

Röntgen-Thomson-Streuung an warmem dichten Kohlenstoff

X-ray Thomson Scattering in warm dense carbon

Zur Erlangung des Grades eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation von Dipl.-Phys. Jan Martin Helfrich aus Schleswig

Tag der Einreichung: 17.05.2016, Tag der Prüfung: 14.11.2016

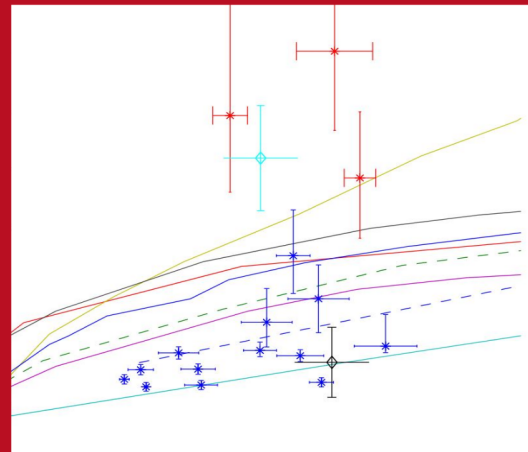
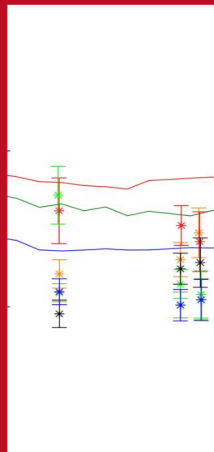
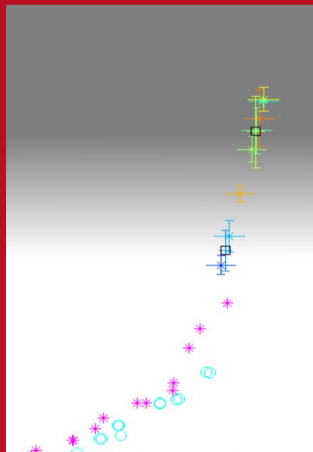
Dezember 2016 – Darmstadt – D 17

1. Gutachten: Professor Dr. Markus Roth
2. Gutachten: Professor Dr. Oliver Boine-Frankenheim



TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
DARMSTADT

Fachbereich Physik
Institut für Kernphysik



Röntgen-Thomson-Streuung an warmem dichten Kohlenstoff
X-ray Thomson Scattering in warm dense carbon

Genehmigte Dissertation von Dipl.-Phys. Jan Martin Helfrich aus Schleswig

1. Gutachten: Professor Dr. Markus Roth
2. Gutachten: Professor Dr. Oliver Boine-Frankenheim

Tag der Einreichung: 17.05.2016

Tag der Prüfung: 14.11.2016

Dezember 2016 – Darmstadt – D 17

Bitte zitieren Sie dieses Dokument als:

URN: urn:nbn:de:tuda-tuprints-58103

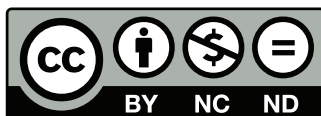
URL: <http://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de/5810>

Dieses Dokument wird bereitgestellt von tuprints,

E-Publishing-Service der TU Darmstadt

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

tuprints@ulb.tu-darmstadt.de



Die Veröffentlichung steht unter folgender Creative Commons Lizenz:

Namensnennung – Keine kommerzielle Nutzung – Keine Bearbeitung 4.0 International

<http://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 8. Dezember 2016

(J. Helfrich)



The most elementary and valuable
statement in science, the beginning of
wisdom, is 'I do not know'.

(Data, Star Trek TNG, S2E2)

Zusammenfassung

Bei warmer dichter Materie (WDM) handelt es sich um den Übergangsbereich von Festkörpern hin zu dichten Plasmen. Die Vorkommen von WDM sind in Planetenkernen, deren Mantelregionen oder in den Oberflächenregionen von Weißen und Brauen Zwergen. Dabei ist die Beschreibung mit den typischen Ansätzen der Festkörperphysik und der Plasmaphysik nur sehr bedingt möglich. Durch die hohen Drücke und Temperaturen an diesen Orten ist eine Untersuchung im Labor schwierig, da diese Bedingungen aufgrund der verfügbaren Präparationstechniken nur für kleine Proben und kurze Zeiträume erreichbar sind. Auf der Erde wird in Experimenten zur Trägheitsfusion der Bereich der WDM während des Aufheizens und vor dem Starten der Fusion durchlaufen. Bei diesen Experimenten ist das zu zündende Deuterium-Tritium-Gemisch von hochdichtem Kohlenstoff oder Kunststoffen ummantelt. Dabei werden die festen Proben von einem ersten Schock geheizt und verflüssigt, bevor die eigentliche Kompression startet. Gerade für das Verstehen des Verhaltens von Kohlenstoff nach diesem ersten Schock und der damit eintretenden Phasenänderung sind Messungen an Kohlenstoff von elementarer Bedeutung, um die Trägheitsfusion zum Erfolg zu führen. Diese Arbeit befasst sich mit der Messung von Kohlenstoff im Bereich der WDM, um den Phasenübergang zu charakterisieren. Diese Messungen können im nächsten Schritt mit theoretischen Beschreibungen verglichen werden, womit diese weiterentwickelt werden können.

Behandelt werden zwei Experimente, in denen Kohlenstoff im Bereich der WDM untersucht wurde bei Dichten von $3,30 \text{ g/cm}^3$ bis $4,30 \text{ g/cm}^3$, Drücken zwischen 100 GPa und 200 GPa und Temperaturen von 5 000 K bis 11 000 K. Der Zustand der WDM wurde dabei mittels lasergetriebener Schockwellen erreicht. Die Untersuchung erfolgte durch Messen des Strukturfaktors, der mittels Röntgen-Thomson-Streuung (X-ray Thomson Scattering, XRTS) bestimmt wurde.

Im ersten Experiment, das am *Rutherford Appleton Laboratory* im Vereinigten Königreich durchgeführt wurde, sind Graphitproben nahe der natürlichen Dichte ($2,25 \text{ g/cm}^3$) und mit reduzierter Dichte ($1,30 \text{ g/cm}^3$ und $1,84 \text{ g/cm}^3$) eingesetzt worden, um im komprimierten Zustand verschiedene Temperaturen zu erreichen ($(5\,700 \pm 600) \text{ K}$ bis $(14\,500 \pm 1\,700) \text{ K}$ nach HELIOS Hydro-Simulationen). Während des Kompressionsvorgangs wurden die Proben zunächst auf ihre natürliche Dichte komprimiert, wodurch sich die interne Energie erhöhte, bevor die eigentliche Kompression stattfand. Der erreichte Endzustand wurde mittels XRTS in Rückstreugeometrie vermessen. Dabei ließ sich direkt der Strukturfaktor bestimmen, der als Maß der Ionenordnung und der Teilchenbewegung gesehen werden kann. Über ihn lässt sich die Phase einer Probe und die Temperatur einer Flüssigkeit bestimmen. Zur Erzeugung der für diese Messmethode erforderlichen Röntgenstrahlung wurde ein Strahl des Vulcan Lasersystems auf eine Vanadiumfolie fokussiert, wodurch diese $K\text{-}\alpha$ -Strahlung bei 4 952 eV emittierte. Mit dem beobachteten Streuwinkel von 126° und der Photonenenergie ergab sich ein Streuvektor k von $4,47 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Dieser wurde so gewählt, dass er in einem Bereich liegt, in dem sich der Strukturfaktor während der Phasenänderung sehr stark ändert und nicht von Bragg-Peaks des ungeschockten Graphits überlagert wird. Bei diesem Experiment konnte gezeigt werden, dass es mit Laserintensitäten von 10^{13} W/cm^2 möglich war, Proben mit reduzierter Dichte zu verflüssigen. Proben mit natürlicher Dichte sind hingegen fest geblieben. Die unterschiedlichen Temperaturen im komprimierten Material resultierten aus einer erhöhten Entropie während der Kompression, für Proben mit reduzierter Dichte. Der Druck und die Dichte waren im Endzustand für feste und flüssige Proben vergleichbar.

Aufbauend auf diesen Erkenntnissen wurde ein zweites Experiment an der *Linac Coherent Light Source* am *Stanford Linear Accelerator Center* in Kalifornien, USA durchgeführt. Die Vorteile des Einsatzes eines Röntgen-Freielektronen-Lasers gegenüber einer lasergetriebenen Röntgenquelle sind ultrakurze Pulse, eine variable Photonenenergie und eine äußerst schmale Energiebandbreite von 0,3% bei etwa $3 \cdot 10^{12}$ Photonen pro Puls. Rückstreuenspektren konnten damit in einer bisher unerreichten Qualität aufgenommen werden, die aufgrund der 50 fs Pulse einer Momentaufnahme entsprechen. Die Kompression erfolgte erneut mit lasergetriebenen Schockwellen, mit Intensitäten von $7 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ und $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$. Um im Endzustand verschiedene Temperaturen zu erreichen, wurden Graphitproben mit Dichten von $1,53 \text{ g/cm}^3$, $1,84 \text{ g/cm}^3$ und $2,21 \text{ g/cm}^3$ komprimiert. Durch die Verwendung von Photonenenergien von 4 500 eV und 6 000 eV und verschiedenen Streuwinkeln konnten im Experiment die Streuvektoren $k_1 = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_2 = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_3 = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_4 = 5,36 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_5 = 5,58 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k_6 = 5,76 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ untersucht werden. Dies ist aufgrund der Energiebandbreite und Winkelverteilung möglich, die viel schmäler als die von lasergetriebenen Röntgenquellen ist. Die Strukturformmessungen für Streuvektoren von $5 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ bis $6 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ lagen teils um einen Faktor 2 über dem erwarteten Wert. Dies ist auf Reststrukturen von komprimiertem Graphit oder der Formation von kubischen oder hexagonalen Diamant zurückzuführen, die das elastische Streusignal von flüssigem Kohlenstoff überlagerten. Das Vorhandensein einer Diamantstruktur erlaubte es, mittels Röntgenbeugung direkt die Dichte im geschockten Zustand zu bestimmen. Die zusätzliche Messung der Schockgeschwindigkeit ermöglichte eine genaue Positionsbestim-

mung im Dichte-Druck-Phasendiagramm im Bereich von $(3,73 \pm 0,11) \text{ g/cm}^3$ bis $(4,54 \pm 0,13) \text{ g/cm}^3$ und Drücken von $(87 \pm 5) \text{ GPa}$ und $(195 \pm 6) \text{ GPa}$. Durch den weiteren Vergleich der gemessenen Strukturformfaktoren mit DFT-MD Simulationen ist eine Temperaturzuordnung für den flüssigen Kohlenstoff und damit eine Positionsbestimmung im Temperatur-Druck-Phasendiagramm möglich. Abschließend sind diese Ergebnisse mit simulierten Phasendiagrammen verglichen worden. Unabhängig von der Ausgangsdichte variierte der gemessene Strukturformfaktor zwischen $0,46 \pm 0,02$ und $0,92 \pm 0,05$ für $k_1 = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Dies entspricht Temperaturen von $5300_{-100}^{+100} \text{ K}$ bis $11100_{-1400}^{+5700} \text{ K}$. Die Strukturformfaktormessungen aller Streuvektoren zeigen für geschockte Proben mit reduzierter Dichte und Laserintensitäten von $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, trotz möglicher Signalüberlagerungen noch eine Übereinstimmung des allgemeinen Verlaufs der DFT-MD Simulationen, da diese die größte Entropie erfahren haben, damit am Wärmsten sind und am wenigsten Reststrukturen enthalten.

Abstract

In this thesis, the behavior of carbon in the warm dense matter (WDM) regime is investigated. WDM is the transition regime between a solid dense material and a hot dense plasma. In this research area the description with typical methods from solid state physics and plasma physics is complicated or impossible. WDM conditions can be found in planet cores, their mantle regions or in the surface regions of white and brown dwarfs. Due to the natural places where material in this condition is occurring, a laboratory study is limited to small and briefly available samples. For example the WDM state is reached in experiments for inertial confinement fusion during the heating process for the ignition of the fusion. For these pre-ignition processes the behaviour of carbon is of fundamental importance, because the deuterium-tritium fuel is encapsulated by high-density carbon or plastic. The samples are heated up from a first shock and reach the liquid phase before the final compression starts. Of special interest is the behavior of carbon after this first shock and the initialized phase change to realize the fusion. Due to this, this thesis deals with the analysis of the phase transition of carbon in the WDM regime. Further measurements are of importance for testing theoretical models of the phase diagram of carbon under these conditions and the prediction beyond them.

The presented work includes two experiments that have investigated carbon in the WDM regime at densities between 3.30 g/cm^3 and 4.30 g/cm^3 , pressures between 100 GPa and 200 GPa, and temperatures of 5 000 K and 11 000 K. The WDM phase was achieved with laser-driven shock waves. The study and characterization of the material was done via the ion-ion structure factor, which was determined by X-ray Thomson Scattering (XRTS).

One first experiment was performed at *Rutherford Appleton Laboratory* in the United Kingdom, where graphite samples close to the natural density (2.25 g/cm^3) and samples with reduced density (1.30 g/cm^3 and 1.84 g/cm^3) were used to reach different temperatures in the compressed state. HELIOS hydro-simulations predicted a temperature from $(5\,700 \pm 600) \text{ K}$ to $(14\,500 \pm 1\,700) \text{ K}$. The samples were compressed to their natural density first while the internal energy increased before the compression to the final state begins. The phase was determined by the ion-ion-structure factor, which describes the order and disorder in a system. It was measured by XRTS in a backscattering geometry. With this information, for example the phase and the temperature of a liquid can be determined. For the X-ray generation, a short-pulse beam of the Vulcan laser was focused on a vanadium foil. This leads to emission of K- α line radiation from vanadium with a photon energy of 4 952 eV. The used scattering angle of 126° and the photon energy result in a scattering vector k of $4.47 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. This scattering vector was chosen because in this region the ion-ion structure factor changes significantly during the phase change at this point and the scattering signal is not superimposed by the Bragg peak of graphite with the natural density. The experiment has shown that it is possible to generate liquid carbon from samples with reduced density and that samples with natural density remain solid with a laser intensity of 10^{13} W/cm^2 . Different temperatures in the final state result from the higher entropy during the compression process of samples with a reduced density. Both pressure and density in the final state are comparable for all samples.

Based on these results a second experiment at an X-ray free-electron-laser (XFEL) the *Linac Coherent Light Source* at the *Stanford Linear Accelerator Center* in California, USA, was performed. The advantages of an XFEL are ultra-short pulses, a variable photon energy, and an extremely small spectral bandwidth of 0.3% with about $3 \cdot 10^{12}$ photons per pulse. Thus, it was possible to get backscattering spectra of unprecedented quality. Because of the 50 fs pulses, the resulting spectra are snapshots of the current state. The compression was achieved with laser driven shock waves, with intensities of $7 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ and $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$. To reach different final temperatures, carbon samples with different initial densities of 1.53 g/cm^3 , 1.84 g/cm^3 , and 2.21 g/cm^3 were used. Due to photon energies of 4 500 eV and 6 000 eV, different scattering angles, and the advantages of the small spectral bandwidth, multiple scattering wave vectors $k_1 = 4.12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_2 = 4.39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_3 = 4.43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_4 = 5,36 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_5 = 5.58 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ and $k_6 = 5.76 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ could be measured in the experiment. The use of multiple scattering angles was possible since the spectral bandwidth and angular distribution of the XFEL is much narrower than that of laser driven X-ray sources. The structure factor measurements for scattering vectors from $5 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ to $6 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ were by a factor 2 above the expected values. This can be explained by an increased elastic scattering signal that was created by Bragg scattering caused by remaining structures of compressed graphite or the formation of cubic or hexagonal diamond. This signal overlaps with the XRTS signal from liquid carbon. The presence of a diamond structure allowed the direct measurement of the final density of the shocked state by X-ray diffraction. With the additional measurement of the shock velocity, the accurate position in the density-pressure-diagram was determined in the regime between $(87 \pm 5) \text{ GPa}$ and $(195 \pm 6) \text{ GPa}$ and densities from $(3.73 \pm 0.11) \text{ g/cm}^3$ to $(4.54 \pm 0.13) \text{ g/cm}^3$. By additional comparison of the measured structure factors with

DFT-MD simulations, a temperature mapping for liquid carbon was possible and thus allowed a position determination in the temperature-pressure-diagram. Independent of the initial density the measured structure factor varied between 0.46 ± 0.02 and 0.92 ± 0.05 for $k = 4.12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. This corresponds to temperatures of $5300_{-100}^{+100} \text{ K}$ to $11100_{-1400}^{+5700} \text{ K}$. The structure factor measurements of all scattering wave vectors allowed, despite possible signal interference, a confirmation of the general course of the DFT-MD simulations for shocked samples with reduced density and an intensity of $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$. This shocked samples have the lowest influencing structures inside.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	3
1. Motivation	3
2. Experimente	5
3. Struktur und Aufbau der Arbeit	5
4. Einheiten und Begriffe	5
2. Theorie	7
1. Kohlenstoff	7
2. Plasma und WDM	8
3. Radiale Verteilungsfunktion und statischer Strukturfaktor	12
4. Photon-Materie-Wechselwirkungen	14
4.1. Schockwellen	14
4.1.1. Hugoniot-Gleichungen	15
4.1.2. Schockgrenzflächen und Impedanz	17
4.1.3. Schockwellen in Festkörpern und porösen Materialien	20
4.1.4. Schockwelleninduzierte Phasenänderung	21
4.1.5. Lasergetriebene Schockwellen	22
4.2. Röntgenquellen	23
4.2.1. Laserröntgenquellen	23
4.2.2. Freie-Elektronen-Laser	24
5. Streuung von Photonen	25
5.1. Strahlung bewegter Ladung	26
5.2. Klassische Beschreibung (Thomson-Formel)	28
5.3. Streuung am Plasma	29
5.3.1. Elastische Streuung	31
5.3.2. Inelastische Streuung an freien Elektronen	32
5.3.3. Inelastische Streuung an gebundenen Elektronen	33
5.4. Analyse Phasenübergang mit XRTS	34
5.5. Bragg-Streuung	35
3. Simulation	37
1. Funktionsweise der Hydrodynamik-Simulation	37
2. HELIOS-Simulation	37
3. Ab-initio Simulationen	38
3.1. DFT	38
3.2. DFT-MD	39
3.3. DFT-MD für Kohlenstoff	39
4. Experimente	43
1. Experiment RAL	43
1.1. Aufbau RAL	44
1.2. Details der Komponenten am RAL	46
1.3. Kalibrierung und Justierung am RAL	50
1.4. Ergebnisse RAL	51
1.5. Interpretation und Diskussion der RAL Daten	54

2.	Experiment LCLS	57
2.1.	Aufbau LCLS	58
2.2.	Details der Komponenten am LCLS	59
2.3.	Kalibrierung und Justierung am LCLS	62
2.4.	Ergebnisse LCLS	65
2.4.1.	Positionsbestimmung Druck-Dichte-Diagramm	65
2.4.2.	Bestimmung des Strukturfaktors	70
2.5.	Interpretation und Diskussion der LCLS Daten	80
5.	Zusammenfassung	91
6.	Ausblick	92
A.	Veröffentlichungen	103
1.	Autor	103
2.	Co-Autor	103
B.	Anhang	104
1.	SGL Carbon	104
2.	Geschwindigkeiten im LiF	104
3.	Ergebnisse HELIOS-Simulationen	105
4.	Ergebnisse Ion-Ion-Strukturfaktor und Helios Simulationen	108
C.	Danksagung	111
D.	Lebenslauf	113

Abbildungsverzeichnis

1.1. Kohlenstoff-Phasendiagramm	4
2.1. Kohlenstoffstrukturen	7
2.2. Übersicht Materie Zustand	9
2.3. Plasma Kopplung und Entartung	11
2.4. Darstellung Nahordnung	12
2.5. Radiale Verteilungsfunktion Beispiele	13
2.6. Referenzsysteme Schockphysik	15
2.7. Schock Hugoniot und Isentrope	17
2.8. Grenzflächen Schock	18
2.9. Hugoniot-Kurve Druck-Teilchengeschwindigkeits-Diagramm	18
2.10. Impedanz Anpassung LiF Fenster	19
2.11. Schockkompression Poröser Materialien	20
2.12. Strukturänderung Druck-Volumen-Diagramm	21
2.13. Schock mit Phasenänderung	22
2.14. Laser Plasma Wechselwirkung	23
2.15. Entstehung He- α und K- α Strahlung	24
2.16. Funktionsweise FEL	25
2.17. Photonabsorption Querschnitte Kohlenstoff	26
2.18. Koordinatensystem Streuprozess	27
2.19. Wellenvektor Streuprozess	27
2.20. Thomson Streuung	28
2.21. Elastische Streuung	32
2.22. Streuung an freien Elektronen	32
2.23. Streuung an schwach gebundenen Elektronen	33
2.24. Bragg-Bedingung	35
3.1. DFT-MD Simulation Diamant und Graphit	41
4.1. RAL Bragg-Peaks Spektrometerposition	44
4.2. RAL Experimentaufbau	45
4.3. RAL Probenaufbau	47
4.4. Mosaikfokussierung	48
4.5. von-Hámos-Geometrie	48
4.6. Aufbau Schmierbild-Kamera	50
4.7. RAL IPs Energiekalibrierung und Lineouts	51
4.8. RAL Quellspektrometer	52
4.9. RAL Schmierbild-Kamera Beispiel Messung	53
4.10. RAL Hugoniot extrapoliert	53
4.11. RAL Beispiel Datenextraktion	54
4.12. RAL kumulierte Ergebnisse 1,30 g/cm ³ und 1,84 g/cm ³	55
4.13. RAL kumulierte Ergebnisse 2,25 g/cm ³	55
4.14. RAL Ergebnisse im Temperatur-Druck-Phasendiagramm	57
4.15. LCLS Experimentaufbau	58
4.16. LCLS Experimentaufbau Detail	59
4.17. LCLS Proben und Probenhalter	60
4.18. Schema VISAR	61
4.19. LCLS Rohdaten und Energiekalibrierung Rückwärtsspektrometer	62
4.20. LCLS Rückwärtsspektrometer Detektorfunktion	63
4.21. LCLS Kalibrierung CSPAD	64
4.22. LCLS VISAR-Daten Graphit mit LiF	65
4.23. LCLS VISAR-Daten Graphit mit LiF Auswertung	66

4.24.LCLS VISAR-Daten Druck und Dichte	67
4.25.LCLS CSPAD Daten Debye-Scherrer-Ringe	68
4.26.LCLS CSPAD Daten Debye Scherrer-Ringe Profile	69
4.27.LCLS CSPAD Ergebnisse Druck und Dichte	70
4.28.LCLS Position Spektrometer	71
4.29.LCLS Rückwärtsspektrometer Positionsänderung	72
4.30.LCLS Intensitäts Korrekturfunktion	73
4.31.LCLS Messungen Intensitätsverlust Kristallrand	75
4.32.LCLS Rückwärtsspektrometer Korrektur Beispiele	76
4.33.LCLS VISAR Messung Kohlenstoff	76
4.34.LCLS Streuung Material Ungeschockt Geschockt	77
4.35.LCLS Streugeometrie und Tabelle Absorptionslängen	78
4.36.LCLS Streusignal Schock Korrektur	79
4.37.LCLS Transmissionsspektrometer Messungen	79
4.38.LCLS Strukturfaktor Messung und XRS-Code	80
4.39.LCLS Ergebnisse Messung Ion-Ion-Strukturfaktor	81
4.40.LCLS Ergebnisse Messung Ion-Ion-Strukturfaktor gemittelt	82
4.41.LCLS DFT-MD Simulationen verschiedene Kohlenstoffstrukturen	85
4.42.LCLS Ergebnisse Druck-Dichte-Phasendiagramm	87
4.43.LCLS Ergebnisse Temperatur-Druck-Phasendiagramm	89
B.1. Oberflächengeschwindigkeiten in LiF	104
B.2. HELIOS-Simulation 1,30 g/cm ³ Dichte Druck	105
B.3. HELIOS-Simulation 1,30 g/cm ³ Temperatur	105
B.4. HELIOS-Simulation 1,84 g/cm ³ Dichte Druck	106
B.5. HELIOS-Simulation 1,84 g/cm ³ Temperatur	106
B.6. HELIOS-Simulation 2,25 g/cm ³ Dichte Druck	107
B.7. HELIOS-Simulation 2,25 g/cm ³ Temperatur	107

Tabellenverzeichnis

2.1. Gitterparameter von Kohlenstoffstrukturen	7
4.1. Kristallparameter Rückwärtsspektrometer	49
4.2. RAL Ergebnisse Schockgeschwindigkeit	52
4.3. RAL Ergebnisse HELIOS-Simulation	56
4.4. LCLS verwendete Streuvektoren	71
4.5. LCLS Positionsverschiebung Rückwärtsspektrometer	73
4.6. LCLS Ergebnisse Strukturfaktor $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ bis $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$	82
B.1. Materialeigenschaften Kohlenstoff SGL Carbon	104
B.2. LCLS Ergebnisse Messungen 6 000 eV	108
B.3. LCLS Ergebnisse Messungen 4 500 eV	109
B.4. LCLS Helios Simulationen	110

Abkürzungsverzeichnis

BCC	Body-Centered Cubic / Kubisch innenzentriertes Gitter
CCD	Charge-Coupled Device / ladungsgekoppeltes Bauteil
CLF	Central Laser Facility
CPA	Chirped Pulse Amplification / Verstärkung gechirpter Pulse
CSPAD	Cornell-SLAC Pixel Array Detectoren
DESY	Forschungszentrum Deutsches Elektron-SYnchrotron GmbH
DFT	Density Functional Theory / Dichte Funktional Theorie
DFT-MD	Density Functional Theory with Molekulardynamik / Dichte Funktional Theorie mit Molekül Dynamik
EMP	Electromagnetic pulse / Elektromagnetischer Puls
FEL	Free-Electron-Laser / Freie-Elektronen-Laser
GGA	Generalized Gradient Approximation / Gradientennäherung
GSI	GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung GmbH
HAPG	Highly Annealed Pyrolytic Graphit
HCT	Hypernetted Chain Theory
HEDP	High Energy Density Physics / Physik hoher Energien und Dichten
HOPG	Highly Ordered Pyrolytic Graphite
IA	Impulse Approximation / Impuls Näherung
ICF	Inertial Confinement Fusion / Trägheitsfusion
IP	Image Plate / Bildspeicherplatte
LCLS	Linac Coherent Light Source
LDA	Local Density Approximation / Lokale Dichtenäherung
LiF	Lithiumfluorid
MD	Molekulardynamik / Molekül Dynamik
MEC	Matter in Extreme Conditions
PBE	Perdew-Burke-Ernzerhof
RAL	Rutherford Appelton Laboratory
RPA	Random Phase Approximation
SACLA	Spring-8 Angstrom Compact free electron Laser
SASE	Self Amplification of Spontaneous Emission / Selbstverstärkung von spontaner Emission
SBK	Schmierbild-Kamera
SLAC	Stanford Linear Accelerator Center
TAP	Target Area Petawatt
TAW	Target Area West
TCC	Target Chamber Center / Mittelpunkt der Vakuumkammer
TU Darmstadt	Technische Universität Darmstadt
VASP	Vienna Ab-Initio Simulation Package
VISAR	Velocity Interferometer System for Any Reflector / Geschwindigkeits-Interferometer-System für jede Oberfläche
WDM	Warm Dense Matter / Warme Dichte Materie
XFEL	X-ray Free-Electron-Laser / Röntgen-Freie-Elektronen-Laser
XRS	X-ray Scattering / Röntgenstreuung
XRTS	X-ray Thomson Scattering / Röntgen-Thomson-Streuung



1 Einleitung

1 Motivation

Das Gebiet der warmen dichten Materie (Warm Dense Matter, WDM) ist ein relativ neues Gebiet der Physik, welches bisher noch nicht ausreichend verstanden ist [Lee 2002]. Es handelt sich um den Übergangsbereich zwischen der Festkörperphysik und der Plasmaphysik. Der Parameterbereich erstreckt sich dabei über Temperaturen von einigen tausend zu mehreren hunderttausend Kelvin, bei Drücken beginnend bei einigen tausend Atmosphären bis hin zum millionenfachen des Atmosphärendrucks. Die Dichte befindet sich dabei in der Größenordnung von Festkörpern. Für die Betrachtung sind die sogenannten Zustandsgleichungen von besonderer Bedeutung. Sie verbinden die thermodynamischen Eigenschaften Druck, Dichte und Temperatur miteinander. Für das Verständnis komplexer Systeme wie der WDM sind neben den genannten Parametern auch noch weitere materialabhängige Parameter von Bedeutung: Opazität, Energieabsorptionsraten und Phasenübergänge.

Bedeutend ist WDM im Bereich der Geo- und Planetenphysik, im Speziellen in der Beschreibung des Erdkerns oder des Mantels von Planeten und dem Planetenaufbau [Vocadlo 2003, Koenig 2010]. Beispiele hierfür sind: die Mantel- und Kernregionen unserer äußeren Planeten (Jupiter, Saturn, Neptun und Uranus) oder die Oberflächenregionen von Braunen und Weißen Zwergen [van Horn 1991, Dufour 2007, Madhusudhan 2012]. Ein anderes Beispiel ist die Wechselwirkung eines Hochenergielasers mit einem Festkörper. Dabei wird an der Oberfläche ein Plasma erzeugt und das Material wird in einen Zustand versetzt, der im Bereich der Physik hoher Energien und Dichten (High-Energy-Density-Physics, HEDP) liegt [Drake 2006]. Der Bereich der WDM fungiert in diesem Zusammenhang als eine Transitregion, bevor das Material den Zustand der HEDP erreicht. Auf der Erde stehen Proben für Untersuchungen an Materialien im Bereich der WDM nur sehr kurzzeitig und in kleinen Mengen zur Verfügung, dabei ist der Aufwand für die Erzeugung dieser Proben sehr groß. Da das Erreichen des WDM Regimes mit statischen Methoden kaum und für Drücke größer als 100 GPa und Temperaturen über 5 000 K nicht mehr möglich ist, müssen dynamische Methoden verwendet werden. Eine Möglichkeit der Erzeugung von WDM bietet das Heizen mit intensiven Teilchenstrahlen [Fortov 1996], wobei hier die Bestimmung des erreichten Drucks und der Dichte problematisch ist. Eine bessere Möglichkeit der Erzeugung von WDM bietet die Nutzung von Schockwellen. Schockwellen komprimieren und erhitzen das Material, während sie sich in diesem ausbreiten. Schockwellen können dabei durch Explosionen, einschlagende Projektile sowie mit leistungsfähigen Lasersystemen erzeugt werden. Beim Komprimieren mit einer Schockwelle kann der Endzustand bezogen auf Dichte und Druck durch die Rankine-Hugoniot-Gleichungen bestimmt werden [Zeldovic 1966]. Dies ist möglich durch die direkte Messung der Schockgeschwindigkeit und der Teilchengeschwindigkeit im Material. Mit dieser Technik können lediglich makroskopische Größen bestimmt werden, welche nur Hinweise über die mikroskopische Struktur liefern [Knudson 2008, Eggert 2009]. Um Informationen über die mikroskopische Struktur zu gewinnen, eignet sich die Methode der spektral aufgelösten Streuung von Röntgenstrahlung, die es erlaubt, trotz der nur kurzzeitig zur Verfügung stehenden Proben, im Bereich der WDM Untersuchungen vorzunehmen [Garcia 2008, Glenzer 2009, Ma 2014].

Kohlenstoff ist das vierthäufigste Element im Universum und entstand größtenteils durch den Drei-Alpha-Prozess [Binder 1999]. Auf der Erde stellen Kohlenstoffverbindungen die Grundlage allen Lebens dar. Der Einsatz von Kohlenstoffverbindungen spielt in nahezu allen Errungenschaften der Menschheit eine Rolle [Krüger 2007]. Die Frage, warum Kohlenstoff im Bereich der WDM untersucht werden sollte, ist mit der möglichen Realisierung eines Fusionskraftwerks verbunden und in dem besseren Verständnis von Planetenphysik innerhalb und außerhalb unseres Sonnensystems begründet. Die Planeten Uranus und Neptun beinhalten in ihrer Mantelregion große Mengen von Methan, welches unter den vorliegenden Bedingungen in seine Bestandteile Kohlenstoff und Wasserstoff dissoziieren kann und sich somit flüssiger Kohlenstoff bilden könnte [Ross 1981, Sherman 2012]. Dieser kann einen Beitrag zum magnetischen Moment der Planeten liefern, das im Fall von Uranus und Neptun eine ungewöhnliche nicht-dipolare und nicht-achsensymmetrische Charakteristik aufweist [Stanley 2004]. Außerhalb unseres Sonnensystems gibt es die Möglichkeit der Existenz von Planeten mit sehr hohen Kohlenstoffanteilen [Madhusudhan 2012]. In der Trägheitsfusion (Inertial Confinement Fusion, ICF) gibt es zwei Bereiche in denen WDM eine Rolle spielt. Einmal durch das Prinzip des indirekten Treibens der Kompression, bei der ein Goldhohlraum geheizt und somit dieser in den Bereich der WDM gelangt. Dieser emittiert Röntgenstrahlung, welche die Kompression und damit die Implosion des zu fusionierenden Deuterium-Tritium-Gemischs treibt. Im komprimierten Zustand dieser Probe startet dann die Fusion und damit die Freisetzung von Energie [Lindl 2004]. Der zweite Bereich ist, dass während der Kompression das Gemisch selbst den Bereich der WDM durchläuft. Das Deuterium-Tritium-Gemisch selbst ist in Form einer Kugel von einem Ablationsmaterial eingeschlossen. Das Ablationsmaterial dient als

Treiber der Implosion durch Nutzung der Impulserhaltung. Die momentan aussichtsreichsten Materialverbindungen für diese Hülle enthalten Kohlenstoff und sind aus Kunststoff oder Diamant [MacKinnon 2014]. Im Experiment erfährt die Probe zuerst einen relativ schwachen Schock. Einige Nanosekunden später erfolgt die eigentliche Kompression für die Fusion mit einem stärkeren Schock. Der erste Schock dient dabei zum Homogenisieren und Vorheizen der Probe. An diesem Punkt ist der fest-flüssig Übergang von Kohlenstoff im Bereich der WDM von speziellem Interesse, da die Ablatorschicht nach dem ersten Schock wieder gefrieren oder sich mit dem Fusionstreibstoff vermischen kann [MacKinnon 2014]. Durch das Gefrieren kann es zu einer Dichtefluktuatation kommen, womit hydrodynamische Instabilitäten verursacht werden. Damit dies vermieden werden kann, ist ein verbessertes Verständnis der mikroskopischen Struktur nahe des Phasenübergangs nötig, um präzise Modelle für diese Experimente zu haben. Dabei ist gerade über den Übergang zum flüssigen Kohlenstoff wenig bekannt, da Kohlenstoff unter Normalbedingungen direkt sublimiert. Erst unter hohem Druck können die Übergänge von Diamant zu flüssig und Graphit zu flüssig stattfinden. Es können also keine Näherungen über den Phasenübergang aus einfach zugänglichen Bereichen für den Bereich der WDM getroffen werden. Erste Experimente haben gezeigt, dass es möglich ist, den Phasenübergang von Kohlenstoff mittels Röntgen-Streu-Experimenten zu messen [Kraus 2013]. Eine genauere Bestimmung der Position im Phasendiagramm steht noch aus. Dabei konnte auch der Prozess des Ausbildens von kurzzeitigen Bindungen im Bereich von 100 GPa für flüssigen Kohlenstoff beobachtet werden. Durch das Ausnutzen der Temperaturabhängigkeit dieser Bindungen sollte eine Temperaturbestimmung in diesem Bereich möglich sein. Das Kohlenstoffatom, bestehend aus seinem Kern und seinen sechs Elektronen, ist relativ klein. Dies erlaubt eine umfangreiche theoretische Betrachtung des Systems, bis hin zu *ab-initio*¹ Methoden für die Simulation [Correa 2006]. Aufgrund des gesteigerten Interesses und des Mangels an akkuraten Messungen an Kohlenstoff unter eben diesen Bedingungen sind in den letzten Jahren viele Simulationen zum Verlauf des Phasenübergangs durchgeführt worden (siehe Abbildung 1.1). Die Verläufe der Simulationen weichen um mehrere 1 000 K voneinander ab und weisen ein unterschiedliches Verhalten in ihrem Verlauf auf. Für die Überprüfung der Simulationsergebnisse sind weitere Daten nötig.

