Histogramm des Untergrunds festgelegt, da für höhere Grenzwerte erste Abweichungen zwischen den Histogrammen erkennbar sind. Die Unsicherheit des Grenzwerts von 2,5 % bestimmt sich aus der Variation des Grenzwerts zwischen  $2\sigma$  und  $3\sigma$ . Die für die Gesamtintensität berücksichtigten Pixel sind in Abbildung 7.4 markiert und grenzen überwiegend direkt an das sichtbare Streusignal an.

Die aus den Profilbereichen extrahierten Streuspektren sind in Abbildung 7.5 gezeigt. Hier fällt im Rückwärtsspektrometer die Lücke im inelastischen Streusignal auf, die durch die bauartbedingte Segmentierung des Detektors auftritt. Dieser Bereich wird durch die Werte einer Gaußkurve ersetzt, die an das inelastische Signal angefügt wird (siehe Abbildung 7.5a). Da das Röntgensignal im Vorwärtsspektrometer auf ein Detektorsegment begrenzt ist, entfällt hier eine solche Interpolation. Aufgrund der Defokussierung des Vorwärtsspektrometers am dritten Messtag verschiebt sich das Messsignal auf dem Detektor und die neue Position überlagert sich mit einem defekten Detektorpixel, der auch das Messsignal der direkt benachbarten Pixel beein-



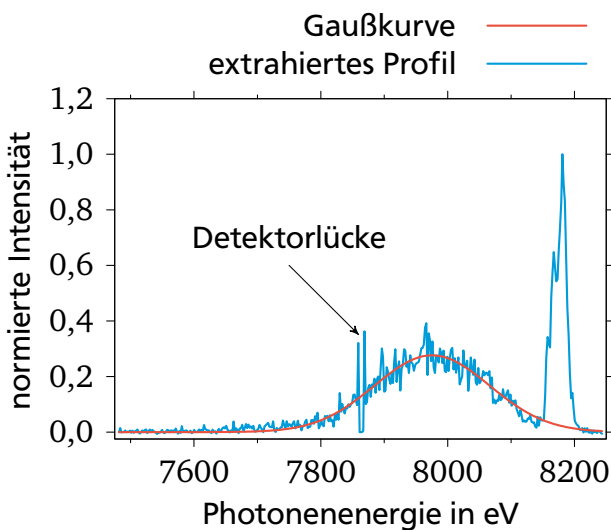
(a) Rückwärtsspektrometer



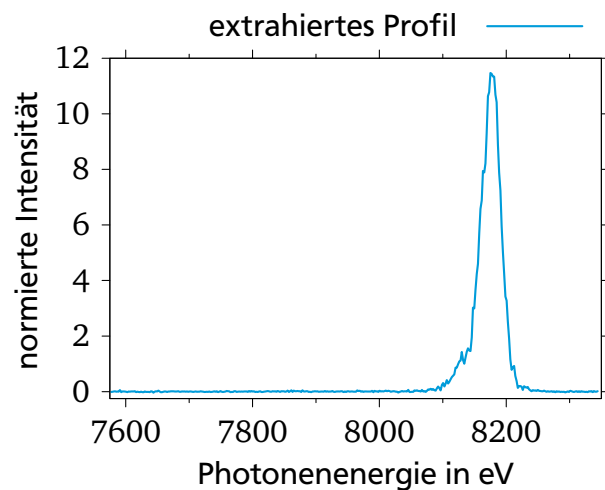
(b) Vorwärtsspektrometer

**Abbildung 7.4.:** Weiß umrandet sind alle Pixelbereiche, die einen Signalwert oberhalb des in Abbildung 7.3 bestimmten Grenzwerts aufweisen. Diese ergeben aufsummiert die Gesamtintensität, auf die die Intensität der extrahierten Streuspektren skaliert werden.

flusst. Die fünf betroffenen Pixel im Vorwärtsspektrometer werden durch eine 2D-Interpolation mit der Pythonfunktion `scipy.interpolate.griddata` ersetzt. Für beide Signalinterpolationen wird für den betroffenen Bereich eine Unsicherheit von 2,5% angenommen.



(a) Rückwärtsspektrometer

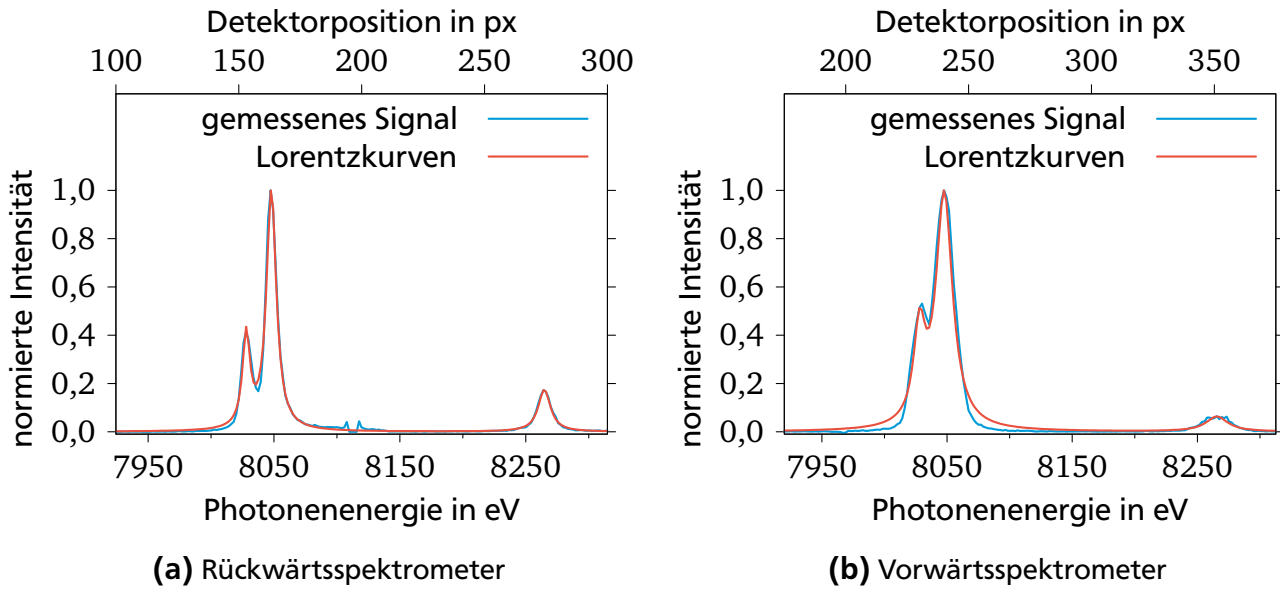


(b) Vorwärtsspektrometer

**Abbildung 7.5.:** Die aus den Profilvereichen der Spektrometer (siehe Abbildung 7.1) erstellten Spektren sind hier auf die maximale Intensität des Rückwärtsspektrometers normiert. Zur Interpolation der Detektorlücke im Rückwärtsspektrometer wird eine Gaußkurve verwendet.

## 7.2 Kalibrierung der Spektrometer

Die Energiekalibrierung der Kristallspektrometer erfolgt mithilfe einer Kupfer-Nickel-Legierung mit einer Dicke von  $16,4 \mu\text{m}$ , die mit einer Röntgenenergie von  $9\,000 \text{ eV}$  angeregt wurde. Von den Spektrometern wird Kupfer- $K\alpha$ -Strahlung bei  $(8\,047,83 \pm 0,01) \text{ eV}$  und  $(8\,027,85 \pm 0,01) \text{ eV}$  sowie Nickel- $K\beta$ -Strahlung bei  $(8\,264,78 \pm 0,01) \text{ eV}$  detektiert; die Energien stammen von Hölzer *et al.* [1997]. Die Positionen der Linien in den Emissionsspektren werden mit Lorentzkurven



**Abbildung 7.6.:** Die Energiekalibrierung der Kristallspektrometer erfolgt am Emissionsspektrum einer Kupfer-Nickel-Legierung der Dicke  $16,4 \mu\text{m}$ . Die Positionen der beiden Kupfer- $K\alpha$ -Linien und der Nickel- $K\beta$ -Linie werden mit Lorentzkurven bestimmt.

bestimmt (siehe Abbildung 7.6). An die jeweils drei Kalibrationspunkte wird die Dispersionsrelation

$$E(n) = m \frac{hc}{2d} \sqrt{\left(\frac{n \cdot x_p + x_0}{2R}\right)^2 + 1} \quad (7.2)$$

angefittet. Dabei bezeichnet  $h$  das Plancksche Wirkungsquantum,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit,  $d = 3,354 \cdot 10^{-10} \text{m}$  den Ebenenabstand der (002) Ebene von Graphit,  $R = 51,7 \text{mm}$  den Krümmungsradius des verwendeten Graphitkristalls,  $n$  die Pixelposition auf dem Detektor in Dispersionsrichtung,  $x_p = 110 \mu\text{m}$  die Pixelgröße und  $x_0$  die Entfernung der niederenergetischen Detektorkante zur Probe. Der Parameter  $m$  berücksichtigt Abweichungen von der idealen von-Hámos-Geometrie sowie Ungenauigkeiten des Krümmungsradius. Ein Wert von  $m = 1$  entspricht dabei einer perfekten Spektrometerausrichtung und einem perfekt gekrümmten Kristall. Die freien Parameter in dieser Gleichung sind  $m$  und  $x_0$ . Die Gleichung lässt sich als exakte Lösung aus der Strahlenoptik zwischen Quelle, Kristall und Detektor bestimmen, wenn diese die von-Hámos-Geometrie erfüllen (siehe Abschnitt 3.4). Die Unsicherheit des Fits wird unter Verwendung der Korrelationsmatrix  $C$  mit

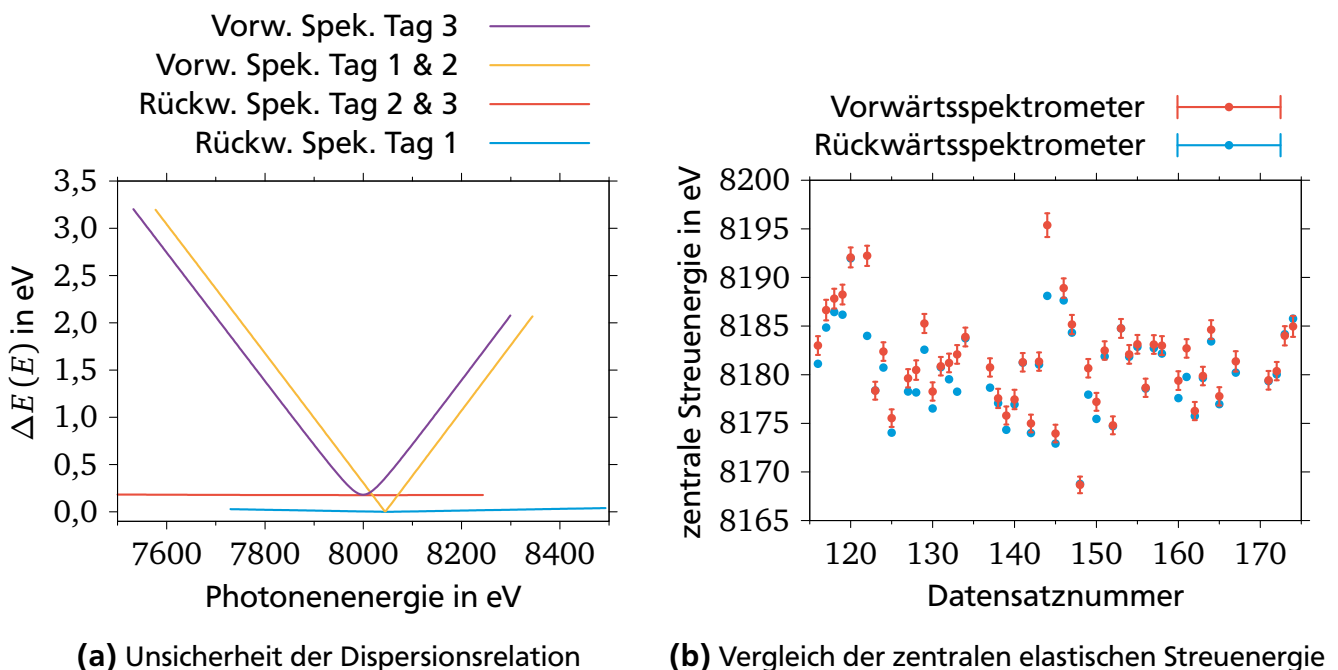
$$C = \begin{pmatrix} 1 & -1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix} \quad (7.3)$$

$$\Delta E(n) = \frac{hc}{2d} \sqrt{\left(\sqrt{1 + \left(\frac{A(n)}{2R}\right)^2} \Delta m\right)^2 + \left(\frac{mA(n) \Delta x_0}{4R^2 \sqrt{1 + \left(\frac{A(n)}{2R}\right)^2}}\right)^2} - \frac{mA(n)}{2R^2} \Delta m \Delta x_0 \quad (7.4)$$

berechnet. Hier wird die Substitution  $A(n) = n \cdot x_p + x_0$  verwendet. Abbildung 7.7a zeigt die Unsicherheit der Kalibrierung in Abhängigkeit von der gemessenen Energie für beide Spektrometer. Die Unsicherheit ist jeweils im Bereich der Kupfer-K $\alpha$ -Linien am niedrigsten, da hier zwei Kalibrationspunkte in geringem Abstand existieren. Dass der allgemeine Verlauf der Unsicherheit für das Vorwärtsspektrometer steiler ist als für das Rückwärtsspektrometer, ist durch die unterschiedliche Dicke der verwendeten HAPG-Kristalle gegeben. Im Vorwärtsspektrometer ist das gemessene Signal stärker verbreitert, wodurch die Bestimmung der Peakpositionen eine höhere Unsicherheit aufweist (siehe Abbildung 7.6).

Am ersten Messtag stellte sich heraus, dass das Rückwärtsspektrometer zu weit von der Probe entfernt positioniert ist. Dadurch wird ein Teil der niederenergetischen Röntgenstrahlung nicht vom HAPG-Kristall reflektiert, da sie sich nicht im Akzeptanzbereich des Kristalls befindet und die Bragg-Bedingung nicht erfüllt wird. Um diesen Signalverlust zu vermeiden, wird das Rückwärtsspektrometer am zweiten Messtag um  $(14,029 \pm 0,010)$  mm zur Probe hin bewegt. Dies entspricht einer linearen Verschiebung des abgedeckten Energiebereichs des Kristalls und die Energiekalibrierung kann mit der bekannten Pixelgröße entsprechend angepasst werden. Die Kalibrierung des Rückwärtsspektrometers wird für den zweiten Tag mit der des Vorwärtsspektrometers verglichen. Die elastische Streuung sollte für beide Spektrometer dieselbe Energie aufweisen. Daher ist die mit einem Gaußfit bestimmte Peakenergie in Abbildung 7.7b im Vergleich zu sehen und zeigt insgesamt eine gute Übereinstimmung.

Das Vorwärtsspektrometer wird am dritten Messtag ebenfalls näher zur Probe gefahren, um einer Sättigung des Detektors mittels Defokussierung entgegenzuwirken. Das Signal verschiebt



**Abbildung 7.7.:** In (a) ist die Unsicherheit der Dispersionsrelation aus Gleichung (7.4) für das Rückwärts- und Vorwärtsspektrometer (Rückw. und Vorw. Spek.) gezeigt. Die Verschiebungen der Spektrometer am zweiten (Rückwärtsspektrometer) sowie am dritten Messtag (Vorwärtsspektrometer) beeinflussen die Unsicherheit. Beide Spektrometer zeigen am zweiten Messtag (b) eine gute Übereinstimmung der zentralen Energie des elastischen Streusignals.

sich durch diese eindimensionale Bewegung in beiden Richtungen auf dem Detektor. Dies ist ein Hinweis darauf, dass das Vorwärtsspektrometer nicht in einer idealen Linie zur Probe positioniert, sondern minimal verdreht ist. Die Drehung lässt sich prinzipiell berechnen und auf die Kalibrierung des Spektrometers anwenden, sofern die verwendete Röntgenenergie für die alte und die neue Position bekannt ist. Die Energie des Röntgen-Freien-Elektronen-Lasers unterliegt leichten Schwankungen, wie in Abbildung 7.7b anhand der gemessenen Energien zu sehen ist. Die Röntgenenergie wird während des Experiments nicht explizit gemessen, sodass eine geometrische Korrektur nicht möglich ist. Um dennoch die Kalibrierung anpassen und Datensätze vom dritten Messtag auswerten zu können, wird angenommen, dass sich das gemessene Energieintervall pro Pixel durch die Verschiebung nicht ändert und dass die zentrale Energie der elastischen Streuung in beiden Detektoren identisch ist. Diese Annahme wird auch durch die geringen Abweichungen der Energien am zweiten Messtag unterstützt.

---

### 7.3 Energieabhängige Signalkorrekturen

---

Die Kristallspektrometer sind in der Lage, die gestreute Röntgenstrahlung spektral aufzulösen. Besonders im Rückwärtsspektrometer verteilt sich die gemessene Strahlung über einen größeren Energiebereich. Da in der späteren Auswertung das Verhältnis der elastisch gestreuten Strahlung zur inelastisch gestreuten Strahlung wichtig ist, müssen energieabhängige Einflüsse auf das Signal herausgerechnet werden. Dies wird als Flat-Field-Korrektur bezeichnet und kann mit

$$I(E) = \tau_p(E) \tau_f(E) \frac{\Omega(E)}{4\pi} x_p \frac{dE}{dx}(E) \eta_{QE}(E) \quad (7.5)$$

berechnet werden [Gamboa *et al.* 2016]. Dabei bezeichnen  $\tau_p(E)$  und  $\tau_f(E)$  die Transmissionen durch das Probenmaterial und die verwendeten Filterfolien der Spektrometer,  $\Omega(E)$  den abgedeckten Raumwinkel des Kristalls,  $x_p = 110 \mu\text{m}$  die Kantenlänge der Pixel,  $dE/dx(E)$  das Energieintervall jedes Pixels und  $\eta_{QE}(E)$  die Quanteneffizienz des Detektors. Die Bestimmung der einzelnen Terme erfolgt in den folgenden Abschnitten am Beispiel des Rückwärtsspektrometers.

---

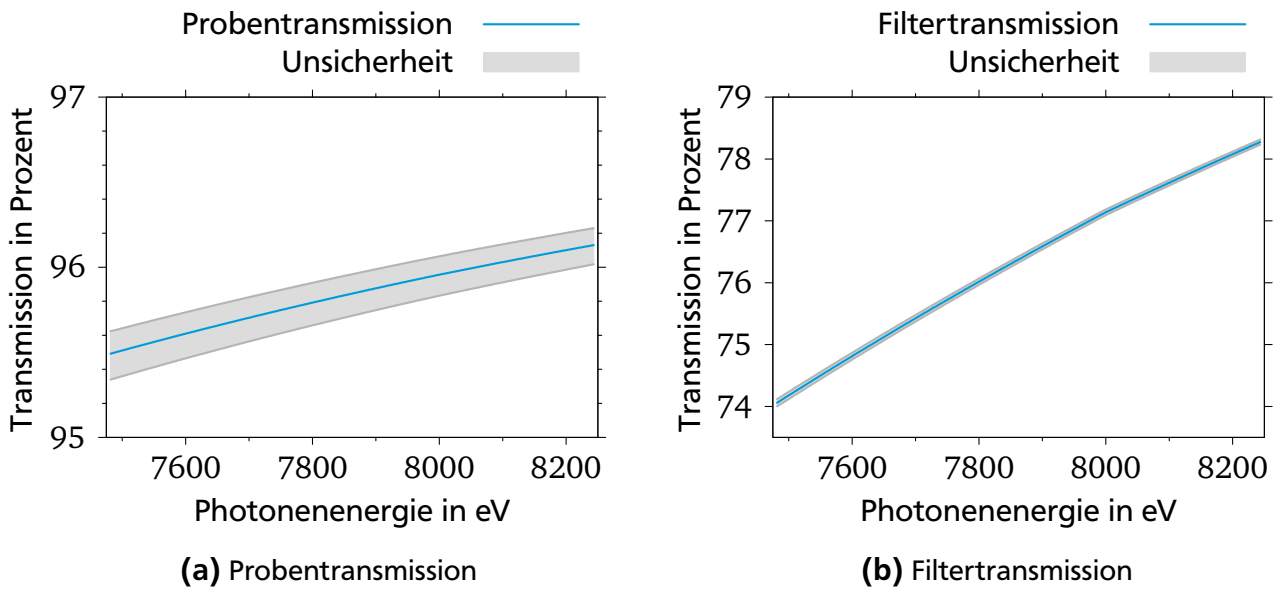
#### 7.3.1 Proben- und Filtertransmission

---

Zur Bestimmung der Proben- und Filtertransmission der von den Kristallspektrometern gemessenen Röntgenstrahlung ist der Weg durch die Probe und der Einfallswinkel auf die Filter relevant. Die verwendeten HAPG-Kristalle sind gekrümmt, um eine höhere Anzahl gestreuter Photonen derselben Energie auf denselben Ort des Detektors zu fokussieren (siehe Abbildung 3.5). Daher ist es nicht möglich, festzustellen, wo ein detektiertes Photon auf dem Kristall reflektiert wird. Für die Berechnung der Trajektorien durch Probe und Filter wird daher die Mitte des Graphitkristalls verwendet mit einer oberen und unteren Schranke, die durch die beiden äußeren Kanten des Kristalls in transversaler Richtung gegeben sind. Die Bestimmung der Transmission erfolgt nach dem Lambert-Beer'schen Gesetz (siehe Abschnitt 3.5).