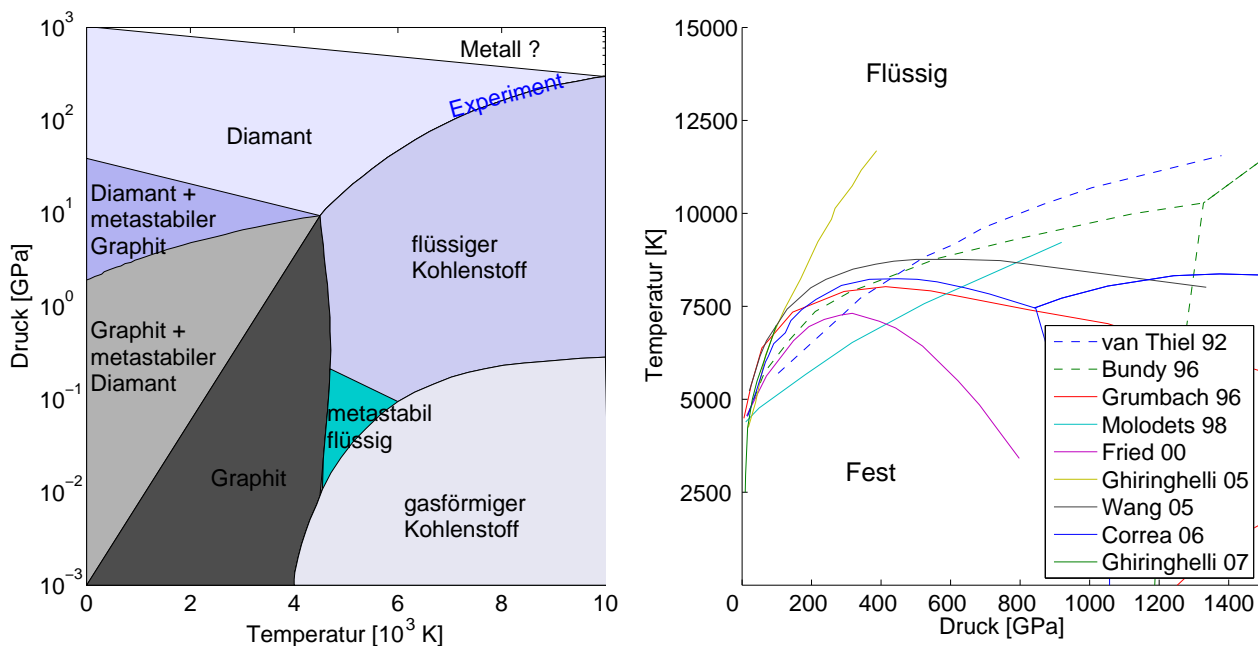


Abbildung 1.1.: Links: Dargestellt ist das Phasendiagramm von Kohlenstoff, mit allen möglichen Übergängen und den vorliegenden Strukturen [Zazula 1997]. Rechts: Dargestellt sind mehrere simulierte Phasenverläufe von Kohlenstoff.

¹ *ab-initio* lateinisch für „von Anfang an“

2 Experimente

Die Daten dieser Arbeit wurden in zwei Experimenten gewonnen. Das erste wurde am *Rutherford Appleton Laboratory* (RAL) im Februar und März 2013 mit dem Vulcan Lasersystem durchgeführt. Das Vulcan Lasersystem bietet aufgrund seiner Größe die Möglichkeit, größere und damit homogenere Proben zu erzeugen als in Vorläuferexperimenten. Zusätzlich steht ein Kurzpulslaser zur Verfügung, um Röntgenstrahlung für die Diagnostiken zu erzeugen.

Das zweite Experiment wurde am *Stanford Linear Accelerator Center* (SLAC) im Mai 2014 mit der *Linac Coherent Light Source* (LCLS) durchgeführt. Die Möglichkeit der Verwendung einer Röntgenquelle der vierten Generation bietet höhere Intensitäten, eine hohe Brillanz, bessere Zeitauflösung und die Möglichkeit, viele Messungen in kürzerer Zeit durchzuführen, als es mit lasergetriebenen Röntgenquellen möglich ist.

3 Struktur und Aufbau der Arbeit

Diese Arbeit setzt sich nach diesem Einleitungskapitel wie folgt zusammen: Im zweiten Kapitel wird die Theorie beschrieben, die für das Verständnis der Arbeit von Bedeutung ist. Angefangen bei der Definition von WDM über die Photonenabsorption zum Treiben der Schockwellen und deren Charakterisierung weiter zur Erzeugung von Röntgenstrahlung. Im nächsten Schritt wird auf die Streuprozesse der Photonen mit der WDM eingegangen. Im folgenden Kapitel wird auf die Beschreibung von hydro- und *ab-initio*-Simulationen eingegangen, mit denen später die Messergebnisse verglichen werden. Im vierten Kapitel werden die zwei Experimente dieser Arbeit vorgestellt. Diese werden jeweils einzeln und in chronologischer Folge, zuerst das Experiment am RAL und dann das folgende Experiment an der LCLS, behandelt. Dies beinhaltet jeweils das Ziel des jeweiligen Experiments, dessen Aufbau und die verwendeten Lasersysteme, Röntgenquellen, Graphitproben und Diagnostiken, dabei wird kurz ihre Bedeutung für das Experiment dargestellt. Darauf folgt jeweils die Justierung und Kalibrierung der einzelnen Komponenten im Experiment. Anschließend werden die Ergebnisse vorgestellt, mit Simulationen verglichen und diskutiert. In Kapitel fünf erfolgt die Zusammenfassung der gewonnenen Erkenntnisse aus den Experimenten und leitet in den Ausblick auf zukünftige Anwendungen und Experimente über.

4 Einheiten und Begriffe

Im Allgemeinen sind die Einheiten immer in SI-Einheiten angegeben. Für eine bessere Handhabung wird in einigen Fällen jedoch auf handlichere Einheiten oder den im Fachgebiet üblichen Terminus zurückgegriffen. So wird zum Beispiel die Intensität von Laserstrahlung in W/cm^2 und nicht in W/m^2 angegeben. Die Kennzeichnung von Vektoren innerhalb von Gleichungen erfolgt durch fett geschriebene Buchstaben.

Das englische Wort *Target* im Sinne von Ziel, steht in diesem Bereich der Physik für ein Objekt, auf das ein Lasersystem ausgerichtet ist und das während des Experiments zerstört wird. Bei dem Objekt kann es sich um die zu untersuchende Probe direkt oder um einen komplexeren Aufbau zur Röntgenerzeugung handeln.

Der Begriff Diamant bezieht sich, sofern nicht anders angegeben, immer auf Diamant in einer kubischen Kristallstruktur.



2 Theorie

Dieses Kapitel behandelt die physikalischen Grundlagen, die für das Verständnis und die Interpretation der gewonnenen Daten von elementarer Bedeutung sind, beginnend bei den Grundlagen der Plasmaphysik und von WDM, über die Physik von Schockwellen für die Erzeugung der WDM bis hin zur Behandlung der Röntgen-Thomson-Streuung (X-ray Thomson Scattering, XRTS). Ein Schwerpunkt liegt hierbei auf der Wechselwirkung von intensiver Laserstrahlung mit Materie, um WDM zu erzeugen und der Charakterisierung dieses Zustands. Soweit nicht anders angegeben, basieren die Grundlagen der vorgestellten Physik auf den Werken von S. Eliezer, R. P. Drake, P. Mulser, Y. B. Zeldovic und Y. P. Raizer [Eliezer 2002, Drake 2006, Mulser 2010, Zeldovic 1966].

1 Kohlenstoff

Kohlenstoff kann unter Normalbedingungen in den Strukturen Graphit, Diamant, hexagonaler Diamant¹ [Bundy 1967] und als Fulleren vorliegen. Die ersten drei Strukturen sind in Abbildung 2.1 dargestellt und ihre Gitterparameter in Tabelle 2.1 angegeben. Kohlenstoff liegt dabei zum Großteil, ungefähr 99%, als ¹²C Isotop vor. In dieser Arbeit wird die Struktur von Kohlenstoff unter extremen Bedingungen untersucht. Dabei haben Isotope keinen Einfluss auf die Ergebnisse und werden nicht weiter berücksichtigt. Kohlenstoff ist mit der Ordnungszahl sechs und dementsprechend sechs Elektronen in der Hülle ein System mit wenigen Teilchen im Vergleich zu schwereren Elementen mit mehr Teilchen. Es ist damit ein relativ einfaches System, das noch mit der verfügbaren Rechenkapazität per Simulation zugänglich ist.

Alle Kohlenstoffstrukturen sind unter Normalbedingungen einfach zu handhaben und Proben können damit einfach vorbereitet werden. Das Verhalten von Kohlenstoff ist bis hin zu wenigen 10 GPa und einigen Tausend Kelvin gut charakterisiert. Ein Phasendiagramm von Kohlenstoff wurde in Abbildung 1.1 dargestellt.

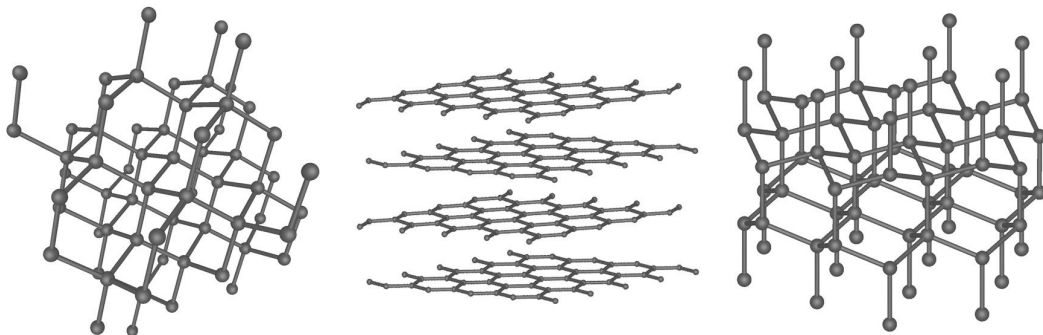


Abbildung 2.1.: Die Grafiken zeigen verschiedene Kohlenstoffstrukturen: Diamant (links), Graphit (mitte), hexagonaler Diamant (rechts). Die Grafiken wurden aus [Ströck 2006] entnommen.

	Graphit	Diamant	hexagonaler Diamant
Kristallsystem	hexagonal	kubisch	hexagonal
Raumgruppe	$P6_3/mmc$	$Fd\bar{3}m$	$P6_3/mmc$
Abstand [10^{-10} m]	$a = 2,461$ $c = 6,708$	$a = b = c = 3,567$	$a = 2,52$ $c = 4,12$
Winkel	$\alpha = \beta = 90^\circ$ $\gamma = 120^\circ$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	$\alpha = \beta = 90^\circ$ $\gamma = 120^\circ$

Tabelle 2.1.: Gitterparameter von Kohlenstoffstrukturen. a, b und c sind dabei die Seitenlängen der Elementarzelle und α, β und γ die Winkel zwischen den Kanten der Elementarzelle. Die Parameter sind aus den Mineralogischen Tabellen von H. Strunz entnommen worden [Strunz 2001].

¹ Wird auch als Lonsdaleit bezeichnet.

Der Übergang von Graphit auf Diamant, welcher bei Raumtemperatur bei etwa 20 GPa einsetzt, ist schon in den Achtzigern untersucht worden [Gust 1980]. Bei Graphit setzt sich die Struktur aus Ebenen hexagonalen Strukturen zusammen, die in vielen Ebenen übereinander geschichtet sind. Dabei ist jede folgende Ebene derart versetzt, dass jede darauf folgende Ebene wieder über der ersten Ebene liegt. Die Kompression kann hier zuerst zwischen den Ebenen oder entlang der Ebenen stattfinden. Dabei entstehen, abhängig von der Zusammensetzung und Ausrichtung der Graphitstruktur zur Kompressionsrichtung, Diamant oder hexagonaler Diamant, wobei sich auch Mischformen bilden können [Kurdyumov 2012]. Die entstehenden Strukturen sind dabei zusätzlich abhängig von der Stärke und der Geschwindigkeit der Kompression [Kraus 2016].

Der Phasenübergang von Graphit zu flüssigem Kohlenstoff ist, wie in der Motivation dargelegt, experimentell nur wenig untersucht und auch nur schwer zugänglich. Die Untersuchung des Übergangs, beginnend von einer Diamantstruktur zu flüssigem Kohlenstoff, ist mit Experimenten am OMEGA Laser [Bradley 2004, Eggert 2009] durchgeführt worden, wobei Drücke von 600 GPa erreicht worden sind. Als Proben sind monokristalline Diamanten verwendet und der Phasenübergang durch Änderungen in der Transparenz und der Reflektivität der Probe gemessen worden. Messungen lassen vermuten, dass die Phasenänderung sehr schnell abläuft, bei Drücken um 20 GPa in ein paar Nanosekunden [Erskine 1991] und mit steigendem Druck schneller als eine Pikosekunde [Mundy 2008]. Für Übergänge von Graphit zu flüssigem Kohlenstoff durch Schockkompression gibt es keine aussagekräftigen Messungen. Auch *ab-initio* Simulationen liefern noch kein eindeutiges Bild [Grumbach 1996, Wang 2005, Correa 2006, Correa 2008]. Aus der Betrachtung der Schock-Hugoniot-Kurve müsste der Phasenübergang fest-flüssig für einen idealen Graphit-Kristall mit $2,26 \text{ g/cm}^3$ zwischen 80 GPa und 300 GPa [Grover 1979, Nellis 2001] und bei Temperaturen von 6 000 K bis 8 000 K liegen. Für geringere Dichten muss der Übergang bei geringeren Drücken liegen, da diese eine höhere Temperatur erreichen (siehe Abschnitt 4.1.4) [Batani 2004]. Simulationen zeigen auch, dass die Volumenänderung für diesen Übergang nur sehr klein ist [Wang 2005] und es damit kaum möglich ist, diesen nur durch Bestimmen der Schockgeschwindigkeit und der durch den Schock in Bewegung gesetzten Teilchen auf klassische Art zu bestimmen.

Durch Nutzen von Röntgen-Streuexperimenten ist es möglich, den Phasenübergang unter diesen extremen Bedingungen auf der Strukturebene direkt zu beobachten [Kraus 2012]. Diese Art der Strukturbestimmung (siehe Abschnitt 5) wird in dieser Arbeit verwendet, um die Struktur und Temperatur von Kohlenstoff in verschiedenen Endzuständen bezogen auf Druck und Dichte zu messen. Kohlenstoff weist im Bereich der flüssigen Phase der WDM noch eine direkte Teilchenwechselwirkung auf, die zu einer Zweipeakstruktur des Strukturfaktors führt [Kraus 2013] und die Temperaturbestimmung ermöglichen sollte.

Für das Verhalten von Kohlenstoff unter noch größeren Drücken oberhalb von 1 000 GPa existieren eine Reihe von Theorien für eine mögliche metallische Phase von Kohlenstoff [Vechten 1973] oder eine BC8 Struktur² [Correa 2008]. Die sich ausbildenden Strukturen sind dabei stark temperaturabhängig.

2 Plasma und WDM

Die Einordnung des WDM Bereichs kann auch mit einer Reihe von Plasmaparametern erfolgen. Die Plasmaparameter werden für Plasmen verwendet, um abzuschätzen mit welchen Methoden das Plasma beschrieben werden kann. In Abbildung 2.2 sind die verschiedenen Bereiche der Plasmaphysik mit Fokus auf hohe Energiedichten und deren Vorkommen oder technische Anwendung dargestellt. Zu diesem Bereich gehört auch die WDM. Das Plasma ist einer der Zustände der modernen Physik neben den drei klassischen Zuständen: fest, flüssig und gasförmig. Bei einem idealen Plasma handelt es sich um einen quasineutralen Zustand bestehend aus neutralen und ionisierten Atomen und Elektronen mit einem kollektiven Verhalten, für dessen Beschreibung die Debyelänge und die Plasmafrequenz von Bedeutung sind.

Die Debyelänge lässt sich wie folgt erklären. Durch elektrostatische Anziehung und Abstoßung im Plasma befinden sich im statistischen Mittel um einen Ladungsträger weniger Ladungsträger der gleichen Polarität als der entgegengesetzten. Dies führt zu einer Abschirmung der Ladung nach außen. Diesem Prozess wird durch die thermische Bewegung der Ladungsträger entgegengewirkt. Ein Maß für die Reichweite dieser Abschirmung ist die Debyelänge λ_D . Sie ist die Grenze, an der das elektrische Potenzial einer lokalen Überschussladung auf $1/e$ abgefallen ist. Für die Debyelänge gilt unter Berücksichtigung von Elektronen und Ionen:

$$\lambda_D = \left[\frac{e_0^2}{\epsilon_0} \left(\frac{n_e}{k_B T_e} + \sum_{\alpha} \frac{Z_{\alpha}^2 n_{i,\alpha}}{k_B T_{i,\alpha}} \right) \right]^{-1/2} \quad (2.1)$$

² BC8 ist eine kubisch innenzentrierte Gitterstruktur (Body-Centered Cubic, BCC) mit acht Atomen pro Einheitszelle und gehört der Raumgruppe $Ia3(T_h^7)$ an.

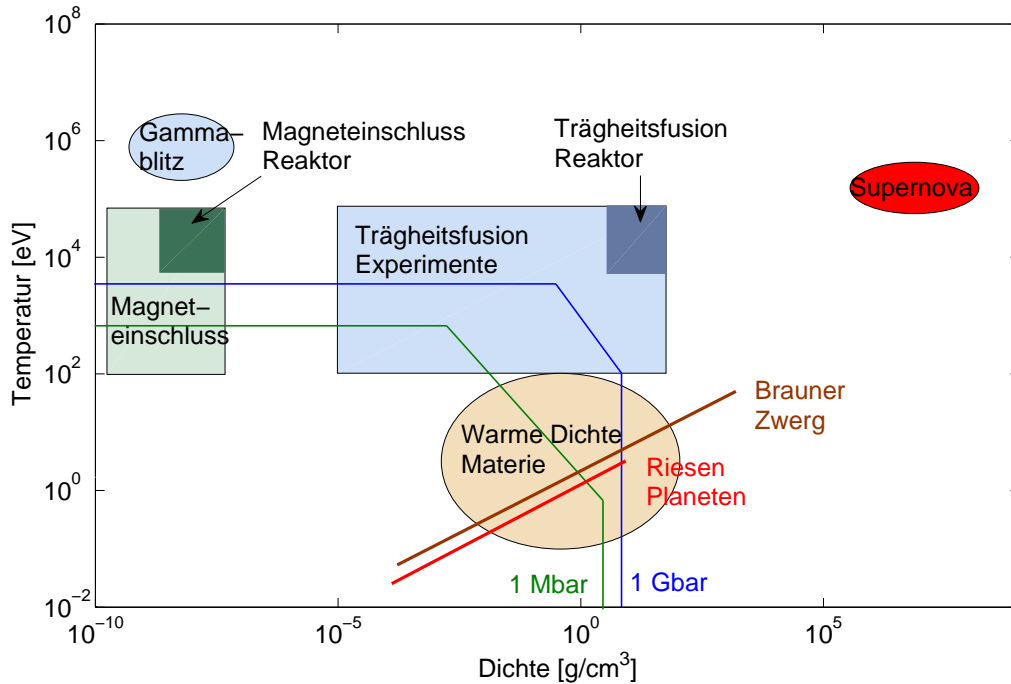


Abbildung 2.2.: Bereiche der Physik mit hohen Energiedichten. Die Abbildung ist angelehnt an [Drake 2006]. Die Drucklinien für 1 Mbar und 1 Gbar entsprechen im horizontalen Teil dem Druck eines Strahlungsfeldes im Gleichgewicht mit dieser Temperatur. Oberhalb dieses Bereiches ist das Plasma strahlungsdominiert, sofern sich das System im Gleichgewicht befindet. Das Abknicken der Linie erfolgt, wenn der thermische Druck größer als der Strahlungsdruck wird.

mit e_0 der Elementarladung, ϵ_0 der elektrischen Feldkonstante, k_B der Boltzmann-Konstante, n_e der Teilchendichte der Elektronen und T_e Temperatur der Elektronen. Der Index α bezieht sich auf das Element des Ions, da ein Plasma meist aus mehr als einer Komponente besteht. Dementsprechend ist $n_{i,\alpha}$ Teilchendichte der Ionen, Z_α die Ladungszahl der Ionen und $T_{i,\alpha}$ die Temperatur der Ionen.

Die Plasmafrequenz beschreibt eine periodische Oszillation der Ladungsdichte in einem Plasma. Werden die freien Elektronen verschoben oder verdichtet, wirkt diesem die Coulombkraft entgegen und versucht eine homogen verteilte Ladungsdichte herzustellen. Durch die Trägheit der Ladungsträger werden diese über die neutrale Lage hinaus bewegt, wobei es zu einer periodischen Oszillation kommt. Die Frequenz dieser Oszillation wird Plasmafrequenz genannt:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e_0^2}{m_e \epsilon_0}} \quad (2.2)$$

mit m_e der Elektronenmasse. Für die Berechnung der Plasmafrequenz wird von kalten Elektronen ausgegangen, wobei die thermische Bewegung vernachlässigt wird.

Debyelänge und die Plasmafrequenz werden benötigt, um festzustellen, ob es sich um ein ideales Plasma handelt. Dafür müssen folgende drei Bedingungen erfüllt sein:

- Das Plasmavolumen muss größer sein als eine Kugel mit der Debyelänge als Radius. Dies bedeutet, dass eine lokale Überschussladung außerhalb dieser Kugel ausgeglichen ist und das Plasma von außen betrachtet neutral ist.
- Die Anzahl der Teilchen in einer Kugel mit dem Radius der Debyelänge ist viel größer als eins.
- Die Zeit zwischen zwei Stößen ist größer als die Periode der Plasmafrequenz.

Ein weiterer Parameter zum Beschreiben von Plasmen bietet der Entartungsparameter Θ , der die Entartung der Fermiveaus abschätzt. Er ist definiert als das Verhältnis von thermischer Energie E_{th} zur Fermienergie E_F ,

$$\Theta = \frac{E_{th}}{E_F} \quad E_{th} = \frac{3k_B T_e}{2} \quad E_F = \frac{\hbar^2}{2m_e} (3\pi^2 n_e)^{2/3} \quad (2.3)$$

mit T_e der Elektronentemperatur und $h = 2\pi\hbar$ dem Planckschen Wirkungsquantum. Übersteigt die Dichte der Ladungsträger ein gewisses Level, steigt der Anteil der repulsiven Kräfte durch das Pauli-Verbot und damit der Einfluss von quantenstatistischen Effekten im System. Die Abgrenzung zwischen entarteten und nicht entarteten Plasmen skaliert mit $T \propto n^{2/3}$. Im entarteten Plasma ist die Fermienergie größer als die thermische Energie ($\Theta < 1$) und die meisten Elektronen besetzen Zustände innerhalb des Fermisees, in dem Quanteneffekte von Bedeutung sind.

Die thermodynamischen Eigenschaften eines idealen klassischen Plasmas sind gut bekannt, sofern es sich um dünne Plasmen handelt. Die WDM befindet sich im Grenzbereich zu dichten Plasmen. Die Problematik bei der Beschreibung von WDM ist, dass hier die Dichte zu hoch ist, um die Modelle der Plasmaphysik anwenden zu können, wobei die Energie im System zu hoch ist, als dass Modelle für Festkörper verwendet werden könnten, da diese Modelle mit der Annahme $T = 0\text{ K}$ arbeiten. Durch die hohe Dichte nimmt der Abstand der Teilchen immer weiter ab und die repulsiven Wechselwirkungen der Teilchen untereinander nehmen zu. Für den mittleren Teilchenabstand d_a der Atome und d_e der Elektronen gilt näherungsweise:

$$d_a \approx \frac{1}{(n_a)} \quad d_e \approx \frac{1}{(n_e)} \quad (2.4)$$

In dichten Plasmen liegt diese in der Größenordnung der thermischen de-Broglie-Wellenlänge Λ_e :

$$\Lambda_e = \left(\frac{2\pi\hbar^2}{m_e k_B T} \right)^{1/2} = \frac{2\pi\hbar}{\sqrt{2\pi m_e k_B T}} \quad (2.5)$$

mit T der Temperatur des Systems. Diese Länge stellt die Reichweite des Pauli-Prinzips dar, ab der der Quantencharakter der Plasmateilchen nicht mehr vernachlässigt werden kann. Mit der Kombination aus der Elektronendichte und der thermischen Wellenlänge kann abgeschätzt werden, welche Modelle für die Beschreibung des Plasmas geeignet sind.

$$n_e \Lambda_e^3 = n_e \left(\frac{2\pi\hbar^2}{m_e k_B T} \right)^{3/2} \quad (2.6)$$

- $n_e \Lambda_e^3 \ll 1$: Es handelt sich um ein nicht entartetes Plasma im klassischen Gleichgewicht.
- $n_e \Lambda_e^3 \geq 1$: Die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Elektronen-Wellenfunktionen überlappen [Kremp 2005]. Die Elektronen sind ununterscheidbar und Entartungseffekte³ können nicht vernachlässigt werden.
- $n_e \Lambda_e^3 > 10$: Es handelt sich dabei um ein stark entartetes Plasma, für das ein vollständig entartetes Elektronengas angenommen werden kann.

Im WDM Bereich gilt in etwa $n_e \Lambda_e^3 \approx 1$. Dabei überlappen sich die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Elektronen und es muss die Ununterscheidbarkeit der Plasmateilchen berücksichtigt werden. Damit ist die Beschreibung von WDM kompliziert, da beide Modelle für nicht entartete und stark entartete Plasmen nicht direkt oder einzeln anwendbar sind. Eine andere Möglichkeit der Abgrenzung bietet der Kopplungsparameter Γ , der das Verhältnis der Coulomb-Energie E_{pot} von zwei geladenen Teilchen mit Abstand d_{ab} mit der thermischen Energie E_{therm} wiedergibt [Ichimaru 1982]. Wird dabei

$$d_{\text{ab}} = \left(\frac{3(Z_a Z_b)^{1/2}}{4\pi n_e} \right)^{1/3} \quad (2.7)$$

der Wigner-Seitz-Radius verwendet, ergibt sich für die Kopplung:

$$\Gamma_{\text{ab}} = \frac{E_{\text{pot}}}{E_{\text{therm}}} = \frac{Z_a Z_b e_0^2}{4\pi\epsilon_0 d_{\text{ab}} k_B T_{\text{ab}}} \quad (2.8)$$

Hierbei geben a und b die Teilchenarten an und T_{ab} ist die effektive Wechselwirkungstemperatur. Dabei skaliert der Abstand d_{ab} zur Dichte n mit $d_{\text{ab}} \propto n^{-1/3}$, womit die Grenze zwischen schwach und stark gekoppelten Plasmen mit $T \propto n^{1/3}$ skaliert. Anschaulich erklärt ist die Zahl der freien Elektronen in einer Debye-Kugel für ein stark gekoppeltes Plasma viel kleiner als in einem schwach gekoppelten Plasma. Bei $\Gamma < 1$ handelt es sich um schwach gekoppelte Plasmen, bei denen die Coulombwechselwirkung nur eine untergeordnete Rolle gegenüber der thermischen Bewegung spielt. Für $\Gamma \ll 1$ ähnelt das Verhalten des Plasmas immer mehr dem eines idealen Gases. Ist $\Gamma > 1$, steigen die Wechselwirkungen der Teilchen untereinander stark an. Für den Bereich der WDM ist $\Gamma_{ee} \approx 1$. In diesem Zustand sind die Elektronen nur

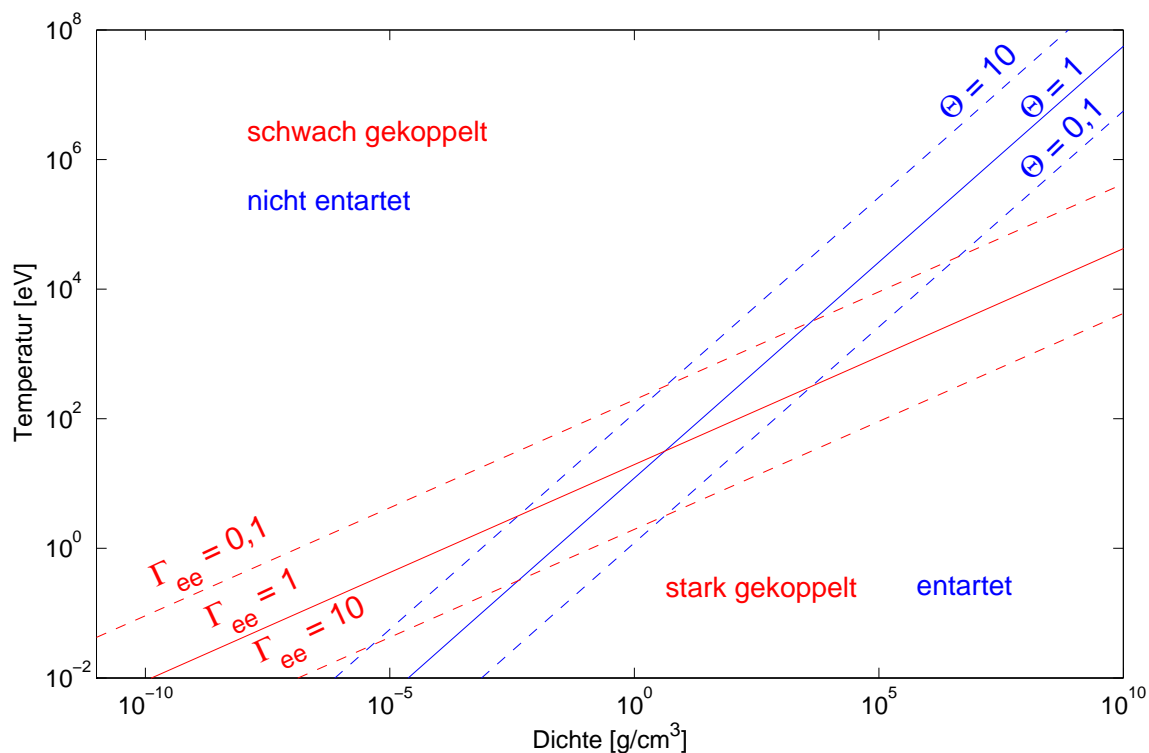


Abbildung 2.3.: Dargestellt sind der Kopplungsparameter zur Unterscheidung von stark- und schwachgekoppelten Plasmen und die Entartung des Plasmas. Die Geraden entsprechen den Gleichungen 2.3 und 2.8 für ein reines Wasserstoffplasma.

leicht gekoppelt, aber die Coulombwechselwirkung kann nicht mehr vernachlässigt werden. In Abbildung 2.3 sind verschiedene Plasma-Regimes dargestellt.

Nach der vorgenommenen Abgrenzung der WDM von anderen Zuständen, wird jetzt auf die Herausforderungen und die Problematiken beim Umgang mit WDM eingegangen. Messungen an WDM sind aufgrund der meist nur kurzzeitig zur Verfügung stehenden Proben komplex. Zusätzlich ist die Präparation von homogenen Proben eine weitere Herausforderung. Dabei sind die Proben undurchsichtig für optisches Licht, weshalb auf Röntgenstrahlung oder Teilchenstrahlung zurückgegriffen werden, um diese in ihrem Inneren zu untersuchen. Ein typisches Instrument für die Plasmacharakterisierung bietet die optische Emissionsspektroskopie. Diese Technik ist eingeschränkt auf die Bestimmung von Oberflächenparametern im Fall der WDM. Die momentan beste theoretische Beschreibung von WDM gelingt mit *first principles* oder *ab-initio* Methoden. Diese Ansätze starten direkt bei den Grundlagen der Physik und es bedarf keiner weiteren Annahmen, wie empirischen Modellen oder ein erweitertes Setzen von Anpassungsparametern. Dabei werden für kondensierte Materie nur die Wechselwirkungen zwischen jedem Teilchen betrachtet und die Arten der Wechselwirkungen sind bekannt. Das Problem ist die Anzahl an zu berücksichtigenden Teilchen, die diese Art von Simulationen sehr rechenintensiv macht. Aus diesem Grund können keine Parameterstudien durchgeführt werden.

Der im Experimententeil dieser Arbeit untersuchte Kohlenstoff, mit einer Temperatur von etwa 10 000 K und Dichten im Festkörperbereich, befindet sich im Parameterbereich der WDM, in dem die klassischen Beschreibungen nicht greifen und neue Ansätze für die Beschreibung entwickelt werden müssen. Um diese Modelle zu verbessern und zu vergleichen, sind Messungen am Material unter diesen Bedingungen unabdingbar. Hierfür bietet sich Kohlenstoff an, da es eine niedrige Ordnungszahl und damit wenige Elektronen hat. Dadurch ist eine Betrachtung mittels Simulationen möglich und öffnet den Weg für die Untersuchung weiterer schwererer Elemente. Es ist ein Material, dessen Anwendungen im Bereich der WDM in naher Zukunft greifbar werden und deshalb Wissen über sein Verhalten in den nächsten Jahren von Bedeutung sein wird. Die experimentelle Untersuchung von Vorgängen und Strukturen im Inneren von Materie ist bei diesen Bedingungen schwierig. Eine Möglichkeit zur Untersuchung bietet dafür die Röntgen-Thomson-Streuung Technik, diese wird in Abschnitt 5 beschrieben.

³ Siehe entartete Materie, bei der aufgrund des Pauli-Prinzips zwei Fermionen nicht den gleichen Quantenzustand belegen können und zu einem Entartungsdruck führt, der dem Gravitationsdruck entgegen wirkt.

3 Radiale Verteilungsfunktion und statischer Strukturfaktor

Im Bereich der WDM liegen die Dichten in der Größenordnung von Festkörpern. Bei diesen Dichten können die Atome größere Strukturen bilden oder aneinander gedrückt werden. Diese Systeme zeigen dann ein Verhalten der Teilchen untereinander, die als geordnete und ungeordnete Systeme beschrieben werden können. Sehr geordnete Strukturen liegen bei Kristallen vor, in denen sich die Strukturen über makroskopische Distanzen immer wiederholen und gleich bleiben. In diesem Fall wird von einer Fernordnung gesprochen. In Flüssigkeiten gibt es keine weitreichende Ordnung (siehe Abbildung 2.4), damit kann durch die Ordnung eines Systems etwas über dessen Zustand und der vorliegenden Phase ausgesagt werden.

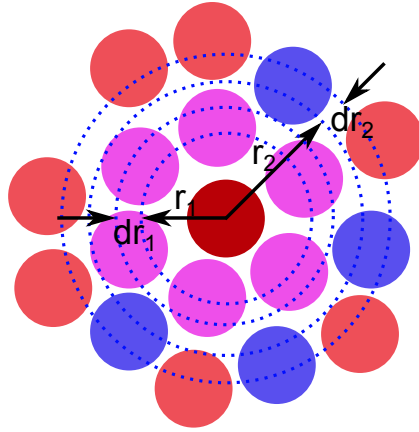


Abbildung 2.4.: Darstellung der Nahordnung in einem flüssigen System. Die Nahordnung besteht hier aus einem Ring $r_1 + dr_1$ aus Atomen (magenta) um das Zentralatom (rot), während sich in der zweiten Reihe mit dem Ring $r_2 + dr_2$ nur noch eine sehr geringe Ordnung bezogen auf das Zentralatom ergibt und wenige Atome (blau) zentral in dr_2 enthalten sind. Die aus dieser Nahordnung resultierende Verteilungsfunktion entspricht in etwa der in Abbildung 2.5 dargestellten Funktion für $\Gamma = 174$.

Um etwas über die Ordnung herauszufinden, werden die Abstände zwischen zwei Teilchen verglichen. Für ein System aus N identischen Teilchen im Volumen V , von denen nur n Teilchen betrachtet werden, während die restlichen $N - n$ Teilchen keinen Beschränkungen unterliegen, ergibt sich die radiale Verteilungsfunktion zu:

$$g^{(n)}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n) = \frac{V^n N!}{N^n (N-n)!} \cdot \frac{1}{Z_N} \int \dots \int e^{-\beta U_N} d\mathbf{r}_{n+1} \dots d\mathbf{r}_N \quad (2.9)$$

mit U_N der potenziellen Energie, $\beta = 1/(k_B T)$, \mathbf{r}_i mit $i = 1, \dots, N$ Positionen der N Teilchen und Z_N der Zustandssumme. Die Zahl der direkt betrachteten Atome n gibt auch die Ordnung der Korrelationsfunktion oder der N -Punkt-Wahrscheinlichkeitsdichte wieder. Von besonderer Bedeutung ist die 2-Punkt-Wahrscheinlichkeitsdichte ($n = 2$) $g^{(2)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$. Die Paarverteilungsfunktion hängt für kugelförmige Teilchen nur vom Abstand zwischen \mathbf{r}_1 und \mathbf{r}_2 ab und wird dann auch radiale Verteilungsfunktion genannt. Die Wahrscheinlichkeit nun ein Teilchen am Ort \mathbf{r}_n zu finden, wenn sich am Ort \mathbf{r}_1 ein Teilchen befindet, ergibt sich aus:

$$g(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_n) = g(\mathbf{r}) = \frac{1}{\rho_{TV}} \left\langle \sum_{n=2}^N \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_n) \right\rangle = \frac{V(N-1)}{N} \langle \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1) \rangle \quad (2.10)$$

mit δ der Dirac'schen Delta-Funktion, $\langle \dots \rangle$ dem Ensemble-Mittelwert, ρ_{TV} der durchschnittlichen Teilchenzahl pro Volumen ($\rho_{TV} = N/V$) und $\mathbf{r} = \mathbf{r}_n - \mathbf{r}_1$.

In Abbildung 2.5 ist die Paarverteilungsfunktion von Systemen mit verschiedener Ordnung gezeigt. Dabei zeichnen sich Kristallsysteme durch eine Fernordnung aus, die durch die Periodizität des Kristallgitters gegeben ist, in der in definierten Abständen immer ein Teilchen zu finden ist und nur dort $g(\mathbf{r}) \neq 0$ ist. Aufgrund der Nahordnung in einer Flüssigkeit wird der Wert der Paarverteilungsfunktion $g(\mathbf{r})$ für größere Abstände immer kleiner und es gilt $g(\mathbf{r}) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} 1$. Wird ein gewisser Abstand unterschritten, geht der Wert für $g(\mathbf{r})$ gegen Null, da dieser vom Teilchen selbst eingenommen wird.

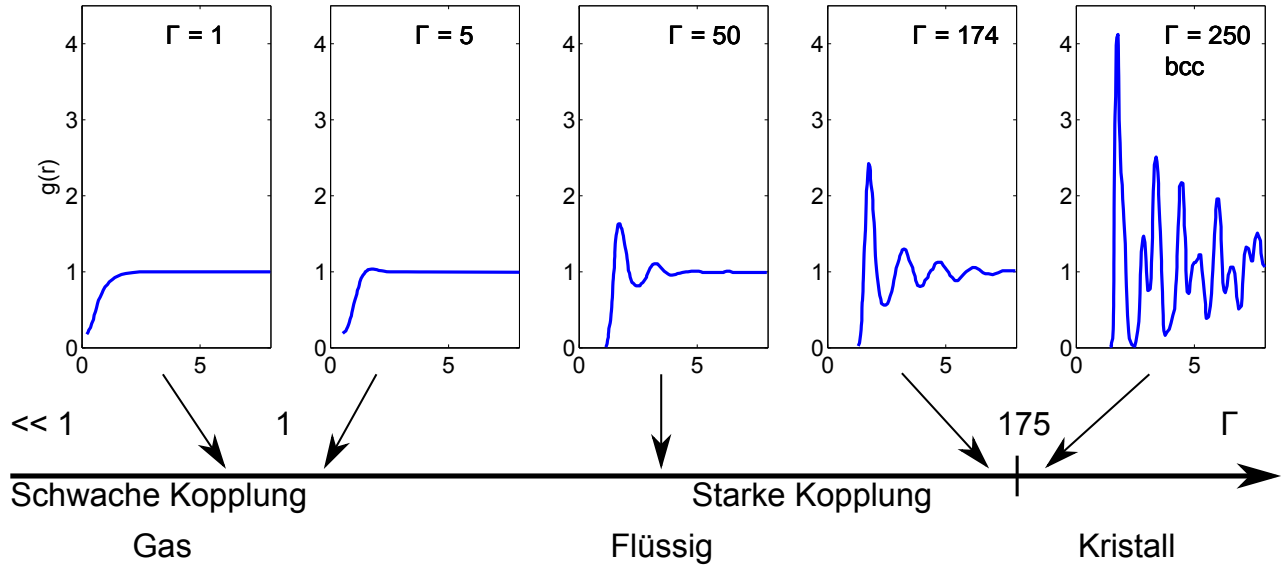


Abbildung 2.5.: Gezeigt ist die radiale Verteilungsfunktion für verschiedene Kopplungsparameter, nachempfunden aus [Ma 2014]. $\Gamma = 174$ kann mit Abbildung 2.4 verglichen werden.

Für ein gegebenes Wechselwirkungspotenzial kann die radiale Verteilungsfunktion berechnet werden. Ansätze dafür bieten Monte-Carlo-Methoden oder die Ornstein-Zernike-Gleichung unter der Verwendung von Näherungen, wie der Percus-Yevick-Näherung oder der Hypernetted-Chain-Theorie (HCT) [Wünsch 2011]. Das Problem bei der Betrachtung von WDM ist, dass die Wechselwirkungspotenziale für Materie unter diesen Bedingungen nicht bekannt sind. Aus der radialen Verteilungsfunktion kann im nächsten Schritt mittels Fouriertransformation der Strukturfaktor bestimmt werden. Der Strukturfaktor ist eine mathematische Beschreibung dafür, wie ein Material einfallende Strahlung streut. Der statische Strukturfaktor ist $S(\mathbf{k}) = 1/N \left\langle \sum_{i \neq j=1}^N \exp(-i\mathbf{k}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)) \right\rangle$ und kann geschrieben werden als

$$S(\mathbf{k}) = 1 + \frac{1}{N} \left\langle \sum_{i \neq j=1}^N e^{-i\mathbf{k}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} \right\rangle = 1 + \frac{1}{N} \left\langle \int_V e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} \sum_{i \neq j=1}^N \delta[\mathbf{r} - (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)] d\mathbf{r} \right\rangle \quad (2.11)$$

$$= 1 + \frac{N(N-1)}{N} \int_V e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} \langle \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1) \rangle d\mathbf{r} \quad (2.12)$$

mit Gleichung 2.10 ergibt sich für ein isotropes Material

$$S(\mathbf{k}) = 1 + \rho_{TV} \int_V e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} g(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (2.13)$$

mit $\mathbf{r} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$ und ρ_{TV} der Teilchenzahl pro Volumen. Dies zeigt, dass der Strukturfaktor die Fouriertransformation der radialen Verteilungsfunktion ist [Reichl 2004]. Diese Gleichung ist in dieser Form nur im Sinne von Distributionen richtig. Ist $g(\mathbf{r})$ nicht normalisiert ($g(\mathbf{r}) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} 1$), dann divergiert $\int_V g(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$ und führt zu einem Dirac-Peak im Ursprung für den Strukturfaktor. Da dieser Beitrag experimentell nicht zugänglich ist, kann er von der Gleichung abgezogen werden und der Strukturfaktor als eine reguläre Funktion definiert werden.

$$S'(\mathbf{k}) = S(\mathbf{k}) - \rho_{TV} \delta(\mathbf{k}) = 1 + \rho_{TV} \int_V e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} [g(\mathbf{r}) - 1] d\mathbf{r} \quad (2.14)$$

Durch Umbenennen dieser Gleichung zu $S(\mathbf{k}) \equiv S'(\mathbf{k})$ ergibt sich der Strukturfaktor. Der Strukturfaktor kann experimentell durch Röntgenstreuung [Gregori 2004] oder auch mit Neutronenstreuung [Lovesey 1984] bestimmt werden. Durch Messung des Strukturfaktors lässt sich eine Aussage über die Ordnung im System treffen und die Form, in welcher das Material vorliegt. Der Vorteil ist, dass somit Informationen über das Innere von Proben gewonnen werden können, bei denen das sonst nicht möglich wäre, wie im Bereich der WDM.

4 Photon-Materie-Wechselwirkungen

Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit den resultierenden Effekten durch die Wechselwirkungen von Photonen mit Materie. In dieser Arbeit werden Lasersysteme für die Erzeugung der WDM Proben und im ersten Experiment auch zur Erzeugung der Röntgenstrahlung für die Röntgenstreuung verwendet. Bei beiden Prozessen wechselwirken Photonen erst mit Festkörpern und dann mit dem erzeugten Plasma. Im zweiten Experiment sind die Photonen von einem Freielektronen-Laser (Free-Electron-Laser, FEL, siehe Abschnitt 4.2.2) erzeugt worden, die dann für die Röntgenstreuung genutzt wurden. Dabei wurden für die Erzeugung der WDM Laserintensitäten von 10^{13} W/cm² und für die Röntgenerzeugung Laserintensitäten von 10^{17} W/cm² verwendet [Kritcher 2007]. Um ein Plasma auf einer Oberfläche zu zünden, werden zum Vergleich mindestens Intensitäten von 10^9 W/cm² benötigt [Mulser 2010].

Trifft ein Photon auf ein Medium, dringt es in dieses ein. Die Eindringtiefe hängt dabei von der Photonenenergie und dem Material ab. Diese beiden Eigenschaften haben Einfluss auf den Absorptionskoeffizienten. Beim Durchlaufen der Photonen durch das Material werden dementsprechend immer mehr Photonen absorbiert und es erfolgt ein exponentieller Abfall der Intensität. Die Abschwächung einer Strahlung beim Durchlaufen einer Distanz x ergibt sich zu:

$$I(x) = I_0 e^{-\int_0^x \mu(x') dx'} \quad (2.15)$$

mit I_0 der Anfangsintensität und μ dem Absorptionskoeffizienten. Dabei sind, abhängig von der Photonenenergie, verschiedene Streuprozesse von Bedeutung, die für den Absorptionskoeffizienten verantwortlich sind, da diese energieabhängige Wirkungsquerschnitte haben. Ist der Energieeintrag durch die Photonen groß genug, entsteht zuerst an der Materialoberfläche ein Plasma. In Plasmen können Photonen nur bis in Bereiche eindringen, in denen die freie Elektronendichte unterhalb der kritischen Dichte n_{crit} liegt. Für die kritische Dichte gilt:

$$n_{\text{crit}} = \frac{\omega_L^2 m_e \epsilon_0}{e_0^2} = \frac{1,1 \times 10^{27}}{(\lambda_L/\text{nm})^2} \text{cm}^{-3} \quad (2.16)$$

mit ω_L der Laserfrequenz, λ_L der Laserwellenlänge, m_e der Elektronenmasse und ϵ_0 der Dielektrizitätskonstanten. An der kritischen Dichte werden die Photonen reflektiert oder absorbiert [Eliezer 2002]. Die Photonenfrequenz entspricht dort der Plasmafrequenz der Elektronen. Abhängig von der Intensität der einfallenden Photonen können diese damit eine Schockwelle oder eine Röntgenquelle induzieren. Dabei wird im Folgenden zuerst auf die Theorie von Schockwellen eingegangen und im Anschluss auf die Röntgenerzeugung.

4.1 Schockwellen

Die in dieser Arbeit untersuchten WDM Proben wurden durch eine Schockwelle im Kohlenstoff erzeugt. Dabei wird das Material zusammengepresst, womit die Dichte erhöht wird. Zeitgleich steigt die Entropie im Material, womit es zu einer Temperaturerhöhung im Material kommt. Wird die Kompressibilität von Materie im Allgemeinen betrachtet, ist diese stark abhängig von der Phase. Der große Unterschied zwischen Gasen, Flüssigkeiten und Festkörpern ist, dass die beiden Letztgenannten nur sehr schwer zu komprimieren sind. Dies liegt an den starken repulsiven Kräften zwischen den Atomen, wenn versucht wird, diese näher aneinander zu schieben. Dabei tritt eine nennenswerte Kompression erst ab Drücken von größer als 100 GPa auf. Bei den in diesen Experimenten erreichten Drücken zwischen 100 GPa und 200 GPa geht die Energie des Schocks in etwa zu gleichen Teilen in die kalte Kompression zum Überwinden der repulsiven Kräfte der Atome und in thermische Energie über [Zeldovic 1966].

In den folgenden Abbildungen und der folgenden Betrachtung verläuft die Schockrichtung immer von links nach rechts. In Abbildung 2.6 links ist eine Schockwelle schematisch dargestellt, in der der Schock für den Betrachter ruht⁴ und das Material von rechts nach links in die Diskontinuität gelangt, während in der mittleren Abbildung der Beobachter die Bewegung der Schockwelle von außen beobachtet und diese von links nach rechts läuft. Dabei wird im Laborsystem ν für die Geschwindigkeit genutzt und in dem der Schockfront u . Weiter beschreibt der Index 0, dass das Material ungestört ist und der Index 1 verweist auf das geschockte Material. Eine Schockwelle zeichnet sich dadurch aus, dass sich eine Dichteänderung im Material mit Überschallgeschwindigkeit ins ungestörte Material ausbreitet und die Zeit T_s , die es für die Kompression braucht, kurz im Vergleich zu der Zeit ist, für die der hohe Druck und die Dichte existieren. Die Anstiegszeit T_s beschreibt dabei die Zeit, die es braucht, bis das ungestörte Material maximal komprimiert ist (siehe Abbildung 2.6). Hinter der Schockfront, im geschockten Material, ist die Schallgeschwindigkeit höher und die Schockfront bewegt sich für diese Materialbedingungen mit Unterschallgeschwindigkeit.

⁴ Dies wird in der englischen Literatur als der „Shock-Frame“ bezeichnet.

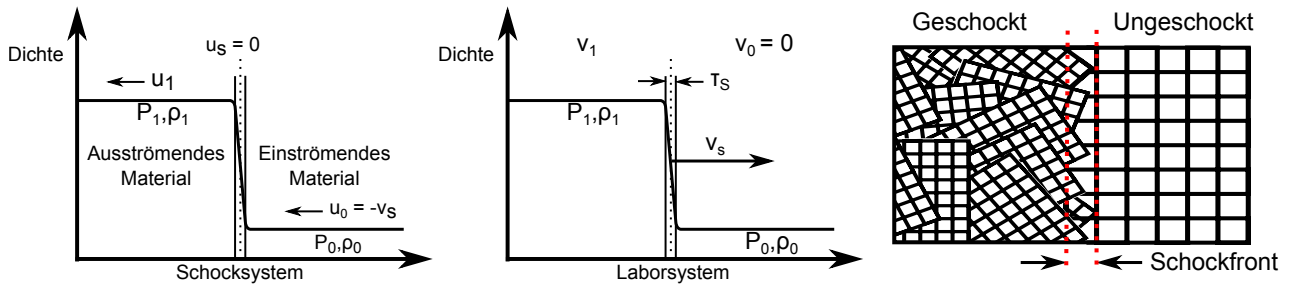


Abbildung 2.6.: Links: Das Schocksystem bewegt sich mit dem Schock. Dabei ist $u_0 = 0$, $u_1 < 0$ und es gilt $u_0 = -v_s$ mit v_s der Schockgeschwindigkeit. Mitte: Laborsystem in dem der Beobachter ruht und die Schockwelle sich bewegt. Die Anstiegszeit der Dichteänderung ist mit T_s angegeben. Rechts: Darstellung der Materialänderung, die durch ein Schock verursacht wird.

Schockwellen für die Kompression können getrieben werden durch Explosionen, Flyer-Plates⁵ oder durch den Ablationsdruck eines lasererzeugten Plasmas. Die folgenden Betrachtungen werden im Eindimensionalen durchgeführt. Damit diese Annahme für die Betrachtung im Experiment gelten kann, muss die Fläche des zu schockenden Materials groß sein im Verhältnis zur Dicke der Probe.

Für die Beschreibung wird zuerst auf die Hugoniot-Gleichungen eingegangen, über die die Bedingungen vor und hinter der Schockfront miteinander verbunden sind. Im nächsten Schritt wird das Verhalten von Schockwellen an Grenzflächen betrachtet und wie diese sich fortsetzen. Dies ist von Bedeutung für das Lösen der Hugoniot-Gleichung durch im Experiment zugängliche Parameter. Die durch Folgen der Hugoniot-Kurve erreichbaren Endzustände im Phasendiagramm und damit die Möglichkeiten der Untersuchung des Phasenübergangs sind begrenzt. Um den möglichen Bereich der Endzustände zu erweitern, wird auf die Kompression von porösen Materialien, welche dies erlauben und auf die schockwelleninduzierte Phasenänderung eingegangen. Abgeschlossen wird das Kapitel mit der Erzeugung von lasergetriebenen Schockwellen und deren Aufbau.

4.1.1 Hugoniot-Gleichungen

Der Schockprozess wird durch die Euler-Fluidgleichungen⁶ beschrieben, wobei der Massen-, Impuls- und Energieerhalt berücksichtigt wird [Drake 2006]. Im Folgenden sind diese in allgemeiner Form und für den eindimensionalen Fall angegeben:

$$\text{Masse} \quad \frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) \quad \xrightarrow{1D} \quad \frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x}(\rho v) \quad (2.17)$$

$$\text{Impuls} \quad \rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \rho(\mathbf{v} \cdot \nabla)\mathbf{v} = -\nabla P \quad \xrightarrow{1D} \quad \rho \frac{\partial v}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x} P v^2 - \frac{\partial}{\partial x} P \quad (2.18)$$

$$\text{Energie} \quad \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\rho v^2}{2} + \rho E \right) = -\nabla \cdot \left[\rho v \left(E + \frac{v^2}{2} \right) + P v \right] \quad \xrightarrow{1D} \quad (2.19)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\rho v^2}{2} + \rho E \right) = -\frac{\partial}{\partial x} \left[\rho v \left(E + \frac{v^2}{2} \right) + P v \right]. \quad (2.20)$$

Dabei ist v die Fluidgeschwindigkeit, ρ die Dichte, P der Druck und E die spezifische innere Energie. In Abbildung 2.6 ist der Schock im Laborsystem und im sich mit der Schockfront bewegenden System dargestellt.

Im Folgenden wird eine 1D Schockwelle betrachtet, die durch ein ungestörtes Material ($v_0 = 0$) läuft, mit Dichte ρ_0 , Druck P_0 und der Geschwindigkeit der Schockfront v_s . Für eine Schockwelle ist entscheidend, dass die Schockgeschwindigkeit größer sein muss als die Schallgeschwindigkeit im ungestörten Material, da sonst keine stabile Lösung der Euler-Gleichung vorliegt. Hinter der Schockfront hat das Material die Dichte ρ_1 und den Druck P_1 . Dabei bewegt sich das Material mit der Teilchengeschwindigkeit $v_p = v_1$, die geringer ist als die Schockgeschwindigkeit v_s . Für eine

⁵ Bei einer Flyer-Plate handelt es sich um eine Platte, die mit großer Geschwindigkeit auf ein Objekt trifft und dadurch eine Schockwelle auslöst.

⁶ Mathematisches Modell für die Betrachtung von Strömungen in reibungsfreien und elastischen Fluiden.

vereinfachte Betrachtung der thermodynamischen Bedingungen im geschockten und ungeschockten Material werden die Geschwindigkeiten in das Koordinatensystem transformiert, in dem der Beobachter sich mit der Schockfront bewegt. In diesem System bedeutet dies für die Gleichungen 2.17 bis 2.19, dass diese in jedem Punkt Null sind. Für die Transformation zwischen diesen beiden Systemen gilt:

$$u_0 = v_0 - v_s \quad u_1 = v_1 - v_s \quad (2.21)$$

Bei dieser Betrachtungsweise bewegt sich das ungestörte Material mit der Geschwindigkeit $u_0 = -v_s$ in die Diskontinuität (Schockfront) hinein und bewegt sich danach instantan mit der Geschwindigkeit $u_1 = -(v_s - v_1)$ weiter. Dabei sind die Massen, Impulse und Energieströme vor und hinter der Schockfront gleich. Das gesamte Material, das in die Diskontinuität läuft, verlässt diese auch wieder. Diese Zusammenhänge führen direkt zu den sogenannten Rankine-Hugoniot-Gleichungen, welche die thermodynamischen Parameter vor und hinter der Schockfront verbinden. Im Folgenden sind die Rankine-Hugoniot-Gleichung im System der Schockfront dargestellt. Für das Laborsystem müssen u_0 und u_1 durch die Transformation in Gleichung 2.21 ersetzt werden.

$$\rho_0 u_0 = \rho_1 u_1 \quad (2.22)$$

$$\rho_0 u_0^2 + P_0 = \rho_1 u_1^2 + P_1 \quad (2.23)$$

$$\rho_0 u_0 \left(E_0 + \frac{1}{2} u_0^2 + \frac{P_0}{\rho_0} \right) = \rho_1 u_1 \left(E_1 + \frac{1}{2} u_1^2 + \frac{P_1}{\rho_1} \right) \quad (2.24)$$

Mit den Gleichungen 2.22, 2.23 und der Transformation 2.21 ergeben sich die allgemeinen Gleichungen:

$$\frac{u_0}{u_1} = \frac{\rho_1}{\rho_0} \equiv \frac{V_0}{V_1} \quad V_x \equiv \frac{1}{\rho_x} \quad (2.25)$$

$$|v_s| = V_0 \left(\frac{P_1 - P_0}{V_0 - V_1} \right)^{1/2} = u_0 \quad u_1 = V_1 \left(\frac{P_1 - P_0}{V_0 - V_1} \right)^{1/2} \quad (2.26)$$

$$|v_p| = u_0 - u_1 = [(P_1 - P_0)(V_0 - V_1)]^{1/2} \quad (2.27)$$

Durch Substitution von u_0 und u_1 in Gleichung 2.24 wird eine Gleichung definiert, die alle thermodynamischen Zustände, welche durch Schockkompression erreicht werden können, erfasst:

$$E_1(V_1, P_1) - E_0(V_0, P_0) = \frac{1}{2}(P_1 + P_0)(V_0 - V_1) \quad (2.28)$$

mit E_0 und E_1 der spezifischen inneren Energie des Materials vor und nach dem Schock. Das thermodynamische Verhalten $E(V, P)$ ist die Zustandsgleichung des Materials. Durch Kenntnis von $E(V, P)$ kann ein Graph $P_1 = P_1(V_1, V_0, P_0)$ bestimmt werden, dessen Kurve als die Hugoniot-Kurve bezeichnet wird. Im Unterschied zu den Fällen einer Isentropen⁷ oder Isothermen⁸, in denen die Kompression entlang eines thermodynamischen Pfads erfolgt, beschreibt die Hugoniot-Kurve alle möglichen erreichbaren Zustände. Die erreichbaren Schockzustände (V_1, P_1) können nicht sukzessiv durch einen Schockprozess angefahren werden. Sie zeigt die möglichen Kompressionen für einen gegebenen Anfangszustand (V_0, P_0) an. Die Verbindungslinie zwischen den Zuständen (V_0, P_0) und (V_1, P_1) wird Rayleigh-Linie genannt (siehe Abbildung 2.9). Der Faktor 1/2 in Gleichung 2.28 zeigt, dass etwa die Hälfte der Kompressionsenergie in die interne Energie und die andere Hälfte in die Beschleunigung des Materials auf v_1 geht. Bei der Betrachtung verschiedener Kompressionsarten (siehe Abbildung 2.7) ist zu erkennen, dass bei gleichem Druck die Kompression für eine Isentrope höher ist als für die Hugoniot-Kurve und die höchste Kompression mit einer Isothermen erreicht wird.

Die Hugoniot-Gleichungen werden benutzt, um den Zustand des komprimierten Materials hinter der Schockfront zu bestimmen. Unter der Annahme, dass die Parameter E_0, v_0, P_0 und ρ_0 des Anfangszustandes bekannt sind, gibt es für dieses System fünf unbekannte Parameter E_1, v_p, P_1, ρ_1 und v_s . Mit den drei Gleichungen 2.22 - 2.24 bleiben zwei Parameter, die bestimmt werden müssen. Der einfachste zu bestimmende freie Parameter ist die Schockgeschwindigkeit v_s . Diese kann durch einfaches Messen der Durchlaufzeit der Schockwelle durch die Probe bei bekannter Dicke

⁷ Schnelle Kompression ohne einen Energieaustausch mit der Umgebung, dabei gilt: $pV^\kappa = \text{const.}$

⁸ Langsame Kompression im Temperaturgleichgewicht mit der Umgebung, dabei gilt: $pV = \text{const.}$

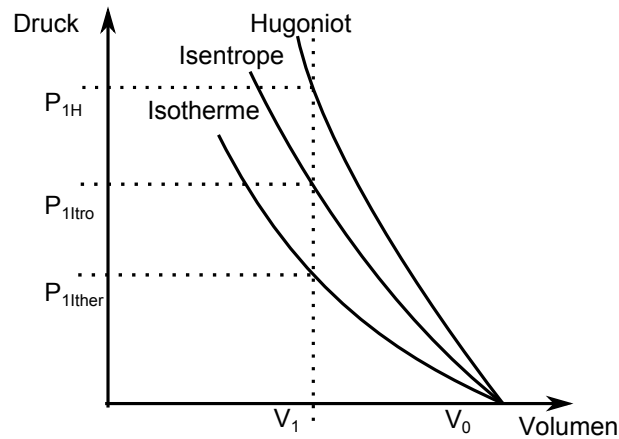


Abbildung 2.7.: Dargestellt sind die Kompressionskurven von Druck über Volumen mit gleichem Ausgangspunkt. Die Kurven zeigen den thermodynamischen Pfad für eine isotherme und eine isentrope Kompression an. Die Hugoniot-Kurve zeigt, welches Volumen und welcher Druck erreichbar sind. Dies ist kein thermodynamischer Pfad, der von einem Punkt zum nächsten führt, sondern die Summe der erreichbaren Punkte.

bestimmt werden. Die Teilchengeschwindigkeit ist für Drücke unterhalb von 300 GPa in etwa linear mit der freien Oberflächengeschwindigkeit v_{FS} des Schockausbruches verknüpft⁹ [Benuzzi 2002] und wird als „doubling rule“ bezeichnet [Zeldovic 1966, Eliezer 2002]. Dies ist allerdings nur eine grobe Abschätzung für die Teilchengeschwindigkeit mit

$$v_{FS} \approx 2v_p. \quad (2.29)$$

Damit wären zwei Parameter bestimmt und die Rankine-Hugoniot-Gleichungen können gelöst werden, um einen Punkt im Druck-Dichte-Phasendiagramm zu bestimmen. Eine bessere Methode zur Bestimmung der Teilchengeschwindigkeit besteht darin, diese zu messen. Dafür kann an die zu untersuchende Probe ein transparentes Material angebracht werden, in das sich die Schockwelle weiter ausbreiten kann. In diesem Material kann, unter Berücksichtigung der Impedanz, die Teilchengeschwindigkeit mittels eines Geschwindigkeits-Interferometer-System für jede Oberfläche (Velocity Interferometer System for Any Reflector, VISAR)-Systems gemessen werden. Die Bestimmung der Teilchengeschwindigkeit wurde im RAL Experiment durch den Vergleich mit Messungen von W. H. Gust und M. van Thiel durchgeführt, während für das LCLS Experiment ein VISAR-System zur Verfügung stand. Zusätzlich bestand am LCLS die Möglichkeit der Messung von Debye-Scherrer-Ringen, womit ein einfaches Bestimmen der Dichte im komprimierten Zustand möglich war und damit zwei Parameter zum Lösen der Hugoniot-Gleichungen bekannt sind.

4.1.2 Schockgrenzflächen und Impedanz

Für das Bestimmen der Teilchengeschwindigkeit durch das Fortsetzen der Schockwelle in ein anderes Material muss der Übergang der Schockwelle an dieser Grenze genauer betrachtet werden. Trifft die Schockwelle auf eine Grenzschicht aus einem Material A und einem weiteren Material B, setzt diese sich darin fort und wird zum Teil reflektiert (siehe Abbildung 2.8). Welcher Prozess der Wechselwirkung der Schockwelle an der Grenzfläche erfolgt, hängt von den Impedanzen Z der beteiligten Materialien ab. Die Impedanz gibt an, welchen *Widerstand* ein Material einer Schockwelle entgegensetzt. Die Impedanzen der Materialien A und B ergeben sich durch die Anfangsdichten und den Schockgeschwindigkeiten in den Materialien mit $Z_A = \rho_{0,A} v_{s,A}$ und $Z_B = \rho_{0,B} v_{s,B}$. Ist $Z_A > Z_B$, läuft eine Verdünnungswelle in A, während im Fall $Z_A < Z_B$ die Schockwelle an der Grenzschicht reflektiert wird. In beiden Fällen setzt sich eine Schockwelle im Material B fort. Die Hugoniot-Kurve kann neben der Druck-Volumen-Darstellung wie in Abbildung 2.7 auch im Druck-Teilchengeschwindigkeits-Diagramm dargestellt werden (siehe Abbildung 2.9). Abgebildet ist der Fall $Z_A > Z_B$, in welchem der Druck und die Teilchengeschwindigkeit im Material B mit dem Punkt B angegeben ist, der sich aus der Hugoniot-Kurve H_A im Material A und dessen Spiegelung (RH) ergibt. Der Punkt A beschreibt den Punkt, in dem die Schockwelle die Grenze erreicht, aber noch nicht mit dem nächsten Material in Wechselwirkung getreten ist. Der Verlauf der Hugoniot-Kurve kann für die Betrachtung an der Grenzfläche gespiegelt werden, wenn die Impedanzen von den Materialien A und B sehr ähnlich sind. In diesem Fall wird von „impedance matching“ gesprochen [Eliezer 2002]. Wobei im Druck-Teilchengeschwindigkeits-Diagramm die Grenzfläche durch den Punkt $v_{p,A}$ gegeben ist. Die reflektierten Kurven

⁹ Die freie Oberflächengeschwindigkeit bezeichnet die Geschwindigkeit der Teilchen, mit der sich die Probenrückseite löst, wenn die Schockwelle diese erreicht.

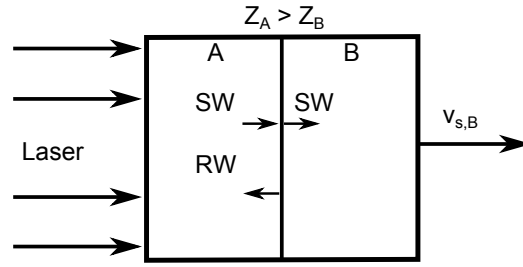


Abbildung 2.8.: Eine Schockwelle (SW) bewegt sich in einem Material A mit einer Impedanz Z_A und trifft auf eine Grenzfläche zu einem Material B mit einer geringeren Impedanz Z_B . Beim Passieren der Grenzfläche entsteht eine Verdünnungswelle (RW), die zurückreflektiert wird, während sich die Schockwelle mit der Geschwindigkeit $v_{s,B}$ in Material B fortsetzt.

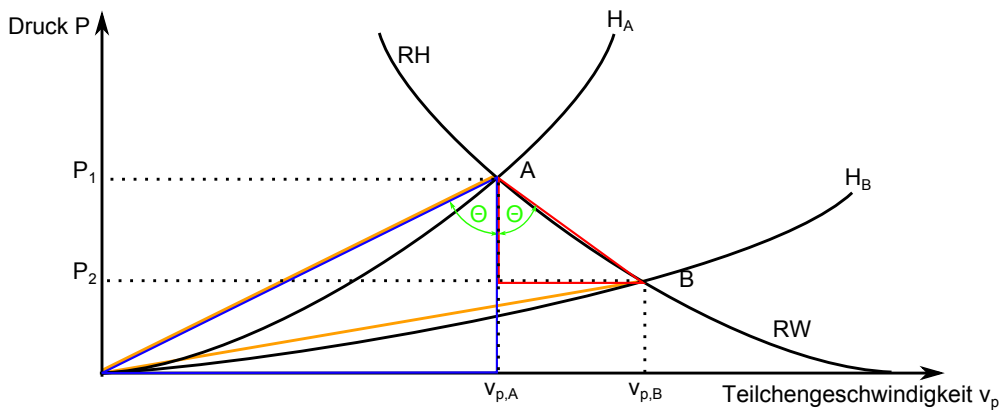


Abbildung 2.9.: Hugoniot-Kurven für Schockwellen in Material A (H_A) und B (H_B). Zusätzlich ist die Verdünnungswelle (RW) und die reflektierte Hugoniot-Kurve (RH) dargestellt. In Orange sind zwei Rayleigh-Linien dargestellt. Der Winkel Θ des blauen und roten Dreiecks, kann in einer ersten Näherung als gleich angesehen werden (siehe Gleichung 2.30) [Eliezer 2002].

geben dabei den Verlauf der Verdünnungswelle RW oder der reflektierten Hugoniot-Kurve RH wieder. In diesem Fall gilt nach Abbildung 2.9 für das rote und blaue Dreieck:

$$\tan \Theta = \frac{v_{p,B} - v_{p,A}}{P_1 - P_2} \approx \frac{v_{p,A}}{P_1} \Rightarrow \frac{P_2}{P_1} = \frac{2Z_B}{Z_A + Z_B} \approx \frac{2\rho_{0,B}v_{s,B}}{\rho_{0,A}v_{s,A} + \rho_{0,B}v_{s,B}}, \quad (2.30)$$

mit den Bedingungen:

$$Z \equiv \rho_0 v_s, \quad P_1 = Z_A v_1 = \rho_{0,A} v_{s,A} v_{p,A}, \quad P_2 = Z_B v_{p,B}. \quad (2.31)$$

Dieser Zusammenhang wird als Impedanzanpassungs-Gleichung bezeichnet [Eliezer 2002].