Für die Transmission durch die Probe wird analog zu Abschnitt 6.2 angenommen, dass die Photonen nur einmal innerhalb der Probe gestreut werden und dass dies im Zentrum der Probe





**Abbildung 7.8.:** Proben- und Filtertransmission des Rückwärtsspektrometers

geschieht. Die Kompression des Materials muss entsprechend der in Abschnitt 6.2 geführten Argumentation hier ebenfalls nicht berücksichtigt werden. Die Filter beider Spektrometer bestehen aus je einer 5  $\mu\text{m}$  dünnen Aluminium- sowie einer 10  $\mu\text{m}$  dünnen Kaptonfolie, die sich vor den Kristallen befinden. Zusätzlich ist eine 200  $\mu\text{m}$  dicke Berylliumfolie direkt vor den Detektoren montiert. Die Positionen der Filter sind in Abbildung 5.3 eingezeichnet, die verwendeten Massenschwächungskoeffizienten für Probe und Filter sind in Abbildung 3.7 zu sehen. Die Menge an transmittierter Strahlung durch Probe und Filter ist in Abbildung 7.8 gezeigt.

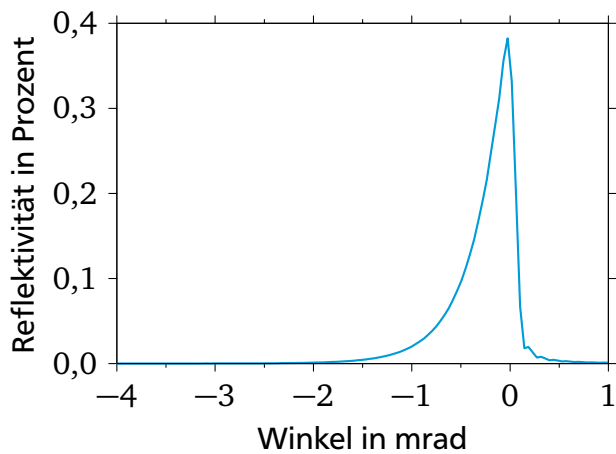
### 7.3.2 Raumwinkelkorrektur

Der HAPG-Kristall reflektiert einfallende Strahlung nur bei erfüllter Bragg-Bedingung. Daraus lässt sich der energieabhängige Abstand zwischen der Probe als Ausgangspunkt der Strahlung und dem Ort auf dem Kristall berechnen, an dem sie reflektiert wird

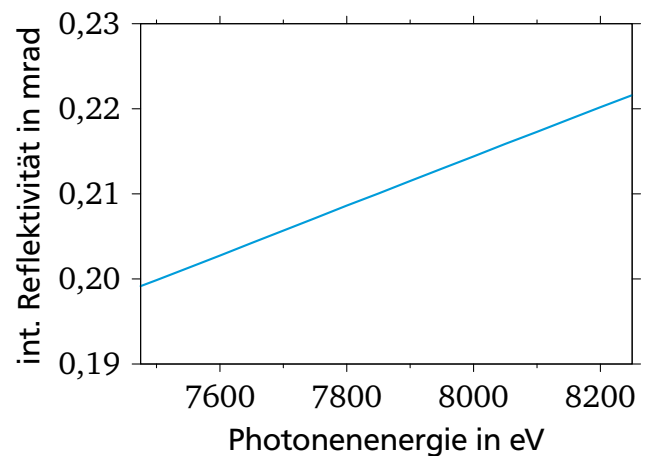
$$p(E) = \frac{R}{\sin(\theta_B(E))} \quad (7.6)$$

Dabei ist  $R = 51,7 \text{ mm}$  der Krümmungsradius des Kristalls und  $\theta_B(E)$  der energieabhängige Bragg-Winkel (siehe Abschnitt 3.3). Aufgrund der Sinus-Funktion werden verschiedene Energieintervalle mit gleicher Intervallbreite in Dispersionsrichtung von unterschiedlich großen Kristallsegmenten reflektiert. Dies ist der Raumwinkel, den eine spezifische Energie auf dem Kristall einnimmt, und kann mit

$$\Omega(E) = R_{\text{int}}(E) \frac{D}{p(E)} \quad (7.7)$$



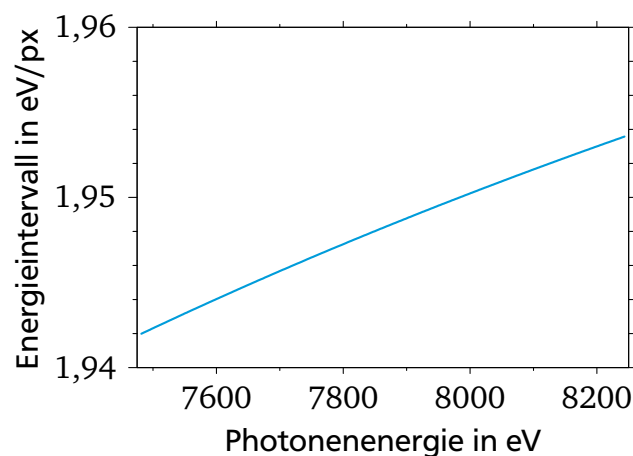
(a) Rocking Curve



(b) Integrierte Reflektivität

**Abbildung 7.9.:** Die Rocking Curve (a) beschreibt die Reflektivität eines Kristalls in Abhängigkeit der Drehung relativ zum Bragg-Winkel. Sie ist hier für eine Röntgenenergie von 8 180 eV und einen 40  $\mu\text{m}$  dicken HAPG-Kristall gezeigt. In (b) ist die Reflektivität in integrierter Form für den gleichen Kristall energieabhängig dargestellt. Die Daten wurden mit dem Programm *X-ray OPTics utilities* [Rio und Dejus 1998; Rio, Ferrero et al. 1997] berechnet.

berechnet werden. Dabei ist  $D = 32 \text{ mm}$  die Kristalllänge in Dispersionsrichtung und  $R_{\text{int}}(E)$  die integrierte Reflektivität des Kristalls, die aus der sogenannten *Rocking Curve* bestimmt wird. Um die Rocking Curve eines Kristalls zu messen, werden eine Röntgenquelle und ein Detektor so fixiert, dass der Kristall die Röntgenstrahlung unter dem Bragg-Winkel zum Detektor reflektiert. Wird der Kristall nun in sehr kleinen Schritten gedreht (englisch: *to rock it*), ändert sich die gemessene Intensität. Die Rocking Curve beschreibt die gemessene Intensität in Abhängigkeit des Drehwinkels. Eine hohe Mosaizität (siehe Abschnitt 3.4) verbreitert die Rocking Curve. Die Rocking Curve und die integrierte Reflektivität werden für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Kristalle mit dem Programm *X-ray OPTics utilities* berechnet [Rio und Dejus 1998; Rio,



**Abbildung 7.10.:** Bedingt durch den Aufbau der Spektrometer decken die einzelnen Pixel unterschiedlich große Energieintervalle ab. Die Unsicherheit der Energieintervalle ist kleiner als  $10^{-4}$  und daher hier nicht gezeigt.

---

Ferrero *et al.* 1997]. Sie sind abhängig von der Kristalldicke. Für das Rückwärtsspektrometer mit einem  $40\ \mu\text{m}$  dicken HAPG-Kristall ist die Rocking Curve bei  $8\ 180\ \text{eV}$  in Abbildung 7.9a gezeigt und die energieabhängige integrierte Reflektivität in Abbildung 7.9b.

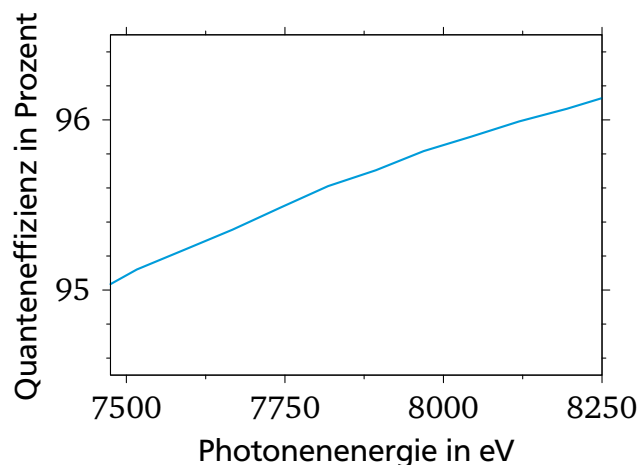
Aus Gleichung (7.6) resultiert auch, dass die Energieverteilung des Detektors nicht linear verläuft, sondern dass sich die Energieintervalle pro Detektorpixel  $dE/dx(E)$  ändern. Diese können mit der Dispersionsrelation aus Gleichung (7.2) berechnet werden. Die durch die Energiekalibrierung den Pixeln zugeordneten Energien beziehen sich jeweils auf die Pixelmittelpunkte. Das Energieintervall des  $n$ -ten Pixels lässt sich aus der Differenz der Energien an den Pixelkanten mit  $E(n + 0,5) - E(n - 0,5)$  bestimmen und das Ergebnis ist in Abbildung 7.10 zu sehen.

---

### 7.3.3 Quanteneffizienz

---

Die Quanteneffizienz eines Detektors beschreibt die Signalausbeute von einfallender Strahlung einer bestimmten Energie. Da die Quanteneffizienz für die verwendeten CSPADs über den für das Experiment relevanten Energiebereich nicht konstant ist, muss das gemessene Signal energieabhängig angepasst werden. Dazu wird eine Quanteneffizienzkurve genutzt, die von Gabriella Carini (SLAC National Accelerator Laboratory) in Form eines Bilds zur Verfügung gestellt wurde. Um die Bilddatei in ein verwendbares Format zu bringen, werden die Datenpunkte teilautomatisiert mittels Farberkennung ausgelesen. Hierzu wird das Online-Werkzeug *WebPlotDigitizer* (<https://automeris.io/WebPlotDigitizer/>) verwendet. Die auf diese Weise ermittelte Quanteneffizienzkurve ist in Abbildung 7.11 gezeigt. Für den Ausleseprozess wird eine Unsicherheit der Werte von  $\pm 0,5\%$  angesetzt.



**Abbildung 7.11.:** Die Quanteneffizienz der CSPADs wurde von Gabriella Carini (SLAC National Accelerator Laboratory) zur Verfügung gestellt

---

### 7.3.4 Vollständige Flat-Field-Korrektur

---

Die Flat-Field-Korrektur, die sich aus allen Anteilen in Gleichung (7.5) berechnet, ist in Abbildung 7.12 für beide Spektrometer zu sehen. Der Einfluss der Korrektur auf die Signalform ist energieabhängig und daher im Rückwärtsspektrometer am größten. In Abbildung 7.13 ist

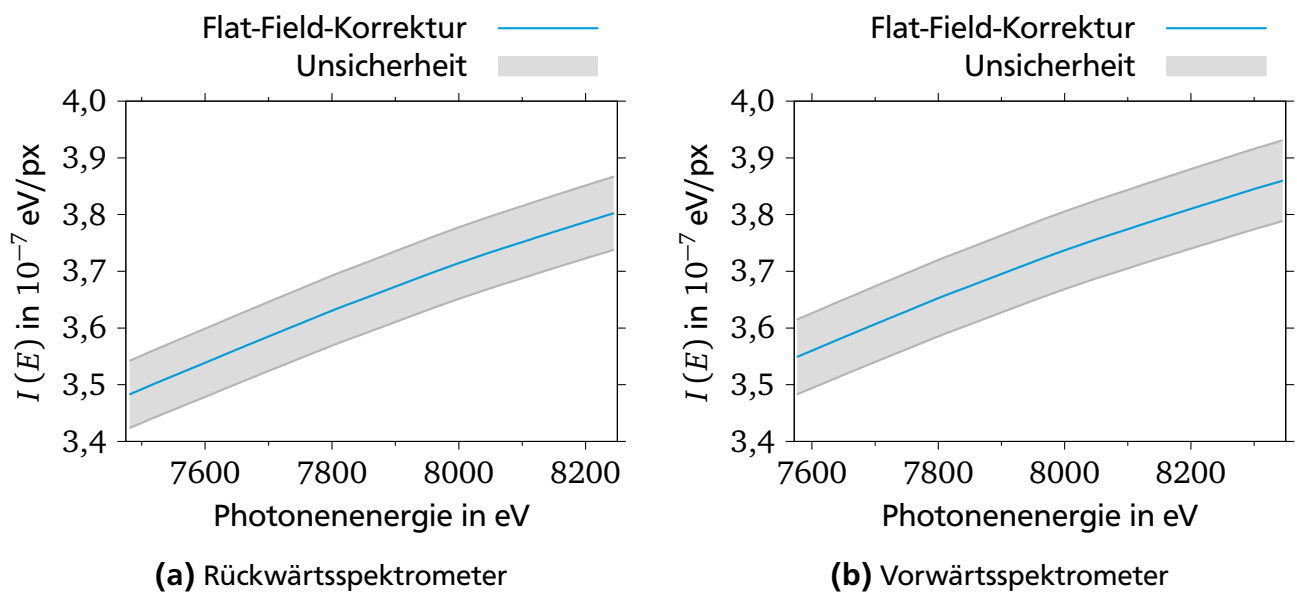


Abbildung 7.12.: Nach Gleichung (7.5) berechnete Flat-Field-Korrektur beider Spektrometer

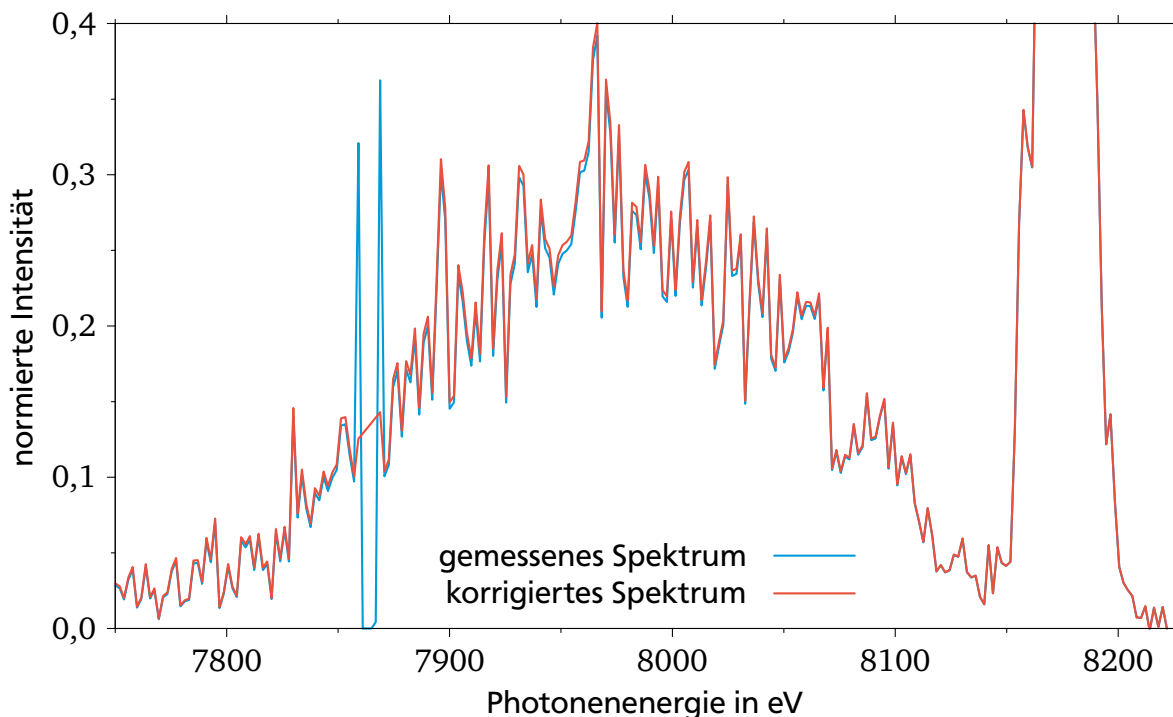


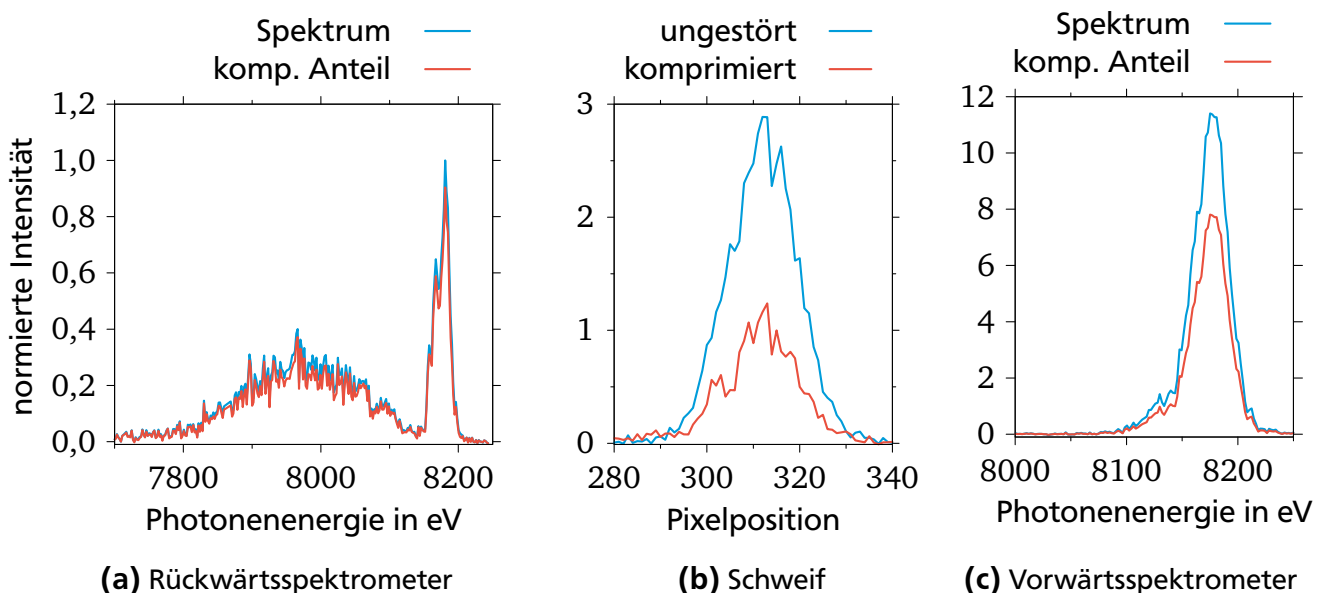
Abbildung 7.13.: Im Vergleich eines gemessenen mit einem korrigierten Spektrums des Rückwärtsspektrometers ist eine Erhöhung des inelastischen Streusignals zu sehen. Beide Spektren sind hier auf ihren jeweiligen Maximalwert normiert und der inelastische Streuanteil vergrößert dargestellt. Das Verhältnis zwischen inelastischer und elastischer Streuung steigt durch die Flat-Field-Korrektur um bis zu 3 %.

der Unterschied zwischen dem ursprünglich gemessenen und dem korrigierten Signal zu sehen. Beide Spektren sind zur Veranschaulichung auf die jeweilige Maximalintensität normiert. Die Flat-Field-Korrektur erhöht das Verhältnis zwischen inelastischer und elastischer Streuung um bis zu 3 % im Rückwärtsspektrometer.