Für die Betrachtung von Schocks an einer Grenzfläche empfiehlt es sich, die Hugoniot-Gleichungen 2.22-2.24 im Laborsystem zu betrachten, da in diesem auch die Messungen vorgenommen werden. Das Verhalten einer Schockwelle, die auf eine Grenzfläche trifft, ist in Abbildung 2.10 dargestellt. Für die Parameter gilt, dass der Druck und die Teilchengeschwindigkeit an der Grenzfläche konstant bleiben. Die Menge an komprimiertem Material pro Zeiteinheit ist $\rho_1(v_s - v_1)$. Die komplette Kraft pro Fläche, die auf ein beliebiges Volumen wirkt, welches die Schockfront enthält, ist $P_1 - P_0$. Diese Differenz muss gleich der Impulsänderung pro Zeiteinheit sein $\Delta m v_1 = \rho_0 v_s v_1$. Für einen starken Schock ist dieser Wert näherungsweise gleich P_1 , da P_0 viel kleiner als P_1 ist.

$$\rho_0 v_s = \rho_1(v_s - v_1) \Rightarrow \rho_1 = \rho_0 \frac{v_{s,1}}{v_{s,1} - v_1} \quad P_1 - P_0 = \rho_0 v_s v_1 \Rightarrow P_1 = \rho_0 v_s v_1 \quad (2.32)$$

Für die Massenerhaltung der reflektierten Schockwelle im System der Schockwelle gilt:

$$\rho_1 u_{s,r} = \rho_2(u_{s,r} - u_2) \Rightarrow u_{s,r} = \frac{\rho_2 u_2}{\rho_2 - \rho_1}. \quad (2.33)$$

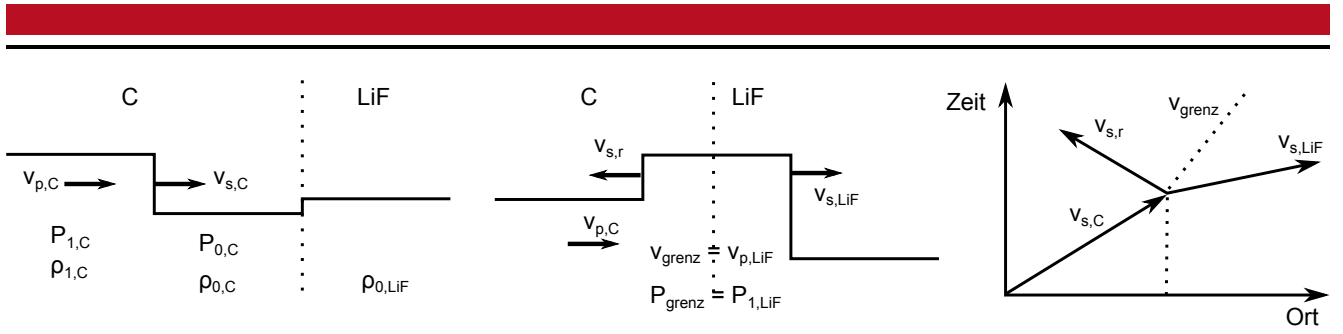


Abbildung 2.10.: Links: Betrachtung einer Grenzfläche von Kohlenstoff mit einem Lithiumfluorid (LiF) Fenster. Mitte: Eine Schockwelle passiert eine Grenzfläche aus Kohlenstoff und LiF. Der Druck und die Teilchengeschwindigkeit bleiben konstant am Ort der Dichteänderung. Für die Parameter am Übergang gilt damit $P_{grenz} = P_{1,LiF}$ und $v_{grenz} = v_{p,LiF}$. Dabei ist v_{grenz} die Geschwindigkeit der Grenzflächen und $v_{p,LiF}$ der Teilchengeschwindigkeit im LiF. P_{grenz} stellt den Druck an der Grenzfläche dar und $P_{1,LiF}$ den Druck im LiF. Rechts: Darstellung der Bewegung der Schockwellen und des Verhaltens der Grenzfläche, dabei ist $v_{s,C}$ die Schockgeschwindigkeit im Kohlenstoff, $v_{s,LiF}$ die Schockgeschwindigkeit im LiF und $v_{s,r}$ die Geschwindigkeit der reflektierten Schockwelle an der Grenzfläche. Die Grenzfläche ist durch die gestrichelte Linie dargestellt, die sich nach dem Passieren des Schocks bewegt.

Dabei ist $u_{s,r}$ die Geschwindigkeit der reflektierten Schockwelle und u_2 die Teilchengeschwindigkeit der reflektierten Schockwelle hinter der Grenzfläche. Mit der Transformation

$$u_2 = v_2 - v_1 \quad \text{und} \quad u_{s,r} = v_{s,r} - v_1 \quad (2.34)$$

des reflektierten Schocks in das Laborsystem ergibt sich für die Massen- und Impulserhaltung:

$$v_{s,r} - v_1 = \frac{\rho_2(v_2 - v_1)}{\rho_2 - \rho_1} \Rightarrow \quad (2.35)$$

$$v_{s,r} = \frac{\rho_2 v_2 - \rho_2 v_1}{\rho_2 - \rho_1} + \frac{(\rho_2 - \rho_2)v_1}{\rho_2 - \rho_1} = \frac{\rho_2 v_2 - \rho_1 v_1}{\rho_2 - \rho_1} \quad (2.36)$$

und

$$P_2 - P_1 = \rho_1 u_{s,r} u_2 = \rho_1 (v_{s,r} - v_1)(v_2 - v_1). \quad (2.37)$$

Mit den angepassten Hugoniot-Gleichungen und der Impedanzanpassung gibt es jetzt fünf Gleichungen für fünf Unbekannte, um den Zustand eines schockkomprimierten Materials zu bestimmen. Für die in dieser Arbeit untersuchten Kohlenstoffproben bietet sich als zweites Material, in das sich der Schock fortsetzt, Lithiumfluorid (LiF) an. Die Verwendung erfolgt, da LiF bis weit über 150 GPa transparent bleibt und eine ähnliche Impedanz wie Kohlenstoff hat [Wise 1986].

$$\rho_{1,C} = \rho_{0,C} \frac{v_{s,C}}{v_{s,C} - v_{p,C}} \quad P_{1,C} = \rho_{0,C} v_{s,C} v_{p,C} \quad v_{s,r} = \frac{\rho_{1,LiF} v_{p,LiF} - \rho_{1,C} v_{p,C}}{\rho_{1,LiF} - \rho_{1,C}} \quad (2.38)$$

$$P_{1,LiF} - P_{1,C} = \rho_{1,C} (v_{s,r} - v_{p,C})(v_{p,LiF} - v_{p,C}) \quad \frac{P_{1,LiF}}{P_{1,C}} = \frac{2\rho_{0,LiF} v_{s,LiF}}{\rho_{0,C} v_{s,C} + \rho_{0,LiF} v_{s,LiF}} \quad (2.39)$$

Die bekannten oder messbaren Variablen sind mit $\rho_{0,C}$ die Ausgangsdichte des Kohlenstoffes, $v_{s,C}$ der Schockgeschwindigkeit im Kohlenstoff, $\rho_{0,LiF}$ der Ausgangsdichte von LiF und $v_{p,LiF}$ der Teilchengeschwindigkeit im LiF. Mit $v_{p,LiF}$ und der SESAME Datenbank¹⁰ [Lyon 1992] kann die Schockgeschwindigkeit $v_{s,LiF}$ im LiF und der Druck $P_{1,LiF}$ im LiF bestimmt werden. Die zu bestimmenden Unbekannten sind $v_{p,C}$ die Teilchengeschwindigkeit im Kohlenstoff, $\rho_{1,C}$ die erreichte Dichte im Kohlenstoff, $P_{1,C}$ der erreichte Druck im Kohlenstoff, $\rho_{1,LiF}$ die erreichte Dichte im LiF und $v_{s,r}$ die Geschwindigkeit der reflektierten Schockwelle. Mit diesen Informationen kann die im Experiment erreichte Position im Phasendiagramm für Dichte und Druck bestimmt werden (siehe Experimentdaten Abbildung 4.27).

¹⁰ Die SESAME Datenbank des Los Alamos National Laboratories enthält Bibliotheken für Zustandsgleichungen und materialbezogene Informationen.

4.1.3 Schockwellen in Festkörpern und porösen Materialien

Die vorherigen Abschnitte haben sich mit der theoretischen Beschreibung von Schockwellen und deren Verhalten an Grenzflächen beschäftigt. In diesem Abschnitt wird auf die für Experimente näherliegenden Eigenschaften eingegangen, die für die Untersuchung von Graphit im Bereich des fest-flüssig Übergangs notwendig sind. Der Übergang ist dabei druck- und temperaturabhängig. Beim Schockkomprimieren wird die Probe neben der Kompression ebenfalls durch eine Erhöhung der Entropie erwärmt. Um die Phase am fest-flüssig Übergang zu untersuchen, muss die Temperatur, im durch Schockkompression zugänglichen Bereich, variiert werden. Der Phasenübergang wird dabei maßgeblich durch die Temperatur im Endzustand beeinflusst. Die Variation der Temperatur ist möglich durch die Verwendung von porösen Materialien, da diese verschiedene Hugoniot-Kurven desselben Probenmaterials nutzen können, um verschiedene Endtemperaturen zu erreichen.

Poröse Materialien können verschiedene mikroskopische Strukturen haben. Dabei kann es sich um interne Fehlstellen im Material, faserförmige Materialien oder um Pulver handeln. Zusätzlich können diese durch unterschiedliche Weiterverarbeitungstechniken verschiedene mikroskopische Strukturen bilden und unterschiedlichste Dichten, abweichend von der natürlichen Dichte, erreichen. Das erreichbare Spektrum von Endzuständen kann noch durch unterschiedlich starke Schocks erweitert werden. Im Experiment ist dies durch die Verwendung unterschiedlicher Laserintensitäten möglich. Der benötigte Druck, um poröses Material mit einer porösen Dichte ρ_{por} kleiner als die natürliche Dichte ρ_{nat} auf diese zu komprimieren, ist viele Größenordnungen kleiner als der Druck, der benötigt wird, um Festkörper weiter zu komprimieren. Liegt die Dichte einer Probe unterhalb der natürlichen Dichte, wird diese zuerst auf die natürliche Dichte komprimiert und folgt dann einer Hugoniot-Kurve, die steiler ist (siehe Abbildung 2.11) als die Hugoniot-Kurve, die direkt bei der natürlichen Dichte startet. Es ist also mit Proben reduzierter Dichte möglich, mittels Schockkompression höhere Temperaturen zu erreichen als mit Proben höherer Dichte und gleicher Kompression.

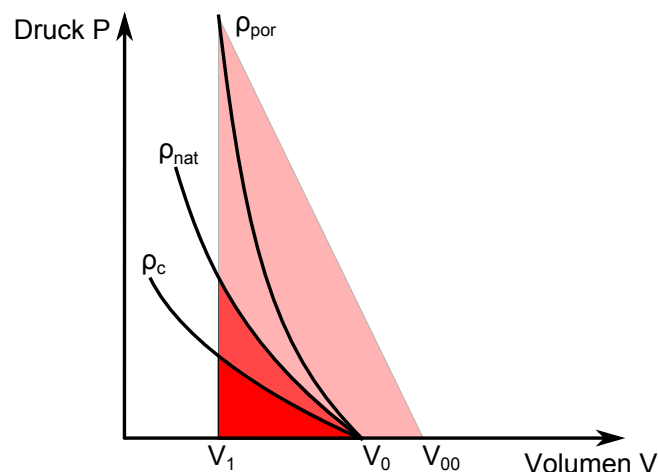


Abbildung 2.11.: Druck-Volumen-Diagramm für Schockkompression von porösem Material. ρ_{por} ist die Hugoniot-Kurve für ein poröses Material, ρ_{nat} die Hugoniot-Kurve für dessen natürliche Dichte und ρ_c für die isentrope beziehungsweise kalte Kompression beginnend bei der natürlichen Dichte. Die rot markierten Flächen geben dabei die aufgenommene spezifische innere Energie wieder.

Dies wird auch in Gleichung 2.28 über die Änderung der spezifischen inneren Energie widerspiegelt. In Abbildung 2.11 entspricht die spezifische innere Energie der Fläche des Dreiecks aus den Punkten (P_2, V_1) , $(V_1, 0)$ und $(V_0, 0)$ oder $(V_{00}, 0)$. Bei V_0 handelt es sich um das Volumen der natürlichen Dichte eines Materials und bei V_{00} um eine poröse Modifikation. Dabei ist darauf zu achten, dass im Fall von $(V_{00}, 0)$ die für die Kompression der porösen Probe auf ihre natürliche Dichte benötigte Kompressionsenergie abgezogen werden muss. Dieser Vorgang sorgt für eine weitere Erhöhung der Entropie im Material. Je größer diese ist, desto größer ist der thermische Druck. Soll die gleiche Kompression wie mit der natürlichen Dichte erreicht werden, geht vorher Energie in die thermale Energie der Probe über. Prinzipiell sind diese Effekte auch von der Anfangstemperatur und der Anfangsentropie abhängig, diese haben aber nur einen untergeordneten Einfluss und ändern nichts an der quantitativen Betrachtung. Es können damit durch die Verwendung von porösen Materialien bei etwa gleichem Druck unterschiedliche Temperaturen erreicht werden. Dies ermöglicht eine Untersuchung des Phasenübergangs von Kohlenstoff im Bereich der WDM.

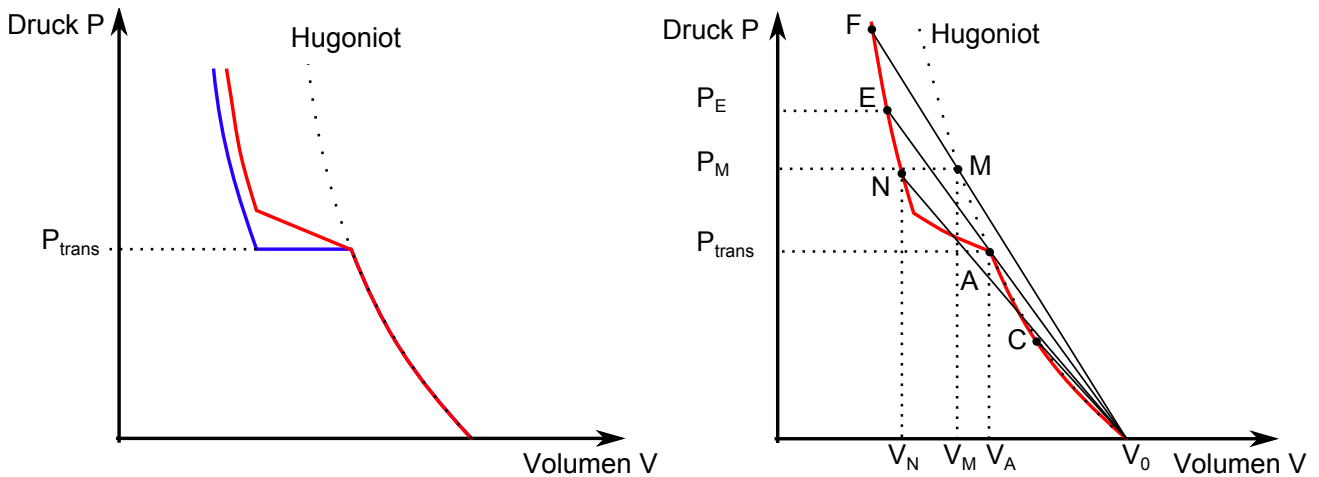


Abbildung 2.12.: Links: Druck-Volumen-Diagramm für eine isentrope Kompression mit Phasenänderung: Blaue Kurve für $T = 0\text{ K}$ und Rote Kurve für $T > 0\text{ K}$. Rechts: Druck-Volumen-Diagramm für verschieden starke Schockwellen in einem Material.

4.1.4 Schockwelleninduzierte Phasenänderung

Die meisten Materialien haben mehr als eine mögliche Anordnung der Atome zueinander, die von Druck und Temperatur abhängig ist. Die dafür nötigen Werte sind zum Teil sehr hoch im Vergleich zu den Normalbedingungen auf der Erde. Wenn ein Material weiter als bis zu einem bestimmten Punkt komprimiert wird, kann eine Transformation der Struktur einsetzen. Der Strukturübergang wird begleitet von einer Volumenänderung und der Absorption oder Emission von latenter Wärme. Die Volumenänderung entsteht dadurch, dass die neue Gleichgewichtsposition im Mittel über alle Atomabstände zu einem geringeren Atomabstand führt. Findet eine solche Transformation statt, zeigt sich diese in einem horizontalen Versatz im Druck-Volumen-Diagramm (siehe Abbildung 2.12 links).

Betrachtet wird nun eine Hugoniot-Kurve mit einer Phasenänderung wie oben beschrieben. Wirkt ein Druck P konstant auf eine Oberfläche, wird das Material komprimiert. Im Folgenden wird eine eindimensionale Geometrie betrachtet. Ist der Druck P geringer als der benötigte Druck P_{trans} für eine Phasenänderung, läuft eine Schockwelle durch das Material und der Zustand hinter der Schockfront entspricht einem Punkt auf der Hugoniot-Kurve (Punkt C in Abbildung 2.12 rechts). Die Schockgeschwindigkeit v_s ist bestimmt durch die Steigung der Geraden vom Anfangszustand V_0 zum Punkt C auf der Hugoniot-Kurve.

$$v_s = V_0 \left(\frac{P - P_0}{V_0 - V} \right)^{1/2} \quad (2.40)$$

Ist der Druck P größer als P_E , findet eine vollständige Phasentransformation statt. Das Verhalten des Drucks ist in Abbildung 2.13 links dargestellt. Der Druck P_F in der Abbildung wird über einen Zwischenzustand M mit P_M und V_M erreicht. Der Zwischenzustand M entsteht dadurch, dass die Relaxationszeit einer Phasentransformation viel größer als die benötigte Zeit für das Herstellen eines thermodynamischen Gleichgewichts nach dem Schock ist. Der Zustand M befindet sich auf der fortgesetzten Hugoniot-Kurve ohne Phasenänderung (siehe Abbildung 2.12 rechts). Liegt der Druck unterhalb von P_E , findet keine vollständige Phasentransformation statt und die Schockwelle spaltet sich auf. Die Schockgeschwindigkeit des Zwischenzustandes A ergibt sich zu:

$$v_{s,A} = V_0 \sqrt{\frac{P_A - P_0}{V_0 - V_A}}, \quad (2.41)$$

welche höher als die Schockgeschwindigkeit der Schockfront nach der Phasentransformation ist. Die zweite Schockfront bewegt sich mit der Geschwindigkeit

$$v_{s,N} = V_A \sqrt{\frac{P_N - P_A}{V_A - V_N}} \quad (2.42)$$

plus der Teilchengeschwindigkeit $v_{p,A}$ des Materials hinter der ersten Schockfront

$$v'_{s,N} = v_{s,N} + v_{p,A} < v_{s,A}. \quad (2.43)$$

Diese Geschwindigkeit ist unterhalb der Geschwindigkeit $v_{s,A}$ des ersten Schocks und kann die zweite Schockwelle nicht überholen. Dabei findet die Phasenänderung in der zweiten Schockfront statt. Durch die Transformation ist die Dicke der Schockfront zusätzlich stark verbreitert. Mit der fortlaufenden Schockwelle wird die Distanz zwischen beiden Fronten, resultierend aus den unterschiedlichen Geschwindigkeiten, immer größer. In Abbildung 2.13 rechts ist das Verhalten des Drucks durch die Schockfronten und der Phasenänderung dargestellt. Diese Zusammenhänge zeigen, dass die Phasenänderung bei einer Schockkompression nicht vollständig stattfinden muss und in dieser Arbeit nicht nur direkt eine flüssige Phase mittels der Kompression erreicht werden kann, sondern, dass es noch Reste von Strukturen geben kann. Dabei spielt die Temperatur beim Phasenübergang eine entscheidende Rolle.

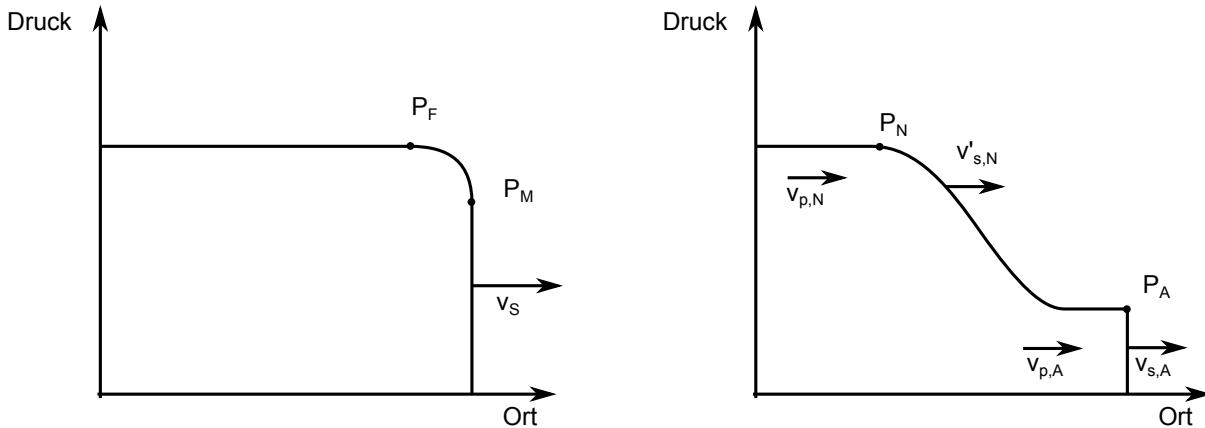


Abbildung 2.13.: Links: Druckverteilung einer Schockwelle mit Phasenwechsel. Rechts: Druckverteilung bei Aufspaltung der Schockfronten in zwei Wellen (vergleiche Abbildung 2.12 rechts).

Die Simulationenmethoden für die Endtemperatur des geschockten Materiales sind äußerst kompliziert und es bedarf komplexer Modelle, die die mikroskopische Struktur des komprimierten Materials berücksichtigen. Diese lässt sich momentan am besten mit *ab-initio* Methoden bestimmen, die im Simulationskapitel Abschnitt 3 vorgestellt werden.

4.1.5 Lasergetriebene Schockwellen

Damit eine nahezu statische und eindimensionale Schockwelle von einem Laser erzeugt wird, muss dieser die Probe so lange beleuchten, wie die Schockwelle zum Durchlaufen der Probe braucht und der beleuchtete Durchmesser doppelt so groß sein wie die Dicke der Probe, damit keine 2D-Effekte zum Tragen kommen und die Rankine-Hugoniot-Gleichungen angewendet werden können. Zusätzlich muss die Laserintensität homogen über die bestrahlte Fläche verteilt sein [Eliezer 2002]. In Abbildung 2.14 sind die verschiedenen Regionen einer Schockwelle in einem Plasma, welches durch einen Laser erzeugt wird, zu erkennen.

Korona

Die Laserabsorption geschieht in der Korona, die so lange geheizt wird, wie der Laserpuls anhält und dabei expandiert. Das Plasma expandiert dabei mit hoher Geschwindigkeit von der Probenoberfläche weg, die in etwa der Ausbreitungsgeschwindigkeit einer Ionen-akustischen Welle im Plasma entspricht:

$$c_{s,i} = \sqrt{\frac{Z_i k_B T_e + 3k_B T_i}{M_i}} \quad (2.44)$$

mit k_B der Boltzmann-Konstante, T_e der Temperatur der Elektronen, T_i der Temperatur und M_i der Masse der Ionen. Wird von einer isothermen Expansion ausgegangen, kommt es zu einem exponentiell abfallenden Dichteprofil vor der Probenoberfläche [Drake 2006]. Die Dichte bleibt dabei bei $\rho < 0,01 \text{ g/cm}^3$ und die Temperatur erreicht bis zu 1 000 eV. Der Hauptabsorptionsmechanismus, der für das Heizen verantwortlich ist, ist die *inverse Bremsstrahlung*¹¹.

Transport Region

Der Transportbereich liegt hinter der kritischen Dichte, in die der Laser nicht vordringt. Die Heizung erfolgt durch thermische Röntgenstrahlung aus der Korona und durch Elektronenwärmeleitung. Da dieses Material nicht mehr direkt durch den Laser geheizt wird, liegt hier die Temperatur bei einigen Elektronenvolt.

¹¹ Absorption eines Photons durch ein Elektron bei einem Streuprozess mit einem Ion.

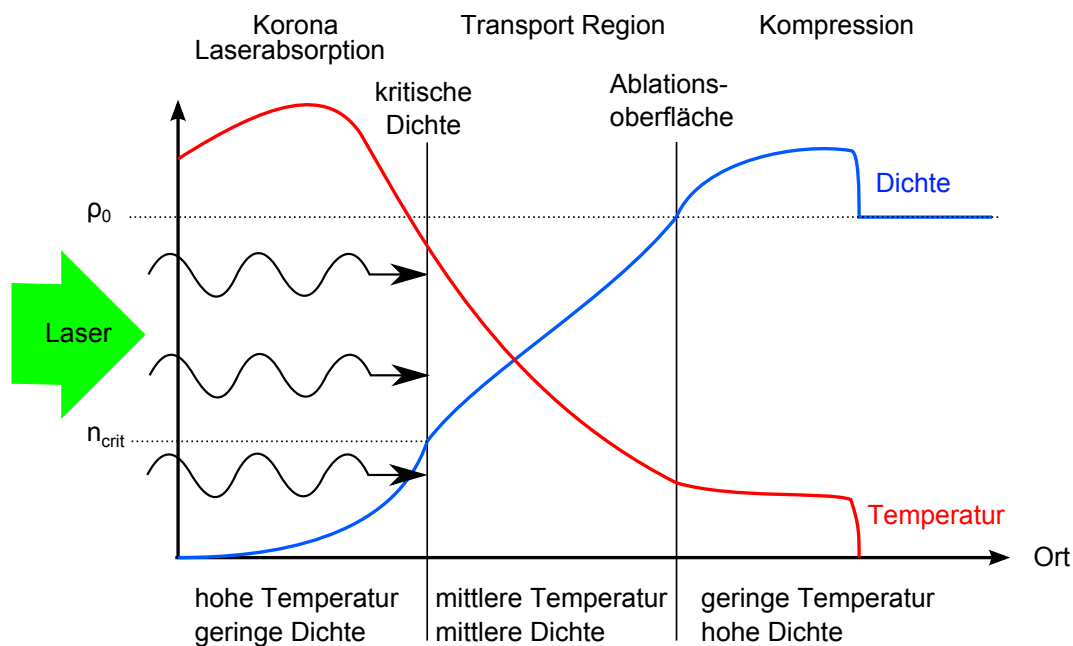


Abbildung 2.14.: Korona Region: $\rho < 0,01 \text{ g/cm}^3$, $T \approx 1000 \text{ eV}$, Transport Region: Dichte zwischen $\approx 0,01 \text{ g/cm}^3$ und Festkörperdichte und Temperaturen zwischen 30 eV und 1000 eV , Kompressionsbereich mit Dichten bis zum vierfachen der Ausgangsdichte für eine ideale Schockwelle und einer Temperatur von 1 eV bis 30 eV .

Kompression

Die Kompression wird getrieben durch das expandierende Plasma, wodurch eine Schockwelle in die Probe expandiert. Dabei ist dieser Teil durch die Schockwelle geheizt worden und die Dichte liegt oberhalb der Anfangsdichte der Probe.

4.2 Röntgenquellen

In der Plasmaphysik wird das Streuverhalten von Photonen aus dem sichtbaren Spektrum als Standardtechnik verwendet um Informationen über die Temperatur, die freie Elektronendichte und den Grad der Ionisation zu gewinnen. Diese Techniken können für WDM nicht direkt genutzt werden, da die Proben für optische Photonen nicht transparent sind. Dies liegt an der sehr geringen Absorptionslänge für Photonen im optischen Bereich. Dieser Vorgang lässt sich auch mit der kritischen Dichte erklären (siehe Gleichung 2.16). Für optisches Licht liegt die kritische Dichte bei $n_{crit} \approx 10^{21} \text{ cm}^{-3} - 10^{22} \text{ cm}^{-3}$. Für Röntgenstrahlung mit Energien oberhalb von 1000 eV gilt $n_{crit} > 7 \cdot 10^{26} \text{ cm}^{-3}$, womit Röntgenstrahlung in Plasmen mit Festkörperdichte eindringen kann. Die typische freie Weglänge für ein 5000 eV Photon in komprimiertem Kohlenstoff mit $4,00 \text{ g/cm}^3$ ist etwa $200 \mu\text{m}$ [Henke 1993]. Unter Berücksichtigung dieser Bedingung wurden in dieser Arbeit Photonenenergien von 4500 eV , 4952 eV und 6000 eV verwendet. Erschwert wird die Untersuchung noch dadurch, dass die WDM Proben meist sehr klein sind ($< 100 \mu\text{m}$) und nur kurz zur Verfügung stehen ($< 10 \text{ ns}$). Für die Untersuchungen von WDM werden damit sehr hohe Photonenzahlen in kürzester Zeit im harten Röntgenbereich benötigt. Die einzigen Quellen dafür sind laserinduzierte Plasmen [Riley 2002, Kritcher 2008, Kritcher 2009, LePape 2010] oder FEL im Röntgenbereich, wie die in dieser Arbeit genutzte *Linac Coherent Light Source* (LCLS) in Stanford [Ding 2009, Vinko 2012] oder der japanische Röntgen FEL *Spring-8 Angstrom Compact free electron Laser* (SACLA) [Huang 2012] und die im Aufbau befindliche Einrichtung *European XFEL* [RDGroupSCSS 2005].

4.2.1 Laserröntgenquellen

Bei lasergetriebenen Röntgenquellen werden Metallfolien mit intensiven Laserstrahlen bestrahlt, die dann Röntgenstrahlung emittieren [Riley 2002, Kritcher 2007]. Dabei werden Elektronen aus den Grundniveaus der Atome entfernt und die bei der Relaxation emittierten Photonen verwendet. Die emittierte Wellenlänge hängt vom Ionisationsgrad des Atoms ab. Hierbei wird unterschieden zwischen quasi voll ionisierten und nicht ionisierten Atomen. Ist das Atom ionisiert, wird entsprechend der Zahl der übrigen Elektronen von Atomen gesprochen, die ähnlich dem Atom sind, das im neutralen Zustand diese Anzahl von Elektronen hat¹². Bei der emittierten Strahlung handelt es sich um die charakteristische

¹² Bei vierfach ionisiertem Kohlenstoff wird dann von heliumgleichen Kohlenstoff gesprochen.

Röntgenstrahlung, die abhängig von den beteiligten Energieniveaus ist. Die Benennung der Übergänge erfolgt nach der Bezeichnung der Schale, in die das Elektron übergeht (K, L, M, usw.) und aus der das Elektron kommt (α, β, γ , usw.). Dabei wird α für ein Photon verwendet, das aus der direkt höheren Schale kommt und β für eins aus zwei Schalen höher. Diese Nomenklatur setzt sich fort. Durch das Vorhandensein der Feinstruktur der Energieniveaus sind diese ab der L-Schale weiter aufgespalten. Für die Unterscheidung wird ein weiterer Index verwendet. Die Aufspaltung ist für diese Arbeit nicht von Bedeutung und wird nicht beachtet. In dieser Arbeit wurde die K- α Strahlung von nicht ionisiertem Vanadium bei 4 952 eV verwendet [Bearden 1967]. Für dessen Erzeugung wird ein Plasma auf der Folienoberfläche von Vanadium erzeugt. Das Plasma wird durch einen Laserpuls mit einer Intensität von etwa 10^{17} W/cm² getrieben. Das Plasma emittiert heiße Elektronen, die in das noch kalte Vanadium gelangen und dort die K- α Strahlung erzeugen. Über die Zeit der Erzeugung der heißen Elektronen heizt sich das Vanadium immer weiter auf, sodass auch heliumgleiches Vanadium und die weniger ionisierten Zustände des Vanadiums entstehen. Dadurch entsteht bei der Erzeugung der K- α Strahlung auch immer He- α Strahlung und die α Linien der weniger ionisierten Zustände des Vanadiums. Diese Linien werden im Allgemeinen Satellitenlinien genannt, wobei die Intensität der Linien der weniger ionisierten Zustände immer schwächer wird und die Energie der emittierten Photonen abnimmt (vergleiche Messungen in Abbildung 4.8 mit der K- α Linie bei 4 952 eV und He- α Linie bei 5 204 eV). Die Prozesse zur Erzeugung von He- α Strahlung und K- α Strahlung sind in Abbildung 2.15 dargestellt. Die Intensitäten der erzeugten Strahlung können nicht einfach bestimmt werden [Rubenchik 1991], sondern sind experimentell bestimmt worden [Workman 2001, Riley 2002]. Die Pulslänge der erzeugten Röntgenstrahlung entspricht dabei der Länge des Laserpulses.