## 7.4 Subtraktion der Streubeiträge des ungestörten Probenmaterials

Mithilfe der Röntgenbeugung wurde in Abschnitt 6.3 der ungestörte Materialanteil in der Probe zum Messzeitpunkt bestimmt. Das Ergebnis wird in diesem Abschnitt verwendet, um die gemessenen Spektrometersignale um den Streuanteil von ungestörtem Material zu reduzieren. Dazu stehen für beide Spektrometer jeweils die Datensätze der komprimierten Probe sowie des Ausgangszustands zur Verfügung.

Für das Rückwärtsspektrometer kann das gemessene Signal direkt anteilig um das ungestörte Signal reduziert werden. Dies ist in Abbildung 7.14a gezeigt und führt zu einer Erhöhung des Verhältnisses zwischen inelastischer und elastischer Streuung um bis zu 1,5 %. Diese Methode ist für das Vorwärtsspektrometer nicht anwendbar, da der Ausgangszustand der Probe ein Streusignal in Vorwärtsrichtung oberhalb der Sättigungsschwelle des verwendeten Detektors erzeugt. Für die Korrektur wird stattdessen der aus der Fokusebene heraus ausgeschmierte Schweif des Signals verwendet. Dessen Intensität skaliert mit der Gesamtintensität in der Fokusebene. Dazu wird für den komprimierten und den ungestörten Datensatz 20 px unterhalb des Profilbereichs



**Abbildung 7.14.:** Zum Messzeitpunkt  $t = (7,00 \pm 0,15)$  ns befindet sich noch  $9,34\% \pm 0,07\%$  an ungestörtem Material in der Probe. Die Reduzierung der gemessenen Spektren in (a) Rückwärts- und (c) Vorwärtsrichtung auf den Streubeitrag des komprimierten Materials (komp. Anteil) zeigt besonders im Vorwärtsspektrometer einen deutlichen Unterschied. Zur Veranschaulichung sind die Spektren in (a) und (c) auf das Maximum des Flat-Field-korrigierten Spektrums in Rückwärtsrichtung normiert. Abbildung (b) zeigt die Profile des Schweifs auf dem Detektor im ungestörten und im komprimierten Fall, die zur Reduzierung in Vorwärtsrichtung verwendet werden.

ein Profil des Schweißs erstellt. Die Position dieses Bereichs ist in Abbildung 7.1b eingezeichnet und die Profile des Schweißs sind in Abbildung 7.14b dargestellt. Zur Bestimmung des prozentualen Anteils des ungestörten Streusignals im Vorwärtsspektrometer werden beide Profile mit einer Trapezfunktion integriert und der Quotient

$$\frac{I_{\text{ungestört}}}{I_{\text{komprimiert}}} p_{\text{ungestört}} \quad (7.8)$$

gebildet. Dabei sind  $I_{\text{komprimiert}}$  und  $I_{\text{ungestört}}$  die integrierten Intensitäten des komprimierten und des ungestörten Schweißs und  $p_{\text{ungestört}}$  der mit der Röntgenbeugung bestimmte ungestörte Materialanteil. Ein Vergleich zwischen dem Spektrum und dem komprimierten Signalanteil ist in Abbildung 7.14c zu sehen.

---

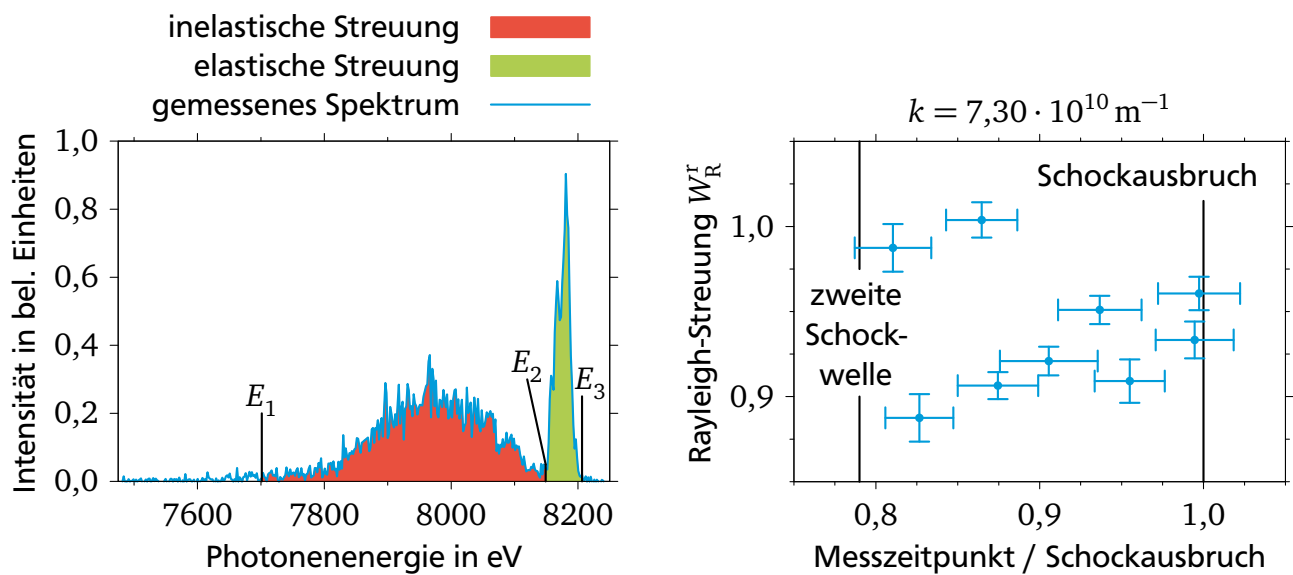
## 7.5 Bestimmung der Rayleigh-Streuung in Rückwärtsrichtung

---

Der MCSS-Code ist gerade für große Streuwinkel in der Lage, durch eine passende Wahl der theoretischen Modelle das Streuspektrum nachzubilden. Wie bereits in Abschnitt 4.3 erwähnt, scheitert der Code gerade bei warmer dichter Materie an der korrekten Bestimmung der Rayleigh-Streuung und diese muss daher als freier Parameter übergeben werden. Diese Methode kann jedoch für dieses Experiment nicht angewendet werden, da die Beiträge des erzeugten Diamants nicht von MCSS nachgebildet werden können und es immer eine Abweichung in der Form des inelastischen Signals zwischen dem berechneten und dem gemessenen Spektrum geben wird. Daher wird die Rayleigh-Streuung für das Rückwärtsspektrometer nach Gleichung (3.37) berechnet. Mit dieser Methode wird die elastische Streuung, die der Rayleigh-Streuung entspricht, auf die inelastische Streuung normiert und auf diese Weise ein absoluter Wert ermittelt. Zusätzlich werden noch die bekannten Atomformfaktoren der streuenden Elektronen benötigt, die mit den Gleichungen (3.22) – (3.24) berechnet werden.

Der inelastische sowie der elastische Streuanteil sind in Rückwärtsrichtung aufgrund des großen Streuwinkels energetisch getrennt aufgelöst. Zur Bestimmung der Grenze zwischen inelastischem und elastischem Signal wird vom Maximum der elastischen Streuung ausgehend zu niedrigeren Energien hin das lokale Intensitätsminimum mit weniger als 10 % der Maximalintensität gesucht. Die zugehörige Energie  $E_2$  wird als Grenzenergie verwendet. Die obere Grenze des elastischen Signals  $E_3$  wird analog bestimmt. Für die noch fehlende untere Grenze des inelastischen Signals wird eine Gaußkurve an das inelastische Signal gefittet. Die untere Grenze  $E_1$  ergibt sich aus der Position der Gaußkurve abzüglich der dreifachen Standardabweichung. Die Verwendung der  $3\sigma$ -Breite beinhaltet statistisch 99 % des Signals. Die Grenzwerte sind in Abbildung 7.15a eingezeichnet. Die Integration der elastischen und inelastischen Signale erfolgt mit einer Trapezfunktion.

Die berechnete Rayleigh-Streuung  $W_R^I(k)$  für das Rückwärtsspektrometer ist in Abbildung 7.15b zu sehen. Für die beiden Datenpunkte, die sich mit dem Schockausbruch überschneiden, wird kein ungestörtes Material herausgerechnet. Spätere Messzeitpunkte werden nicht berücksichtigt, da durch die Expansion und Dekompression nach dem Schockausbruch keine verlässliche



(a) Integrationsgrenzen für den elastischen und inelastischen Streuanteil

(b) Ergebnisse der Rayleigh-Streuung in Rückwärtsrichtung

**Abbildung 7.15.:** (a) zeigt die Bereiche, die als elastische und inelastische Streusignale integriert werden, um daraus mit Gleichung (3.37) die in (b) gezeigte Rayleigh-Streuung in Rückwärtsrichtung zu berechnen

Aussage über den vorliegenden Zustand möglich ist. Die in Abbildung 4.2 gezeigten DFT-MD-Simulationen ergeben für die Rayleigh-Streuung in Rückwärtsrichtung bei  $k = 7,30 \text{ m}^{-1}$  einen Wert von 0,99 für eine gleichmäßige Mischung aus Kohlenstoff und Wasserstoff, bei einer vollständigen Entmischung sinkt dieser Wert auf 0,92. Die experimentellen Ergebnisse zeigen hier kein schlüssiges Verhalten und schwanken nicht nur innerhalb dieser beiden Werte, sondern erreichen auch vereinzelt Werte von bis zu  $1,05 \pm 0,01$ . Zusätzlich ist eine ansteigende Tendenz der Werte für spätere Messzeitpunkte zu beobachten.

Die wahrscheinlichste Erklärung für dieses Verhalten ist in der Entstehung von Diamant während des Experiments begründet. Die Beugung der verwendeten Röntgenenergie von 8 180 eV an der Diamantebene (040) mit einer Diamantdichte von  $(4,14 \pm 0,06) \text{ g/cm}^3$  [Kraus, Vorberger, Pak *et al.* 2017] erfolgt unter dem Winkel  $2\theta = (127,6 \pm 1,1)^\circ$  (siehe Abschnitt 3.3). Dies ist lediglich der Beugungswinkel des Maximums. Die Peakbreite ist hier nicht berücksichtigt. Der im Rückwärtsspektrometer verwendete HAPG-Kristall ist in transversaler Richtung 30 mm breit, wodurch sich ein Akzeptanzwinkel von  $119,40^\circ$  bis  $126,62^\circ$  ergibt. Das Beugungsmaximum der (040) Diamantebene liegt daher sehr nah oder sogar unterhalb des maximalen Akzeptanzwinkels. Da es sich besonders durch die Mosaizität der erzeugten Diamanten nicht um eine scharfe Beugungslinie sondern um einen ausgedehnten Beugungspeak handelt, ist davon auszugehen, dass ein Teil der gebeugten Intensität zugunsten der elastischen Streuung im Spektrometer gemessen und eine höhere Rayleigh-Streuung berechnet wird. Dies kann auch sehr gut den ansteigenden Verlauf der Rayleigh-Streuung in Rückwärtsrichtung erklären. Die Entstehung von Diamant ist mit der Propagation der zweiten Schockwelle in der Probe korreliert (siehe Abschnitt 6.3). Je mehr Diamant entsteht, desto stärker sind die Beugungslinien ausgeprägt und desto höher kann der Beugungsbeitrag ausfallen, der im Rückwärtsspektrometer zusätzlich gemessen wird.

Eine Korrektur der Rayleigh-Streuung um den Anteil der (040) Ebene von Diamant ist in diesem Experiment nicht möglich. Idealerweise muss dafür der besagte Beugungsring vermessen werden. Der Versuch, aus den vorhandenen Beugungsprofilen Form und Position des Beugungssignals abzuschätzen, ist nicht zielführend. Allein durch die Unsicherheit der aus den Beugungsprofilen bestimmten Dichte schwankt die Position des Beugungsmaximums so stark, dass keine verlässliche Aussage über den Beitrag der Beugung zum gemessenen Spektrometersignal möglich ist. Aus diesem Grund werden die berechneten Werte der Rayleigh-Streuung in Rückwärtsrichtung nicht als absolute Werte, sondern als obere Grenze betrachtet. Unter der Annahme, dass die tatsächliche Rayleigh-Streuung dem minimal erwarteten Wert von 0,92 für den entmischten Zustand entspricht, ist die Beugung an der (040) Ebene für einen Beitrag von bis zu 15 % der gemessenen Rayleigh-Streuung verantwortlich.

## 7.6 Kreuzkalibrierung der Spektrometer

Um die Rayleigh-Streuung in Vorwärtsrichtung nach Gleichung (7.1) durch Normierung der elastischen Streuung auf das Rückwärtsspektrometer zu berechnen, ist eine Kreuzkalibrierung beider Spektrometer erforderlich. Diese gleicht systematische Intensitätsunterschiede beispielsweise durch die unterschiedlichen verbauten Kristalldicken aus.

Die Kreuzkalibrierung erfolgt an den bereits zur Energiekalibrierung verwendeten Emissionsspektren der Kupfer-Nickel-Legierung. Da diese Kalibrationsdaten am ersten Messtag aufgenommen wurden, wurde ein Teil der Intensität der Kupfer-K $\alpha$ -Linien in Rückwärtsrichtung nicht detektiert, sodass das Verhältnis der Kupfer-K $\alpha$ -Linien zwischen beiden Detektoren falsch ist. Für die Kreuzkalibrierung muss daher die Nickel-K $\beta$ -Linie verwendet werden. Das Signal wird auf die in Abschnitt 7.3 beschriebene Weise korrigiert, mit Ausnahme der Probenstrahlung. Da für die Kalibrierung eine Röntgenenergie von 9 000 eV verwendet wurde, die oberhalb einer Absorptionskante sowohl für Kupfer als auch für Nickel liegt, werden von der Eingangsstrahlung fast 99 % in der Legierung absorbiert. Daher ist das vereinfachte Modell der Probenstrahlung hier nicht zutreffend.

Zur Bestimmung der Transmission durch die Legierung wird diese in Schichten mit der Dicke  $\Delta x$  unterteilt. Gemäß dem Lambert-Beer'schen Gesetz (siehe Abschnitt 3.5) gilt für die absorbierte Intensität in einer Schicht

$$I_{\text{abs}}(x) = I(x) - I(x + \Delta x) = I_0 (1 - \exp[-\mu_0 \Delta x]) \cdot \exp[-\mu_0 x] \propto \exp[-\mu_0 x] \quad (7.9)$$

Element	Energie in eV			$I_{K\alpha_2}/I_{K\alpha_1}$	$I_{K\beta}/I_{K\alpha_{1,2}}$
	K $\alpha_1$	K $\alpha_2$	K $\beta$		
Kupfer	8047,83 ± 0,01	8027,85 ± 0,01	8905,42 ± 0,04	0,52	0,141
Nickel	7478,26 ± 0,01	7461,04 ± 0,01	8264,78 ± 0,01	0,52	0,147

**Tabelle 7.1.:** Energien und relative Intensitäten der K $\alpha$ - und K $\beta$ -Emissionen von Kupfer und Nickel [Hölzer *et al.* 1997]



In dieser Gleichung bezeichnet  $x$  die Position der betrachteten Schicht in der Legierung. Als nächstes wird angenommen, dass die absorbierte Energie isotrop als  $K\alpha$ - und  $K\beta$ -Strahlung abgegeben wird. Die emittierte Strahlung durchdringt auf dem Weg vom Ort ihrer Erzeugung zu den Spektrometern die Kupfer-Nickel-Folie und wird in dieser absorbiert. Für die Kreuzkalibrierung ist lediglich das Verhältnis der in Vorwärtsrichtung gemessenen Strahlung zu der in Rückwärtsrichtung gemessenen Strahlung entscheidend. Weitere Faktoren wie der abgedeckte Raumwinkel der Kristalle oder die Wirkungsquerschnitte der Anregung von  $K\alpha$ - und  $K\beta$ -Strahlung sind für beide Spektrometer identisch und müssen daher nicht berücksichtigt werden. Die transmittierten Intensitäten in Richtung des Rückwärts- sowie in Richtung des Vorwärtsspektrometers ( $I^r$  beziehungsweise  $I^v$ ) sind durch

$$I^r(x, E) \propto \exp \left[ - \left( \frac{\mu_0}{\rho} + \frac{\mu(E)}{\rho} \frac{\cos(\vartheta^x)}{-\cos(\vartheta^r + \vartheta^x) \cos(\vartheta_B)} \right) \rho x \right] \quad (7.10)$$

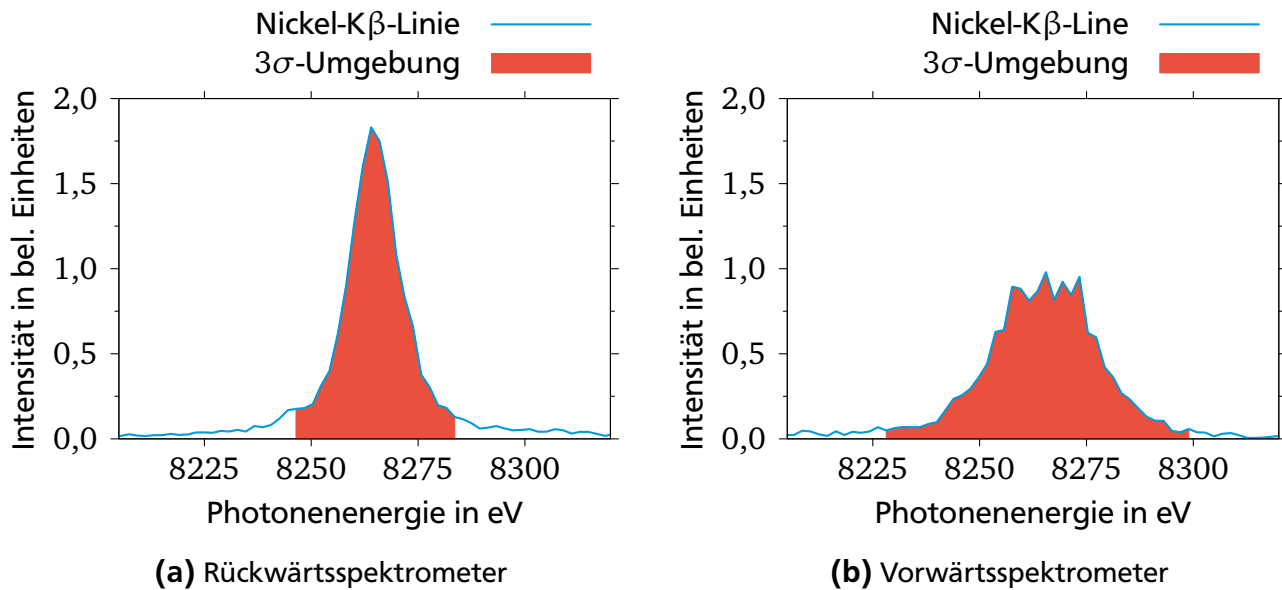
$$I^v(x, E) \propto \exp \left[ - \frac{\mu_0}{\rho} \rho x - \frac{\mu(E)}{\rho} \rho (d - x) \frac{\cos(\vartheta^x)}{\cos(\vartheta^v + \vartheta^x)} \right] \quad (7.11)$$

gegeben. Hier ist  $\vartheta^x = 30^\circ$  der Winkel der Röntgenstrahlung zur Probennormalen,  $\vartheta^r = 124^\circ$  und  $\vartheta^v = 17^\circ$  die horizontalen Winkel des Rückwärts- und Vorwärtsspektrometers (siehe Abbildung 5.1).  $\vartheta_B \approx 13^\circ$  ist der Bragg-Winkel von Röntgenstrahlung mit einer Energie von 8 180 eV und der vertikale Winkel des Rückwärtsspektrometers (siehe Abbildung 5.3). Die Quotienten der Kosinusfunktionen können über Trigonometrie unter Verwendung des Sinussatzes hergeleitet werden.