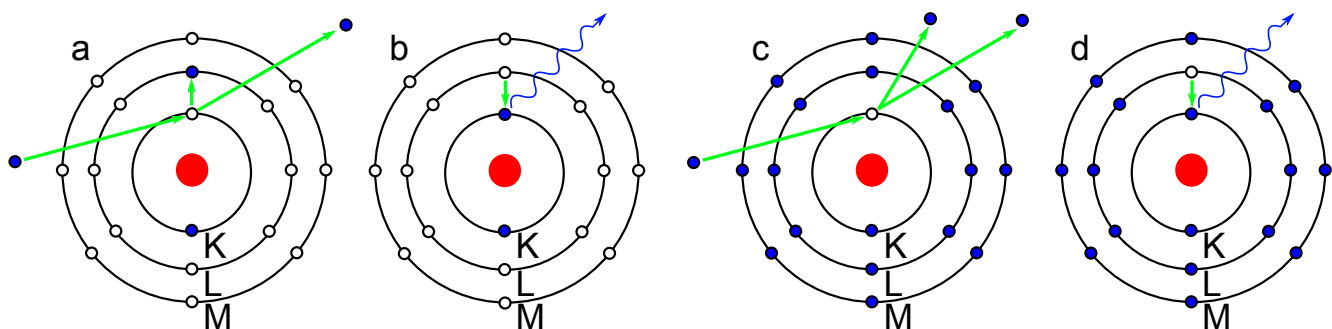


Abbildung 2.15.: Die Abbildungen zeigen die Entstehung von He- α und K- α Strahlung. a und b zeigen die Entstehung von He- α Strahlung, bei der ein Atom bis auf zwei Elektronen ionisiert ist und von einem einfallenden Elektron angeregt wird (a). Dabei gelangt eins der Elektronen von der K- in die L-Schale. Beim Relaxieren des Elektrons wird die He- α Strahlung emittiert (b). c und d zeigen die Entstehung von K- α Strahlung. Ein Elektron schlägt ein Hüllenelektron aus der K-Schale eines nicht ionisierten Atoms (c), worauf ein Elektron aus der L-Schale relaxiert und dabei die K- α Strahlung emittiert (d).

4.2.2 Freie-Elektronen-Laser

Das Prinzip eines Freie-Elektronen-Lasers (Free-Electron-Laser, FEL) wurde erstmals von J. Madey [Madey 1971] umgesetzt. FELs erzeugen dabei Synchrotronstrahlung mit einer sehr hohen Brillanz, wobei diese von freien Elektronen stammt. Da diese keine festen Energieniveaus haben, kann die Wellenlänge der Strahlung beliebig eingestellt werden. In der Realität ist dies durch die maximal übertragbare Energie auf die Elektronen und der Magnetfelder im Undulator begrenzt. Eine schematische Darstellung eines FEL ist in Abbildung 2.16 dargestellt. Ein FEL besteht dabei aus einer Elektronenquelle mit anschließendem Linearbeschleuniger. Die beschleunigten Elektronen gelangen in einen Undulator, in dem die Elektronen Energie in Form von Photonen abgeben. Bei Undulatoren handelt es sich um periodisch angeordnete Dipolmagnete mit einem alternierenden Magnetfeld. In diesem wird die intensive Strahlung erzeugt, die in einem schmalen Spektralband abgegeben wird. Im Undulator eines FELs interferiert die von jedem beschleunigten Elektron kommende Bremsstrahlung konstruktiv. Ein FEL, der im Röntgenbereich arbeitet, wird als Röntgen-FEL (X-ray-FEL, XFEL) bezeichnet. Die Intensität der erzeugten Röntgenstrahlung ist dabei proportional zu N_e der Anzahl der Elektronen pro Puls [Schmüser 2009]. In XFELs ist die Elektronendichte, zum Beispiel durch Komprimierung des Elektronenpakets¹³, so hoch, dass die erzeugte Bremsstrahlung intensiv genug ist, um eine Wechselwirkung mit dem Elektronenpaket durchzuführen. Dies führt zu dem Phänomen, dass sich aus der Gesamtzahl der Elektronen mehrere Elektronenpakete bilden. Aufgrund dieses Prozesses ist der Elektronenstrahl korreliert und die Strahlung ist kohärent zu einem Faktor N_e^2 , der Zahl der Elektronen in einem Puls [Schmüser 2009]. Die Entstehung der Elektronenpakete erfolgt dabei spontan

¹³ Die Elektronenpakete werden im Englischen als *microbunches* bezeichnet.

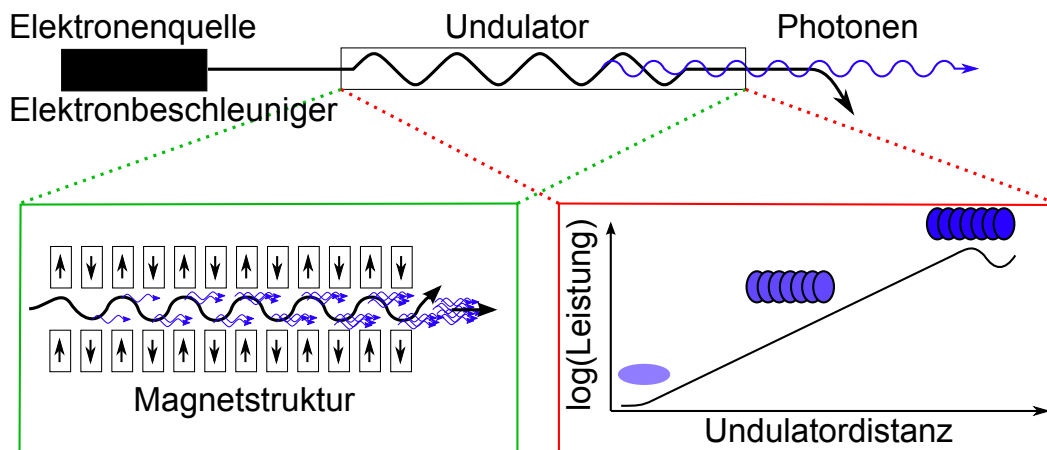


Abbildung 2.16.: Oben: Aufbau eines FELs bestehend aus einer Elektronenquelle, Elektronenbeschleuniger und Undulatorstruktur (unten links). Unten rechts: Logarithmische Verstärkung der Strahlung über Undulatordistanz.

aus dem Rauschen. Dieser Operationsmodus eines FELs wird self-amplification-of-spontaneous-emission (SASE) genannt [Andruszkow 2000]. Startet der Puls nicht vom Rauschen und das Entstehen der Elektronenpakete wird durch einen Laser induziert, so wird von einem *seeded* FEL [Yu 2000, Yu 2003] gesprochen. Die Vorteile von FELs gegenüber lasergetriebenen Röntgenquellen sind die kürzeren Pulse, das Ausbleiben von elektromagnetischen Pulsen (EMP) durch einen Laser, schmalbandige Photonenenergien und das Nichterscheinen von Satelliten-Linien. Demgegenüber steht die geringe Verfügbarkeit von FELs im Röntgenbereich für die Untersuchungen. Bei dem in dieser Arbeit verwendeten FEL handelt es sich um die *Linac Coherent Light Source* (LCLS) in Stanford, USA. Dieser basiert auf einem etwa 1 km langen Elektronenlinearbeschleuniger mit einem darauffolgenden 130 m langen folgenden Abschnitt mit Undulatoren. Dabei können bis zu 120 Röntgenpulse pro Sekunde erzeugt werden. Diese liegen im Routinebetrieb bei Energien zwischen 250 eV und 12 000 eV [LCLS/MEC 2016].

5 Streuung von Photonen

Im vorherigen Abschnitt ist die Erzeugung von WDM und die Erzeugung von elektromagnetischer Strahlung im Röntgenbereich, mit der es möglich ist diese zu durchdringen, behandelt worden. In diesem Abschnitt werden die Streumechanismen der elektromagnetischen Strahlung an der WDM behandelt. In der Plasmaphysik wird das Streuverhalten von Photonen aus dem sichtbaren Spektrum als Standardtechnik verwendet um Informationen über die Temperatur, die freie Elektronendichte und den Grad der Ionisation zu gewinnen. Die Verwendung von elektromagnetischer Strahlung erlaubt es aber auch, Proben mit dieser in ihrem Inneren zu untersuchen, solange sie für die Strahlung nahezu transparent sind und trotzdem mit ihr wechselwirken. Wenn ein Photon auf Materie trifft, kann es absorbiert oder gestreut werden. Wird das Photon gestreut und es behält seine Energie, wird dieser Vorgang in der Literatur elastische, Thomson- oder Rayleigh-Streuung genannt, oder auch quasi-elastische Streuung. Beide Prozesse, Thomson- und Rayleigh-Streuung, vollführen elastische Streuung an freien Elektronen bei kleinen Photonenenergien (nicht relativistisch) und Streuung an gebundenen Elektronen durch. Gibt das Photon Energie an das Atom ab und ändert seine Wellenlänge, wird der Vorgang inelastische, modifizierte Compton- oder Raman-Streuung genannt. Die Wechselwirkungsquerschnitte der verschiedenen Prozesse sind dabei energieabhängig. Diese sind in Abhängigkeit der Energie in Abbildung 2.17 gezeigt.

Bei dem Terminus Röntgen-Thomson-Streuung (X-ray Thomson Scattering, XRTS), streuen die Photonen an freien, schwach gebundenen und stark gebundenen Elektronen. Im Bereich der Untersuchung von WDM handelt es sich bei der XRTS um Raman-, Rayleigh- und Thomson-Streuung, die in diesem Bereich unter diesem Namen zusammengefasst werden [Glenzer 2009].

XRTS beschreibt die Gesamtheit der Streuprozesse der Photonen an den Elektronen des Plasmas, die sich zusammen zum Gesamtsignal addieren. Für bestimmte Grenzfälle sind Teile des Streuspektrums vergleichbar mit den *klassischen* Streuprozessen und werden nach diesen benannt. Bei der Thomson-Streuung handelt es sich um einen Spezialfall der Compton-Streuung für kleine Energien. Dabei ist die Photonenenergie viel kleiner als die Ruhemasse des Streupartners, dem Elektron ($hf \ll m_e c_0^2$).

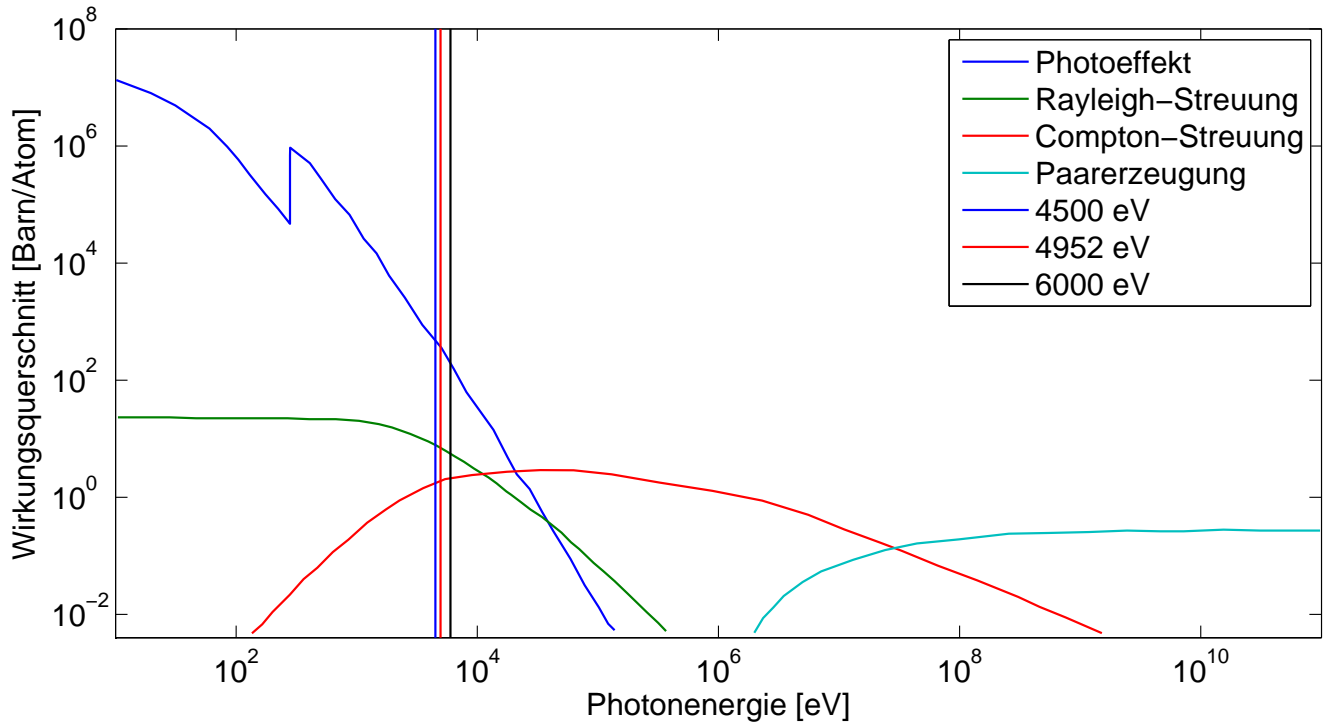


Abbildung 2.17.: Die Abbildung zeigt Wechselwirkungsquerschnitte für verschiedene Prozesse in Abhängigkeit der Photonenergie für Kohlenstoff [Hubbel 1999].

Um die entstehenden Streuspektren zu verstehen, wird im Folgenden die Wechselwirkung von Photonen mit den Elektronen betrachtet, die verantwortlich für die Streuung sind. Dabei wird zuerst auf die Beobachtung und Wechselwirkung eines einzelnen Photons mit einem sich bewegenden Elektron eingegangen. Das Prinzip der Wechselwirkung eines Photons mit einem Elektron wird dann auf die Wechselwirkung mit einem Plasma erweitert. Dabei wird auf die oben erwähnten stattfindenden Streuprozesse eingegangen und es erfolgt der Übergang auf den Strukturfaktor, mit dem der Phasenübergang analysiert werden kann. In den Experimenten dieser Arbeit setzen sich die gemessenen Streuspektren aus einer Kombination von *klassischer* Rayleigh-Streuung und Compton-Streuung zusammen. Abgeschlossen wird dieser Abschnitt mit dem Spezialfall des Strukturfaktors für periodische Strukturen, der Bragg-Streuung.

5.1 Strahlung bewegter Ladung

Die Beschreibung von Strahlung von bewegten Ladungen ist in [Jackson 1975] und [Landau 1962] vorgestellt. Die für diese Arbeit wichtigen Herleitungen sind im Folgenden grob skizziert. Das elektrische Feld im Abstand R von einer Ladung q zum Zeitpunkt t stammt vom Verhalten der Ladung zum vorherigen Zeitpunkt t' (siehe Abbildung 2.18). Die Zeit der Wechselwirkung ergibt sich aus der Laufzeit des Photons zwischen dem Emissionsort und dem Beobachter. Sie gibt an wie viel Zeit vor der Beobachtungszeit t das Ereignis stattfindet und ergibt sich zu:

$$t' = t - \frac{R'}{c_0}. \quad (2.45)$$

Wenn der Beobachter sehr weit vom Ort der Wechselwirkung entfernt ist und $R' \simeq R$ angenommen werden kann, lässt sich die Zeit der Wechselwirkung bestimmen zu:

$$t' \approx t - \frac{|R - \hat{s} \cdot \mathbf{r}(t')|}{c_0}. \quad (2.46)$$

Der Einheitsvektor \hat{s} zeigt hierbei von der Ladung zum Beobachter und $\mathbf{r}(t')$ ist die Position der betrachteten Ladung zum Beobachtungszeitpunkt t . Die Frequenzänderung wird dabei als $\omega = \omega_s - \omega_i = (\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_i) \cdot \mathbf{v} = \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$ dargestellt. Diese stellen auch den Energie- und Impulserhalt dar. \mathbf{k}_i und \mathbf{k}_s sind die Wellenvektoren der einfallenden und der gestreuten Welle. Der Streuprozess ist in Abbildung 2.19 dargestellt, mit dem Streuwinkel Θ . Damit ergibt sich $|\mathbf{k}|$ zu:

$$|\mathbf{k}| = (\mathbf{k}_s^2 + \mathbf{k}_i^2 - 2\mathbf{k}_s \mathbf{k}_i \cos \Theta)^{1/2} \xrightarrow{v/c_0 \ll 1} k = |\mathbf{k}| \approx 2|\mathbf{k}_i| \sin(\Theta/2). \quad (2.47)$$

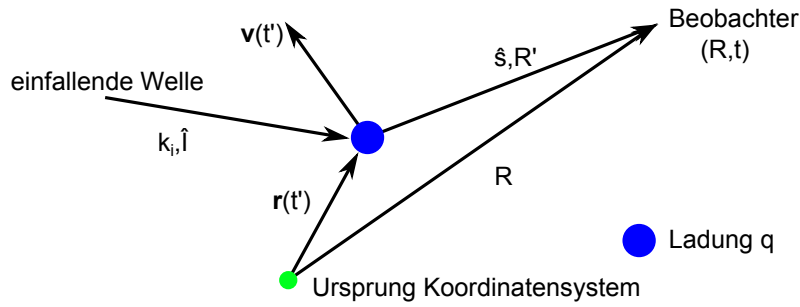


Abbildung 2.18.: Koordinatensystem eines Streuprozesses an einer bewegten Ladung q aus großer Entfernung. Das beobachtete Verhalten der Ladung q am Ort R und Zeitpunkt t entspricht dem Verhalten zum früheren Zeitpunkt t' .

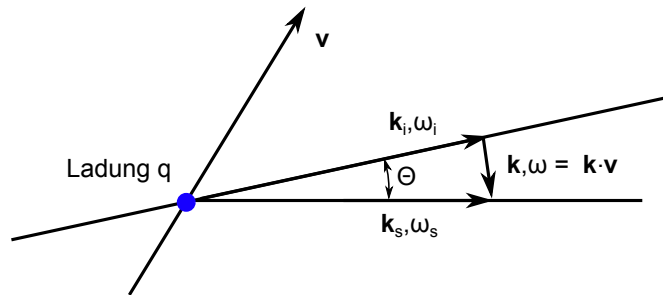


Abbildung 2.19.: Verhalten der beteiligten Wellenvektoren beim Streuprozess von Strahlung an einer bewegten Ladung (blau).

Im Experiment kann die abgestrahlte Leistung pro Raumwinkel gemessen werden. Für langsame Ladungen q ($v/c_0 \ll 1$) gilt für die elektrische Feldgleichung [Jackson 1975]:

$$\mathbf{E}_s(R, t) = \left(\frac{q}{4\pi\epsilon_0 c_0^2 R} \right) \left[\hat{s} \times \left(\hat{s} \times \frac{d\mathbf{v}}{dt'} \right) \right]. \quad (2.48)$$

Mit dieser Gleichung für das elektrische Feld, der Abhängigkeit des magnetischen Feldes $B = E/c_0$ und dem Poynting-Vektor $\mathbf{S} = (\mathbf{E} \times \mathbf{B})/\mu_0$ ergibt sich die abgestrahlte Leistung pro Raumwinkel zu:

$$\frac{dP_s}{d\Omega} = R^2 \mathbf{S} \cdot \hat{s} = R^2 c_0 \epsilon_0 |\mathbf{E}_s^2|, \quad (2.49)$$

mit \mathbf{E}_s dem elektrischen Feld. Im Experiment hat \mathbf{k} noch eine weitere Bedeutung, da in dessen Abhängigkeit im Plasma unterschiedliche Effekte, bezogen auf die Dimension, untersucht werden können. Aus Gleichung 2.47 ist ersichtlich, dass \mathbf{k} primär von der Wellenlänge und sekundär von der Streugeometrie abhängt. Für kleine Streuwinkel (kleines \mathbf{k}) werden primär kollektive Effekte untersucht, die auf große Skalen zurückgehen. Im Gegensatz zu großen Streuwinkeln, mit denen meist nicht-kollektive Effekte untersucht werden, die auf kleinen Skalen ablaufen. Der Einfluss von Korrelationseffekten wird durch den Streuparameter

$$\alpha = \frac{1}{\mathbf{k}\lambda_s} \quad (2.50)$$

beschrieben, mit λ_s der Korrelationslänge im Plasma oder der Abschirmlänge von elektrostatischen Kräften im Plasma. Die Unterscheidung erfolgt durch die Plasmabedingungen. In nicht entarteten Plasmen entspricht die Korrelationslänge der Debyelänge für Elektronen. Dabei wird α kleiner für größere Streuwinkel Θ . Für α größer eins ist die Streuung kollektiver Art, die mit Plasmonen und akustischen Schwingungen verbunden ist. Während bei α kleiner als eins die Röntgenstrahlung nur für Prozesse kleiner als die Abschirmlänge λ_s sensitiv ist und die nicht-kollektiven Effekte des Plasmas untersucht werden.

5.2 Klassische Beschreibung (Thomson-Formel)

Es wird eine ebene elektromagnetische Welle

$$\mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t') = \mathbf{E}_{i0} \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}(t') - \omega_i t') \quad (2.51)$$

betrachtet, mit der Amplitude \mathbf{E}_{i0} , dem Ortsvektor \mathbf{r} , der Frequenz der einfallenden Welle ω_i und dem Wellenvektor $\mathbf{k}_i = 2\pi/\lambda$, die auf ein freies Teilchen mit der Ladung q und der Masse m trifft (siehe Abbildung 2.20).

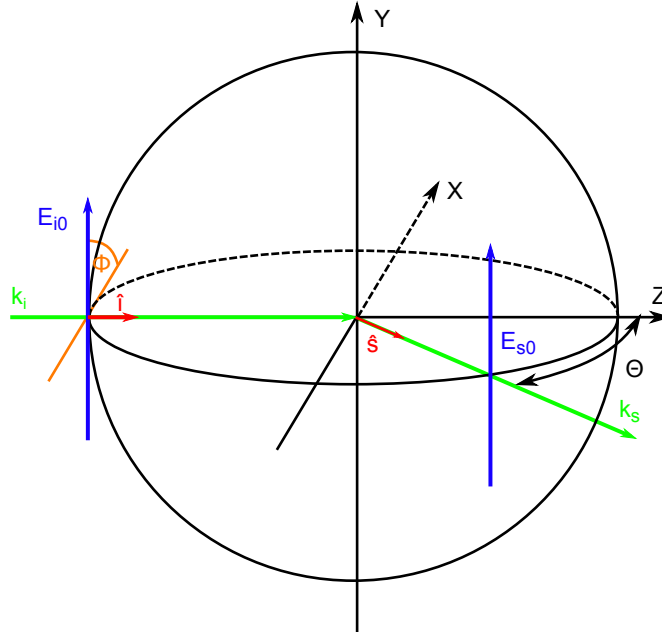


Abbildung 2.20.: Streugeometrie für Thomson-Streuung. Mit \mathbf{k}_i und \mathbf{k}_s den Wellenvektoren der einfallenden und gestreuten Welle, den zugehörigen Feldern \mathbf{E}_{i0} und \mathbf{E}_{s0} und Einheitsvektoren $\hat{\mathbf{i}}$ und $\hat{\mathbf{s}}$. Θ ist der Streuwinkel, bezogen auf die Ausbreitungsrichtung des einfallenden Photons. ϕ der Polarisationswinkel zwischen \mathbf{E}_{i0} und der Streuebene.

Bei diesem Prozess wird das Teilchen im elektrischen Feld zum Schwingen angeregt (beschleunigt) und emittiert die aufgenommene Energie wieder in Form von Dipolstrahlung. Ohne Einfluss eines Magnetfeldes oder anderer Kräfte ergibt sich die Bewegungsgleichung für das Teilchen zu:

$$m \left(\frac{d\mathbf{v}}{dt'} \right) = q \mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t') = q \mathbf{E}_{i0} \cos[\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}(t') - \omega_i t'] \quad (2.52)$$

mit \mathbf{v} der Geschwindigkeit des Teilchens. Wird in Gleichung 2.46 die Bahn des Teilchens $\mathbf{r}(t')$ eingesetzt, die mit $\mathbf{r}(t') = \mathbf{r}(0) + \mathbf{v}t'$ genähert werden kann, wird diese und Gleichung 2.52 in Gleichung 2.48 eingesetzt, ergibt sich das gestreute elektrische Feld zu:

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{R}, t) = \left(\frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 c_0^2 m R} \right) [\hat{\mathbf{s}} \times (\hat{\mathbf{s}} \times \mathbf{E}_{i0})] \cos[k_s R - \omega_s t - (\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_i) \cdot \mathbf{r}(0)] \quad (2.53)$$

mit $\omega_s = \omega_i(1 - \hat{\mathbf{i}} \cdot (\mathbf{v}/c_0))/(1 - \hat{\mathbf{s}} \cdot (\mathbf{v}/c_0))$ der Frequenz der abgestrahlten Doppler-verschobenen Welle und $\mathbf{k}_s = \omega_s \hat{\mathbf{s}}$ dem Wellenvektor (siehe Abbildung 2.19). $\hat{\mathbf{i}}$ ist der Einheitsvektor der einfallenden Welle. Diese Formel wird auch die Thomson-Gleichung genannt. Die gestreute Leistung pro Einheitswinkel $d\Omega$ folgt aus den Gleichungen 2.49 und 2.53 für Elektronen zu:

$$\frac{dP_s(\mathbf{R})}{d\Omega} = \left(\frac{e_0^2}{4\pi\epsilon_0 m_e c_0} \right)^2 \epsilon_0 c_0 [\hat{\mathbf{s}} \times (\hat{\mathbf{s}} \times \hat{\mathbf{E}}_{i0})]^2 \cos^2[k_s R - \omega_s t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}(0)]. \quad (2.54)$$

Für ein Elektron ist die zeitlich gemittelte abgestrahlte Leistung pro Raumwinkel gegeben mit

$$\frac{d\overline{P}_s}{d\Omega} = r_0^2 \frac{\epsilon_0 c_0}{2} [\hat{\mathbf{s}} \times (\hat{\mathbf{s}} \times \mathbf{E}_{i0})]^2, \quad (2.55)$$

dabei ist $r_0 = e_0^2 / (4\pi\epsilon_0 m_e c_0^2) = 2,82 \cdot 10^{-15}$ m der klassische Elektronenradius. Für unpolarisierte Strahlung kann über den Polarisationswinkel ϕ gemittelt werden mit

$$\hat{i} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}; \quad \hat{s} = \begin{pmatrix} \sin \theta \\ 0 \\ \cos \theta \end{pmatrix}; \quad \mathbf{E}_{i0} = \begin{pmatrix} \cos \phi \\ \sin \phi \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.56)$$

und unter Verwendung des trigonometrischen Pythagoras gilt:

$$[\hat{s} \times (\hat{s} \times \hat{E}_{i0})]^2 = \frac{1}{2}(1 + \cos^2 \Theta) |\mathbf{E}_{i0}^2|. \quad (2.57)$$

Mit der einfallenden Intensität $I_i = \frac{1}{2}\epsilon_0 c_0 |\mathbf{E}_{i0}|^2$ und der Beziehung 2.57 ergibt sich für Gleichung 2.55

$$\frac{d\bar{P}_s}{d\Omega} = \frac{r_0^2 I_i}{2} (1 + \cos^2 \Theta) \quad (2.58)$$

Diese Gleichung beinhaltet den gemittelten klassischen Streuquerschnitt eines freien Elektrons für einfallende unpolarisierte Photonen.

$$\frac{d\sigma_T}{d\Omega} = \frac{r_0^2}{2} (1 + \cos^2 \Theta) \quad (2.59)$$

Durch die Integration über das Raumwinkelement $d\Omega$ kann daraus der absolute Wirkungsquerschnitt eines freien Elektrons berechnet werden,

$$\sigma_T = \frac{8\pi}{3} r_0^2 \approx 0,665 \text{ b} \approx 6,65 \cdot 10^{-29} \text{ m}^2, \quad (2.60)$$

der Thomson-Wirkungsquerschnitt genannt wird. Da der Wirkungsquerschnitt sehr klein ist und sich die Plasmamparameter sehr schnell ändern, wird eine große Anzahl von Photonen in kurzer Zeit benötigt, um Experimente dieser Art durchzuführen und ausreichend viele Photonen zu streuen. Im Weiteren zeigt dies auch, dass die Streuung von Atomkernen vernachlässigt werden kann, da sie viel schwächer ist ($\propto m^{-2}$) als die der Elektronen. Im Folgenden wird die Gesamtheit der gestreuten Photonen in Einheiten der klassischen Streuung an einem freien Elektron betrachtet mit

$$I_T = I_i \frac{d\sigma_T}{d\Omega}. \quad (2.61)$$

5.3 Streuung am Plasma

Nachdem im vorherigen Abschnitt das Streuen einer Welle mit einer einzelnen Ladung behandelt wurde, wird nun auf die Streuung an Materie eingegangen. Dabei wird im Wesentlichen der Argumentation von J. Chihara gefolgt [Chihara 2000].

Ähnlich wie in Festkörpern und Flüssigkeiten wird die Streuung in WDM von Streuprozessen an Elektronen (freie und gebundene) dominiert. Dabei wechselwirken optische Photonen primär mit freien Elektronen und werden dabei elastisch gestreut. Für dichte Plasmen muss auf Röntgenstrahlung übergegangen werden. Diese tritt in Wechselwirkung mit den freien und gebundenen Elektronen, wobei ein Energietransfer durch den Compton-Effekt vom Photon auf das Elektron erfolgen kann und damit das Photon an Energie verliert. Der Streuvektor ist $\mathbf{k} = \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_i$ mit dem Energieübertrag $\hbar\omega = \hbar\omega_s - \hbar\omega_i$, mit \mathbf{k}_s dem Wellenvektor der gestreuten Welle mit der Frequenz ω_s und \mathbf{k}_i dem Wellenvektor der einfallenden Welle mit der Frequenz ω_i . Um die Winkelabhängigkeit und die spektral aufgelöste Streuintensität zu bestimmen, wird ein Plasma mit N Ionen angenommen. Für einfallende Photonen mit Energien, die viel größer sind als die Ionisationsenergie von gebundenen Elektronen und wenn Photon-Absorptionsprozesse vernachlässigt werden können, gilt für die Zahl der kinetisch freien Elektronen pro Ion $Z_f = Z_i + Z_v$ mit Z_i Zahl der freien (ionisierten) Elektronen und Z_v Zahl der schwach gebundenen (Valenz-) Elektronen. Z_b ist die Zahl der Kernelektronen, bei denen die Bindungsenergie größer als die Compton-Verschiebung ist¹⁴. Dabei ist $Z = Z_f + Z_b$ die Ladungszahl des Ions, also die Gesamtzahl der gebundenen Elektronen im Grundzustand. Die Ladungsverteilung von gebundenen Elektronen bezogen auf die Atome N kann klassisch geschrieben werden als [Chihara 2000]:

$$\tilde{\rho}(\mathbf{r}, t) = \sum_{k=1}^N \sum_{\alpha=1}^{Z_b} \delta[\mathbf{R}_k(t) + \mathbf{r}_{k,\alpha}(t)], \quad (2.62)$$

¹⁴ Die Compton-Verschiebung ist die Änderung der Wellenlänge eines Photons beim Streuen an einem Elektron.

mit $\mathbf{R}_k(t)$ der Position des k -ten Atoms zum Zeitpunkt t und $\mathbf{r}_{k,\alpha}(t)$ den Positionen aller zum Atom k gehörenden Elektronen. Für die folgende Betrachtung wird auf die Fourierdarstellung der Elektronen übergangen.

$$\rho_c(\mathbf{k}, t) = \int e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \tilde{\rho}(\mathbf{r}, t) dV = \sum_{k=1}^N \sum_{\alpha=1}^{Z_b} e^{i\mathbf{k}\cdot[\mathbf{R}_k(t)+\mathbf{r}_{k,\alpha}(t)]} = \sum_{k=1}^N e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_k(t)} \sum_{\alpha=1}^{Z_b} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_{k,\alpha}(t)} \quad (2.63)$$

Diese kann durch das Produkt aus der Atomdichte $\rho_A(\mathbf{k}, t) = \sum_{k=1}^N \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_k(t))$ mit dem Atomformfaktor $f(\mathbf{k}) = \langle \rho_e(\mathbf{k}, t) \rangle$ genähert werden. Dabei steht $\langle X \rangle$ für den Ensemblemittelwert und $\rho_e(\mathbf{k}, t) = \sum_{\alpha=1}^{Z_b} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{k,\alpha}(t))$ ist die Fouriertransformation der Elektronendichte der gebundenen Elektronen eines Atoms k . Dieses Produkt ergibt sich zu [Chihara 2000]:

$$\rho_c(\mathbf{k}, t) \approx \left\langle \sum_{\alpha=1}^{Z_b} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_{j,\alpha}(t)} \right\rangle \sum_{k=1}^N e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_k(t)} = f(\mathbf{k})\rho_A(\mathbf{k}, t), \quad (2.64)$$

wobei für die freien Elektronen gilt:

$$\rho_f(\mathbf{k}, t) = \sum_{l=1}^{NZ_f} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_l(t)}. \quad (2.65)$$

Dabei ist $\mathbf{r}_l(t)$ der zeitabhängige Positionsvektor des l -ten freien Elektrons. Die Gesamtelektronendichte ρ ergibt sich als die Summe der Kernelektronendichte ρ_c und der Dichte der freien Elektronen ρ_f zu:

$$\rho(\mathbf{k}, t) = \rho_c(\mathbf{k}, t) + \rho_f(\mathbf{k}, t) = \sum_{k=1}^N e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_k(t)} \sum_{\alpha=1}^{Z_b} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_{k,\alpha}(t)} + \sum_{l=1}^{NZ_f} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_l(t)} \quad (2.66)$$

Dies stellt die Fourierdarstellung der Realraumdarstellung der Elektronendichte dar. Die gestreute Intensität eines Plasmas $I(\mathbf{k}, \omega)$ kann geschrieben werden als:

$$I(\mathbf{k}, \omega) = NI_T S(\mathbf{k}, \omega), \quad (2.67)$$

mit N der Anzahl der Ionen, I_T der Intensität für klassische Thomson-Streuung (siehe Gleichung 2.61) und dem totalen dynamischen Strukturfaktor $S(\mathbf{k}, \omega)$, der alle im Plasma enthaltenen Elektronen berücksichtigt. Der totale dynamische Strukturfaktor ist das Leistungsspektrum der Zwischenstreuungsfunktion $F(\mathbf{k}, t)$. Er enthält alle Informationen über das mikroskopische System und kann geschrieben werden als [Chihara 2000]:

$$S(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi N} \int_{-\infty}^{\infty} F(\mathbf{k}, t) e^{i\omega t} dt \quad \text{mit} \quad F(\mathbf{k}, t) = \langle \rho(\mathbf{k}, t) \rho^*(\mathbf{k}, 0) \rangle. \quad (2.68)$$

Damit kann der dynamische Strukturfaktor für Festkörper und Plasmen nach [Chihara 2000] geschrieben werden als:

$$S(\mathbf{k}, \omega) = \underbrace{|f_I(\mathbf{k}) + d(\mathbf{k})|^2}_{\text{Ionenstrukturterm elastische Streuung}} S_{ii}(\mathbf{k}, \omega) + \underbrace{Z_f S_{ee}^0(\mathbf{k}, \omega)}_{\text{Elektronenstrukturterm inelastische Streuung}} + Z_b \int \underbrace{\tilde{S}^{ce}(\mathbf{k}, \omega - \omega') S_S(\mathbf{k}, \omega') d\omega'}_{\text{Streuung an schwach gebundenen Elektronen inelastische Streuung}} \quad (2.69)$$

Diese Gleichung behandelt einen weiten Bereich von Plasmaparametern und gilt auch für WDM. Der erste Term dieser Gleichung (Ionenstrukturterm) beschreibt die Elektronendichtekorrelation, welche der Ionenbewegung folgt. Diese stammt von den Kernelektronen, die vom Atomstrukturfaktor $f_I(\mathbf{k})$ beschrieben werden und die das Ion umgebenden abschirmenden Elektronen, welche durch $d(\mathbf{k})$ beschrieben werden. Der dynamische Ion-Ion-Strukturfaktor ergibt sich zu:

$$S_{ii}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi N} \int_{-\infty}^{\infty} \left\langle \sum_{l=1}^N \sum_{j=1}^N e^{i\mathbf{k}\cdot[\mathbf{R}_l(0) - \mathbf{R}_j(t)]} \right\rangle e^{i\omega t} dt \quad (2.70)$$

wobei $\mathbf{R}_l(0) - \mathbf{R}_j(t)$ die zeitabhängige Positionsänderung der Ionen zueinander beschreibt. Er gibt die thermische Bewegung der Ionen wieder. Eine weitere Betrachtung der elastischen Streuung und des Ion-Ion-Strukturfaktors erfolgt in

Abschnitt 5.3.1. Ebenfalls im ersten Term enthalten ist der Ion-Formfaktor $f_I(\mathbf{k})$ und $d(\mathbf{k})$ die Abschirmung der Ionen gegenüber freien Elektronen [Chihara 1987].

$$f_I(\mathbf{k}) = \left\langle \sum_{l=1}^{Z_b} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_l(t)} \right\rangle \quad \text{und} \quad d(\mathbf{k}) = \sqrt{Z_f} \frac{S_{ei}(\mathbf{k}, t)}{S_{ii}(\mathbf{k}, \omega)} \quad (2.71)$$

$$\text{mit } S_{ei}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi N} \int_{-\infty}^{\infty} \left\langle \sum_{l=1}^N \sum_{j=1}^{Z_f} e^{i\mathbf{k}\cdot[\mathbf{R}_l(0)-\mathbf{r}_j(t)]} \right\rangle e^{i\omega t} dt \quad (2.72)$$

Der zweite Term in Gleichung 2.69 beschreibt die Streuung an freien Elektronen, die nicht der Ionenbewegung folgen, mit

$$S_{ee}^0(\mathbf{k}, \omega) = S_{ee}(\mathbf{k}, \omega) - \frac{|d(\mathbf{k})|^2}{Z_f} S_{ii}(\mathbf{k}, \omega) \quad (2.73)$$

$$\text{mit } S_{ee}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi N} \int_{-\infty}^{\infty} \left\langle \sum_{l=1}^{NZ_f} \sum_{j=1}^{NZ_f} e^{i\mathbf{k}\cdot[\mathbf{r}_l(0)-\mathbf{r}_j(t)]} \right\rangle e^{i\omega t} dt \quad (2.74)$$

der Elektron-Elektron-Dichte-Korrelationsfunktion. Die weitere Betrachtung dieses Terms erfolgt in Abschnitt 5.3.2. Der dritte Term in Gleichung 2.69 behandelt die inelastische Streuung an gebundenen Elektronen. Mit dem dynamischen Strukturfaktor der gebundenen Elektronen

$$\tilde{S}^{ce}(\mathbf{k}, \omega) = S_{ce}(\mathbf{k}, \omega) - \frac{|f_I(\mathbf{k})|^2 \delta(\omega)}{Z_b} \quad (2.75)$$

$$\text{mit } S_{ce}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi N} \int_{-\infty}^{\infty} \left\langle \sum_{l,l'=1}^N \sum_{j,j'=1}^{Z_b} e^{i\mathbf{k}\cdot[\mathbf{R}_l(t)+\mathbf{r}_{lj}(t)]} e^{i\mathbf{k}\cdot[\mathbf{R}_{l'}(t)+\mathbf{r}_{l'j'}(t)]} \right\rangle e^{i\omega t} dt \quad (2.76)$$

und der Eigenbewegung der Ionen

$$S_S(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi N} \int_{-\infty}^{\infty} \left\langle \sum_l^N e^{i\mathbf{k}\cdot[\mathbf{R}_l(0)-\mathbf{R}_l(t)]} \right\rangle e^{i\omega t} dt. \quad (2.77)$$

In einem Isotropensystem hängt der totale dynamische Strukturfaktor nur vom Betrag des Streuvektors $|\mathbf{k}| = k$ ab.