Da sich die absorbierte Energie nicht gleichmäßig auf die Emissionslinien verteilt, werden die relativen Intensitäten der Linien aus Tabelle 7.1 berücksichtigt. Weiterhin wird die Emission durch das Verhältnis von Kupfer zu Nickel innerhalb der Legierung beeinflusst. Daher wurden von Elfi Kristalle und Irene Prencipe (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf) die vorkommenden Elemente und ihre relativen Häufigkeiten in der Legierung gemessen und sind in Tabelle 7.2 aufgelistet. Das für die Messung verwendete Massenspektrometer ist mit Kohlenstoff verunreinigt, weshalb dieser in den relativen Häufigkeiten vollständig vernachlässigt wird. Kohlenstoff ist im Gegensatz zu Eisen und Mangan kein typischer Bestandteil einer Kupfer-Nickel-Legierung und könnte höchstens aus einer Verunreinigung der Legierung stammen. Ein signifikanter Einfluss auf den Massenschwächungskoeffizienten der Legierung ist jedoch nicht zu erwarten.

Element	relative Häufigkeit in Prozent
Kupfer	$64,29 \pm 0,28$
Nickel	$32,19 \pm 0,51$
Sauerstoff	$1,43 \pm 0,53$
Eisen	$0,96 \pm 0,06$
Mangan	$0,83 \pm 0,04$
Silizium	$0,30 \pm 0,16$

**Tabelle 7.2.:** Relative Häufigkeiten der Elemente in der verwendeten Kupfer-Nickel-Legierung, gemessen von Elfi Kristalle und Irene Prencipe (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf)



**Abbildung 7.16.:** Zur Bestimmung der Kreuzkalibrierung wird die von beiden Spektrometern gemessene Nickel-K $\beta$ -Linie innerhalb einer  $3\sigma$ -Umgebung mit einer Trapezfunktion integriert

Die Gleichungen (7.10) und (7.11) werden für die Nickel-K $\beta$ -Linie integriert und mit dem relativen Nickelanteil in der Legierung sowie der relativen Intensität der Emissionslinie multipliziert. Das auf diese Weise berechnete Verhältnis des zu erwartenden Intensitätsunterschieds der Nickel-K $\beta$ -Linie zwischen dem Rückwärts- und dem Vorwärtsspektrometer, das sich aus der Transmission durch die Kalibrierungsfolie ergibt, beträgt

$$\frac{I_{K\beta}^r}{I_{K\beta}^v} = 1,96_{-0,10}^{+0,12} . \quad (7.12)$$

Zur Bestimmung des Kreuzkalibrationsfaktors  $x_c$  werden alle Kalibrierungsdatensätze aufsummiert (siehe Abbildung 7.16). Das Signal der Nickel-K $\beta$ -Linie wird jeweils mit einer Gaußkurve gefittet. In einer  $3\sigma$ -Umgebung wird das gemessene Signal mit einer Trapezfunktion integriert und das Verhältnis zwischen Vorwärts- und Rückwärtsspektrometer bestimmt. Multipliziert mit Gleichung (7.12) ergibt sich der Kreuzkalibrationsfaktor zu

$$x_c = 1,98_{-0,11}^{+0,12} . \quad (7.13)$$

## 7.7 Bestimmung der Rayleigh-Streuung und der Entmischung in Vorwärtsrichtung

Mit dem Kreuzkalibrierungsfaktor  $x_c$  wird in diesem Abschnitt die Rayleigh-Streuung in Vorwärtsrichtung nach Gleichung (7.1) berechnet, um daraus die prozentuale Entmischung von Kohlenstoff und Wasserstoff zu bestimmen. Für den Ausgleich des Polarisierungseinflusses der Röntgenstrahlung werden die Werte  $\epsilon^r = 0,3196$  und  $\epsilon^v = 0,9145$  aus Gleichung (3.6) verwendet. Die integrierte Intensität der elastischen Streuung  $I_{el}^r$  in Rückwärtsrichtung ist bereits aus Abschnitt 7.5 bekannt. Die dort beschriebene Methode kann für das Vorwärtsspektrometer nicht verwendet werden, da das inelastische Streusignal fast vollständig vom elastischen überlagert

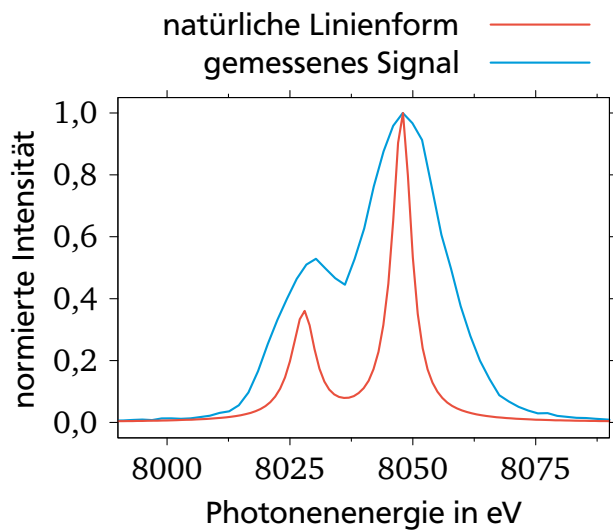
---

und eine Trennung der Streuteile nach Energie nicht möglich ist. Daher wird die inelastische Signalform mit Dichtefunktionaltheorie berechnet und vom Gesamtsignal subtrahiert, um so den elastischen Streuteil zu bestimmen.

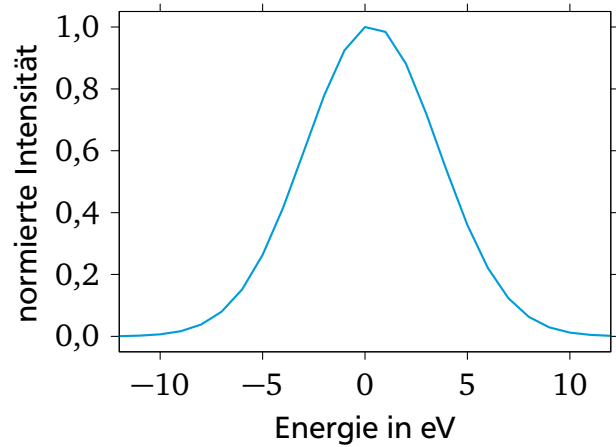
Bevor das theoretisch berechnete inelastische Streusignal zur Auswertung des gemessenen Signals verwendet werden kann, muss es mit der Detektorantwortfunktion des Spektrometers gefaltet werden. Diese wird aus den gemessenen Kupfer-K $\alpha$ -Emissionslinien der Kupfer-Nickel-Legierung bestimmt. Dazu wird das gemessene Signal mit der natürlichen Linienform [Hölzer *et al.* 1997] entfaltet (siehe Abbildung 7.17a). Die auf diese Weise ermittelte Detektorantwortfunktion ist in Abbildung 7.17b zu sehen. Anschließend wird die natürliche Linienform der Kupfer-K $\alpha$ -Linien sowie der Nickel-K $\beta$ -Linie mit der Detektorantwortfunktion gefaltet und mit dem gemessenen Spektrum verglichen (siehe Abbildung 7.18). Für die natürliche Linienform werden die relativen Intensitäten aus Tabelle 7.1 sowie die relativen Häufigkeiten der Elemente aus Tabelle 7.2 berücksichtigt. Das Ergebnis zeigt eine gute Übereinstimmung sowohl für die Kupfer-K $\alpha$ -Linien als auch für die nicht zur Entfaltung verwendete Nickel-K $\beta$ -Linie.

Da die Streuung der Röntgenstrahlung überwiegend an den Elektronen erfolgt, kann DFT (siehe Abschnitt 4.2.1) zur Berechnung des inelastischen Streusignals von Polystyrol mit einem Druck von etwa 150 GPa und einer Temperatur von etwa 5 000 K verwendet werden. Diese Rechnung wurde von Jan Vorberger (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf) für  $k = 1,21 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$  durchgeführt und ist in Abbildung 7.20 zu sehen. Aus der Röntgenbeugung ist bekannt, dass in der Probe Diamant entsteht [Kraus, Vorberger, Pak *et al.* 2017], welcher auch Einfluss auf das inelastische Signal hat. Diese feste Kristallstruktur kann mit DFT nicht nachgebildet werden und die Verwendung von TD-DFT (siehe Abschnitt 4.2.2) ist erforderlich. Das inelastische Streusignal für Diamant wurde von Kushal Ramakrishna (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf) für  $k = 1,28 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$  berechnet und ist ebenfalls in Abbildung 7.20 zu sehen. Da das Spektrometer bauartbedingt den Streubereich  $k = \left(1,23_{-0,18}^{+0,25}\right) \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$  abdeckt, ist der Unterschied im  $k$ -Wert zwischen den DFT- und TD-DFT-Rechnungen nicht entscheidend, zumal sich Lage und Pulsform über diesen Bereich nur geringfügig ändern und in erster Linie materialabhängig sind. Die gezeigten inelastischen Streuteile wurden für eine Eingangsenergie von exakt 8 180 eV berechnet. Daher müssen sie noch mit der Quellfunktion des Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers gefaltet werden, um die Energiebreite des Röntgenpulses abzubilden. Hierfür wird eine Gaußkurve mit einer Halbwertsbreite von 34 eV verwendet, die gefaltet mit der Detektorantwortfunktion sehr gut der gemessenen elastischen Streuung entspricht. In Abbildung 7.19b sind die berechneten inelastischen Streuteile für Polystyrol und Diamant zu sehen, nachdem sie mit der Detektorantwort- und der Quellfunktion gefaltet wurden. In dieser Form sind sie direkt mit den gemessenen Daten vergleichbar.

Die Probe besteht zum Messzeitpunkt aus einer Mischung von Polystyrol in verschiedenen komprimierten Zuständen sowie Diamant. Zusätzlich können noch Übergangsphasen der Entmischung oder der Diamantentstehung vorliegen. Die Bestimmung eines Mischprofils für die inelastische Streuung ist hier nahezu unmöglich und nur über einen iterativen Prozess umsetzbar. Die in Abbildung 7.19b gezeigten Profile sind sich nach der Faltung mit Detektorantwort- und Quellfunktion trotz der sehr unterschiedlichen Ausgangsstrukturen sehr ähnlich. Die Abweichungen in der Rayleigh-Streuung unter Verwendung der inelastischen Streuung für eine reine Polystyrolstruktur im Vergleich zu einer reinen Diamantstruktur beträgt weniger als 1,5 %. Da-

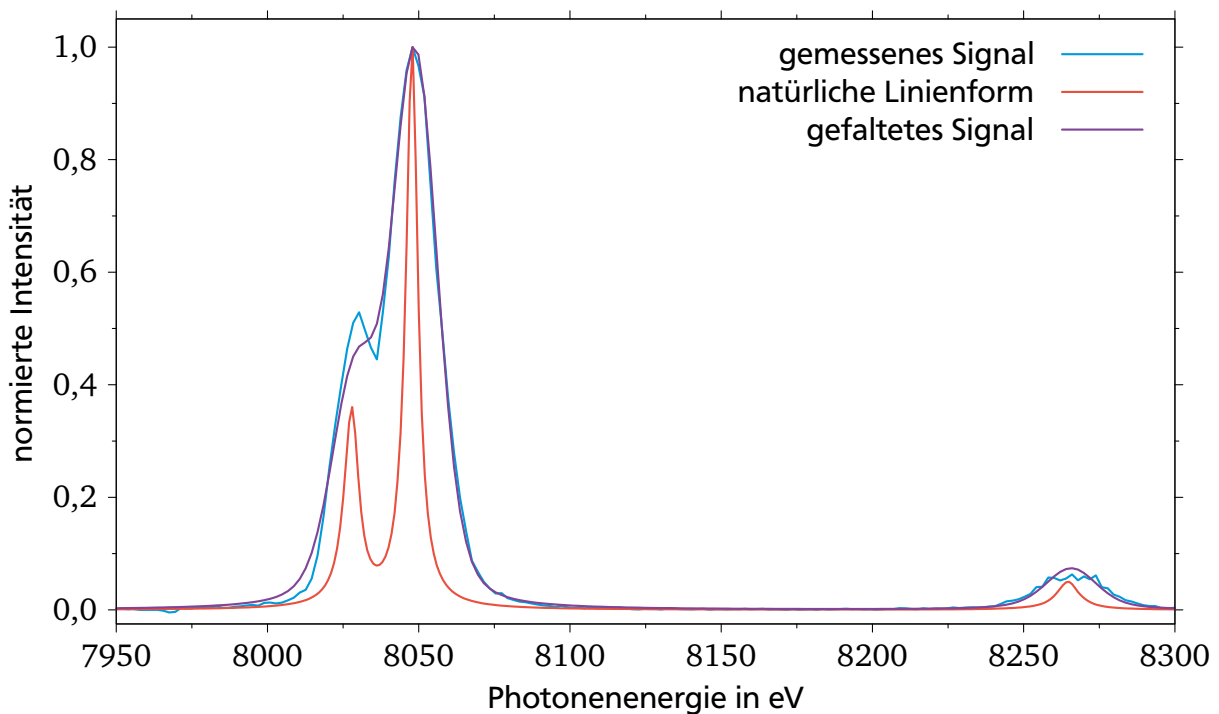


(a) Entfaltung der Kupfer-K $\alpha$ -Linien



(b) Detektorantwortfunktion

**Abbildung 7.17.:** Die Detektorantwortfunktion des Vorwärtsspektrometers wird durch die Entfaltung der gemessenen Kupfer-K $\alpha$ -Linien mit der natürlichen Linienform in (a) durchgeführt und ist in (b) zu sehen



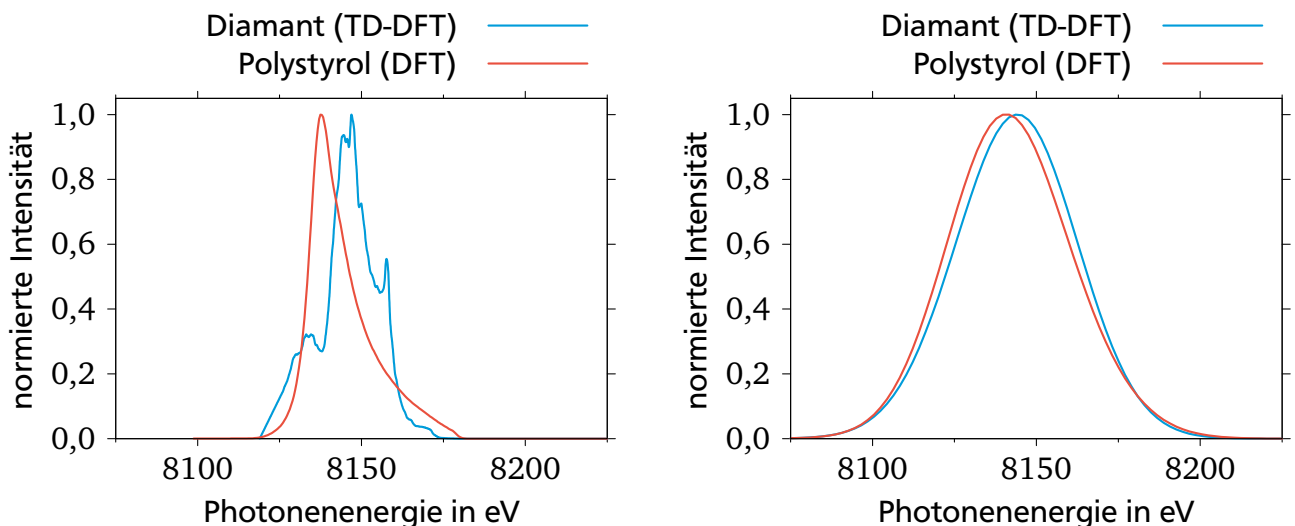
**Abbildung 7.18.:** Die Faltung der erwarteten Intensitätsverteilung zwischen den Kupfer-K $\alpha$ -Linien und der Nickel-K $\beta$ -Linie mit der Detektorantwortfunktion aus Abbildung 7.18 zeigt eine gute Übereinstimmung mit dem gemessenen Signal

her wird darauf verzichtet, ein Mischprofil verschiedener Materiezustände zu verwenden, und stattdessen das mit TD-DFT berechnete Diamantsignal verwendet.

Der Anteil der elastischen und inelastischen Streuung in den gemessenen Spektren in Vorwärtsrichtung wird durch einen Fit bestimmt (siehe Abbildung 7.20a). Für den inelastischen Streuanteil wird das mit TD-DFT berechnete Diamantsignal verwendet, das nur in der Intensität skaliert wird. Der elastische Streuanteil wird mit einer Gaußkurve modelliert. Anschließend wird vom gemessenen Signal das durch den Fit skalierte inelastische Signal subtrahiert, sodass nur noch das elastische Streusignal übrig bleibt. Dieses wird mit einer Trapezfunktion integriert, um  $I_{el}^V$  zu erhalten. Die Integrationsgrenzen aus dem reduzierten Spektrum werden analog zum Rückwärtsspektrometer in Abschnitt 7.5 bestimmt.

Mit Gleichung (7.1) kann nun die Rayleigh-Streuung in Vorwärtsrichtung berechnet werden. Der Einfluss der Polarisation wird mit Gleichung (3.6) berechnet und es werden die Werte  $\epsilon^r = 0,3196$  und  $\epsilon^v = 0,9145$  verwendet. Der Kreuzkalibrierungsfaktor  $x_c$  wurde in Abschnitt 7.6 bestimmt. Die integrierte Intensität des elastischen Streuanteils  $I_{el}^r$  und die Rayleigh-Streuung  $W_R^r(k)$  des Rückwärtsspektrometers werden gemäß der in Abschnitt 7.5 vorgestellten Methode ermittelt. Die Bestimmung von  $I_{el}^v$  in Vorwärtsrichtung wurde in diesem Abschnitt beschrieben. Die Ergebnisse sind in Abbildung 7.20b gezeigt. Für die beiden mit dem Schockausbruch überlagerten Datensätze wird das Streusignal nicht um Streuanteile von ungestörtem Material reduziert.