5.3.1 Elastische Streuung

Im Folgenden wird der erste Term der Gleichung 2.69 betrachtet. Beim elastischen Anteil der Streuung, der durch die Ionen entsteht, findet beinahe kein Energietransfer beim Streuprozess statt, der Anfangs- und Endzustand sind daher gleich. Die Photonen streuen mit Elektronen der niedrigen Elektronenschalen und können diese nicht aus den tiefen Zuständen in das Kontinuum oder in höher liegende Zustände anregen. Während dieses Prozesses nimmt das Ion den Photonenimpuls auf und das Photon wird elastisch gestreut (siehe Abbildung 2.21). Die Bewegung der Ionen kann dabei in typischen Röntgenstreuexperimenten nicht aufgelöst werden. $S_{ii}(\mathbf{k}, \omega)$ ist sehr klein für Röntgenstrahlung (großes ω). Da Ionen sehr viel schwerer als Elektronen sind, kann der dynamische Ion-Ion-Strukturfaktor für elastische Streuung mit $S_{ii}(\mathbf{k}, \omega) = S_{ii}(\mathbf{k})\delta(\omega)$ angenommen werden [Gregori 2003]. $S_{ii}(\mathbf{k})$ ist der statische Ion-Ion-Strukturfaktor, der in Abschnitt 3 vorgestellt wurde und durch die radiale Verteilungsfunktion bestimmt werden kann. Der Ion-Formfaktor $f_I(\mathbf{k})$ ist zugehörig zu der räumlichen Verteilung der Elektronen, die stark an die Ionen gebunden sind. Er kann zum Beispiel exakt berechnet werden wenn dem Hartree-Fock-Ansatz, der selbst konsistenten Feldmethode, beschrieben von R. W. James [James 1962], gefolgt wird. Ein anderer Ansatz ist es, stattdessen als Näherung auf Wasserstoffwellenfunktionen zurückzugreifen. In dem Modell ergeben sich die Atomformfaktoren $f_{n,l}$, mit n der Hauptquantenzahl und l der Drehimpulsquantenzahl für K- und L-Schalen der Elektronen analytisch zu [Pauling 1932]:

$$f_{1,0}(k) = \frac{1}{[1 + (ka_B/2Z_{1,0})^2]^2}, \quad (2.78)$$

$$f_{2,0}(k) = \frac{[1 - (ka_B/2Z_{2,0})^2]}{[1 + (ka_B/2Z_{2,0})^2]^4}, \quad (2.79)$$

$$f_{2,1}(k) = [1 - 2(ka_B/2Z_{2,1})^2] \cdot f_{2,0}(k), \quad (2.80)$$

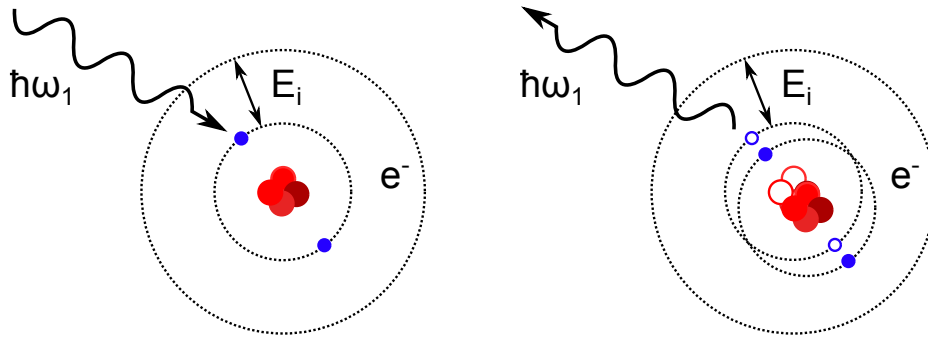


Abbildung 2.21.: Elastische Streuung von Photonen an gebundenen Elektronen. Dabei ist die Anregungsenergie E_i des streuenden Elektrons größer als die Energie des Photons. Das Elektron kann nicht auf ein anderes Energieniveau gelangen und das Ion nimmt den Impuls des Photons auf, welches dann quasi elastisch gestreut wird.

mit a_B dem Bohrschen Radius und $Z_{n,l} = Z - z_{n,l}$ der effektiven Kernladung, die das Elektron im Quantenzustand n, l wahrnimmt¹⁵. Die Abschirmkonstante $z_{n,l}$ hängt vom atomaren oder ionischen Zustand des Atoms ab und kann nach L. Pauling und J. Sherman [Pauling 1932] berechnet werden. Diese Methode liefert gute Ergebnisse für leichte Elemente. Der Ion-Formfaktor ergibt sich aus der Summe der Beiträge aller gebundenen Elektronen zu:

$$f_I(\mathbf{k}) = \sum_{n,l} f_{n,l}(k). \quad (2.81)$$

Wird ein neutrales und isoliertes Atom betrachtet, wird daraus der Atomformfaktor $f_A(k)$, welcher verfügbar ist für viele Elemente, zum Beispiel durch die numerischen Näherungen von D. Waasmaier und A. Kirfel [Waasmaier 1995]. Der Beitrag von $\mathbf{d}(k)$ kann sehr gering sein, so gilt für leichte flüssige Metalle genähert $f_A(k) \approx f_I(k) + d(k)$. Für den Fall $k > 2 \cdot 10^{10} \text{m}^{-1}$ ergibt sich $f_A(k) \approx f_I(k)$ [Anta 2000]. Die Bestimmung von $\mathbf{d}(k)$ in WDM ist komplizierter [Gericke 2010]. In den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten wurde eine Rückstreugeometrie gewählt, sodass $\mathbf{d}(k)$ vernachlässigt werden kann [Wünsch 2011].

5.3.2 Inelastische Streuung an freien Elektronen

Der zweite Term in Gleichung 2.69 beschreibt die inelastische Streuung an freien Elektronen, die nicht der Bewegung der Ionen folgen. Während der Streuung wird Energie vom Photon auf ein Elektron übertragen und das gestreute Photon gibt Energie durch den Compton-Effekt ab (siehe Abbildung 2.22). Die Photonen streuen dabei an Dichtefluktuationen



Abbildung 2.22.: Inelastische Streuung von Photonen an freien Elektronen. Das Photon wird absorbiert und versetzt das Elektron in Schwingungen. Anschließend wird das Photon emittiert. Dabei ist die Energie des Photons nun um die Eigenbewegung des streuenden Elektrons Doppler verschoben ($\omega_1 > \omega_2$).

der freien Elektronen im Plasma. Die Beschreibung erfolgt durch das Fluktuations-Dissipations-Theorem [Kubo 1957]

$$S_{ee}^0(\mathbf{k}, \omega) = -\frac{\hbar}{1 - \exp(-\hbar\omega/k_B T_e)} \frac{\epsilon_0 k^2}{\pi e_0^2 n_e} \text{Im} \left[\frac{1}{\epsilon(\mathbf{k}, \omega)} \right] \quad (2.82)$$

mit $\epsilon(\mathbf{k}, \omega)$ der dielektrischen Antwortfunktion des Elektrons. Für klassische Plasmen erfolgt die Betrachtung mit der um Störungen erweiterten Vlasov-Gleichung [Landau 1995]. Wenn die Elektronen anfangen zu entarten und Quanteneffekte beginnen zu dominieren, versagt diese Betrachtung. Solange die Wechselwirkungen zwischen den Teilchen schwach sind

¹⁵ $Z_{1,0} = 5,81$, $Z_{2,0} = 3,96$ und $Z_{2,1} = 3,09$ für Kohlenstoff nach L. Pauling und J. Sherman [Pauling 1932].

und nichtlineare Wechselwirkungen zwischen Dichtefluktuationen vernachlässigbar sind, kann die dielektrische Funktion mit der Random Phase Approximation (RPA) behandelt werden [Bohm 1951, Pines 1952, Bohm 1953]. Eine weiterreichende Behandlung als RPA für XRTS in dichten Plasmen erfolgt in der Arbeit von R. Redmer [Redmer 2005].

Im Allgemeinen können durch Messungen des inelastischen Streuverhaltens an freien Elektronen eine Reihe an Plasmaparametern bestimmt werden. In dieser Arbeit sind aufgrund der geringen Temperaturen (≈ 1 eV) im geschockten Zustand, nur wenige freie Elektronen vorhanden und selbst im komprimierten Zustand unwahrscheinlich. Der zweite Term in Gleichung 2.69 liefert damit keinen signifikanten Beitrag zum Streusignal und kann deshalb vernachlässigt werden.

5.3.3 Inelastische Streuung an gebundenen Elektronen

Der dritte Term der Gleichung 2.69 gibt die Dichtekorrelation der stark gebundenen Elektronen oder Kernelektronen jedes Ions wieder. Dies beinhaltet zwei inelastische Streuprozesse. Bei der Raman-Streuung wird das Elektron in einen angeregten Zustand gehoben. Ist der Energieübertrag größer als die Ionisationsenergie, gelangt das Elektron ins Kontinuum und dieser Vorgang wird als „bound-free“ Streuung¹⁶ bezeichnet (siehe Abbildung 2.23).

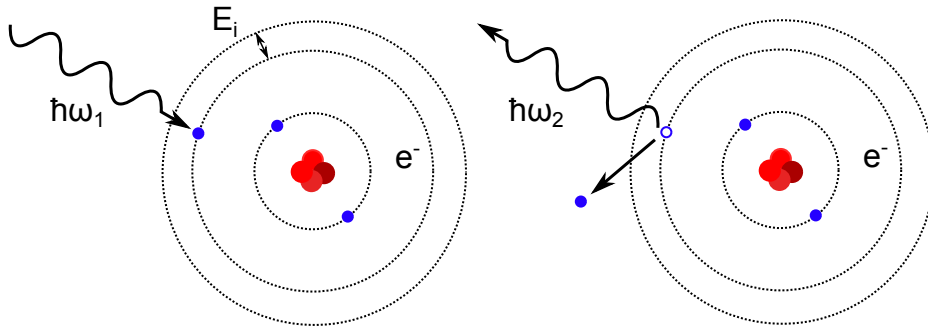


Abbildung 2.23.: Inelastische Streuung von Photonen an gebundenen Elektronen. Ist die Energie eines Photons größer als die Energie E_i , die es bedarf, um ein Elektron zu entfernen und das Atom zu ionisieren, hat das gestreute Photon nach diesem Prozess eine verringerte Energie.

Der Anteil von Raman-Streuung bei der Verwendung von Röntgenstrahlung im WDM Bereich kann vernachlässigt werden [Gregori 2003, Gregori 2004]. Der Hauptbeitrag der „bound-free“ Streuung kommt von besetzten Zuständen in der L-Schale bei der Verwendung von Röntgenstrahlung in einer nicht kollektiven Streugeometrie. Dabei können die Wechselwirkungen mit den Kernelektronen mit der Impulsnäherung (Impulse Approximation, IA) behandelt werden [Eisenberger 1970, Currat 1971], solange $|E_b/E_c|^2 \ll 1$ gilt mit E_b der Bindungsenergie des Elektrons und $E_c = \hbar^2 k^2 / (2m_e)$ der Compton-Energie. Für die IA werden die Annahmen getroffen, dass die Elektron-Photon-Wechselwirkung kurz ist und die Elektronen vor und nach dem Streuprozess das gleiche umgebende Kernpotenzial wahrnehmen. Die Elektronen können beim Streuprozess als frei betrachtet werden. Nur die Änderung der kinetischen Energie muss berücksichtigt werden. Die Energieänderung hängt von der Projektion des Elektronenimpulses auf den Streuvektor \mathbf{k} ab. Die Dopplerverbreiterung der gestreuten Photonen ist direkt abhängig von der Impulsverteilung der Elektronen [DuMond 1929]. Mit der Wasserstoff-Näherung für die Startwellenfunktion und der Impulsverteilung der Elektronen ergeben sich die Profile für die K- und L-Schale in der IA zu [Bloch 1975]:

$$J_{1,0}^0(\xi) = \frac{8}{3\pi Z_{n,l} (1 + \xi^2/Z_{n,l}^2)^3}, \quad (2.83)$$

$$J_{2,0}^0(\xi) = \frac{64}{9\pi Z_{n,l}} \left(\frac{1}{3(1 + 4\xi^2/Z_{n,l}^2)^3} - \frac{1}{(1 + 4\xi^2/Z_{n,l}^2)^4} + \frac{4}{5(1 + 4\xi^2/Z_{n,l}^2)^5} \right), \quad (2.84)$$

$$J_{2,1}^0(\xi) = \frac{64}{15\pi Z_{n,l}} \frac{1 + 20\xi^2/Z_{n,l}^2}{(1 + 4\xi^2/Z_{n,l}^2)^5} \quad (2.85)$$

mit

$$\xi = \frac{m_e a_B}{\hbar k} \left(\omega - \frac{\hbar k^2}{2m_e} \right). \quad (2.86)$$

¹⁶ Die erste Ionisierungsenergie für Kohlenstoff beträgt 11,26 eV.

Der obere Index 0 gibt die Ordnung der Korrektur an. In weiterführenden Betrachtungen wird dieser durch die entsprechende Ordnung ersetzt. Diese weiterführenden Modifikationen berücksichtigen dann die Energieverschiebung des Streusignals [Issolah 1988]¹⁷. Weitere Verbesserungen erfolgen durch die Verwendung der Born-Näherung und Wasserstoffwellenfunktionen für den Anfangs- und Endzustand [Eisenberger 1970, Bloch 1974, Bell 1986] oder durch Störungserweiterung des Endzustands [Gasser 1983, Holm 1989]. Die „bound-free“ Streuung ist nur erlaubt, wenn der Energietransfer vom Photon auf das Elektron größer ist als die Bindungsenergie. Der dynamische Strukturfaktor hat damit eine Grenzenergie für die Ionisation von K- und L-Schalen Elektronen. Der totale „bound-free“ dynamische Strukturfaktor kann für die IA nach [Glenzer 2009] geschrieben werden als

$$\tilde{S}^{ce}(k) = r_k \sum_{n,l} J_{n,l}(\xi) \quad (2.87)$$

mit der Summe über alle Beiträge der gebundenen Elektronen. Die Normierungskonstante r_k berücksichtigt die Möglichkeit von kohärenter Streuung [Paakkari 1974] und ist gegeben durch [James 1962]

$$r_k = 1 - \frac{1}{Z_b} \sum_n f_n^2(k) \approx 1 - \frac{|f_1(k)|^2}{Z_b^2} \quad (2.88)$$

mit $f_n(k)$ den Atomformfaktoren (siehe Gleichungen 2.78 - 2.80) und dem Zusammenhang aus Gleichung 2.81.

5.4 Analyse Phasenübergang mit XRTS

Für den fest-flüssig Übergang ändert sich $S_{ii}(\mathbf{k}, \omega)$ sehr stark und erlaubt damit eine Untersuchung der Phase. Die Änderung erfolgt durch die sich ändernde Amplitude des elastisch gestreuten Signals für einen gegebenen Streuvektor. Gleichzeitig bleibt die Intensität des inelastischen Signals konstant und kann zum Normalisieren verwendet werden. Für WDM Bedingungen im nicht-kollektiven Streuregime und für freie Elektronen kann vom dynamischen Strukturfaktor $S(\mathbf{k}, \omega)$ auf den statischen Strukturfaktor $S(\mathbf{k})$ übergegangen werden. Dafür wird der dynamische Strukturfaktor über alle Frequenzen integriert und der statische Strukturfaktor dadurch erhalten.

Weiter kann die Gleichung 2.69 für den Bereich der WDM vereinfacht werden, da von einem niedrigen Ionisationsgrad (keine freien Elektronen) ausgegangen werden kann und die Ionen als statisch betrachtet werden können. Damit ergibt sich der erste Term der Gleichung mit den Erkenntnissen aus Abschnitt 5.3.1 zu $|f(k)|^2 S_{ii}(k)$. Der zweite Term, die Streuung an freien Elektronen, kann aufgrund der sehr geringen Anzahl von freien Elektronen vernachlässigt werden. Aus dem dritten Term, dem inelastischen Streuen von Photonen an gebundenen Elektronen, ergibt sich der statische Strukturfaktor aus der Summe der elektronischen Formfaktoren $f_n(\mathbf{k})$ für alle schwach gebundenen Elektronen Z_b zu:

$$S_{bf}(k) = Z_b \int \tilde{S}^{ce}(\mathbf{k}, \omega - \omega') S_S(\mathbf{k}, \omega') d\omega' = \sum_{n=1}^{Z_b} (1 - |f_n(\mathbf{k})|^2). \quad (2.89)$$

Durch diese Vereinfachungen ergibt sich die Formel zu [James 1962, Gregori 2003, Gregori 2004]:

$$S(k) = |f(k)|^2 S_{ii}(k) + \sum_{n=1}^{Z_b} [1 - f_n(k)^2] \quad (2.90)$$

Mit diesen Annahmen ergibt die Messung des Verhältnisses der elastisch zu inelastisch gestreuten Intensität direkt den statischen Ionenstrukturfaktor [Kraus 2013]:

$$S_{ii}(k) = \frac{1}{|f(k)|^2} \left[\sum_{n=1}^{Z_b} [1 - f_n(k)^2] \right] \frac{I_{el}}{I_{inel}}. \quad (2.91)$$

Dabei muss das Verhältnis von elastisch gestreuter Intensität I_{el} zu inelastisch gestreuter Intensität I_{inel} vom Experiment aufgelöst werden können. Dafür sind große Streuwinkel am besten geeignet, da hier die Verschiebung des inelastischen Streusignals größer ist als für kleine Winkel [Redmer 2005] und damit leichter detektiert werden kann. Während des Phasenübergangs ändert sich die Form des Strukturfaktorverlaufs von einzelnen Peaks, an denen die Bragg-Bedingung erfüllt wird, zu einer kontinuierlichen Funktion (siehe Abbildung 2.5). Entscheidend für die Experimentgeometrie ist dabei, dass keine Bragg-Peaks getroffen werden, da diese das Streusignal überlagern, sehr viel stärker sein können als das XRTS Signal und ihr Anteil am Gesamtsignal unbekannt ist. Um dies zu gewährleisten, gilt es eine möglichst schmalbandige Röntgenquelle zu verwenden und eine entsprechende Kombination aus Photonenenergie und Streuwinkel zu wählen. Sofern nicht anders angegeben, bezieht sich der Begriff Strukturfaktor im folgenden Experimentalteil immer auf den Ion-Ion-Strukturfaktor, da dies die im Experiment zugängliche Größe ist.

¹⁷ Siehe Compton-Defekt [Bergstrom 1997]

5.5 Bragg-Streuung

Beim Effekt der Bragg-Streuung handelt es sich um einen Spezialfall der Strukturfaktorbetrachtung, wenn sehr periodische Strukturen vorliegen. In diesem Fall bildet der Strukturfaktor scharf definierte Bereiche mit einer sehr hohen Reflexion, die die sogenannten Bragg-Reflexe erzeugen. Durch die Anordnung der einzelnen Atome entstehen eine Reihe von Gitterebenen, an der es zu konstruktiver Interferenz kommt. Die Reflexion erfolgt in die Richtung, in die die Bragg-Gleichung erfüllt ist [Bragg 1913].

$$n\lambda = 2d \sin(\theta_B) \quad (2.92)$$

Dabei ist λ die Wellenlänge des Photons, d der Gitterebenenabstand, n die Beugungsordnung und θ_B der Winkel zwischen dem Röntgenstrahl und der Gitterebene. Dieser Effekt kann für dispersive Elemente in einem Kristallspektrometer (siehe Experimentalkapitel Abschnitt 1.2) zur Energieseparation verwendet werden, oder um eine mikroskopische Struktur- oder Phasenänderung zu detektieren, bei der sich die Bragg-Reflexe verschieben oder verschwinden. In Abbildung 2.24 ist die Geometrie der Bragg-Streuung dargestellt.

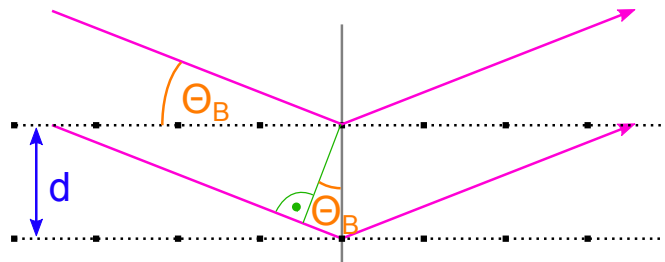


Abbildung 2.24.: Darstellung der Bragg-Bedingung.



3 Simulation

Um die gewonnenen Daten der Experimente verstehen und interpretieren zu können, ist ein angemessenes Verständnis des dynamischen Strukturfaktors nötig. Dafür muss besonders das Verhalten der Form der spektral aufgelösten Streusignale beachtet werden, welches von der theoretischen Seite her eine große Herausforderung für die Simulationen ist [Wünsch 2011]. Der enorme Zuwachs an Rechenkapazität in den letzten Jahren erlaubt immer mehr den Einsatz von *ab-initio* Methoden für die Berechnung des dynamischen Strukturfaktors von WDM [Garcia 2008], die über die Methoden der IA und der Verwendung von Wasserstoffwellenfunktionen hinausgehen. Mit diesen Methoden wird die mikroskopische Struktur betrachtet. Sie erlauben keine Betrachtung der Materialwechselwirkungen durch eine lasergetriebene Schockwelle. Diese Vorgänge werden üblicherweise mit Hydrodynamik-Simulationen verglichen. Im Folgenden wird auf die Funktionsweise von Hydrodynamik-Simulationen für die Wechselwirkung eines Lasers mit einer Probe eingegangen und auf die direkte Anwendung des HELIOS-Simulations Programms [MacFarlane 2006] für die Experimentparameter. Darauf folgt die Vorstellung von DFT-MD Methoden für die Betrachtung der mikroskopischen Struktur und die Vorstellung von vergleichenden Simulationsergebnissen für die Experimente.

1 Funktionsweise der Hydrodynamik-Simulation

Die Wechselwirkung von Laserstrahlen mit Materie kann mit Modellen durchgeführt werden, die die Hydrodynamik, den Strahlungstransport und den Energieeintrag durch die Laserstrahlabsorption berücksichtigen. Dafür sind die Eulerschen Gleichungen zu lösen.

$$\text{Massenerhaltung} \quad \frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) \quad (3.1)$$

$$\text{Impulserhaltung} \quad \frac{\partial \rho \mathbf{v}}{\partial t} + \rho (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -\nabla P + f \quad (3.2)$$

$$\text{Energieerhaltung} \quad \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\rho \mathbf{v}^2}{2} + \rho \epsilon \right) + \nabla \cdot \left[\rho \mathbf{v} \left(\epsilon + \frac{\rho \mathbf{v}^2}{2} \right) + P \mathbf{v} \right] = E_{\text{qs}} \quad (3.3)$$

Bei der Energieerhaltung sind vor allem die Quell- und Senkterme in $E_{\text{qs}} = -\nabla j_{\text{therm}} - \nabla S + q_{\text{ib}}$ von Bedeutung. Diese betreffen die Zufuhr von Energie durch den Laser in Form von inverser Bremsstrahlung q_{ib} , Wärmeleitung $-\nabla j_{\text{therm}}$ und Strahlungstransport ∇S . Der Strahlungstransport ergibt sich aus der Integration über alle Frequenzen der Strahlungstransportgleichung. Die Erhaltungssätze mit dem Strahlungstransport bilden allerdings kein komplett geschlossenes System. Zusätzlich braucht ein Hydro-Code noch die Zustandsgleichung $\epsilon(\rho, P)$ und die Opazität $\kappa_{\omega}(\epsilon, \rho, P)$ des zu berechnenden Materials, die vorab verfügbar sein müssen.

Diese Bedingungen müssen in den Bereichen der heißen dichten Plasmen beziehungsweise der WDM vom Hydro-Code gelöst werden. Die Schwierigkeiten liegen bei den Zustandsgleichungen und den Opazitäten, da diese bei den vorliegenden extremen Bedingungen für die untersuchten Systeme nicht hinreichend genug bekannt sind. Als Datenbasis für die Zustandsgleichungen und Opazitäten kann die SESAME Datenbank [Lyon 1992] verwendet werden. Im Hydro-Code werden für die Simulationen die gewünschten Probenparameter: wie Dichte, Material und räumliche Dimension angegeben. Diese Informationen werden auf ein numerisches Netz mit festen Punkten und diskreten Werten gebracht. In dieser Arbeit wurde der eindimensionale HELIOS Code 4.3 verwendet, der im nächsten Abschnitt vorgestellt wird. Die Verwendung eines eindimensionalen Codes ist möglich, wenn die vom Laser beleuchtete Fläche vom Durchmesser her mindestens dem Doppelten der Probendicke entspricht.

2 HELIOS-Simulation

Der Hydro-Code HELIOS löst die Strahlungs-Hydrodynamikgleichungen mit einem eindimensionalen Lagrange-Netz (Lagrangekoordinaten werden auch Massenkoordinaten genannt). Dabei können planare, zylindrische und sphärische Geometrien verwendet werden. Der HELIOS Code ist weit verbreitet bei der Analyse von lasergetriebenen Schockwellen für Röntgenstreuexperimente [Garcia 2008, Neumayer 2010]. Der Code von *PRISM-CS* [MacFarlane 2006] ist Teil des Software Pakets *PRISM Software*. Die Strahlungs-Hydrodynamikgleichungen werden dabei für eine Einkomponentenflüssigkeit gelöst, bei der die Elektronen und Ionen sich zusammen bewegen, während eine künstliche Flüssigkeitsviskosität

die Stabilität der Schocklösung garantiert. Die Beiträge zum Druck der Bewegungsgleichungen kommen von den Elektronen, Ionen, der Strahlung und dem Magnetfeld. Der Energietransport im Plasma kann mit einem Eintemperaturmodell ($T_i = T_e$) oder Zweitemperaturmodell ($T_i \neq T_e$) behandelt werden. Dieser wird mit dem Spitzer-Modell [Spitzer 1953], einem Modell mit konstanter Wärmeleitfähigkeit oder Hybridmodellen beschrieben. Für die Elektronen und Ionen wird eine Maxwell-Verteilung der Temperaturen T_e und T_i angenommen. Die Eigenschaften der Materialzustandsgleichungen basieren auf den SESAME Tabellen [Lyon 1992] oder PROPACEOS¹ Tabellen [MacFarlane 2006]. Die Opazitäten werden ebenfalls durch PROPACEOS bereitgestellt. Die Laserenergie wird mit einem inversen Bremsstrahlungsmodell eingebracht, wobei keine Energie hinter die kritische Dichte eingebracht werden darf. Für eine planare Geometrie gelangt das Laserlicht entlang eines einzelnen Strahls mit dem Einfallswinkel 0° auf die Probe. HELIOS erlaubt es Proben, bestehend aus mehreren Lagen verschiedener Materialien, aufzubauen. Die ganze Probe wird zur Erstellung des Lagrange-Netzes in Zonen aufgebaut, wobei die Anzahl der Zonen die Genauigkeit der Simulation bestimmt.

3 Ab-initio Simulationen

Das Hauptziel dieser Arbeit ist das Verstehen des Verhaltens von Kohlenstoff auf der mikroskopischen Ebene im flüssigen Zustand. Durch quantenmechanische Berechnungen ist es möglich, viele Phänomene quantitativ vorherzusagen. Die Lösung dieser quantenmechanischen Gleichungen werden als *ab-initio* Methoden bezeichnet, bei der die Schrödingergleichung mittels quantenmechanischer Näherungen gelöst wird. Die besten Resultate für das Verhalten der Struktur für WDM Bedingungen liefert die *ab-initio* Dichte-Funktional-Theorie (DFT) in Verbindung mit Monte-Carlo Simulation für die Molekulardynamik (MD). Im Folgenden wird erst auf die DFT, dann auf die DFT-MD und abschließend auf die Anwendung der DFT-MD für Kohlenstoff im Bereich der WDM eingegangen. Die Verwendung der DFT-MD erfolgt, da diese eine gute Vorhersagekraft für thermodynamische und Transporteigenschaften in der WDM aufweist und diese mit einer hohen numerischen Effizienz kombiniert.

3.1 DFT

Das Grundprinzip der DFT ist die Bestimmung der Elektronendichte im Grundzustand. Der Grundzustand eines Systems aus N Elektronen weist eine eindeutige, ortsabhängige Elektronendichte $\rho(\mathbf{r})$ auf, aus der alle weiteren Eigenschaften des Grundzustandes bestimmt werden können und die ein Gesamtpotential $\Psi(\mathbf{r})$ erzeugt. Die Energie eines Atoms lässt sich aufgrund des Hohenberg-Kohn-Theorems [Hohenberg 1964] durch die Elektronendichte $\rho(\mathbf{r})$ bestimmen. Der große Vorteil der DFT ist, dass es nicht notwendig ist, die vollständige Schrödingergleichung für ein Vielelektronensystem zu lösen. Dies reduziert den Rechenaufwand stark, weshalb sie weit verbreitet ist². In der DFT ist die Energie E eine Funktion der ortsabhängigen Elektronendichte $n_e(\mathbf{r})$.

$$E = E[n_e(\mathbf{r})] \quad (3.4)$$

Dabei ergibt sich die Gesamtzahl der Elektronen N_e aus dem Integral über das Volumen der ortsabhängigen Elektronendichte

$$N_e = \int_V n_e(\mathbf{r}) dV. \quad (3.5)$$

In der DFT wird ein Funktional entwickelt, das die Energie und die Elektronendichte miteinander verknüpft. Die Grundzustandsenergie eines Systems mit N Elektronen kann nach [Kohn 1965] geschrieben werden als

$$E[n_e(\mathbf{r})] = E_{\text{kin}} + E_{\text{ek}} + E_{\text{ee}} + E_{\text{aus}}. \quad (3.6)$$

Diese setzt sich zusammen aus: der kinetischen Energie der Elektronen E_{kin} , der potenziellen Energie der Elektron-Kern-Wechselwirkung E_{ek} , der potenziellen Energie der Elektron-Elektron-Wechselwirkung E_{ee} und der Austausch-Korrelationsenergie E_{aus} , die Spin-Effekte der Elektronen berücksichtigt.