In Abschnitt 7.5 wurde die Möglichkeit diskutiert, dass Röntgenstrahlung an der (040) Ebene von Diamant gebeugt und dies zu einem zusätzlichen Beitrag zum elastischen Streusignal führte. Da die Rayleigh-Streuung in Vorwärtsrichtung direkt proportional zu der in Rückwärtsrichtung



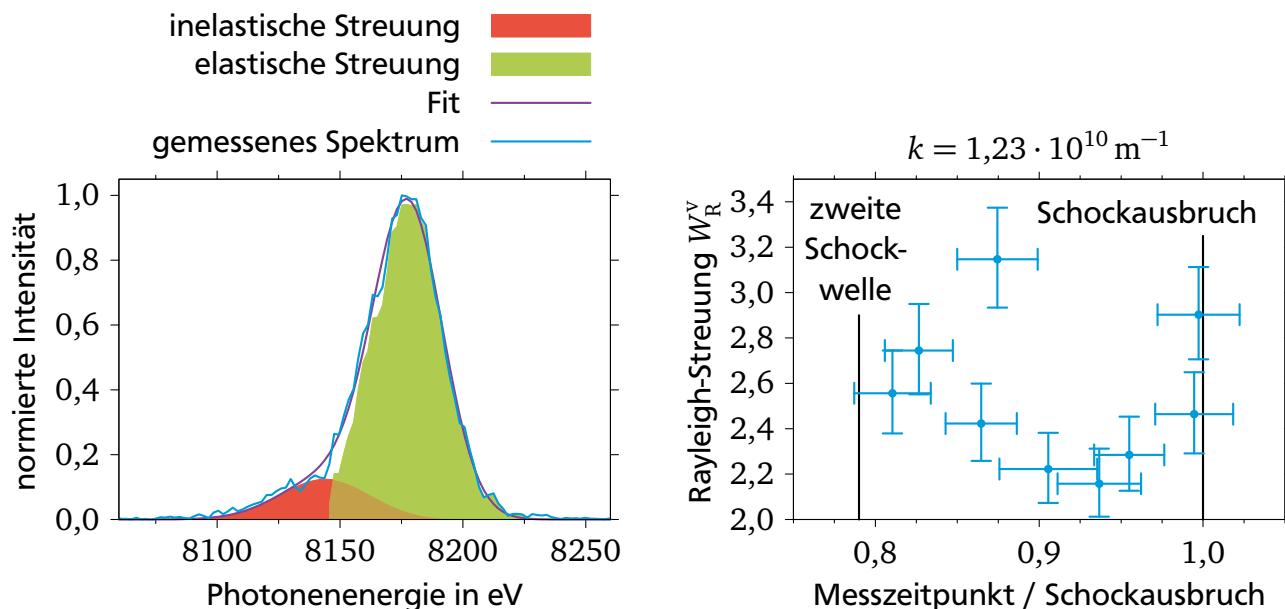
(a) Mit DFT und TD-DFT berechnete inelastische Streuanteile für eine Eingangsenergie von 8 180 eV (b) Inelastische Streuanteile aus (a) gefaltet mit Detektorantwort- und Quellfunktion

**Abbildung 7.19.:** In (a) sind die inelastischen Streuanteile von Polystyrol (mit DFT berechnet für  $k = 1,21 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ) und Diamant (mit TD-DFT berechnet für  $k = 1,28 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ) zu sehen. Diese sind in (b) mit der Detektorantwortfunktion des Vorwärtsspektrometers aus Abbildung 7.17b sowie einer Gaußkurve mit einer Halbwertsbreite von 34 eV als Quellfunktion gefaltet.

ist, sind die hier vorgestellten Ergebnisse ebenso nur als obere Grenze zu betrachten und können um bis zu 15 % niedriger liegen.

Um aus der Rayleigh-Streuung in Abbildung 7.20b den Anteil der Entmischung von Polystyrol in Kohlenstoff und Wasserstoff zu berechnen, wird auf die DFT-MD-Simulationen in Abbildung 4.2 zurückgegriffen. Bei einem Druck von 147 GPa und einer Temperatur von 5 000 K wird für einen gemischten Zustand des Polystyrols eine Rayleigh-Streuung von 2,70 erwartet (0 % entmischt), im Falle einer vollständigen Entmischung in reinen Kohlenstoff auf der einen Seite und reinen Wasserstoff auf der anderen ein Wert von 0,77 (100 % entmischt). Die Entmischung wird linear zwischen diesen beiden Werten anhand der gemessenen Rayleigh-Streuung bestimmt. Diese ist in Abbildung 7.21 zu sehen. Nicht gezeigt sind Datensätze, die aufgrund einer zu hohen Rayleigh-Streuung auch innerhalb der Messunsicherheiten eine negative Entmischung ergeben.

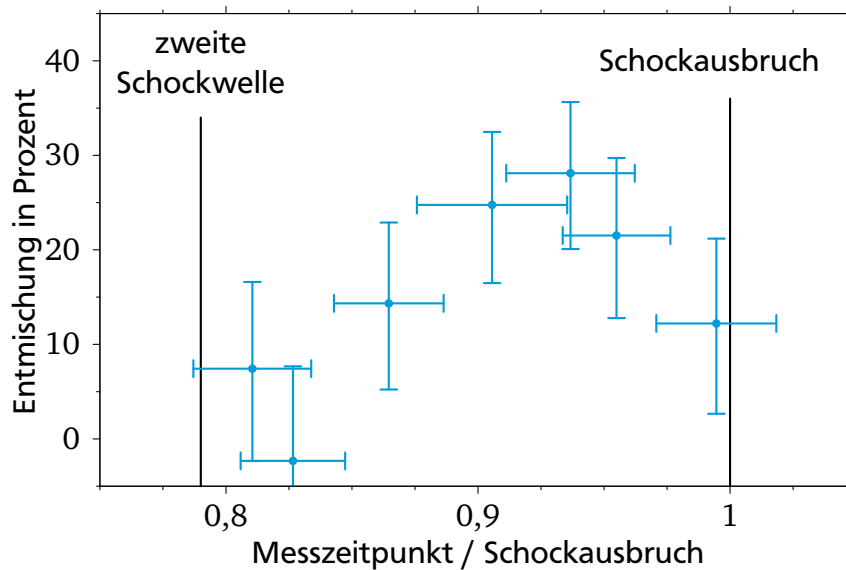
Ausgehend vom Beginn der zweiten Schockwelle zeigt Abbildung 7.21 einen näherungsweise linearen Anstieg der Entmischung. Erst diese zweite Kompressionsstufe, die sich vereinfacht linear ausbreitet, ist in der Lage, eine entmischte Phase zu erzeugen. Im Experiment wird eine maximale Entmischung von  $(28,1^{+7,5}_{-8,0})\%$  des gesamten Probenmaterials zu einem Zeitpunkt nahe des Schockausbruchs erreicht. Die erste Schockwelle ist zu diesem Zeitpunkt – unter der Annahme einer linearen Ausbreitung – bereits durch  $93,7\% \pm 2,6\%$  der Probe propagiert. Der Abfall der Entmischung zum Ende des Datensatzes ist physikalisch nicht zu begründen. Wahrscheinlicher ist hier eine Überlagerung mit dem Schockausbruch. Die beginnende Expansion



(a) Fit zur Bestimmung des elastischen und inelastischen Streuanteils im Vorwärtsspektrometer

(b) Berechnete Rayleigh-Streuung in Vorwärtsrichtung

**Abbildung 7.20.:** Der zur Bestimmung des elastischen Signals  $I_{el}^V$  verwendete Fit ist in (a) gezeigt. Das inelastische Signal wird mittels TD-DFT für Diamant bestimmt und vom gemessenen Signal subtrahiert, um den elastischen Anteil zu erhalten. Die Ergebnisse der Rayleigh-Streuung in Vorwärtsrichtung sind in (b) gezeigt.



**Abbildung 7.21.:** Die gemessene Rayleigh-Streuung (siehe Abbildung 7.20b) kann mithilfe der DFT-MD-Simulationen aus Abbildung 4.2 in eine Entmischung umgerechnet werden. Dabei gibt die Entmischung an, wie viel Prozent des ursprünglichen Polystyrols sich in Kohlenstoff und Wasserstoff entmischen haben.

und Dekompression verfälscht das Messergebnis, da die Röntgen-Thomson-Streuung sehr sensitiv auf die dadurch bedingte Änderung der mikroskopischen Struktur ist.

In Abschnitt 6.3 konnte bereits beobachtet werden, dass in der Röntgenbeugung der Nachweis von Diamant erst mit dem Beginn der zweiten Schockwelle möglich wird. Mit dem Anwachsen der Diamant-Bragg-Peaks steigt auch die Entmischung in der Probe. Für die Entstehung von Diamant ist eine kohlenstoffreiche Phase mit wenig bis keinem Wasserstoff notwendig, sodass dieses Verhalten der Erwartung entspricht.

Aufgrund des möglichen Beugungssignals der (040) Diamantebene im Rückwärtsspektrometer ist die zur Bestimmung der Entmischung verwendete Rayleigh-Streuung eine obere Grenze und kann bis zu 15 % niedriger liegen. Da die Entmischung mit der Rayleigh-Streuung berechnet wird, sind die in Abbildung 7.21 gezeigten Werte eine untere Grenze für die tatsächlich erreichte Entmischung. Die Bestimmung einer oberen Grenze skaliert mit der Rayleigh-Streuung  $W_R^V$  des Vorwärtsspektrometers und folgt der Relation  $7,77\% \cdot W_R^V$ . Diese ist additiv zu den hier bestimmten Ergebnissen zu betrachten.





---

## 8 Ergebnisse und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde erstmals die Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie gemessen. Dafür wurde ein Experiment am *SLAC National Accelerator Laboratory* in Kalifornien (USA) durchgeführt. Ein Lasersystem erzeugte durch eine stufenförmige Laserpulsform zwei zeitlich versetzte Schockwellen. Das auf diese Weise komprimierte Polystyrol erreichte einen Druck von  $(150 \pm 15)$  GPa und eine Temperatur von  $(5\,000 \pm 500)$  K. Die Massendichte betrug  $(3,0 \pm 0,1)$  g/cm<sup>3</sup>.

In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse zusammengefasst. Anschließend werden einige mögliche Verbesserungen des verwendeten experimentellen Aufbaus vorgestellt. Zum Schluss wird noch ein Ausblick auf zukünftige Anwendungsmöglichkeiten gegeben.

---

### 8.1 Zusammenfassung der Ergebnisse

---

Als Diagnostik wurde Röntgenstrahlung mit einer Energie von 8 180 eV verwendet, die mit dem Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers *Linac Coherent Light Source* erzeugt wurden. Mit einem Flächendetektor wurde die Röntgenbeugung aufgenommen. Mit ihr konnte die Entstehung von Diamant nachgewiesen werden. Mit dem zeitlichen Verlauf der Debye-Scherrer-Ringe des entstandenen Diamants sowie des gemessenen Schockausbruchs auf der Probenrückseite konnte die Schockwellendynamik der mit HELIOS durchgeführten eindimensionalen hydrodynamischen Simulationen bestätigt werden [Kraus, Vorberger, Pak *et al.* 2017]. Dadurch ließen sich die thermodynamischen Größen Druck, Temperatur und Dichte des Polystyrols bestimmen. Weiterhin zeigte sich in den Beugungsprofilen bei kleinen Beugungswinkeln ein hohes Signal, das von ungestörtem und zum Messzeitpunkt noch in der Probe vorliegenden Polystyrol stammte. Dieses Signal verringerte sich kontinuierlich bis zum Schockausbruch. Daher wurde mit einem Fit aus den Beugungsprofilen der ungestörte Materialanteil zum Messzeitpunkt bestimmt. Solange die Messung vor dem Schockausbruch stattfand, nahm der ermittelte ungestörte Materialanteil erwartungsgemäß linear ab.

Zur eigentlichen Messung der Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie wurden zwei Kristallspektrometer verwendet. DFT-MD-Simulationen sagen für kleine Streuvektoren vorher, dass die Rayleigh-Streuung für einen entmischten Zustand deutlich niedriger ausfällt als für einen gemischten. Daher befand sich ein Spektrometer in Vorwärtsrichtung ( $\theta = 17^\circ$ ,  $k = 1,23 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ). Die Bestimmung eines absoluten Werts der Rayleigh-Streuung ist hier nicht direkt möglich. Daher wurde die elastische Streuung des Vorwärtsspektrometers auf die des zweiten Spektrometers normiert, welches in Rückwärtsrichtung ( $\theta = 123^\circ$ ,  $k = 7,30 \text{ m}^{-1}$ ) aufgestellt war. Unter diesem Streuwinkel sind elastisch und inelastisch gestreute Röntgenstrahlung auf dem Detektor getrennt auflösbar und ein absoluter Wert der Rayleigh-Streuung kann aus ihrem Verhältnis bestimmt werden.

---

Für beide Spektrometer wurde eine energieabhängige Korrektur des Streusignals vorgenommen. Diese beinhaltete die Absorption der Röntgenstrahlung, die Quanteneffizienz des Detektors sowie Einflüsse, die durch die Geometrie der Spektrometer entstanden. Zusätzlich wurden die Streuspektren um den aus den Beugungsprofilen bestimmten Anteil an ungestörtem Material reduziert.

In Rückwärtsrichtung ergeben die DFT-MD-Simulationen eine Rayleigh-Streuung von 0,99 für einen gemischten und 0,92 für einen entmischten Zustand. Die experimentellen Ergebnisse des Rückwärtsspektrometers unterliegen Schwankungen zwischen diesen Werten, vereinzelte Messungen erreichten auch höhere Werten von bis zu  $1,05 \pm 0,01$ . Zusätzlich ist eine ansteigende Tendenz in den Ergebnissen zu erkennen. Messungen, die zeitlich nach dem Schockausbruch stattfanden, wurden aufgrund der Expansion und Dekompression nicht berücksichtigt. Die Schwankungen und der Anstieg der gemessenen Werte sowie die um bis zu 15% höheren Ergebnisse sind wahrscheinlich auf die Röntgenbeugung an der (040) Ebene von Diamant zurückzuführen. Für die im Experiment ermittelte Diamantdichte von  $(4,14 \pm 0,06) \text{ g/cm}^3$  [Kraus, Vorberger, Pak *et al.* 2017] liegt das Peakmaximum bei einem Beugungswinkel von  $2\theta = (127,6 \pm 1,1)^\circ$ . Durch die Linienbreite, die aufgrund der Mosaizität des erzeugten Diamants noch vergrößert ist, überlagert sich der Bragg-Peak mit dem Akzeptanzwinkel des Spektrometers von  $119,40^\circ$  bis  $126,62^\circ$ . Dadurch ist eine Erhöhung der Rayleigh-Streuung wahrscheinlich und die Ergebnisse müssen als obere Grenze betrachtet werden. Die ansteigende Tendenz in den Daten kann mit der anwachsenden Diamantmenge begründet werden, die zu ausgeprägteren Beugungslinien führt.

In Vorwärtsrichtung wurde die inelastische Streuung fast vollständig von der elastischen überlagert. Um hier den reinen elastischen Streuanteil zu bestimmen, wurde mit TD-DFT die Form des inelastischen Signals berechnet und vom Messsignal subtrahiert. Weiterhin wurde eine Kreuzkalibration beider Spektrometer durchgeführt, um das elastische Signal des Vorwärtsspektrometers auf das des Rückwärtsspektrometers normieren zu können. Da die Rayleigh-Streuungen beider Spektrometer mit dieser Methode direkt proportional sind, können die Ergebnisse des Vorwärtsspektrometers ebenfalls nur als obere Grenze betrachtet werden. Die von den DFT-MD-Simulationen berechneten Werte der Rayleigh-Streuung betragen 2,70 für einen gemischten und 0,77 für einen entmischten Zustand. Diese Werte wurden linear in eine Entmischung umgerechnet. Die Ergebnisse zeigen einen linear ansteigenden Verlauf ab dem Zeitpunkt, ab dem sich die zweite Schockwelle in der Probe bildete bis kurz vor dem Schockausbruch. Die höchste experimentell gemessene Entmischung beträgt  $(28,1^{+7,5}_{-8,0})\%$  zu einem Zeitpunkt, an dem die erste Schockwelle bereits durch  $93,7\% \pm 2,6\%$  der Probe propagiert war – unter der Annahme einer linearen Schockwellenausbreitung. Aufgrund des möglichen Beugungssignals in Rückwärtsrichtung sind die Werte der Entmischung nur eine untere Grenze und der reale Wert hängt von der Rayleigh-Streuung  $W_R^V$  in Vorwärtsrichtung ab. Der zusätzliche Anteil des Probenmaterials, der entmischt sein kann, folgt der Relation  $7,77\% \cdot W_R^V$  und kann bis zu 25% betragen.

---

## 8.2 Verbesserungsmöglichkeiten zukünftiger Experimente

---

Im Experiment wurde eine Kupfer-Nickel-Legierung mit einem atomaren Verhältnis von etwa 2:1 verwendet, um beide Spektrometer zu kalibrieren. Diese Daten wurden auch zur Kreuzkalibrierung sowie zur Bestimmung der Detektorantwortfunktion in Vorwärtsrichtung verwendet. Auf-

---

grund einer ungünstigen Positionierung des Rückwärtsspektrometers während der Kalibrierung konnte die gemessene Emission der Kupfer-K $\alpha$ -Linien zwar zur Energiekalibrierung verwendet werden, war aber durch den Verlust von Intensität für alle weiteren Schritte nicht nutzbar. Stattdessen musste die Nickel-K $\beta$ -Linie verwendet werden, die aufgrund des geringeren Nickel-Gehalts im Vergleich zum Kupfer schwächer war. Zusätzlich ist auch die Emission der K $\beta$ -Linie niedriger als die der K $\alpha$ -Linien. Für zukünftige Experimente ist hier von der Verwendung einer Legierung abzuraten. Ein besseres Ergebnis ist mit der Verwendung von separaten Kupfer- sowie Nickel-Folien zu erwarten.

In Vorwärtsrichtung lag die gemessene Intensität nahe der Sättigungsschwelle des Detektors und überschritt diese für ungestörte Proben sogar. Dadurch ist eine Subtraktion des ungestörten Probenanteils unmöglich. In diesem Experiment konnte dieses Problem umgangen werden, da ein Teil des Signals aus der Fokusebene des Spektrometers heraus ausgeschmiert war. Die Nutzung dieses ausgeschmierten Schweißs ermöglichte eine Reduzierung um Streuanteile von ungestörtem Material. Der Schweiß hätte sich aufgrund der von-Hámos-Geometrie und der Mosaikfokussierung nicht bilden dürfen und es ist zu vermuten, dass er als Sättigungseffekt des Detektors auftrat. Um die Intensität am Vorwärtsspektrometer zu reduzieren, gibt es mehrere Möglichkeiten. Durch die Verwendung eines dünneren HAPG-Kristalls wird weniger Röntgenstrahlung zum Detektor reflektiert. Zusätzlich können dickere Filterfolien verwendet werden.

Die in dieser Arbeit gemessene Rayleigh-Streuung ist für beide Spektrometer eine obere Grenze, die sich zu einer unteren Grenze in der Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie umrechnen lässt. Ursache hierfür ist die Überlagerung des Akzeptanzwinkels des Rückwärtsspektrometers mit der Röntgenbeugung an der (040) Diamantebene. Um dieses Problem zukünftig umgehen zu können, muss das Rückwärtsspektrometer unter einem Streuwinkel positioniert werden, der sich mit keinem Bragg-Peak überlagert. Für diese Überlegung müssen alle Materialien, die mit der Röntgenstrahlung interagieren können, auf die Lage ihrer Bragg-Peaks untersucht werden. Dies umschließt neben dem Ausgangsmaterial und möglichen entstehenden Kristallstrukturen auch die Materialien der verwendeten Filterfolien mit ein. Hier kann auch die Wahl einer anderen Röntgenenergie eine Option sein. Ist eine Bragg-Peak-freie Positionierung nicht möglich, so muss die Intensität der betreffenden Bragg-Peaks gemessen werden, etwa durch einen weiteren Flächendetektor. Über eine Kreuzkalibration kann das Streusignal in der Auswertung entsprechend angepasst werden.

---

### 8.3 Ausblick

---

Die durch DFT-MD-Simulationen vorhergesagte Sensitivität der Röntgen-Thomson-Streuung auf die Entmischung von Elementen in warmer dichter Materie konnte im Experiment nachgewiesen werden. Dazu wurden die Streudaten eines Experiments verwendet, in dem bereits aus den Beugungsprofilen der Röntgenstrahlung die Entstehung von Diamant bekannt war. Aus der Form der Bragg-Peaks lässt sich mit der Debye-Scherrer-Formel die Menge von entstandenem Diamant berechnen. Da Diamant die kristalline Form von entmischtem Kohlenstoff und Wasserstoff darstellt, können die Ergebnisse beider Methoden miteinander verglichen und gegenseitig als Maßstab verwendet werden.

Bei Eisplaneten wie Uranus und Neptun, die aus einer signifikanten Menge Methan bestehen, wird angenommen, dass das Methan in tiefere Schichten absinkt und sich dabei durch die stei-

---

gende thermische Energie des Planeten der Wasserstoff langsam ablöst. Das verwendete Polystyrol, welches ein gleiches atomares Verhältnis von Kohlenstoff und Wasserstoff aufweist, wurde gewählt, um die letzte Stufe dieses Prozesses zu simulieren. Der experimentelle Nachweis der Entmischung (und der Entstehung von Diamant) kann nun zur Verifizierung oder Anpassung der Planetenmodelle verwendet werden.

Die Bestimmung der Entmischung erfolgte durch eine lineare Skalierung der Rayleigh-Streuung zwischen den beiden Extremzuständen der homogenen Mischung und der vollständigen Entmischung. Zusätzliche DFT-MD-Simulationen, die verschiedenen Stufen der Entmischung entsprechen, sind hier notwendig, um den linearen Verlauf zu bestätigen oder eine nichtlineare Skalierung zu entwickeln.

Die in dieser Arbeit vorgestellte Methode zur Messung der Entmischung kann in weiteren Experimenten angewendet und so weitere verschiedene elementare Zusammensetzungen untersucht werden. Hierzu sind für jedes Experiment individuelle DFT-MD-Simulationen notwendig, die auf die verwendeten Materialien und die erreichten Materiezustände abgestimmt sind. Prinzipiell ist eine Entmischung auch mit der Röntgenbeugung messbar, sofern einatomige kristalline Strukturen entstehen. Die Röntgen-Thomson-Streuung hat jedoch den Vorteil, dass sie diese kristalline Struktur benötigt. Sie kann daher auch für Gasgemische beispielsweise aus Helium und Wasserstoff eingesetzt werden, um die thermodynamischen Parameter der Grenzschicht zwischen beiden Elementen zu bestimmen, die für Gasplaneten wichtig ist.

---

# A Anhang

---

## A.1 Modellwahl für MCSS

---

In dieser Arbeit wurden Rechnungen mit MCSS (siehe Abschnitt 4.3) mit der folgenden Modellwahl durchgeführt [Chapman 2017].

```
1 $SETUP
2   mode_of_operation = "XRTS_SPECTRAL"
3   number_of_ions = 4
4 $END
5 $FILE
6   output_file_name = "out/mcss_output.csv"
7   status_file_name = "stat/mcss_status.txt"
8 $END
9 $PLASMA
10  use_mean_charge_states = .TRUE.
11  atomic_number = 6.00E+0, 6.00E+0, 1.00E+0, 1.00E+0
12  ionization_state = 0.00E+0, 1.00E+0, 0.00E+0, 1.00E+0
13  density_fraction = 4.50E-1, 5.00E-2, 4.50E-1, 5.00E-2
14  atomic_mass = -1.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0
15  mass_density = 3.00E+0
16  elec_temperature = 3.50E-1
17  ion_temperature = 3.50E-1
18  temperature = 3.50E-1
19  elec_flow_along_k = 0.000E+0
20  ion_flow_along_k = 0.000E+0
21  bulk_flow_along_k = 2.000E+0
22 $END
23 $PROBE
24  probe_energy = 8.18000E+3
25  probe_wavelength = -1.00000E+0
26  probe_intensity = -1.00E+0
27  source_func_shape = "GAUSSIAN"
28  source_func_fwhm_ev = 3.4000E+1
29  source_func_fwhm_nm = -1.00000E+0
30  use_source_func_data = .FALSE.
31  source_func_file_name = "default"
32  calculate_intensity_thresholds = .FALSE.
33 $END
34 $DETECTOR
```

```

35 scattering_angle = 1.23E+2
36 number_of_points = 750
37 min_scatter_energy = 7.000E+3
38 max_scatter_energy = 8.500E+3
39 min_scatter_wavelength = -1.000E+0
40 max_scatter_wavelength = -1.000E+0
41 number_of_angles = 1
42 min_scatter_angle = -1.00E+0
43 max_scatter_angle = -1.00E+0
44 angle_dist_fwhm = -1.00E+0
45 angle_dist_power = 2.00E+0
46 use_angle_dist_data = .FALSE.
47 angle_dist_file_name = "default"
48 include_background = .FALSE.
49 $END
50 $MODELS
51 ee_pol_func_model = "BORN_MERMIN"
52 user_defined_vei = (-1.00E+0, 0.00E+0)
53 ee_lfc_model = "STATIC_INTERP"
54 user_defined_Gee = ( 0.00E+0, 0.00E+0)
55 bf_dsf_model = "IMPULSE_SCHUMACHER"
56 calculate_rk_factor = .TRUE.
57 user_defined_rk = 1.00E+0
58 ipd_model = "STEWART_PYATT"
59 user_defined_ipd = -1.00E+0
60 use_ideal_wr = .FALSE.
61 ideal_peak_ratio = -1.00E+0
62 calibration_energy = -1.000E+0
63 user_defined_wr = 0.92
64 ii_potential_model = "DEBYE_HUCKEL"
65 srr_sigma_parameter = -1.00E+4, -1.00E+4, -1.00E+4, -1.00E+4
66 srr_core_power = -1.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0
67 ion_core_radius = -1.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0
68 csd_gamma_parameter = -1.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0
69 csd_core_charge = -1.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0
70 screen_cloud_model = "FINITE_WAVELENGTH"
71 ei_potential_model = "EFFECTIVE_COULOMB"
72 gaunt_factor_model = "NONE"
73 user_defined_gff = -1.00E+0
74 sec_core_power = 6.00E+0, 6.00E+0, -1.00E+0, -1.00E+0
75 $END

```

## A.2 Tabellierte Ergebnisse

In Tabelle A.1 sind zu den verwendeten Datensätzen der Messzeitpunkt  $t_p$ , der gemessene Schockausbruch  $t_s$  sowie die Laserintensitäten  $I_1$  und  $I_2$  der ersten und zweiten Kompressionsstufe aufgelistet. Der Schockausbruch konnte nicht bei allen Datensätzen gemessen werden. Tabelle A.2 enthält die aus den Messdaten bestimmten Ergebnisse. Dies sind der verbliebene ungestörte Materialanteil  $p_{\text{ungestört}}$ , die Rayleigh-Streuungen  $W_R^r$  und  $W_R^v$  in Rückwärts- und Vorwärtsrichtung sowie die Entmischung  $p_{\text{entmischt}}$ . Fehlende Werte in beiden Tabellen (—) konnten nicht gemessen werden oder sind aufgrund einer Messung nach dem Schockausbruch ( $t_p > 8$  ns) physikalisch nicht sinnvoll und wurden nicht bestimmt.

#	$t_p$ ns	$t_s$ ns	$I_1$ $10^{12}$ W/cm <sup>2</sup>	$I_2$ $10^{12}$ W/cm <sup>2</sup>
119	7,1	7,58 ± 0,13	2,55	7,77
128	7,1	7,44 ± 0,06	2,51	7,81
132	6,6	7,99 ± 0,09	2,16	7,65
133	6,8	7,87 ± 0,10	2,40	7,36
139	6,2	7,65 ± 0,12	2,76	7,77
140	7,0	7,73 ± 0,19	2,81	7,98
141	7,4	7,42 ± 0,11	2,36	7,65
142	7,8	7,22 ± 0,13	2,77	7,83
143	8,2	7,14 ± 0,22	2,90	8,27
144	8,6	7,09 ± 0,21	2,76	7,88
173	9,4	—	2,44	7,66
174	14,4	—	2,36	7,74
208	7,7	—	2,82	7,14
210	7,7	7,44 ± 0,10	3,03	7,25
211	7,3	7,34 ± 0,09	2,91	7,03
212	8,3	—	2,87	7,36
214	10,3	—	2,30	6,38
215	11,3	6,94 ± 0,11	2,95	6,88
216	14,3	—	2,48	7,03
217	12,8	7,43 ± 0,10	2,69	7,05
227	7,5	—	2,76	6,78
233	7,7	—	2,82	7,75

**Tabelle A.1.:**  $t_p$  ist der Messzeitpunkt mit einer Unsicherheit von 0,15 ns,  $t_s$  der gemessene Schockausbruch,  $I_1$  die Laserintensität der ersten und  $I_2$  die Laserintensität der zweiten Kompressionsstufe

#	$p_{\text{ungestört}}$ %	$W_{\text{R}}^{\text{r}}$	$W_{\text{R}}^{\text{v}}$	$p_{\text{entmischt}}$ %
119	$8,78 \pm 0,08$	$0,95 \pm 0,01$	$2,16^{+0,16}_{-0,15}$	$28,12^{+7,51}_{-8,04}$
128	$5,56 \pm 0,05$	$0,91 \pm 0,01$	$2,28^{+0,17}_{-0,16}$	$21,52^{+8,20}_{-8,74}$
132	$17,16 \pm 0,04$	$0,89 \pm 0,01$	$2,74^{+0,21}_{-0,19}$	$-2,32^{10,00}_{-10,64}$
133	$23,03 \pm 0,07$	$1,00 \pm 0,01$	$2,42^{+0,18}_{-0,16}$	$14,35^{+8,54}_{-9,12}$
139	$22,66 \pm 0,06$	$0,99 \pm 0,01$	$2,56^{+0,19}_{-0,18}$	$7,44^{+9,18}_{-9,78}$
140	$9,34 \pm 0,07$	$0,92 \pm 0,01$	$2,22^{+0,16}_{-0,15}$	$24,75^{+7,73}_{-8,27}$
141	—	$0,96 \pm 0,01$	$2,90^{+0,21}_{-0,20}$	—
142	—	$1,05 \pm 0,01$	$3,39^{+0,25}_{-0,23}$	—
143	—	—	—	—
144	—	—	—	—
173	—	—	—	—
174	—	—	—	—
208	—	$0,98 \pm 0,01$	$3,38^{+0,25}_{-0,23}$	—
210	—	$1,00 \pm 0,01$	$2,99^{+0,22}_{-0,20}$	—
211	—	$0,93 \pm 0,01$	$2,46^{+0,18}_{-0,17}$	$12,21^{+8,98}_{-9,55}$
212	—	—	—	—
214	—	—	—	—
215	—	—	—	—
216	—	—	—	—
217	—	—	—	—
227	—	$1,02 \pm 0,02$	$2,63^{+0,20}_{-0,19}$	$3,63^{+9,73}_{-10,33}$
233	—	$1,00 \pm 0,01$	$3,34^{+0,24}_{-0,22}$	—

**Tabelle A.2.:**  $p_{\text{ungestört}}$  ist der verbliebene ungestörte Probenanteil,  $W_{\text{R}}^{\text{r}}$  die Rayleigh-Streuung in Rückwärtsrichtung,  $W_{\text{R}}^{\text{v}}$  die Rayleigh-Streuung in Vorwärtsrichtung und  $p_{\text{entmischt}}$  die prozentuale Entmischung



---

# Literaturverzeichnis

- Ahmed, S., A. Aitani, F. Rahman, A. Al-Dawood und F. Al-Muhaish (2009): „Decomposition of hydrocarbons to hydrogen and carbon“, *Applied Catalysis A: General* **359** (1), 1–24 ISSN: 0926-860X,  
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2009.02.038>
- Antonelli, L., S. Atzeni, A. Schiavi, S. D. Baton, E. Brambrink, M. Koenig, C. Rousseaux, M. Richetta, D. Batani, P. Forestier-Colleoni, E. Le Bel, Y. Maheut, T. Nguyen-Bui, X. Ribeyre und J. Trela (2017): „Laser-driven shock waves studied by x-ray radiography“, *Physical Review E* **95** (6), 063205  
DOI: [10.1103/PhysRevE.95.063205](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.95.063205)
- Baines, K. H., M. E. Mickelson, L. E. Larson und D. W. Ferguson (1995): „The Abundances of Methane and Ortho/Para Hydrogen on Uranus and Neptune: Implications of New Laboratory 4-0 H<sub>2</sub> Quadrupole Line Parameters“, *Icarus* **114** (2), 328–340  
DOI: [10.1006/icar.1995.1065](https://doi.org/10.1006/icar.1995.1065)
- Barker, L. M. und R. E. Hollenbach (1972): „Laser interferometer for measuring high velocities of any reflecting surface“, *Journal of Applied Physics* **43** (11), 4669–4675  
DOI: [10.1063/1.1660986](https://doi.org/10.1063/1.1660986)
- Barker, L. M. und K. W. Schuler (1974): „Correction to the velocity-per-fringe relationship for the VISAR interferometer“, *Journal of Applied Physics* **45** (8), 3692–3693  
DOI: [10.1063/1.1663841](https://doi.org/10.1063/1.1663841)
- Batani, D., F. Strati, H. Stabile, M. Tomasini, G. Lucchini, A. Ravasio, M. Koenig, A. Benuzzi-Mounaix, H. Nishimura, Y. Ochi, J. Ullschmied, J. Skala, B. Kralikova, M. Pfeifer, C. Kadlec, T. Mocek, A. Präg, T. Hall, P. Milani, E. Barborini und P. Piseri (2004): „Hugoniot Data for Carbon at Megabar Pressures“, *Physical Review Letters* **92** (6), 065503  
DOI: [10.1103/PhysRevLett.92.065503](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.92.065503)
- Benuzzi-Mounaix, A., M. Koenig, G. Huser, B. Faral, D. Batani, E. Henry, M. Tomasini, B. Marchet, T. A. Hall, M. Boustie, T. De Rességuier, M. Hallouin, F. Guyot, D. Andrault und T. Charpin (2002): „Absolute equation of state measurements of iron using laser driven shocks“, *Physics of Plasmas* **9** (6), 2466–2469  
DOI: [10.1063/1.1478557](https://doi.org/10.1063/1.1478557)
- Blaj, G., P. Caragiulo, G. Carini, S. Carron, A. Dragone, D. Freytag, G. Haller, P. Hart, J. Hasi, R. Herbst, S. Herrmann, C. Kenney, B. Markovic, K. Nishimura, S. Osier, J. Pines, B. Reese, J. Segal, A. Tomada und M. Weaver (2015): „X-ray detectors at the Linac Coherent Light Source“, *Journal of Synchrotron Radiation* **22** (3), 577–583  
DOI: [10.1107/S1600577515005317](https://doi.org/10.1107/S1600577515005317)

- 
- Bloch, B. J. und L. B. Mendelsohn (1975): „Comparison of methods for calculating atomic shielding factors“, *Physical Review A* **12** (4), 1197–1202  
DOI: 10.1103/PhysRevA.12.1197
- Blöchl, P. E. (1994): „Projector augmented-wave method“, *Physical Review B* **50** (24), 17953–17979  
DOI: 10.1103/PhysRevB.50.17953
- Bohm, D. und D. Pines (1951): „A Collective Description of Electron Interactions. I. Magnetic Interactions“, *Physical Review* **82** (5), 625–634  
DOI: 10.1103/PhysRev.82.625
- Bohm, D. und D. Pines (1953): „A Collective Description of Electron Interactions: III. Coulomb Interactions in a Degenerate Electron Gas“, *Physical Review* **92** (3), 609–625  
DOI: 10.1103/PhysRev.92.609
- Born, M. und R. Oppenheimer (1927): „Zur Quantentheorie der Molekeln“, *Annalen der Physik* **389** (20), 457–484  
DOI: 10.1002/andp.19273892002
- Bradley, D. K., J. H. Eggert, D. G. Hicks, P. M. Celliers, S. J. Moon, R. C. Cauble und G. W. Collins (2004): „Shock Compressing Diamond to a Conducting Fluid“, *Physical Review Letters* **93** (19), 195506  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.93.195506
- Bragg, W. H. und W. L. Bragg (1913): „The reflection of X-rays by crystals“, *Proceedings of the Royal Society of London, A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **88** (605), 428–438  
DOI: 10.1098/rspa.1913.0040
- Broglie, L. de (1927): „La mécanique ondulatoire et la structure atomique de la matière et du rayonnement“, *Journal de Physique et le Radium* **8** (5), 225–241  
DOI: 10.1051/jphysrad:0192700805022500
- Buffett, B. A. (2000): „Earth’s Core and the Geodynamo“, *Science* **288** (5473), 2007–2012  
DOI: 10.1126/science.288.5473.2007
- Car, R. und M. Parrinello (1985): „Unified Approach for Molecular Dynamics and Density-Functional Theory“, *Physical Review Letters* **55** (22), 2471–2474  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.55.2471
- Celliers, P. M., D. K. Bradley, G. W. Collins, D. G. Hicks, T. R. Boehly und W. J. Armstrong (2004): „Line-imaging velocimeter for shock diagnostics at the OMEGA laser facility“, *Review of Scientific Instruments* **75** (11), 4916–4929  
DOI: 10.1063/1.1807008
- Chapman, D. A. (2015): „Probing the dynamic response of dense matter with x-ray Thomson scattering“, Dissertation, University of Warwick
- Chapman, D. A. (2017): *User guide and theoretical basis for the Multi-Component Scattering Spectra (MCSS) Thomson scattering analysis code*, AWE Report 12/17

- 
- Chávez-Rojo, M. A. und M. Medina-Noyola (2006): „Van Hove function of colloidal mixtures: Exact results“, *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* **366**, 55–78  
DOI: 10.1016/j.physa.2005.10.048
- Chihara, J. (1987): „Difference in X-ray scattering between metallic and non-metallic liquids due to conduction electrons“, *Journal of Physics F: Metal Physics* **17** (2), 295–304  
DOI: 10.1088/0305-4608/17/2/002
- Chihara, J. (2000): „Interaction of photons with plasmas and liquid metals - photoabsorption and scattering“, *Journal of Physics: Condensed Matter* **12** (3), 231–247  
DOI: 10.1088/0953-8984/12/3/303
- Demtröder, W. (2013): *Laserspektroskopie 2, Experimentelle Techniken*, 6. Auflage, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg,  
ISBN: 978-3-642-21447-9
- Dhara, A. K. und S. K. Ghosh (1987): „Density-functional theory for time-dependent systems“, *Physical Review A* **35** (1), 442–444  
DOI: 10.1103/PhysRevA.35.442
- Drake, R. P. (2018): *High-Energy-Density Physics : Foundation of Inertial Fusion and Experimental Astrophysics*, 2. Auflage, Springer International Publishing AG 2018,  
ISBN: 978-3-319-67711-8
- Dubrovinsky, L., N. Dubrovinskaia, E. Bykova, M. Bykov, V. Prakapenka, C. Prescher, K. Glazyrin, H.-P. Liermann, M. Hanfland, M. Ekholm, Q. Feng, L. V. Pourovskii, M. I. Katsnelson, J. M. Wills und I. A. Abrikosov (2015): „The most incompressible metal osmium at static pressures above 750 gigapascals“, *Nature* **525** (7568), 226–229  
DOI: 10.1038/nature14681
- Dubrovinsky, L., N. Dubrovinskaia, V. B. Prakapenka und A. M. Abakumov (2012): „Implementation of micro-ball nanodiamond anvils for high-pressure studies above 6 Mbar“, *Nature Communications* **3** (1163),  
DOI: 10.1038/ncomms2160
- Dziewonski, A. M. und D. L. Anderson (1981): „Preliminary reference Earth model“, *Physics of the Earth and Planetary Interiors* **25** (4), 297–356  
DOI: 10.1016/0031-9201(81)90046-7
- Eggert, J. H., D. G. Hicks, P. M. Celliers, D. K. Bradley, R. S. McWilliams, R. Jeanloz, J. E. Miller, T. R. Boehly und G. W. Collins (2010): „Melting temperature of diamond at ultrahigh pressure“, *Nature Physics* **6** (1), 40–43  
DOI: 10.1038/nphys1438
- Eisenberger, P. und P. M. Platzman (1970): „Compton Scattering of X Rays from Bound Electrons“, *Physical Review A* **2** (2), 415–423  
DOI: 10.1103/PhysRevA.2.415
- Eliezer, S. (2002): *The Interaction of High-Power Lasers with Plasmas*, Series in Plasma Physics, Institute of Physics Publishing, Bristol, Philadelphia,  
ISBN: 978-0-7503-0747-5