Die Wellenfunktion eines Systems aus N Elektronen beinhaltet $3 \cdot N$ Koordinaten³. Zur Bestimmung der Elektronendichte werden N Ein-Elektronen-Wellenfunktionen verwendet, die Kohn-Sham-Funktionen Ψ_i genannt werden. Die Dichte ergibt sich aus:

$$n_e(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^N |\Psi_i(\mathbf{r})|^2. \quad (3.7)$$

¹ Prism Opacity and Equation of State

² Nobelpreis in Chemie 1998 für Walter Kohn

³ Wird der Spin berücksichtigt, $4 \cdot N$

Durch Anwendung des Variationsprinzips auf die abgeleitete Elektronenenergie können diese bestimmt werden durch:

$$[V_{\text{ww}}(\mathbf{r}) + V_{\text{aus}}(\mathbf{r})]\Psi_i(\mathbf{r}) = E_i\Psi_i(\mathbf{r}). \quad (3.8)$$

Mit $V_{\text{ww}}(\mathbf{r})$ der Summe der Beiträge aus der Bewegung der Elektronen, der Elektron-Kern-Wechselwirkung und der Elektron-Elektron-Wechselwirkung. $V_{\text{aus}}(\mathbf{r})$ ist das Austausch-Korrelationspotenzial und entspricht der „funktionalen Ableitung“ der Austausch-Korrelationsenergie.

$$V_{\text{aus}}[n_e] = \frac{\delta E_{\text{aus}}[n_e(\mathbf{r})]}{\delta n_e(\mathbf{r})} \quad (3.9)$$

Für die Lösung werden die Kohn-Sham-Gleichungen iterativ und selbstkonsistent gelöst. Die Startelektronendichte wird durch Superposition der atomaren Elektronendichte bestimmt. Im nächsten Schritt wird das Austausch-Korrelationspotenzial bestimmt, wofür die ungefähre Form der Abhängigkeit der Austausch-Korrelationsenergie von der Elektronendichte angenommen wird. Damit wird die funktionale Ableitung aus Gleichung 3.9 bestimmt. Die einfachste Näherung ist die lokale Dichtenäherung (local density approximation, LDA), die den Ansatz

$$E_{\text{aus}}[n_e(\mathbf{r})] = \int n_e(\mathbf{r})\epsilon_{\text{aus}}[n_e(\mathbf{r})]d\mathbf{r} \quad (3.10)$$

verwendet. Dabei ist ϵ_{aus} die Austausch-Korrelationsenergie eines Elektrons innerhalb eines homogenen Elektronengases mit konstanter Dichte. Daraus werden die Kohn-Sham-Gleichungen gelöst und neue Orbitale bestimmt (neue Ψ_i 's). Durch diese Orbitale wird die Elektronendichte neu bestimmt. Diese entsprechen nun mehr der Realität als die vorherigen Orbitale. Diese Schritte werden mehrmals durchgeführt, bis die Austausch-Korrelationsenergie und die Elektronendichte nicht mehr variieren. Die Problematik besteht darin, dass keine exakten Funktionale existieren, welche die Austausch-Korrelationsenergie beschreiben. In der LDA-Näherung hängt das Funktional nur von der Elektronendichte ab. Ein anderer Ansatz ist hier die Gradienten-Näherung (generalized gradient approximation, GGA), bei der das Funktional zusätzlich von der ersten Ortsableitung der Elektronendichte abhängig ist. Für Simulation im Bereich der WDM wird die Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) [Perdew 1996] Methode für die Austausch-Korrelationspotentiale im Rahmen der GGA verwendet. Mit diesem Formalismus ist es möglich, Systeme bis hin zu einigen tausend Elektronen zu betrachten.

3.2 DFT-MD

Die reine DFT berechnet den Grundzustand des Systems. Dieses Vorgehen ist im Bereich der WDM, in der die thermische Energie und die Fermienergien vergleichbar sind, nicht anwendbar, da die Fermiverteilung durch eine Stufenfunktion und der Annahme $T = 0$ behandelt wird. Um Temperatureffekte für die Elektronen zu berücksichtigen, kann diese mit dem Mermin-Funktional [Mermin 1965] bestimmt werden, welches die Energieeigenzustände nach der realen temperaturabhängigen Fermifunktion besetzt. Für den Bereich der WDM muss auf die Born-Oppenheimer DFT-MD übergegangen werden. Dabei behandelt die Molekulardynamik die Wechselwirkung zwischen Atomen und die daraus resultierende Bewegung, während die DFT die Elektronen behandelt. Die Berechnung des Systems erfolgt dabei iterativ. Die Beschreibung der Ionen erfolgt mit der klassischen MD. Für die in dieser Arbeit gezeigten DFT-MD Simulation ist das *Vienna Ab-Initio Simulation Package* (VASP) [Kresse 1993, Kresse 1994, Kresse 1996] verwendet worden. Dabei werden für eine gegebene Ionenkonfiguration die Kohn-Sham-Gleichungen gelöst und im nächsten Schritt die Energielevel entsprechend der Fermiverteilung besetzt. Von der erhaltenen Elektronenkonfiguration werden die Elektronen-Ionen-Wechselwirkungen berechnet, woraus sich die Bewegung der Ionen ergibt. Dieser Prozess wiederholt sich und die neue Elektronendichte für die neue Ionenkonfiguration wird bestimmt. Dabei folgen die Elektronen instantan dem neuen Feld der Ionenkonfiguration [Gericke 2010b].

3.3 DFT-MD für Kohlenstoff

Alle in dieser Arbeit gezeigten DFT-MD Simulationen sind von J. Vorberger⁴ durchgeführt worden. Für die Simulationen wurde der VASP Code verwendet. Weitere Details zu den Simulationsparametern sind in [Kraus 2013 Support Material] enthalten. Die Simulationen wurden für etwa 200 Kohlenstoffatome in einem begrenzten Volumen durchgeführt. Die Anordnung der Atome beim Start der Simulation kann dabei eine Graphitstruktur, hexagonale Diamantstruktur, kubische Diamantstruktur oder eine Flüssigkeit sein. Während der gesamten Simulation wurden die Temperatur und das Volumen festgehalten. Diese Simulationen liefern die radiale Verteilungsfunktion $g(r)$ (siehe Theoriekapitel Abschnitt 3) aus

⁴ Jan Vorberger, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, Bautzner Landstraße 400, 01328 Dresden, Deutschland

der mittels Fouriertransformation der Strukturfaktor bestimmt werden kann. Dabei ist der Strukturfaktor der im Experiment zugängliche Parameter. Zusätzlich liefern die Simulationen Informationen über die Phase, indem die Bewegung der Atome über die Simulationszeit verfolgt wurde. Der bestimmte Verlauf des Strukturfaktors hängt mit der Bewegung der Teilchen über die gesamte Simulationszeit zusammen. Bewegen sich die Teilchen nicht, liegt eine feste Struktur vor. Bewegen sie sich, befindet sich das Material in der flüssigen Phase. Der Verlauf der Teilchenbewegung von Kohlenstoffsimulationen für verschiedene Dichten und Temperaturen ist in Abbildung 3.1 oben links und rechts dargestellt.

In der Abbildung oben links sind Simulationen dargestellt, die in der flüssigen Phase beginnen. Der Kohlenstoff bleibt in den Simulationen für 6 000 K und 8 000 K während der gesamten Simulationszeit flüssig, während das Material in den Simulation für 4 000 K nach kurzer Zeit kristallisiert. Dies zeigt sich durch das Verhalten der Teilchenbewegung. Dabei bedeutet ein Ansteigen der Kurve, dass die Probe flüssig ist und eine Steigung von null, dass die Probe fest ist. Die Steigung der Teilchenbewegung gibt damit auch an, wie weit die Probe von der Kristallisation entfernt ist. Damit befindet sich die Simulation für 6 000 K kurz vor der Kristallisation und dem Phasenübergang. Die Simulationen oben rechts in Abbildung 3.1 starten in einer Diamantstruktur für verschiedene Temperaturen und Dichten. Die Ergebnisse zeigen für 9 000 K und 10 000 K bei einer Dichte von $4,28 \text{ g/cm}^3$ ansteigende Geraden für die Teilchenbewegung und zeigen damit eine flüssige Phase an, während für 8 000 K ($4,28 \text{ g/cm}^3$) die Struktur erhalten bleibt. Die simulierte Probe für 8 000 K bei einer Dichte von $3,90 \text{ g/cm}^3$ ist ebenfalls flüssig während das Ergebnis bei 7 000 K auf eine feste Phase hinweist. Die Simulationsergebnisse für die beiden festen Phasen sind um einen Faktor 10 vergrößert dargestellt. Die Simulation für 8 000 K und einer Dichte von $3,90 \text{ g/cm}^3$ wurde über 12 000 fs simuliert. Dabei blieb das Material in den ersten 6 000 fs fest und wurde erst danach flüssig. Die ersten 6 000 fs sind zur besseren Darstellung nicht mit angezeigt. In Abbildung 3.1 unten links sind Ergebnisse von DFT-MD Simulation für den Strukturfaktor dargestellt. Dabei ist deutlich zu erkennen, dass sich der Strukturfaktor sehr stark in Abhängigkeit der Temperatur verändert. Die Simulationen für 10 000 K ($4,08 \text{ g/cm}^3$), 8 000 K ($3,90 \text{ g/cm}^3$) und 5 000 K ($4,08 \text{ g/cm}^3$) starten von einer Diamantstruktur. Der Übergang zu einer Flüssigkeit zeichnet sich dadurch aus, dass die Bragg-Peaks von Diamant bei etwa $k = 3,2 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 5,2 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 6,2 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ verschwinden und ein glatter Kurvenverlauf sichtbar wird. Bei der Simulation für 8 000 K ($3,90 \text{ g/cm}^3$) sind die Bragg-Peaks deutlich zu erkennen, obwohl die Teilchenbewegung (siehe Abbildung 3.1 oben rechts) zeigt, dass die Probe am Ende flüssig und nur am Anfang der Simulation fest ist. Eine, wenn auch nur kurzfristige, feste Phase hat damit einen massiven Einfluss auf das Simulationsergebnis. Die Simulationen für 4 000 K, 6 000 K und 8 000 K bei einer Dichte von $4,00 \text{ g/cm}^3$ starten in der flüssigen Phase. Die Simulationen für 6 000 K und 8 000 K zeigen eine flüssige Phase (vergleiche Abbildung 3.1 oben links). Die sehr geringe Teilchenbewegung bei 6 000 K weist darauf hin, dass das Material in der Simulation kurz vor dem Phasenübergang ist. Die Struktur in der Simulation für 4 000 K wird kurz nach dem Start der Simulation fest und das Ergebnis des Strukturfaktors sollte mehr dem Resultat für 5 000 K bei einer Dichte von $4,08 \text{ g/cm}^3$ ähneln.

Im Experiment werden eine Vielzahl von Endzuständen erreicht, die sich in Dichte und Temperatur unterscheiden. Ob ein Endzustand fest oder flüssig ist, ist abhängig von der Dichte und der Temperatur. Aufgrund des Rechenaufwands ist es nicht möglich, jeden Endzustand einzeln zu simulieren und aus der erhaltenen Teilchenbewegung zu entscheiden, ob die Probe fest oder flüssig ist. Um diese Entscheidung allgemein anhand des Strukturfaktors treffen zu können, muss eine Schmelzkurve aus einer sehr begrenzten Anzahl an Simulationen ermittelt werden. Ein Ansatz dafür ist die Betrachtung der Teilchenbewegung für Simulationen, bei denen der Kohlenstoff flüssig ist. Verschiedene Positionen im Phasendiagramm sind miteinander vergleichbar, wenn sie nach einer bestimmten Anstiegszeit der Teilchenbewegung die gleiche Teilchenbewegung aufweisen. Diese Positionen befinden sich dann im gleichen Abstand zum Phasenübergang. Dies erlaubt es, den Phasenübergang über einem Parameterbereich zu folgen. Aus allen durchgeführten Simulationen wurden zwei mit sehr ähnlicher Teilchenbewegung identifiziert. Es handelt sich dabei um zwei Simulationen, die in der Diamantstruktur bei 8 000 K ($3,90 \text{ g/cm}^3$) und 9 000 K ($4,28 \text{ g/cm}^3$) starten und nach 6 000 fs Simulationszeit, in der sich die Teilchen bewegen, eine Teilchenbewegung von etwa $95 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ aufweisen. Diese beiden Punkte befinden sich im gleichen Abstand zum Phasenübergang. Der Verlauf zwischen ihnen wird als linear angenommen. Damit ist der Verlauf des Phasenübergangs bestimmt, aber nicht seine Position.

Für die Positionsbestimmung wurden alle durchgeführten Simulationen betrachtet, in der der Kohlenstoff fest geblieben ist. Dabei wird ein Simulationsergebnis als fest betrachtet, wenn die Teilchenbewegung unterhalb von $25 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ bleibt. Die Linie mit gleicher Teilchenbewegung wird durch die Simulation gelegt, die dieser am nächsten ist. Der dadurch bestimmte Kurvenverlauf wird als die Schmelzgrenze für die spätere Auswertung der experimentellen Daten verwendet. Die auf diese Art erhaltene Schmelzkurve ist in Abbildung 3.1 unten rechts dargestellt. Eine bessere Bestimmung des Kurvenverlaufes wäre mit einer Parameterstudie möglich, dessen praktische Umsetzung durch die begrenzten Rechenkapazitäten nicht möglich ist. Bei dem Kurvenverlauf handelt es sich nicht um den realen Kurvenverlauf, da sich die Teilchen in der Simulation immer noch bewegen. Zudem sollte dieser nicht linear verlaufen.

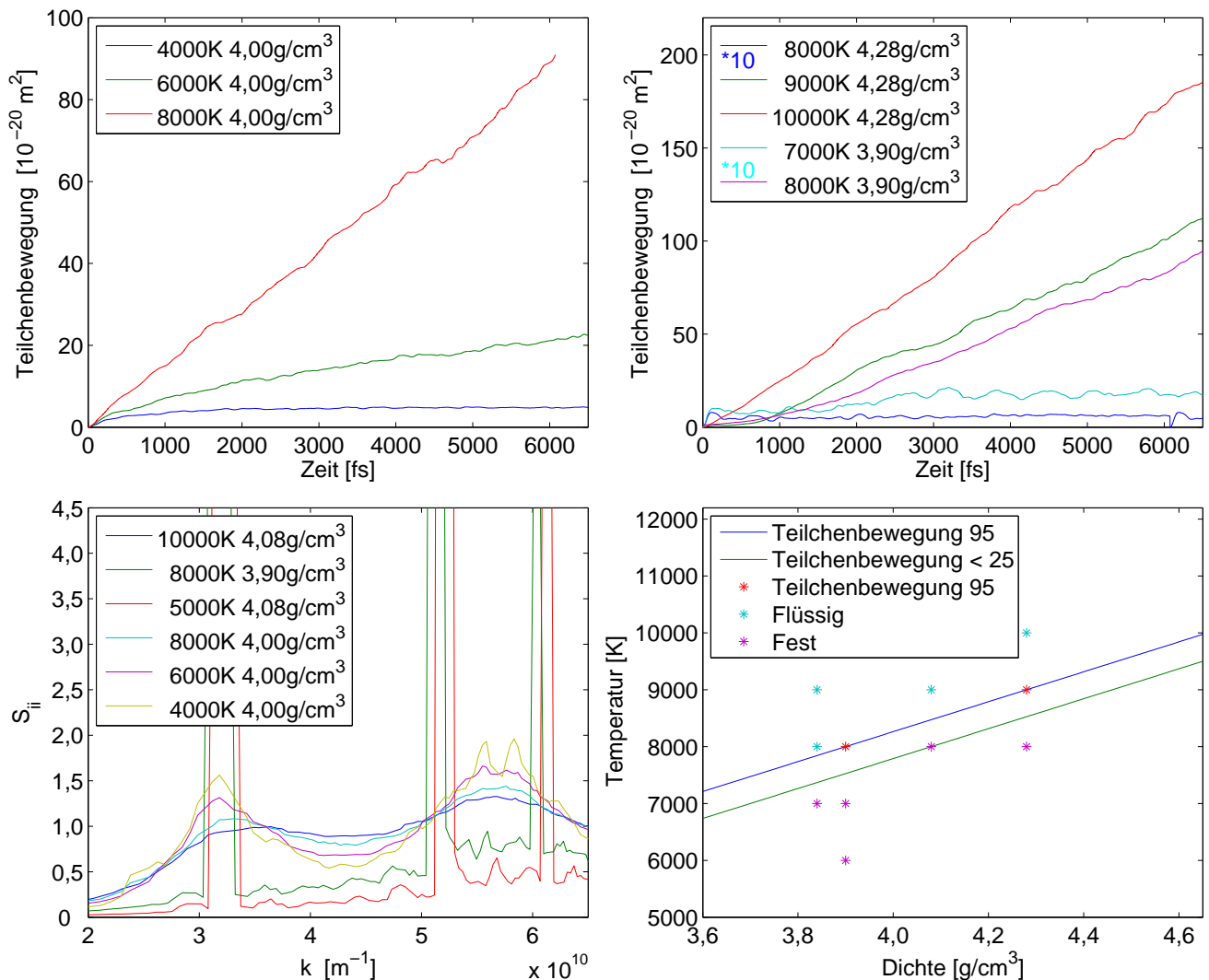


Abbildung 3.1.: Oben links: Verhalten der Bewegung der Kohlenstoffatome über die Simulationszeit, beginnend in der flüssigen Phase. Die rote und grüne Simulation zeigen durchgehend flüssige Phasen, während die blaue Simulation eine Kristallisation zeigt. Oben rechts: Bewegung der Kohlenstoffatome über die Simulationszeit, beginnend bei einer Diamantstruktur. Aufgrund der Teilchenbewegung sind die in Grün, Rot und Cyan dargestellten Simulationsergebnisse als flüssig zu betrachten und die in Blau und Magenta dargestellten Simulationsergebnisse als fest. Unten links: Die Simulationen zeigen die starke Änderung des Strukturfaktors bei unterschiedlichen Temperaturen für verschiedene Anfangsparameter. Die Simulationen mit einer Dichte von $4,00 \text{ g/cm}^3$ sind oben links dargestellt und beginnen in der flüssigen Phase. Die Simulation für 4000 K zeigt bei $k = 5,5 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ zwei Peaks, die ein Resultat des Auskristallisierens sind. Die Simulation für 8000 K und $3,90 \text{ g/cm}^3$ zeigt das Verhalten einer festen Probe, obwohl, wie oben rechts gezeigt, diese flüssig ist. Dies kommt durch die sehr viel intensiveren Bragg-Peaks, die am Anfang in der festen Probe vorhanden waren und damit immer noch den Verlauf des Strukturfaktors dominieren. Unten rechts: Die Linien zeigen Orte gleicher Teilchenbewegung an, deren Verlauf als linear angenommen wird und durch Simulationen mit gleicher Teilchenbewegung (rote Sterne) bestimmt wurde (blauer Kurvenverlauf). Dieser Kurvenverlauf (grüner Kurvenverlauf) wurde durch die Anfangsbedingung der Simulation gelegt, bei der die Probe nicht flüssig geworden ist und diesem Kurvenverlauf (blauer Kurvenverlauf) am nächsten ist (magenta Stern bei 8000 K und $4,08 \text{ g/cm}^3$).



4 Experimente

Die Daten dieser Arbeit wurden in zwei Experimenten gesammelt. Das erste Experiment wurde im Februar und März 2013 in der *Central Laser Facility* (CLF) am *Rutherford Appleton Laboratory* (RAL) im Vereinigten Königreich am Vulcan Lasersystem in der *Target Area West* (TAW) durchgeführt. Das Ziel des Experiments lag darin, Graphittypen verschiedener Dichte gleich stark zu komprimieren, dadurch im komprimierten Zustand unterschiedliche Temperaturen, aber gleiche Drücke, zu erreichen und die Phasenänderung zu beobachten. Das zugrunde liegende Prinzip für das Erreichen der verschiedenen Temperaturen wurde in Abschnitt 4.1.3 vorgestellt. Das zweite Experiment wurde im Mai 2014 im *Stanford Linear Accelerator Center* (SLAC) in Kalifornien, USA an der *Linac Coherent Light Source* (LCLS) im *Matter in Extreme Conditions* (MEC) Labor durchgeführt. In diesem Experiment wurde der Strukturfaktor für mehrere Streuvektoren gemessen und die Temperatur im Kohlenstoff durch den Strukturfaktor bestimmt.

In diesem Kapitel werden die Experimente separat betrachtet und für jedes der Aufbau vorgestellt und auf die verwendeten Diagnostiken eingegangen. Im nächsten Schritt werden die jeweiligen Ergebnisse aufgeführt und abschließend diskutiert.

1 Experiment RAL

Im folgenden Abschnitt wird das Experiment vorgestellt, das an der CLF am RAL im Vereinigten Königreich durchgeführt wurde. Um warmen dichten Kohlenstoff bei gleichem Druck aber unterschiedlichen Temperaturen zu erzeugen, wurden Graphittypen mit Dicken zwischen 70 μm und 120 μm und Ausgangsdichten von 1,30 g/cm^3 , 1,84 g/cm^3 und 2,25 g/cm^3 schockkomprimiert. Diese Proben werden in Abschnitt 1.2 vorgestellt. Die Begründung für die Dicken der Proben ergibt sich aus der Betrachtung der Absorptionslänge für die verwendete Röntgenstrahlung und der Anforderung einer eindimensionalen Schockwelle zum Lösen der Rankine-Hugoniot-Gleichungen um die Position im Druck-Dichte-Diagramm bestimmen zu können. Die Absorptionslänge für Graphit mit der natürlichen Dichte von 2,26 g/cm^3 beträgt 226,3 μm bei einer Photonenenergie von 4952 eV [Henke 1993]. Für höhere Dichten im komprimierten Zustand ist die Absorptionslänge aufgrund der erhöhten Dichte des durchstrahlten Materials geringer. Wird wie in diesem Experiment eine Rückstreugeometrie verwendet, kann die zurückgelegte Distanz für ein einfach gestreutes Photon bis zum doppelten und mehr der Probendicke betragen, bevor es die Probe wieder verlässt. Damit sind Probendicken oberhalb der halben Absorptionslänge nicht sinnvoll zu verwenden. Der Hauptabsorptionsprozess in diesem Energiebereich ist der Photoeffekt (siehe Abbildung 2.17). Die Forderung nach einer eindimensionalen Schockwelle verlangt für eine lasergetriebene Schockwelle mindestens einen Laserfokussdurchmesser vom doppelten der Probendicke. Für die Technik der lasergetriebenen Schockwellen werden Intensitäten von $10^{12} \text{ W}/\text{cm}^2$ bis $10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$ über einen Zeitraum von mehreren Nanosekunden benötigt. Idealerweise wird die Probe so lange bestrahlt, wie die Schockwelle zum Durchlaufen der Probe braucht, um möglichst gleichbleibende Bedingungen zu schaffen. Aufgrund dieser Bedingungen wurden Probendicken von maximal 120 μm verwendet, damit noch genügend Photonen für die Detektion vorhanden waren.

Die Bestimmung der Position des geschockten Kohlenstoffes im Phasendiagramm kann durch die Messung der Geschwindigkeit der Schockwelle erfolgen. Dafür wurde die Durchlaufzeit der Schockwelle mit einer Schmierbild-Kamera (SBK) gemessen und die Schockgeschwindigkeit mit der bekannten Probendicke berechnet. Die Phase konnte durch Beobachtung des Strukturfaktors ermittelt werden. Dieser wurde mittels XRTS bestimmt, für dessen Messung hochauflösende Kristallspektrometer verwendet wurden.

Die Kombination aus Photonenenergie und verwendetem Streuwinkel muss so gewählt werden, dass die Messungen des Strukturfaktors an einem Punkt erfolgen, an dem dieser sehr sensitiv auf die Änderung der Struktur reagiert und der Detektionsbereich des Spektrometers nicht von Bragg-Peaks überlagert wird. Aufgrund dieser Überlegungen wurde die $K\text{-}\alpha$ Linie von Vanadium bei 4952 eV gewählt und ein Kristallspektrometer für einen Streuwinkel von 126° zur Röntgenausbreitungsrichtung verwendet. Dies ergibt einen Streuvektor von $k = 4,47 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Der durch das Spektrometer aufgrund der divergenten Röntgenquelle abgedeckte Bereich ist in Abbildung 4.1 gezeigt. Zusätzlich sind die Positionen der Bragg-Peaks von Graphit für 4952 eV Photonen vermerkt. Die Abbildung zeigt, dass nur wenige Positionen für das Spektrometer möglich sind, an denen keine Bragg-Peaks das eigentliche Signal überlagern. Die verwendeten Röntgenstrahlen wurden durch einen Pikosekunden-Laserpuls erzeugt, indem dieser auf die Vanadiumfolie des Röntgentargets fokussiert wurde und $K\text{-}\alpha$ Strahlung erzeugte. Der Aufbau für die Erzeugung der Röntgenstrahlung (Röntgentarget) wird in Abschnitt 1.2 vorgestellt. Der abgedeckte Winkel des Spektrometers bestimmt sich aus dem Öffnungsdurchmesser des

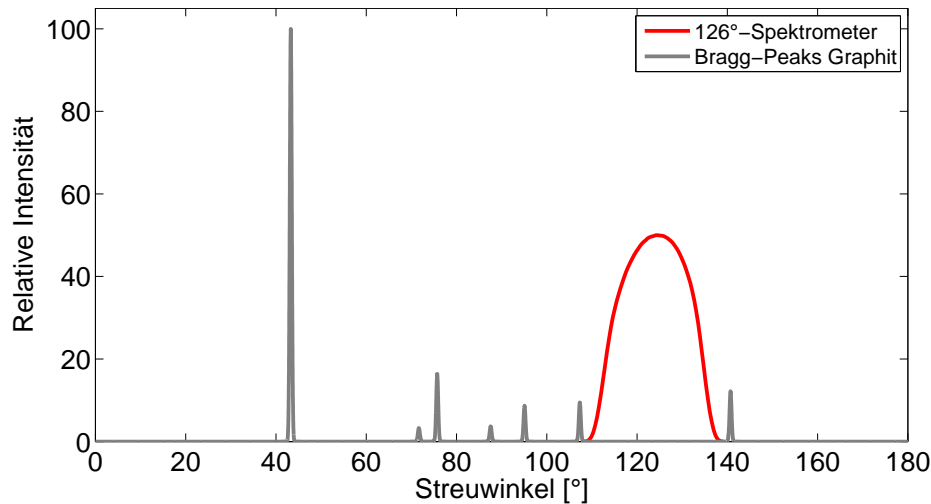


Abbildung 4.1.: Position der Bragg-Peaks für K- α Photonen mit einer Energie von 4952 eV von Graphit und Detektionsbereich des Kristallspektrometers unter Berücksichtigung der Form und Divergenz der Röntgenquelle. Die Position und Intensität der Bragg-Peaks wurde mit der Software Crystall Diffract Version 6.0.2 und der in Tabelle 2.1 angegebenen Graphitparameter bestimmt.

Röntgentargets, dem Abstand der Vanadiumfolie zu dieser, dem Abstand der Öffnung zur Probe, der Größe des Laserfokus und dessen räumlichen Intensitätsprofils.

In Abschnitt 1.1 wird gezeigt, wie die aufgelisteten Anforderungen im Experiment erfüllt wurden. Die spezifischen Details der verwendeten Diagnostiken sind in Abschnitt 1.2 zu finden. Im Anschluss wird die Kalibrierungsprozedur von dem Experiment erklärt (Abschnitt 1.3). Die Messergebnisse der einzelnen Diagnostiken sind in Abschnitt 1.4 vorgestellt und werden in Abschnitt 1.5 diskutiert.

1.1 Aufbau RAL

Der prinzipielle Aufbau des Experiments ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Er bestand aus den Laserstrahlen des Vulcan Lasersystems zum Schocktreiben und zur Röntgenerzeugung, den Graphitproben, den Röntgentargets, den Kristallspektrometern für die spektral aufgelöste Messung der XRTS, der Quellstrahlung und der Transmissionsstrahlung und einer SBK für zeitaufgelöste Messungen.

Das Vulcan Lasersystem besteht aus Nd:Glas-Verstärkerketten und kann bis zu 2,6 kJ im Nanosekundenbereich und bis zu 1 PW Spitzenleistung in 500 fs bei einer Wellenlänge von 1053 nm liefern [VULCANLaser]. Im Bereich der Laserphysik wird ab Pulslängen von 1 ns von Langpuls- und darunter von Kurzpulslasern gesprochen. Das System besteht aus acht Strahlen, wobei zwei als Kurzpuls und als Langpuls verwendet werden können. Weitere sechs Strahlen stehen als Langpulse zur Verfügung. Die letzte Verstärkung der Kurzpulse erfolgt durch Chirped Pulse Amplification (CPA) [Strickland 1985]. Die Strahlen können an den Experimentierplätzen TAW und *Target Area Petawatt* (TAP) genutzt werden.

Vier Langpulsstrahlen des Systems wurden genutzt, um die Schockwelle zum Erzeugen der WDM zu treiben. Die eingestellten Parameter der vier Langpuls laser für die Erzeugung der Schockwelle waren pro Strahl jeweils 250 J bei 1053 nm in 6 ns bis 7 ns. Diese wurden frequenzverdoppelt und lieferten zusammen etwa 230 J bis 300 J bei 527 nm. Die Strahlen wurden jeweils maximal fokussiert und auf einen Punkt auf der Probe zusammengelegt. Durch Phasenplatten¹ wurde die Intensität auf einen Durchmesser von 700 μm geweitet und über den beleuchteten Bereich gleichmäßig verteilt. Dies entspricht einer Intensität von $8,7 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ für 250 J. Durch die Homogenisierung der Intensität im Fokus wurde eine planare Schockwelle erreicht, die in das Material getrieben wurde. Ein Kurzpuls des Systems wurde zur Erzeugung der Röntgenstrahlung verwendet. Die eingestellten Laserparameter für den Kurzpuls waren 250 J vor der CPA. Dies entsprach etwa 150 J in 10 ps bis 20 ps nach der CPA². Der Strahl wurde durch eine Fokusparabel auf 75 μm fokussiert, womit eine Intensität von etwa $1,7 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$ erreicht wurde. Im Experiment selbst schwankte die Laserenergie zwischen 230 J

¹ Phasenplatten sind transparente Optiken, welche die Form und Intensitätsverteilung eines Laserprofils durch Beugung verändern können [Pepler 1993].

² Die genaue Effizienz der CPA war nicht bekannt und wurde mit etwa 60% abgeschätzt [Carroll 2014].

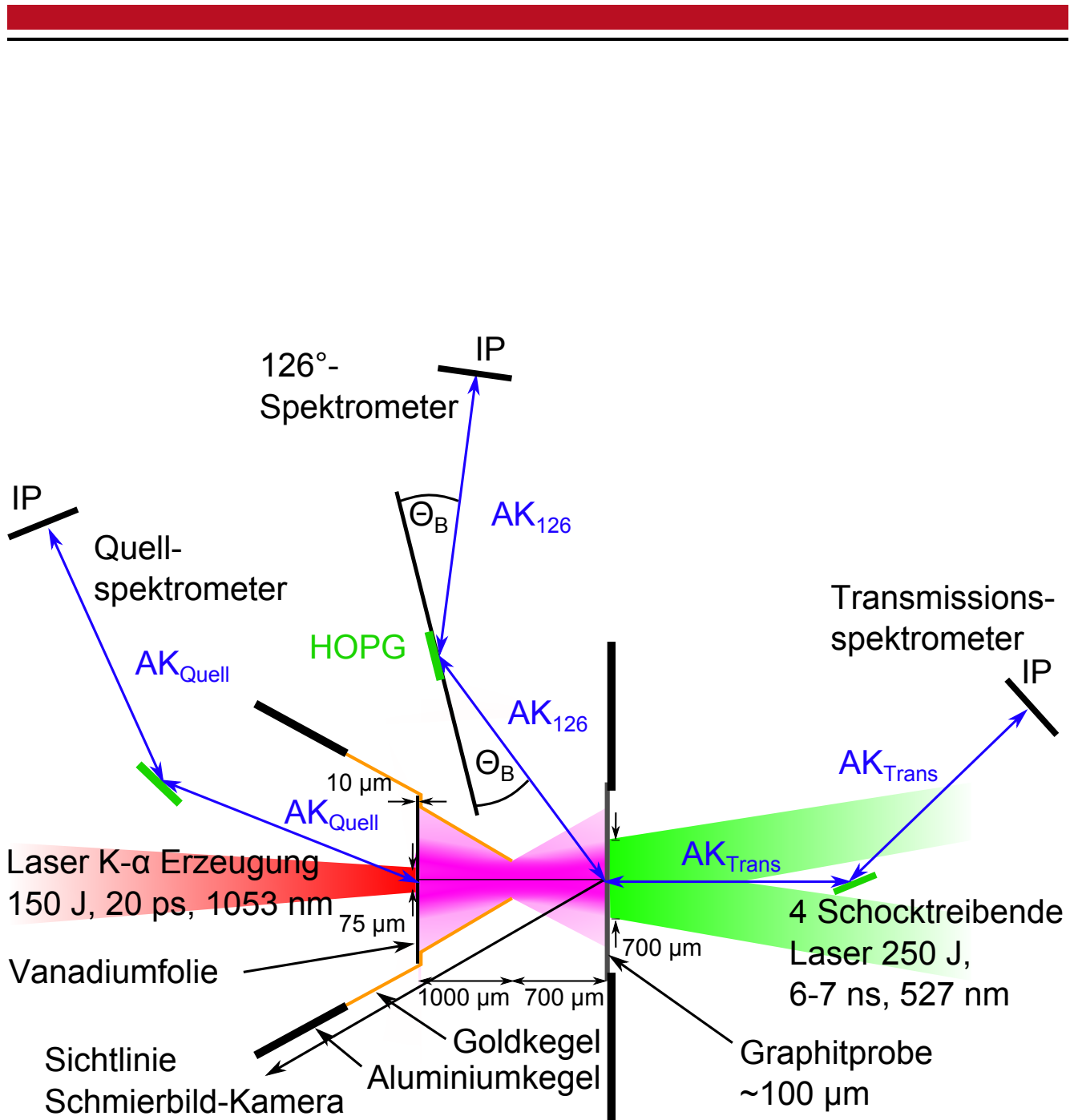


Abbildung 4.2.: Experimenteller Aufbau am RAL mit Angaben der Laserparameter und Ausrichtung der Diagnostiken. AK_{126} , AK_{Quell} und AK_{Trans} sind die Abstände für die von-Hámos-Geometrie der Kristallspektrometer, die in Tabelle 4.1 angegeben sind. θ_B ist der Bragg-Winkel für die Ausrichtung der HOPG-Kristalle. Die Abstrahlung der erzeugten K- α Strahlung (lila) erfolgt gleichmäßig in alle Raumrichtungen und wird durch den Aluminium- und Goldkegel abgeschirmt. Aus Übersichtsgründen wurde auf eine Darstellung der in Richtung Quellspektrometer abgestrahlten Röntgenstrahlung verzichtet.

bis 300 J vor der CPA. Die Fokussierung der Laserenergie erfolgte auf eine 10 μm dicke Vanadiumfolie, womit die K- α Strahlung erzeugt wurde. Der Prozess der Erzeugung ist in Abschnitt 4.2.1 vorgestellt worden. Die Verwendung von K- α Strahlung erlaubte eine zeitliche Auflösung im Pikosekundenbereich und wurde bereits erfolgreich in Schockexperimenten genutzt [Kritcher 2008, Kritcher 2009, LePape 2010]. Im Experiment musste sichergestellt werden, dass keine Strahlung aus der Röntgenerzeugung in die Spektrometer gelangte. Dafür wurden weitere Abschirmungen zwischen dem Röntgentarget und den Spektrometern angebracht.