- Emma, P., R. Akre, J. Arthur, R. Bionta, C. Bostedt, J. Bozek, A. Brachmann, P. Bucksbaum, R. Coffee, F.-J. Decker, Y. Ding, D. Dowell, S. Edstrom, A. Fisher, J. Frisch, S. Gilevich, J. Hastings, G. Hays, P. Hering, Z. Huang, R. Iverson, H. Loos, M. Messerschmidt, A. Miahnahri, S. Moeller, H.-D. Nuhn, G. Pile, D. Ratner, J. Rzepiela, D. Schultz, T. Smith, P. Stefan, H. Tompkins, J. Turner, J. Welch, W. White, J. Wu, G. Yocky und J. Galayda (2010): „First lasing and operation of an ångstrom-wavelength free-electron laser“, *Nature Photonics* **4**, 641–647  
DOI: 10.1038/nphoton.2010.176
- Falk, K., C. A. McCoy, C. L. Fryer, C. W. Greeff, A. L. Hungerford, D. S. Montgomery, D. W. Schmidt, D. G. Sheppard, J. R. Williams, T. R. Boehly und J. F. Benage (2014): „Temperature measurements of shocked silica aerogel foam“, *Phys. Rev. E* **90** (3), 033107  
DOI: 10.1103/PhysRevE.90.033107
- Fortov, V., G. Kanel, A. Utkin, O. Vorobiev, G. Kessler, H. Karow, K. Baumung, B. Goel und V. Light (1996): „Intense shock waves in hot dense matter generated by high-power light ion beams“, *American Institute of Physics Conference Proceedings* **369** (1), 1060–1065  
DOI: 10.1063/1.50382
- Froula, D. H., S. H. Glenzer, N. C. Lehmann und J. Sheffield (2011): *Plasma Scattering of Electromagnetic Radiation, Theory and Measurement Techniques*, 2. Auflage, Academic Press, ISBN: 978-0-12-374877-5
- Gamboa, E., B. Bachmann, D. Kraus, M. MacDonald, M. Bucher, S. Carron, R. Coffee, R. Drake, J. Emig, K. Ferguson, L. Fletcher, S. Glenzer, T. Gorkhover, S. Hau-Riege, J. Krzywinski, A. Levitan, K.-H. Meiwes-Broer, T. Osipov, T. Pardini, C. Peltz, S. Skruszewicz, C. Bostedt, T. Fennel und T. Döppner (2016): „Dual crystal x-ray spectrometer at 1.8 keV for high repetition-rate single-photon counting spectroscopy experiments“, *Journal of Instrumentation* **11** (08), P08015  
DOI: 10.1088/1748-0221/11/08/P08015
- García Saiz, E., G. Gregori, D. O. Gericke, J. Vorberger, B. Barbrel, R. J. Clarke, R. R. Freeman, S. H. Glenzer, F. Y. Khattak, M. Koenig, O. L. Landen, D. Neely, P. Neumayer, M. M. Notley, A. Pelka, D. Price, M. Roth, M. Schollmeier, C. Spindloe, R. L. Weber, L. van Woerkom, K. Wünsch und D. Riley (2008): „Probing warm dense lithium by inelastic X-ray scattering“, *Nature Physics* **4** (940-944),  
DOI: 10.1038/nphys1103
- Geloni, G., V. Kocharyan und E. Saldin (2015): „Theoretical computation of the polarization characteristics of an X-ray Free-Electron Laser with planar undulator“, *Optics Communications* **356**, 435–444  
DOI: 10.1016/j.optcom.2015.07.048
- Gericke, D. O., K. Wünsch, A. Grinenko und J. Vorberger (2010): „Structural properties of warm dense matter“, *Journal of Physics: Conference Series* **220** (1), 012001  
DOI: 10.1088/1742-6596/220/1/012001
- Glenzer, S. H., O. L. Landen, P. Neumayer, R. W. Lee, K. Widmann, S. W. Pollaine, R. J. Wallace, G. Gregori, A. Höll, T. Bornath, R. Thiele, V. Schwarz, W.-D. Kraeft und R. Redmer (2007): „Observations of Plasmons in Warm Dense Matter“, *Physical Review Letters* **98** (6), 065002  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.065002

- 
- Glenzer, S. H. und R. Redmer (2009): „X-ray Thomson scattering in high energy density plasmas“, *Review of Modern Physics* **81** (4), 1625–1663  
DOI: 10.1103/RevModPhys.81.1625
- Gregori, G., S. H. Glenzer, F. J. Rogers, S. M. Pollaine, O. L. Landen, C. Blancard, G. Faussurier, P. Renaudin, S. Kuhlbrodt und R. Redmer (2004): „Electronic structure measurements of dense plasmas“, *Physics of Plasmas* **11** (5), 2754–2762  
DOI: 10.1063/1.1689664
- Gregori, G., S. H. Glenzer, W. Rozmus, R. W. Lee und O. L. Landen (2003): „Theoretical model of x-ray scattering as a dense matter probe“, *Physical Review E* **67** (2), 026412  
DOI: 10.1103/PhysRevE.67.026412
- Guillot, T. (1999): „Interiors of Giant Planets Inside and Outside the Solar System“, *Science* **286** (5437), 72–77  
DOI: 10.1126/science.286.5437.72
- Hámos, L. von (1933): „Röntgenspektroskopie und Abbildung mittels gekrümmter Kristallreflektoren. I. Geometrisch-optische Betrachtungen“, *Annalen der Physik* **409**, 716–724  
DOI: 10.1002/andp.19334090608
- Haynes, W. M., Herausgeber (2016): *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 97. Auflage, CRC Press, Taylor & Francis Group, LLC,  
ISBN: 978-1-4987-5428-6
- Helfrich, J., D. Kraus, A. Ortner, S. Frydrych, G. Schaumann, N. Hartley, G. Gregori, B. Kettle, D. Riley, D. Carroll, M. Notley, C. Spindloe und M. Roth (2015): „Investigation of the solid–liquid phase transition of carbon at 150 GPa with spectrally resolved X-ray scattering“, *High Energy Density Physics* **14**, 38–43  
DOI: 10.1016/j.hedp.2015.02.003
- Helfrich, J. M. (2016): „Röntgen-Thomson-Streuung an warmem dichten Kohlenstoff“, Dissertation, Technische Universität Darmstadt
- Henke, B. L., E. M. Gullikson und J. C. Davis (1993): „X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at  $E = 50 - 30,000$  eV,  $Z = 1 - 92$ “, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **54** (2), 181–342  
DOI: 10.1006/adnd.1993.1013
- Heremans, J., C. H. Olk, G. L. Eesley, J. Steinbeck und G. Dresselhaus (1988): „Observation of metallic conductivity in liquid carbon“, *Physical Review Letters* **60** (5), 452–455  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.60.452
- Hirai, H., K. Konagai, T. Kawamura, Y. Yamamoto und T. Yagi (2009): „Polymerization and diamond formation from melting methane and their implications in ice layer of giant planets“, *Physics of the Earth and Planetary Interiors* **174** (1), Advances in High Pressure Mineral Physics: from Deep Mantle to the Core, 242–246 ISSN: 0031-9201,  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.pepi.2008.06.011>
- Hohenberg, P. und W. Kohn (1964): „Inhomogeneous Electron Gas“, *Physical Review* **136** (3B), B864–B871  
DOI: 10.1103/PhysRev.136.B864

- 
- Höll, A., R. Redmer, G. Röpke und H. Reinholz (2004): „X-ray Thomson scattering in warm dense matter“, *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics* **29** (2), 159–162  
DOI: 10.1140/epjd/e2004-00059-5
- Hölzer, G., M. Fritsch, M. Deutsch, J. Härtwig und E. Förster (1997): „ $K\alpha_{1,2}$  and  $K\beta_{1,3}$  x-ray emission lines of the 3d transition metals“, *Physical Review A* **56** (6), 4554–4568  
DOI: 10.1103/PhysRevA.56.4554
- Hoover, W. G. (1985): „Canonical dynamics: Equilibrium phase-space distributions“, *Physical Review A* **31** (3), 1695–1697  
DOI: 10.1103/PhysRevA.31.1695
- Huang, Z. und K.-J. Kim (2007): „Review of x-ray free-electron laser theory“, *Physical Review Accelerators and Beams* **10** (3), 034801  
DOI: 10.1103/PhysRevSTAB.10.034801
- Hubbell, J. H. und S. M. Seltzer (2004): *Tables of X-ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients*, Version 1.4, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, URL: <https://physics.nist.gov/xaamdi> (besucht am 01.03.2017), ursprünglich veröffentlicht als NISTIR 5632, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD (1995)
- Hunklinger, S. (2009): *Festkörperphysik*, 2. Auflage, Oldenbourg Verlag München, ISBN: 978-3-486-59045-6
- Jackson, J. D. (2006): *Klassische Elektrodynamik*, übersetzt von K. Müller, 4. Auflage, Walter de Gruyter GmbH & Co. KG, Berlin, ISBN: 978-3-11-018970-4
- James, R. W. (1982): *The Crystalline State, Vol. II: The Optical Principles of the Diffraction of X-rays*, 6. Auflage, Woodbridge, Conn: Ox Bow Press, ISBN: 978-0-918-02423-7
- Kieffer, J. und J. Wright (2013): „PyFAI: a Python library for high performance azimuthal integration on GPU“, *Powder Diffraction* **28** (S2), 339–350  
DOI: 10.1017/S0885715613000092
- Knudson, M. D., M. P. Desjarlais und D. H. Dolan (2008): „Shock-Wave Exploration of the High-Pressure Phases of Carbon“, *Science* **322** (5909), 1822–1825  
DOI: 10.1126/science.1165278
- Koenig, M., A. Benuzzi-Mounaix, E. Brambrink, A. Nourou, A. Ravasio, H. Wei, T. Vinci, S. Mazevet, F. Occelli, G. Morard, F. Guyot, T. D. Resseguier und E. Lescoute (2010): „Simulating earth core using high energy lasers“, *High Energy Density Physics* **6** (2), ICHED 2009 - 2nd International Conference on High Energy Density Physics, 210–214  
DOI: 10.1016/j.hedp.2009.11.004
- Kohn, W. und L. J. Sham (1965): „Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects“, *Physical Review* **140** (4A), A1133–A1138  
DOI: 10.1103/PhysRev.140.A1133

- 
- Kraus, D., J. Vorberger, D. O. Gericke, V. Bagnoud, A. Blažević, W. Cayzac, A. Frank, G. Gregori, A. Ortner, A. Otten, F. Roth, G. Schaumann, D. Schumacher, K. Siegenthaler, F. Wagner, K. Wünsch und M. Roth (2013): „Probing the Complex Ion Structure in Liquid Carbon at 100 GPa“, *Physical Review Letters* **111** (25), 255501  
DOI: [10.1103/PhysRevLett.111.255501](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.255501)
- Kraus, D., J. Vorberger, J. Helfrich, D. O. Gericke, B. Bachmann, V. Bagnoud, B. Barbrel, A. Blažević, D. C. Carroll, W. Cayzac, T. Döppner, L. B. Fletcher, A. Frank, S. Frydrych, E. J. Gamboa, M. Gauthier, S. Göde, E. Granados, G. Gregori, N. J. Hartley, B. Kettle, H. J. Lee, B. Nagler, P. Neumayer, M. M. Notley, A. Ortner, A. Otten, A. Ravasio, D. Riley, F. Roth, G. Schaumann, D. Schumacher, W. Schumaker, K. Siegenthaler, C. Spindloe, F. Wagner, K. Wünsch, S. H. Glenzer, M. Roth und R. W. Falcone (2015): „The complex ion structure of warm dense carbon measured by spectrally resolved x-ray scattering“, *Physics of Plasmas* **22** (5), 056307  
DOI: [10.1063/1.4920943](https://doi.org/10.1063/1.4920943)
- Kraus, D. (2012): „Characterization of phase transitions in warm dense matter with X-ray scattering“, Dissertation, Technische Universität Darmstadt
- Kraus, D., J. Vorberger, A. Pak, N. Hartley, L. Fletcher, S. Frydrych, E. Galtier, E. Gamboa, D. Gericke, S. Glenzer, E. Granados, M. MacDonald, A. MacKinnon, E. McBride, I. Nam, P. Neumayer, M. Roth, A. Saunders, A. Schuster, P. Sun, T. van Driel, T. Döppner und R. Falcone (2017): „Formation of diamonds in laser-compressed hydrocarbons at planetary interior conditions“, *Nature Astronomy* **1** (9), 606  
DOI: [10.1038/s41550-017-0219-9](https://doi.org/10.1038/s41550-017-0219-9)
- Kremp, D., M. Schlages und W.-D. Kraeft (2005): *Quantum Statistics of Nonideal Plasmas*, Band 25, Atomic, Optical, and Plasma Physics, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York,  
ISBN: 3-540-65284-1
- Kresse, G. und J. Furthmüller (1996a): „Efficiency of ab-initio total energy calculations for metals and semiconductors using a plane-wave basis set“, *Computational Materials Science* **6** (1), 15–50  
DOI: [10.1016/0927-0256\(96\)00008-0](https://doi.org/10.1016/0927-0256(96)00008-0)
- Kresse, G. und J. Furthmüller (1996b): „Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set“, *Physical Review B* **54** (16), 11169–11186  
DOI: [10.1103/PhysRevB.54.11169](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.54.11169)
- Kresse, G. und J. Hafner (1993): „Ab initio molecular dynamics for liquid metals“, *Physical Review B* **47** (1), 558–561  
DOI: [10.1103/PhysRevB.47.558](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.47.558)
- Kresse, G. und J. Hafner (1994): „Ab initio molecular-dynamics simulation of the liquid-metal–amorphous-semiconductor transition in germanium“, *Physical Review B* **49** (20), 14251–14269  
DOI: [10.1103/PhysRevB.49.14251](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.49.14251)
- Kritcher, A. L., P. Neumayer, M. K. Urry, H. Robey, C. Niemann, O. L. Landen, E. Morse und S. H. Glenzer (2007): „K-alpha conversion efficiency measurements for X-ray scattering in

- inertial confinement fusion plasmas“, *High Energy Density Physics* **3** (1), 156–162  
DOI: 10.1016/j.hedp.2007.02.012
- Kubo, R. (1957): „Statistical-Mechanical Theory of Irreversible Processes. I. General Theory and Simple Applications to Magnetic and Conduction Problems“, *Journal of the Physical Society of Japan* **12** (6), 570–586  
DOI: 10.1143/JPSJ.12.570
- Kubo, R. (1966): „The fluctuation-dissipation theorem“, *Reports on Progress in Physics* **29** (1), 255  
DOI: 10.1088/0034-4885/29/1/306
- Larmor, J. (1897): „LXIII. On the theory of the magnetic influence on spectra; and on the radiation from moving ions“, *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* **44** (271), 503–512  
DOI: 10.1080/14786449708621095
- Legall, H., H. Stiel, A. Antonov, I. Grigorieva, V. Arkadiev, A. Bjeoumikhov und A. Erko (2006): „A new generation of X-ray optics based on pyrolytic graphite“, *Proceedings of FEL 2006, BESSY, Berlin, Germany*
- Lorenzen, W., B. Holst und R. Redmer (2009): „Demixing of Hydrogen and Helium at Megabar Pressures“, *Physical Review Letters* **102** (11), 115701  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.115701
- Lovesey, S. W. (1984a): *Theory of neutron scattering from condensed matter, Volume 1*, Oxford University Press, Oxford,  
ISBN: 978-0-198-52028-3
- Lovesey, S. W. (1984b): *Theory of neutron scattering from condensed matter, Volume 2*, Oxford University Press, Oxford,  
ISBN: 978-0-198-52029-0
- Lyon, S. P. und J. D. Johnson (1992): *SESAME: The Los Alamos National Laboratory Equation of State Database*, Los Alamos National Laboratory Report LA-UR-92-3407
- Ma, T., T. Döppner, R. W. Falcone, L. Fletcher, C. Fortmann, D. O. Gericke, O. L. Landen, H. J. Lee, A. Pak, J. Vorberger, K. Wünsch und S. H. Glenzer (2013): „X-Ray Scattering Measurements of Strong Ion-Ion Correlations in Shock-Compressed Aluminum“, *Physical Review Letters* **110** (6), 065001  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.065001
- Ma, T., L. Fletcher, A. Pak, D. A. Chapman, R. W. Falcone, C. Fortmann, E. Galtier, D. O. Gericke, G. Gregori, J. Hastings, O. L. Landen, S. Le Pape, H. J. Lee, B. Nagler, P. Neumayer, D. Turnbull, J. Vorberger, T. G. White, K. Wunsch, U. Zastrau, S. H. Glenzer und T. Döppner (2014): „Observations of strong ion-ion correlations in dense plasmas“, *Physics of Plasmas* **21** (5), 056302  
DOI: 10.1063/1.4872161
- MacFarlane, J., I. Golovkin und P. Woodruff (2006): „HELIOS-CR – A 1-D radiation-magnetohydrodynamics code with inline atomic kinetics modeling“, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **99** (1), 381–397  
DOI: 10.1016/j.jqsrt.2005.05.031



- 
- Madey, J. M. J. (1971): „Stimulated Emission of Bremsstrahlung in a Periodic Magnetic Field“, *Journal of Applied Physics* **42** (5), 1906–1913  
DOI: 10.1063/1.1660466
- Marques, M. A. L., N. T. Maitra, F. M. S. Nogueira, E. K. U. Gross und A. Rubio, Herausgeber (2012): *Fundamentals of Time-Dependent Density Functional Theory*, Lecture Notes in Physics 837, Springer-Verlag Berlin Heidelberg,  
ISBN: 978-3-642-23517-7
- Martin, R. M. (2004): *Electronic Structure, Basic Theory and Practical Methods*, Cambridge University Press,  
ISBN: 978-0-521-78285-2
- McKenna, P., D. Neely, R. Bingham und D. A. Jaroszynski, Herausgeber (2013): *Laser-Plasma Interactions and Applications*, Scottish Graduate Series, Springer International Publishing Switzerland,  
ISBN: 978-3-319-00038-1
- Mermin, N. D. (1965): „Thermal Properties of the Inhomogeneous Electron Gas“, *Physical Review* **137** (5A), A1441–A1443  
DOI: 10.1103/PhysRev.137.A1441
- Militzer, B. (2009): „Path integral Monte Carlo and density functional molecular dynamics simulations of hot, dense helium“, *Physical Review B* **79** (15), 155105  
DOI: 10.1103/PhysRevB.79.155105
- Militzer, B., W. B. Hubbard, J. Vorberger, I. Tamblyn und S. A. Bonev (2008): „A Massive Core in Jupiter Predicted from First-Principles Simulations“, *The Astrophysical Journal Letters* **688** (1), L45  
DOI: 10.1086/594364
- Mizogawa, T. (1997): „An X-ray spectrometer using a two-dimensional PSPC and a flat crystal“, *Physica Scripta* **T73**, 403–404  
DOI: 10.1088/0031-8949/1997/T73/134
- Mulser, P. und D. Bauer (2010): *High Power Laser-Matter Interaction*, Band 238, Springer Tracts in Modern Physics, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg,  
ISBN: 978-3-540-46065-7
- Nagler, B., B. Arnold, G. Bouchard, R. F. Boyce, R. M. Boyce, A. Callen, M. Campell, R. Curiel, E. Galtier, J. Garofoli, E. Granados, J. Hastings, G. Hays, P. Heimann, R. W. Lee, D. Milathianaki, L. Plummer, A. Schropp, A. Wallace, M. Welch, W. White, Z. Xing, J. Yin, J. Young, U. Zastra und H. J. Lee (2015): „The Matter in Extreme Conditions instrument at the Linac Coherent Light Source“, *Journal of Synchrotron Radiation* **22** (3), 520–525  
DOI: 10.1107/S1600577515004865
- Nellis, W. J., A. C. Mitchell und A. K. McMahan (2001): „Carbon at pressures in the range 0.1–1 TPa (10 Mbar)“, *Journal of Applied Physics* **90** (2), 696–698  
DOI: 10.1063/1.1381047
- Nettelmann, N., B. Holst, A. Kietzmann, M. French, R. Redmer und D. Blaschke (2008): „Ab Initio Equation of State Data for Hydrogen, Helium, and Water and the Internal Structure

- of Jupiter“, *The Astrophysical Journal* **683** (2), 1217  
DOI: 10.1086/589806
- Nosé, S. (1984): „A unified formulation of the constant temperature molecular dynamics methods“, *The Journal of Chemical Physics* **81** (1), 511–519  
DOI: 10.1063/1.447334
- Paakkari, T. und P. Suortti (1974): „Experimental Compton-scattering cross sections for Si and Ge“, *Physical Review B* **9** (4), 1756–1761  
DOI: 10.1103/PhysRevB.9.1756
- Patterson, A. L. (1939): „The Scherrer Formula for X-Ray Particle Size Determination“, *Physical Review* **56** (10), 978–982  
DOI: 10.1103/PhysRev.56.978
- Pauling, L. und J. Sherman (1932): „Screening constants for many-electron atoms. The calculation and interpretation of X-ray term values, and the calculation of atomic scattering factors“, *Zeitschrift für Kristallographie - Crystalline Materials* **81** (1-6), 1–29  
DOI: 10.1524/zkri.1932.81.1.1
- Pepler, D. A., C. N. Danson, R. Bann, I. N. Ross, R. M. Stevenson, M. J. Norman, M. Desselberger und O. Willi (1993): „Focal spot smoothing and tailoring for high-power laser applications“, *Proceedings of SPIE, Laser Coherence Control: Technology and Applications* **1870**, 76–88  
DOI: 10.1117/12.154491
- Pines, D. und D. Bohm (1952): „A Collective Description of Electron Interactions: II. Collective vs Individual Particle Aspects of the Interactions“, *Physical Review* **85** (2), 338–353  
DOI: 10.1103/PhysRev.85.338
- Preising, M., W. Lorenzen, A. Becker, R. Redmer, M. D. Knudson und M. P. Desjarlais (2018): „Equation of state and optical properties of warm dense helium“, *Physics of Plasmas* **25** (1), 012706  
DOI: 10.1063/1.5011650
- Prescher, C. und V. B. Prakapenka (2015): „DIOPTAS: a program for reduction of two-dimensional X-ray diffraction data and data exploration“, *High Pressure Research* **35**, 223–230  
DOI: 10.1080/08957959.2015.1059835
- Redmer, R., H. Reinholz, G. Ropke, R. Thiele und A. Holl (2005): „Theory of X-ray Thomson scattering in dense plasmas“, *IEEE Transactions on Plasma Science* **33** (1), 77–84  
DOI: 10.1109/TPS.2004.841170
- Renninger, M. (1956): „Absolutvergleich der stärksten Röntgenstrahl-Reflexe verschiedener Kristalle“, *Zeitschrift für Kristallographie - Crystalline Materials* **107** (1-6), 404–470  
DOI: 10.1524/zkri.1956.107.16.464
- Riley, D. (2018): „Generation and characterisation of warm dense matter with intense lasers“, *Plasma Physics and Controlled Fusion* **60** (1), 014033  
DOI: 10.1088/1361-6587/aa8dd5

- 
- Riley, D., N. Woolsey, D. McSherry, F. Y. Khattak und I. Weaver (2002): „He-like x-ray line emission from laser irradiated sources“, *Plasma Sources Science and Technology* **11** (4), 484  
DOI: 10.1088/0963-0252/11/4/315
- Riley, K. F., M. P. Hobson und S. J. Bence (2006): *Mathematical methods for physics and engineering*, 3. Auflage, Cambridge University Press,  
ISBN: 978-0-521-67971-8
- Rio, M. S. del und R. J. Dejus (1998): „XOP: recent developments“, *Proceedings of SPIE, Crystal and Multilayer Optics* **3448**, 340–345  
DOI: 10.1117/12.332522
- Rio, M. S. del, C. Ferrero und V. Mocella (1997): „Computer simulation of bent perfect crystal diffraction profiles“, *Proceedings of SPIE, High Heat Flux and Synchrotron Radiation Beamlines* **3151**, 312–324  
DOI: 10.1117/12.294490
- Rio, M. S. del, M. Gambaccini, G. Pareschi, A. Taibi, A. Tuffanelli und A. K. Freund (1998): „Focusing properties of mosaic crystals“, *Proceedings of SPIE, Crystal and Multilayer Optics* **3448**, 246–256  
DOI: 10.1117/12.332512
- Ross, M. (1981): „The ice layer in Uranus and Neptune – diamonds in the sky?“, *Nature* **292** (435),  
DOI: 10.1038/292435a0
- Runge, E. und E. K. U. Gross (1984): „Density-Functional Theory for Time-Dependent Systems“, *Physical Review Letters* **52** (12), 997–1000  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.52.997
- Sai Venkata Ramana, A. und A. Singla (2018): „A perturbation theory for equation of state of hydrogen in warm and hot dense regimes“, *Physics of Plasmas* **25** (6), 062710  
DOI: 10.1063/1.5027402
- Saunders, A., D. Chapman, A. Kritcher, M. Schoff, C. Shulberg, O. Landen, S. Glenzer, R. Falcone, D. Gericke und T. Döppner (2018): „Influence of argon impurities on the elastic scattering of x-rays from imploding beryllium capsules“, *High Energy Density Physics* **26**, 86–92  
DOI: 10.1016/j.hedp.2018.02.003
- Savitzky, A. und M. J. E. Golay (1964): „Smoothing and Differentiation of Data by Simplified Least Squares Procedures.“, *Analytical Chemistry* **36** (8), 1627–1639  
DOI: 10.1021/ac60214a047
- Schumacher, M., F. Smend und I. Borchert (1975): „Incoherent scattering of gamma rays by inner-shell electrons“, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **8** (9), 1428  
DOI: 10.1088/0022-3700/8/9/010
- Spitzer, L. und R. Härm (1953): „Transport Phenomena in a Completely Ionized Gas“, *Physical Review* **89** (5), 977–981  
DOI: 10.1103/PhysRev.89.977

- 
- Stanley, S. und J. Bloxham (2004): „Convective-region geometry as the cause of Uranus’ and Neptune’s unusual magnetic fields“, *Nature* **428** (6979), 151–153  
DOI: 10.1038/nature02376
- Uzan-Saguy, C., C. Cytermann, B. Fizgeer, V. Richter, Y. Avigal, M. Shaanan, R. Brener, R. Kalish, E. Bustarret und J. Chevallier (2002): „Diffusion of hydrogen from a microwave plasma into diamond and its interaction with dopants and defects“, *Diamond and Related Materials* **11** (3–6), 12th European Conference on Diamond, Diamond- Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides & Silicon Carbide, 316–322 ISSN: 0925-9635,  
DOI: [https://doi.org/10.1016/S0925-9635\(01\)00676-8](https://doi.org/10.1016/S0925-9635(01)00676-8)
- Vinko, S. M., O. Ciricosta, B. I. Cho, K. Engelhorn, H.-K. Chung, C. R. D. Brown, T. Burian, J. Chalupský, R. W. Falcone, C. Graves, V. Hájková, A. Higginbotham, L. Juha, J. Krzywinski, H. J. Lee, M. Messerschmidt, C. D. Murphy, Y. Ping, A. Scherz, W. Schlotter, S. Toileikis, J. J. Turner, L. Vysin, T. Wang, B. Wu, U. Zastra, D. Zhu, R. W. Lee, P. A. Heimann, B. Nagler und J. S. Wark (2012): „Creation and diagnosis of a solid-density plasma with an X-ray free-electron laser“, *Nature* **482** (7383), 59–62  
DOI: 10.1038/nature10746
- Vorberger, J., M. Schlages und W. D. Kraeft (2004): „Equation of state for weakly coupled quantum plasmas“, *Physical Review E* **69** (4), 046407  
DOI: 10.1103/PhysRevE.69.046407
- Waasmaier, D. und A. Kirfel (1995): „New analytical scattering-factor functions for free atoms and ions“, *Acta Crystallographica Section A* **51**, 416–431  
DOI: 10.1107/S0108767394013292
- Wang, J., R. F. Smith, J. H. Eggert, D. G. Braun, T. R. Boehly, J. Reed Patterson, P. M. Celliers, R. Jeanloz, G. W. Collins und T. S. Duffy (2013): „Ramp compression of iron to 273 GPa“, *Journal of Applied Physics* **114** (2), 023513  
DOI: 10.1063/1.4813091
- Wigner, E. und F. Seitz (1933): „On the Constitution of Metallic Sodium“, *Physical Review* **43** (10), 804–810  
DOI: 10.1103/PhysRev.43.804
- Wilson, H. F. und B. Militzer (2010): „Sequestration of Noble Gases in Giant Planet Interiors“, *Physical Review Letters* **104** (12), 121101  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.121101
- Wünsch, K., J. Vorberger, G. Gregori und D. O. Gericke (2011): „X-ray scattering as a probe for warm dense mixtures and high-pressure miscibility“, *Europhysics Letters* **94** (2), 25001  
DOI: 10.1209/0295-5075/94/25001
- Wünsch, K. (2011): „Theory of X-ray Thomson Scattering in Warm Dense Matter“, Dissertation, University of Warwick
- Zastra, U., A. Woldegeorgis, E. Förster, R. Loetzsch, H. Marschner und I. Uschmann (2013): „Characterization of strongly-bent HAPG crystals for von-Hámos x-ray spectrographs“, *Journal of Instrumentation* **8** (10), P10006  
DOI: 10.1088/1748-0221/8/10/P10006

---

Zel'dovich, Y. B. und Y. P. Raizer (2002): *Physics of Shock Waves and High-Temperature Hydrodynamic Phenomena*, herausgegeben von W. D. Hayes und R. F. Probstein, Dover Publications, Inc., Mineola, New York,  
ISBN: 978-0-486-42002-8



---

# Darstellungsverzeichnis

Abb. 2.1	Charakterisierung und Einordnung von Plasmen und warmer dichter Materie	7
Abb. 2.2	Laser-Materie-Wechselwirkung	8
Abb. 2.3	Schematische Darstellung einer Schockwelle	11
a	im Laborsystem	11
b	im Schocksystem	11
Abb. 2.4	Entropieänderung in Abhängigkeit der verwendeten Schockwellenzahl	13
Abb. 2.5	Funktionsweise eines VISARs	15
a	Schematischer Aufbau eines VISAR-Arms	15
b	Schematisches VISAR-Bild	15
Abb. 3.1	Schematische Darstellung der Streugeometrie und der retardierten Zeit	19
a	Streugeometrie	19
b	Schematische Darstellung zur retardierten Zeit	19
Abb. 3.2	Schematische Darstellung der Streuprozesse in einem teilionisierten Plasma	22
Abb. 3.3	Atomformfaktor von Kohlenstoff	24
Abb. 3.4	Streuung von Röntgenstrahlung an kristallinen Strukturen	28
a	Ebenen im kubischen Kristallsystem	28
b	Bragg-Streuung	28
Abb. 3.5	Schematische Darstellung der von-Hámos-Geometrie	29
Abb. 3.6	Schematische Darstellung der Mosaikfokussierung	30
Abb. 3.7	Massenschwächungskoeffizienten von Proben- und Filtermaterialien	31
Abb. 3.8	Schematische Darstellung eines Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers	33
Abb. 4.1	HELIOS-Simulationen der erreichten thermodynamischen Parameter	36
a	Druck	36
b	Temperatur	36
c	Dichte	36
Abb. 4.2	DFT-MD-Simulationen für gemischtes und entmischtes Polystyrol	39
Abb. 5.1	Schematische Draufsicht auf den experimentellen Aufbau	42
Abb. 5.2	Verwendetes Probenmaterial und Laserprofil	43
a	Chemische Struktur von Polystyrol	43
b	Schematische Probendarstellung	43
c	Laserprofil	43
Abb. 5.3	Schematische Seitenansicht der Spektrometer	44
a	Rückwärtsspektrometer	44
b	Vorwärtsspektrometer	44
Abb. 6.1	Kalibrierung des Flächendetektors	46
a	Beugungsbild von $\text{LaB}_6$	46
b	Beugungsprofil von $\text{LaB}_6$	46

c	Beugungsbild von $\text{CeO}_2$ . . . . .	46
d	Beugungsprofil von $\text{CeO}_2$ . . . . .	46
Abb. 6.2	Schematische Darstellung der PONI-Koordinatentransformation . . . . .	47
Abb. 6.3	Einfluss der Absorptionskorrektur auf den Flächendetektor . . . . .	49
Abb. 6.4	Zeitlicher Verlauf der Röntgenbeugung . . . . .	51
Abb. 6.5	Bestimmung des ungestörten Materialanteils . . . . .	52
Abb. 6.6	Vergleich des ungestörten Materialanteils . . . . .	53
Abb. 7.1	Erstellung der Streuspektren . . . . .	56
a	Rückwärtsspektrometer . . . . .	56
b	Vorwärtsspektrometer . . . . .	56
Abb. 7.2	Bestimmung der Untergrundkorrektur der Spektrometer . . . . .	57
a	Rückwärtsspektrometer . . . . .	57
b	Vorwärtsspektrometer . . . . .	57
Abb. 7.3	Histogramme der Untergrundbereiche zur Bestimmung der Gesamtintensität . . . . .	58
a	Rückwärtsspektrometer . . . . .	58
b	Vorwärtsspektrometer . . . . .	58
Abb. 7.4	Beispiel zur Bestimmung der Gesamtintensität . . . . .	59
a	Rückwärtsspektrometer . . . . .	59
b	Vorwärtsspektrometer . . . . .	59
Abb. 7.5	Extrahierte Streuspektren mit statistischen Korrekturen . . . . .	59
a	Rückwärtsspektrometer . . . . .	59
b	Vorwärtsspektrometer . . . . .	59
Abb. 7.6	Bestimmung der Energiekalibration der Spektrometer . . . . .	60
a	Rückwärtsspektrometer . . . . .	60
b	Vorwärtsspektrometer . . . . .	60
Abb. 7.7	Ergebnisse der Energiekalibration . . . . .	61
a	Unsicherheit der Dispersionsrelation . . . . .	61
b	Vergleich der zentralen elastischen Streuenergie . . . . .	61
Abb. 7.8	Proben- und Filtertransmission des Rückwärtsspektrometers . . . . .	63
a	Probentransmission . . . . .	63
b	Filtertransmission . . . . .	63
Abb. 7.9	Rocking Curve und integrierte Reflektivität . . . . .	64
a	Rocking Curve . . . . .	64
b	Integrierte Reflektivität . . . . .	64
Abb. 7.10	Abgedeckte Energieintervalle pro Pixel . . . . .	64
Abb. 7.11	Quanteneffizienz der verwendeten CSPADs . . . . .	65
Abb. 7.12	Nach Gleichung (7.5) berechnete Flat-Field-Korrektur beider Spektrometer . . . . .	66
a	Rückwärtsspektrometer . . . . .	66
b	Vorwärtsspektrometer . . . . .	66
Abb. 7.13	Einfluss der Flat-Field-Korrektur auf das Rückwärtsspektrometer . . . . .	66
Abb. 7.14	Reduzierung der Streuspektren um Streubeiträge an ungestörtem Material . . . . .	67
a	Rückwärtsspektrometer . . . . .	67
b	Zur Reduzierung in Vorwärtsrichtung verwendeter Schweiß . . . . .	67
c	Vorwärtsspektrometer . . . . .	67
Abb. 7.15	Bestimmung der Rayleigh-Streuung in Rückwärtsrichtung . . . . .	69



a	Integrationsgrenzen für den elastischen und inelastischen Streuanteil . . .	69
b	Ergebnisse der Rayleigh-Streuung in Rückwärtsrichtung . . . . .	69
Tab. 7.1	K $\alpha$ - und K $\beta$ -Emission von Kupfer und Nickel . . . . .	70
Tab. 7.2	Relative Häufigkeiten der Elemente in der verwendeten CuNi-Legierung . . . .	71
Abb. 7.16	Ni-K $\beta$ -Linie zur Kreuzkalibrierung beider Spektrometer . . . . .	72
a	Rückwärtsspektrometer . . . . .	72
b	Vorwärtsspektrometer . . . . .	72
Abb. 7.17	Bestimmung der Detektorantwortfunktion in Vorwärtsrichtung . . . . .	74
a	Entfaltung der Kupfer-K $\alpha$ -Linien . . . . .	74
b	Detektorantwortfunktion . . . . .	74
Abb. 7.18	Überprüfung der Detektorantwortfunktion . . . . .	74
Abb. 7.19	Bestimmung des inelastischen Streuanteils in Vorwärtsrichtung . . . . .	75
a	Mit DFT und TD-DFT berechnete inelastische Streuanteile . . . . .	75
b	Inelastische Streuanteile gefaltet mit Detektorantwort- und Quellfunktion	75
Abb. 7.20	Bestimmung der Rayleigh-Streuung in Vorwärtsrichtung . . . . .	76
a	Bestimmung des elastischen Streuanteils . . . . .	76
b	Berechnete Rayleigh-Streuung in Vorwärtsrichtung . . . . .	76
Abb. 7.21	Ergebnisse der Entmischung . . . . .	77
Tab. A.1	Experimentelle Parameter, tabelliert . . . . .	85
Tab. A.2	Experimentelle Ergebnisse, tabelliert . . . . .	86



---

# Danksagung

Ich danke Markus Roth dafür, dass er mich damals als unerfahrenen Bachelorstudent in seiner Gruppe aufgenommen hat und ich bis zum Abschluss dieser Doktorarbeit bleiben konnte. Für die Möglichkeit, an einem äußerst spannenden Themenkomplex in einem internationalen Team arbeiten zu können. Auf diese wertvolle Erfahrung werde ich noch lange zurückblicken.

Weiterhin danke ich Dominik Kraus, nicht nur für die Übernahme des Korreferentens. Ohne ihn hätte das hier beschriebene Experiment niemals stattgefunden und ohne den regelmäßigen Austausch hätte die Auswertung wohl einen anderen Weg genommen.

Für die Bereitstellung der Simulationen danke ich Jan Vorberger. Ebenso danke ich ihm und Dirk Gericke für ihre Unterstützung in der Interpretation der Daten von der theoretischen Seite aus. Ohne euch wäre ich sicherlich verloren gewesen.

Thank you to Dieter Schneider, Tilo Döppner and Gary Grim who made it possible for me to spend 13 month of my work at Lawrence Livermore National Laboratory. For the warm welcome a very special thank you to my american roommates Alex, Brian, Tim and Steven. Without you, this whole trip would have been a catastrophe.

I also want to thank Dave Chapman who provided me with the MCSS code and always answered all my stupid questions very thoroughly.

Thank you, Nicholas Hartley, for your support in the last months and for always pointing out when I was overdoing things or when I was heading towards a dead end.

Mein Dank gilt auch dem Team, mit dem das Experiment am SLAC geplant und durchgeführt wurde: Dominik, Eric, Zhou, Hae Ja, Andy, Alison, Nicholas, Peihao, Paul, Luke, Michael, Eliseo, Emma, Art, Tilo, Tammy, Norimasa, Jan, Dirk, Jim, Ryosuke, Siegfried and Roger.

Ohne all die konstruktiven Anmerkungen und Korrekturen von Alexandra, Annika, Dirk, Dominik, Franziska, Holger, Jan, Johannes, Michael, Paul und Tina wäre diese Arbeit nicht das geworden, was sie heute ist. Dafür möchte ich euch allen herzlich danken.

Diese Arbeit wurde vom Bildungsministerium für Bildung und Forschung unter der Projektnummer 05P15RDFA1 gefördert.

Use of the Linac Coherent Light Source (LCLS), SLAC National Accelerator Laboratory, is supported by the U.S. Department of Energy (DOE), Office of Science, Office of Basic Energy Sciences under Contract No. DE-AC02-76SF00515. The Matter in Extreme Conditions (MEC) instrument of LCLS has additional support from the DOE, Office of Science, Office of Fusion Energy Sciences under contract No. SF00515.

This work was performed under the auspices of the DOE by Lawrence Livermore National Laboratory under Contract No. DE-AC52-07NA27344.

The MCSS code is © British Crown Owned Copyright 2017/AWE and is used with permission.