Der Aufbau der SBK erfolgte so, dass die Rückseite der Graphitproben, aus der der Schock ausbrach, auf den Eintrittsspalt der SBK abgebildet wurde. Beim Austritt der Schockwelle aus der Probe wurden durch Plancksche Strahlung Photonen im sichtbaren Bereich emittiert, welche durch die SBK unter der Voraussetzung aufgenommen werden konnten, dass andere Photonenquellen unterdrückt wurden. Vom Ort des Schockausbruchs wurden neben dem Licht vom Schockausbruch ebenfalls reflektierte Photonen von der Röntgenquelle gemessen. Durch gleichzeitiges Aufnehmen von Lecklicht von einem Spiegel eines Langpulses konnte das zeitliche Energieprofil dieses Pulses ebenfalls aufgenommen werden. Durch Bestimmen der Distanzen für Photonen über beide Wege zur SBK konnte der Beginn des Langpulses auf der SBK genutzt werden, um den Beginn der Schockwelle in der Probe zu bestimmen. Die Funktionsweise einer SBK ist in Abschnitt 1.2 angegeben. Bei der eingesetzten SBK handelte es sich um eine vom Typ C5680-22 der Firma Hamamatsu. Für die Beobachtungen wurde ein Zeitfenster von 20 ns gewählt. Die tatsächliche Zeit dieses Zeitfenster entspricht laut Datenblatt der SBK 20,1 ns. Neben der Schockgeschwindigkeit konnte mit der SBK die zeitliche Energieverteilung in einem der Langpulse und der Zeitpunkt des Auftreffens der Röntgenstrahlung auf die Probe gemessen werden.

Als Spektrometer wurden die in Abschnitt 1.2 vorgestellten Kristallspektrometer verwendet. Dort sind ebenfalls die Parameter der verwendeten HOPG-Kristalle notiert. Zur Aufnahme der Spektren wurden Fuji MS Bildspeicherplatten verwendet, deren Funktionsweise und Ausleseprozedur ebenfalls in Abschnitt 1.2 Bildspeicherplatten angegeben sind. Vor die Bildspeicherplatte wurde eine 120 μm dicke Berylliumfolie montiert. Beryllium blockt Photonen im optischen und XUV Bereich sehr gut, während Röntgenphotonen aufgrund der sehr geringen Elektronenzahl ungehindert transmittieren können. Sie sorgten damit für eine Reduzierung des Untergrundsignals auf den belichteten Bildspeicherplatten. Insgesamt wurden drei Spektrometer verwendet: Eines wurde bei 126° zur Röntgenausbreitungsrichtung montiert für die Messung des Strukturfaktors, eines zur Vermessung der Röntgenquelle mit direktem Blick auf die Vanadiumfolie und eines zum Messen der Transmission durch die geschockte Probe.

Die Röntgentargets und Graphitproben wurden zusammen auf einem Halter justiert. Der Abstand zwischen beiden Objekten betrug 700 μm bezogen auf die Kohlenstoffoberfläche und der Röntgentargetspitze (siehe Abbildung 4.3 für die exakte Positionierung zueinander).

1.2 Details der Komponenten am RAL

Betrachtet werden die verwendeten Graphitproben, die Röntgentargets, die Funktionsweise der SBK, der Aufbau der Kristallspektrometer und die Bildspeicherplatten.

Graphitproben

Die in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden bei der Untersuchung zerstört, jede Graphitprobe stand nur einmal zur Verfügung und konnte nicht wieder verwendet werden. Im Folgenden werden die unterschiedlichen Graphittypen und deren Spezifikationen vorgestellt. Für die Experimente wurden drei Graphittypen mit unterschiedlicher Dichte verwendet. Beim ersten handelte es sich um einen Typ mit einer sehr geringen Dichte von 1,30 g/cm³, dies entspricht 57,5 % der Dichte eines idealen Graphitkristalls von 2,26 g/cm³. Die Produktion dieses Typs erfolgte durch mehrfaches Brechen der Bindungen zwischen den Graphitschichten und anschließend in Form pressen [Chung 2000]. Dieser wurde vom *Targetlabor* der *GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung GmbH* (GSI) bezogen und stand in Dicken von 70 μm bis 120 μm zur Verfügung. Der zweite Typ mit einer Dichte von 1,84 g/cm³, dies sind 81,4 % der idealen Dichte, wurde vom Unternehmen SGL Carbon [SGLCarbon] bezogen. Weitere Eigenschaften des Materials sind im Anhang 1 angegeben. Es handelte sich hierbei um einen steifen Graphit. Dieser wurde aus Graphitpulver unter isostatischem Druck und Hitze hergestellt. Bei diesen beiden Typen handelte es sich um poröse Materialien, wie sie in Abschnitt 4.1.3 vorgestellt wurden. Beim dritten Typ mit 2,25 g/cm³ handelte es sich um Highly Orientated Pyrolytic Graphite (HOPG), wie er auch in den Spektrometern verwendet wurde. Bei HOPG handelt es sich um eine synthetisch hergestellte und äußerst reine Form von Graphit (siehe Abschnitt Kristallspektrometer für weitere Informationen zu HOPG). Die Graphittypen eins und drei wurden von der *Target Fabrication* des RALs bearbeitet. Die Proben wurden poliert und ihre Dicke mikrometerngenau bestimmt. Ein Fehler für die Dicke der Proben wurde mit unter 1 μm angegeben. Der zweite Typ wurde vom Targetlabor der GSI weiterverarbeitet. Dieser wurde auf die Probendicken von etwa 100 μm geschliffen und poliert. Die Dicken wurden dementsprechend auf 1 μm genau bestimmt und es wurde dabei eine Oberflächenrauigkeit

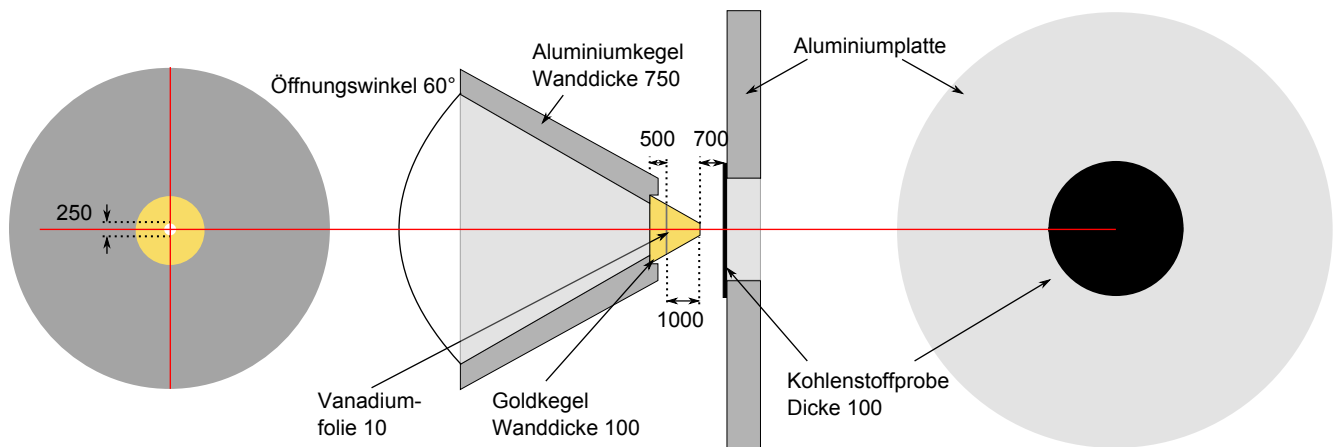


Abbildung 4.3.: Aufbau der Röntgen- und Graphitproben wie sie am RAL verwendet wurden. Alle Abmessungen sind in Mikrometern angegeben. Links: Aufbau zur Röntgenerzeugung. Rechts: Aluminiumplatte mit Bohrung und aufgeklebtem Graphit.

von etwa 100 nm im quadratischen Mittel erreicht. Die Proben wurden auf eine Aluminiumplatte mit einer Bohrung in der Mitte gebracht (siehe Abbildung 4.3). Die Proben wurden zentrisch über der Bohrung platziert. Die Aluminiumplatte diente zum Abschirmen des Plasmas gegenüber dem 126° -Spektrometer, welches durch die Langpuls-Laser entstand.

Aufbau Röntgenerzeugung (Röntgentarget)

Der Aufbau für die Röntgenerzeugung bestand aus einer Kegelstruktur (siehe Abbildung 4.3 links) mit einem Öffnungswinkel von 60° . In dieser befand sich eine Vanadiumfolie mit einer Dicke von $10 \mu\text{m}$. Diese Konstruktion war notwendig, da die erzeugte Röntgenstrahlung isotrop in den Raum abgestrahlt wurde und die Messungen winkelabhängig waren. Damit diente der Goldkegel neben dem Tragen der Vanadiumfolie ebenfalls zum Abschirmen der Strahlung, damit keine direkte Sichtlinie zu dem 126° -Spektrometer bestand. Der Goldkegel wurde von einem Aluminiumkegel gehalten, der ebenfalls der weiteren Abschirmung der Diagnostiken gegen Röntgenstrahlung diente. Die Position der Vanadiumfolie war $1000 \mu\text{m}$ von der kleinen Öffnung des Kegels entfernt und auf einer Stufe aufgelegt. Der gesamte Kegel bestand aus Gold, war etwa $1500 \mu\text{m}$ lang und besaß keine Spitze. Stattdessen befand sich an der spitz zulaufenden Seite eine $250 \mu\text{m}$ im Durchmesser große Öffnung. Die Konstruktion diente der Kollimierung der Röntgenstrahlung in Richtung Probe.

Kristallspektrometer

Für die Detektion von Röntgen-Thomson-Streuung werden hocheffiziente und hochauflösende Spektrometer benötigt, damit die unterschiedlichen Streuanteile aufgenommen werden können [Glenzer 2009]. In beiden Experimenten wurden dafür Kristallspektrometer verwendet, deren Energieseparation auf dem Prinzip der Bragg-Beugung basiert. Trifft ein Photon unter einem bestimmten Winkel θ_B auf einen Kristall und erfüllt die Bragg-Bedingung, wird es reflektiert, wie in Abschnitt 5.5 im Theorieabschnitt erklärt. Es erfolgt nur eine Reflexion von Photonen der gleichen Energie unter einem bestimmten Winkel. Photonen mit höherer oder niedriger Energie werden nur unter anderen Winkeln reflektiert. Gelangen Photonen vom selben Ort mit unterschiedlicher Energie auf einen Kristall, erfolgt die Reflexion an verschiedenen Orten auf dem Kristall.

Graphitkristalle besitzen die höchste integrale Reflektivität von $6,2 \cdot 10^{-3}$ mrad bei den verwendeten Photonenergien im einstelligen Kiloelektronenvolt-Bereich [Renninger 1956]. Da es keine ausreichend guten und großen Einkristalle für Spektralanalysen gibt, werden diese technisch hergestellt und setzen sich aus vielen einzelnen Mosaikblöcken zusammen. Die Mosaikblöcke erfüllen jeweils einzeln die Bragg-Bedingung. Dabei haben die Blöcke untereinander jeweils eine etwas unterschiedliche Orientierung, deren mittlere Abweichung als Mosaizität bezeichnet wird. Diese unterschiedliche Orientierung führt zu einer Reduzierung der integralen Reflektivität, weshalb möglichst kleine Abweichungen wünschenswert sind. Die Herstellung der Kristalle erfolgt durch thermisches Spalten von Kohlenwasserstoffgas mit anschließender Abscheidung unter geringem Druck und Härten unter Druck. Der erhaltene Kristall wird dann Highly Orientated Pyrolytic Graphite (HOPG) genannt [Moore 1973] und die Mosaizität dieser Kristalle reicht dabei von $0,1^\circ$ bis 1° . Durch eine Weiterentwicklung des Herstellungsprozesses wurden Kristalle mit dem Namen Highly Annealed Pyrolytic Graphite (HAPG) entwickelt [Legall 2006]. Diese Kristalle erreichen dabei Mosaizitäten von kleiner als $0,1^\circ$ [Zastrau 2013]. Kristalle des ersten Typs wurden am RAL Experiment verwendet und HAPG-Kristalle an der LCLS.

Durch die Mosaizität können Photonen gleicher Energie unter leicht unterschiedlichen Winkeln reflektiert werden. Dieser Effekt verursacht eine Verbreiterung des Signals. Dem kann durch die sogenannte Mosaikfokussierung entgegengewirkt

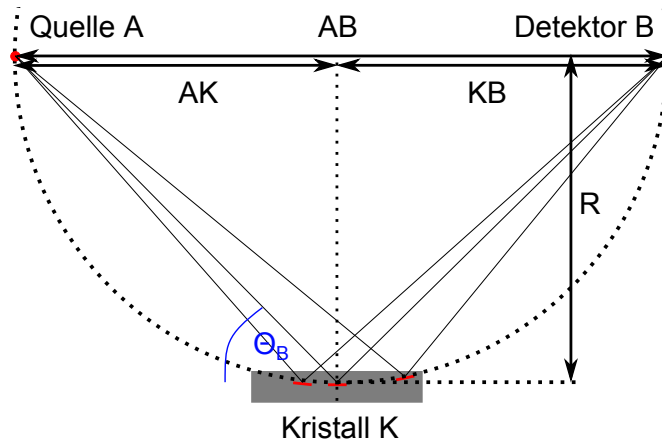


Abbildung 4.4.: Darstellung der Mosaikfokussierung. Die roten Striche stellen einzelne kleine Mosaikblöcke, aus denen sich der Kristall zusammensetzt dar. Bei Θ_B handelt es sich um den Bragg-Winkel. AK ist der Abstand zwischen der Mitte des Kristalls und der Strahlungsquelle. KB die Distanz zwischen der Mitte des Kristalls und dem Detektor. R ist die Verschiebung des Kristalls aus der Verbindungslinie zwischen Quelle und Detektor. Im ideal Fall entspricht R dem Krümmungsradius für einen gekrümmten Kristall.

werden (siehe Abbildung 4.4). Dafür befindet sich der Kristall mittig zwischen der Röntgenquelle und dem Detektor. Dabei scheint das Bild, obwohl der Kristall in spektraler Richtung flach ist, fokussiert [Mizogawa 1997]. Im Kristall werden Photonen der gleichen Energie aus der Röntgenquelle A von verschiedenen Blöcken entsprechend der Bragg-Bedingung reflektiert. Die Strahlen dringen dafür so weit in den Kristall ein, bis sie auf einen entsprechend orientierten Block treffen, der die Bragg-Bedingung erfüllt. Die reflektierten Strahlen konvergieren dann im Punkt B. Andere Energien werden in einen anderen Punkt fokussiert. Anschaulich befinden sich die Blöcke auf einer gekrümmten Oberfläche, an der die Bragg-Reflektion stattfindet. Die Blöcke liegen dafür auf dem sogenannten energieabhängigen Rowlandkreis [Thorne 1999]. Durch die variable Ausrichtung einzelner Blöcke in alle Richtungen erfolgt zusätzlich noch eine Divergenz des Signals. Um dem entgegenzuwirken, werden gekrümmte Kristalle mit Krümmungsradius R in einer von-

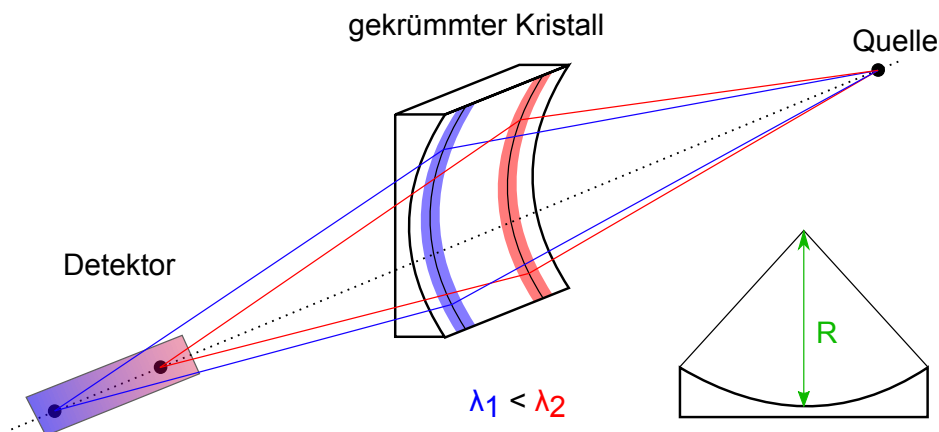


Abbildung 4.5.: Darstellung der von-Hámos-Geometrie für unterschiedliche Wellenlängen, mit dem durch die Mosaizität gegebenen Akzeptanzbereich für eine Wellenlänge. Dabei ist die Wellenlänge λ_1 kürzer als λ_2 und wird der Bragg-Bedingung entsprechend weiter entfernt von der Quelle reflektiert. R ist der Krümmungsradius des Kristalls.

Hámos-Geometrie verwendet [Notley 1997, Zastrau 2012]. Dabei wird ein größerer Raumwinkel abgedeckt und mehrere Photonen abgebildet, wie in Abbildung 4.5 dargestellt. Zusätzlich wird das reflektierte Signal ebenfalls auf eine Linie fokussiert. Dort kann das Signal, beispielsweise mit Hilfe von Bildspeicherplatten oder elektronischen Detektoren, detektiert werden. Für die Experimente wurden die Spektrometer in der von-Hámos-Geometrie aufgebaut und unter Ausnutzung der Mosaikfokussierung verwendet. Die Abstände zwischen der Röntgenquelle A, dem Kristall K und Detektor B (siehe

Abbildung 4.4) wurden entsprechend der photonenenergieabhängigen Bragg-Winkel Θ_B und der Krümmungsradien R der Kristalle gewählt mit der Beziehung:

$$AK = KB = \frac{R}{\sin \Theta_B} \quad AB = \frac{2R}{\tan \Theta_B}. \quad (4.1)$$

In Tabelle 4.1 sind alle Parameter der verwendeten Kristalle angegeben.

	Ausrichtung	Dimension [mm ²]	Typ	R [mm]	Energie [eV]	AK [mm]
RAL	Quelle	70*30	HOPG	100,0	4 952	267,6
	Transmission	70*30	HOPG	110,0	4 952	294,4
	126°	70*30	HOPG	110,0	4 952	294,4
LCLS	variabel	30*32	HAPG	51,7	6 000	167,6
	variabel	30*32	HAPG	51,7	4 500	125,7

Tabelle 4.1.: In der Tabelle sind die Parameter der in den Spektrometern verwendeten Kristalle angegeben.

Bildspeicherplatten

Ein Problem bei der Verwendung von Hochleistungslasern mit großen Leistungen und kurzen Pulsen ist, dass diese einen elektromagnetischen Puls (EMP) erzeugen, der eine Verwendung von elektrischen Geräten in ihrer Nähe erschwert oder unmöglich macht. Durch den Kurzpuls laser, der zur Erzeugung der Röntgenstrahlung verwendet wurde, wurde am RAL ein solcher EMP erzeugt, weshalb für die Aufnahme der Streuspektren Bildspeicherplatten (Image Plates, IP) statt elektronischer Geräte verwendet wurden.

Diese wurden ursprünglich für medizinische Röntgenanwendungen entwickelt und finden auch Anwendung als Röntgen-detektor in der Laser-Plasmaphysik [Izumi 2006, Paterson 2008] und sind wiederbeschreibbar³. Diese Detektionsmethode beruht auf dem physikalischen Effekt der photostimulierten Lumineszenz (PSL) für das Beschreiben und Auslesen der Platten. Durch Bestrahlung mit Röntgenstrahlung werden metastabile Zustände angeregt, sogenannte Farbzentren. Dabei skaliert die photostimulierte Lumineszenz direkt mit der Dosis der absorbierten Strahlung und verhält sich linear über viele Größenordnungen [Paterson 2008] von einigen eV bis hin zu mehreren hundert keV [Meadowcroft 2008]. Da für das Beschreiben mindestens Photonenenergien von 10 eV benötigt werden [Ben-Kish 2000], können von Raum/Labor-Beleuchtung keine Farbzentren angeregt werden. Erst die beleuchtete Platte muss vor Tageslicht geschützt werden, da dieses die Rekombination startet und die Daten verfälscht. In diesem Experiment wurden Bildspeicherplatten des Typs Fuji BAS-MS verwendet. Die Lumineszenz findet dabei in einer aktiven Schicht statt, die sich auf einer Anti-Halo-Schicht und einer Trägerfolie mit einer darüber liegenden Schutzschicht befindet. Die gestreuten Photonen erzeugen in dieser Elektron-Loch-Paare und die Elektronen werden in den Farbzentren gefangen. Diese geben die Elektronen durch Stimulation mit rotem Laserlicht wieder ab, wobei blaues Licht emittiert und detektiert wird und über dessen Intensität die gespeicherte Information abgerufen wird. Anschließend werden diese durch Bestrahlung mit weißem Licht komplett gelöscht und sind wieder verwendbar. Um die Beeinflussung der IP durch Streulicht nach der Bestrahlung so gering wie möglich und gleichmäßig zu halten, wurden im Experiment die IPs so schnell wie möglich nach jeder Messung ausgelesen. Dies geschah innerhalb von zehn Minuten nach der Exposition und von Lichtquellen abgeschirmt.

Zum Auslesen wurde ein Scanner vom Typ Fujifilm FLA 5100 verwendet, der ein 16 Bit Graustufenbild ausgibt. Aus diesem kann die Zahl der gemessenen Photonen bestimmt werden. Sie wird in PSL angegeben. Dieser Wert ergibt sich aus der Konvertierung des Bildes zu:

$$PSL = \left(\frac{px}{100} \right)^2 \cdot \frac{4000}{S} \cdot 10^{L \cdot \left(\frac{QL}{G} - 0,5 \right)} \quad (4.2)$$

mit $px = 50 \mu\text{m}$ der Pixelgröße, $S = 10000$ der Sensitivität, $L = 5$ dem Dynamikbereich, QL dem Grauwert und $G = 2^{16}$ Graustufen.

Schmierbild-Kamera

Durch Schmierbild-Kameras (SBKs) können strahlungsemitternde Prozesse mit einer eindimensionalen räumlichen Auflösung bis zu wenigen Pikosekunden zeitlich aufgelöst werden. Dabei gelangen Photonen durch einen Spalt auf eine Photokathode und lösen Elektronen aus. Diese werden von dort beschleunigt und über eine Elektrode abgelenkt, durch

³ Im Gegensatz zu Röntgenfilmen, die nur einmal verwendet werden können.

welche die zeitliche Auflösung erlangt wird. Die Elektronen gelangen dadurch auf räumlich getrennte Orte eines Phosphorschirms, der mit einer CCD-Kamera ausgelesen wird. Die zeitliche Auflösung wird begrenzt durch die Größe des Eintrittsschlitzes, der Abbildung der Photonen auf die Kathode, der Wechselwirkung der Elektronen untereinander, dem Feld zur Ablenkung der Elektronen und der Auflösung des Phosphorschirms. Die Länge der Aufnahmen kann zwischen wenigen Nanosekunden bis hin zu Millisekunden gewählt werden [Demtröder 2007].

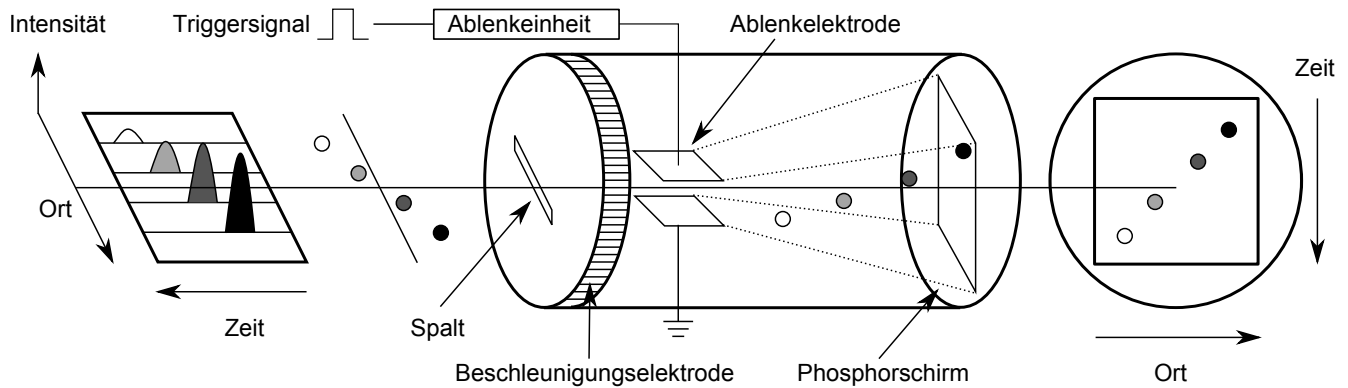


Abbildung 4.6.: Schematischer Aufbau einer SBK

1.3 Kalibrierung und Justierung am RAL

Im Folgenden wird auf die exakte Justierung, Fokussierung und Synchronisation der Laserpulse untereinander und zur SBK sowie auf die Kalibrierung der Spektrometer und der Positionierung der SBK eingegangen.

Der Aufbau des Experiments war so gewählt, dass der Punkt des Schockausbruchs an der Probenrückseite auf den Mittelpunkt der Vakuumkammer (Target Chamber Center, TCC) erfolgte. Beim Aufbau des Experiments wurden zuerst die vier Langpulse, um $100\ \mu\text{m}$ in Richtung der Langpulse von TCC versetzt, räumlich aufeinandergelegt⁴. Dafür wurde auf diesen Punkt eine CCD-Kamera montiert, auf der alle Strahlen detektiert wurden. Dabei wurde gleichzeitig der Fokus durch das Verschieben der Fokuslinsen minimiert. Im nächsten Schritt wurden die Phasenplatten für den $700\ \mu\text{m}$ Fokus eingebaut. Das Vorgehen für die Justierung des Kurzpulses war identisch, nur dass der Fokuspunkt um $1700\ \mu\text{m}$ in die entgegengesetzte Richtung von TCC verschoben war und keine Phasenplatte verbaut wurde. Im nächsten Schritt wurden die Optiken für die SBK aufgebaut und auf TCC ausgerichtet. Dazu wurde zusätzlich Lecklicht von einem Umlenkspiegel von einem der Langpulse in die SBK eingekoppelt. Die Laufstrecken für das Licht wurden so gewählt, dass die Distanz für Licht von TCC zur SBK gleich dem Weg des Lecklichts in die SBK war. Die Distanz für Licht von TCC war beim fertigen Aufbau $150\ \text{mm}$ kürzer als die für das Lecklicht. Dies führte zu einer Verschiebung der Signale von $500\ \text{ps}$ zueinander auf der SBK.

Durch Einsetzen einer Photodiode an TCC konnten alle vier Pulse zeitlich synchronisiert werden, indem sie alle zum gleichen Zeitpunkt mit einem Oszilloskop gemessen wurden. Die Synchronisation wurde durch das Verschieben von Verzögerungstrecken in den Strahlengängen der Langpulse bewerkstelligt. Der Kurzpuls für die Röntgenerzeugung wurde auf $8\ \text{ns}$ nach dem Start der Schockwelle durch die Langpulse gelegt, indem dieser Puls zusätzlich mit der Photodiode aufgenommen wurde. Das Spektrometer wurde entsprechend der gewählten 126° , bezogen auf die von der Röntgenquelle ausgehende Strahlung auf TCC, für die Position des HOPG-Kristall aufgebaut. Der Abstand des HOPGs zu TCC betrug $294,4\ \text{mm}$ (siehe Formel 4.1). Ein weiteres Spektrometer wurde in Transmissionsrichtung aufgebaut, um die durch die Probe transmittierte Strahlung zu untersuchen. Das Testen und die exakte Ausrichtung des 126° - und Transmissionspektrometers erfolgte mit der direkten Erzeugung von Vanadium $K\text{-}\alpha$ Strahlung durch eine frei stehende Vanadiumfolie an TCC. Dafür wurde der Fokus des Kurzpulses auf TCC verschoben und nach dem Test wieder auf seine Experimentposition zurückgesetzt. Durch diese Messungen wurde auch die Energiekalibrierung des 126° -Spektrometers vorgenommen. Dies geschah über die Position der bekannten Energie der $K\text{-}\alpha$ Linie und der $\text{He-}\alpha$ Linie von Vanadium. Dabei konnten die Photonenenergien der Kanten des belichteten Teils der Bildspeicherplatte bestimmt werden. Diese Kanten wurden für die Energiekalibrierung aller weiteren Messungen verwendet.

Zum Untersuchen der Röntgenquelle wurde für diese ebenfalls ein Spektrometer aufgebaut und justiert, welches im Folgenden als Quellspektrometer bezeichnet wird. Im Anschluss wurden mehrere Tests durchgeführt, bei der nur Rönt-

⁴ $100\ \mu\text{m}$ entsprach der durchschnittlichen Probendicke

gentargets verwendet wurden, um sicherzustellen, dass hierbei nur das Quell- und Transmissionsspektrometer Strahlung detektierten und keine Strahlung in das 126°-Spektrometer gelangen konnte. Dafür wurden weitere Abschirmungen zwischen Röntgenquelle und 126°-Spektrometer aufgebaut, ohne dass die Sichtlinie des Spektrometers zu TCC behindert wurde. Zum weiteren Testen des Aufbaus wurden Messungen durchgeführt, bei denen nur die schocktreibenden Laser

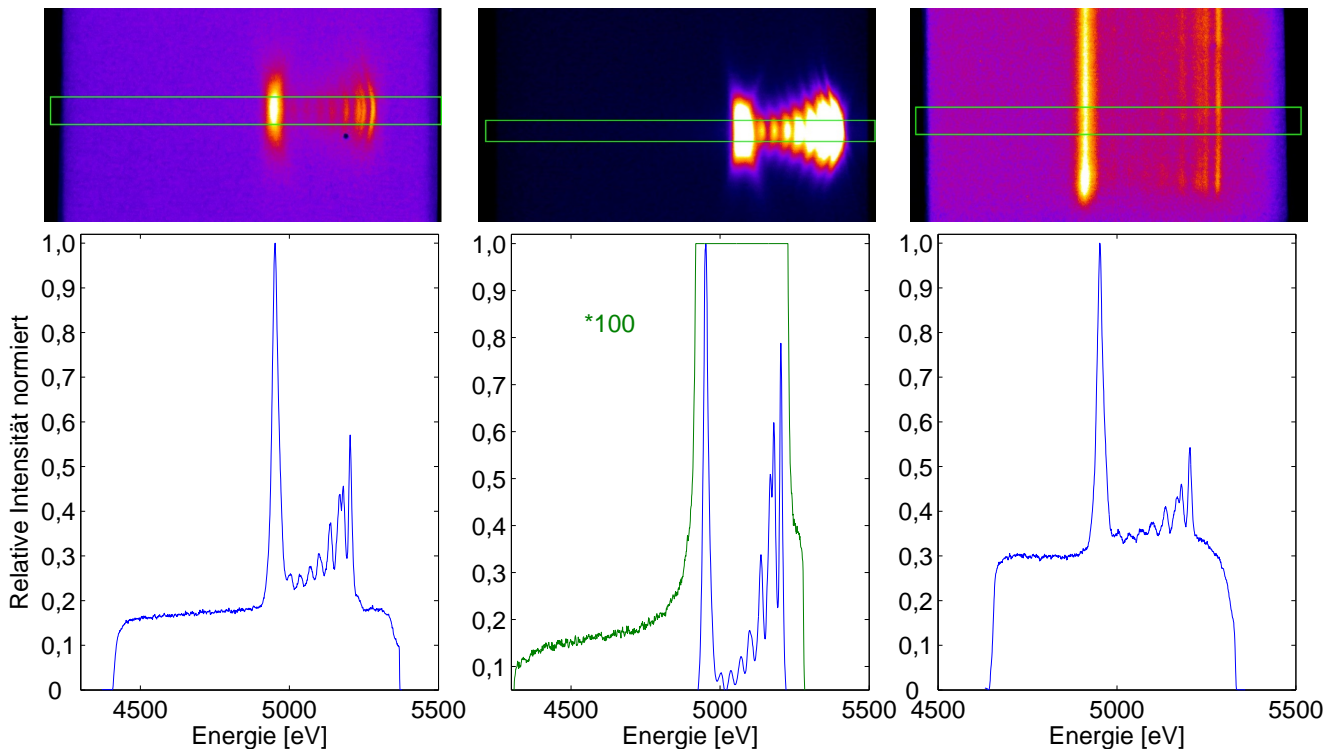


Abbildung 4.7.: Die Grafiken zeigen oben die IP Aufnahmen für die Energiekalibrierung durch Röntgenerzeugung an TCC. Die grünen Kästen zeigen den Bereich für die Bestimmung der Profile für die Energiekalibrierung, die Unten gezeigt sind. Die Profile der Spektrometernaufnahmen wurden für die Energiekalibrierung auf eins normiert. Links: Quellspektrometer, mitte: 126°-Spektrometer, rechts: Transmissionsspektrometer. Die Aufnahmen zeigen alle das Abbrechen der Intensität durch die Rahmen der Halter für die IPs. Diese Kanten wurden im Weiteren genutzt um die Energiekalibrierung im Experiment durchzuführen. Die Messung für das 126°-Spektrometer ist um den Faktor 100 vergrößert dargestellt, um die Abbruchkanten zu zeigen.

verwendet wurden, um den Kohlenstoff zu komprimieren und deren Einfluss auf die Spektrometer und Messungen zu testen. Die Kalibrierung des Quell- und Transmissionsspektrometers erfolgte auf die gleiche Weise wie für das 126°-Spektrometer. In Abbildung 4.7 oben sind die Rohdaten der IPs für die Energiekalibrierung nach der Umrechnung in PSL dargestellt. Weiter ist der Bereich für die Datenentnahme markiert. Die energiekalibrierten Spektren sind in Abbildung 4.7 unten dargestellt. Nach dem Test aller Aufbauten wurden die eigentlichen Messungen an den drei vorgestellten Graphittypen durchgeführt. Die Röntgentargets und Graphitproben wurden dafür zusammen auf einem Halter montiert. Die Positionierung zueinander, wie in Abbildung 4.2 gezeigt, erfolgte mithilfe eines Justiertisches und Kameras. Die erreichte Präzision lag dabei im einstelligen Mikrometerbereich. Nachdem das Experiment aufgebaut, justiert und kalibriert war, wurden die Messungen am Kohlenstoff durchgeführt.

1.4 Ergebnisse RAL

In diesem Abschnitt werden einzelne Messungen aller Diagnostiken exemplarisch vorgestellt. Dies sind die gewonnenen Daten der SBK, des Quellspektrometers und des 126°-Spektrometers. In Abbildung 4.8 ist eine Aufnahme des Quellspektrometers zu sehen. Es zeigt die primär erzeugte $K\alpha$ Linie und eine Reihe von Satellitenlinien. Dabei ist deutlich zu erkennen, dass die $K\alpha$ Linie dominant ist. Die Daten dieser Diagnostik wurden zum einfachen Kontrollieren der erzeugten Röntgenstrahlung verwendet.

Ein Beispiel für die gewonnenen Daten mit der SBK ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Der Kurzpuls ist real nur maximal 20 ps lang und nicht wie aufgenommen 0,8 ns. Dies resultiert aus der Eintrittspaltbreite der SBK, aufgrund dessen

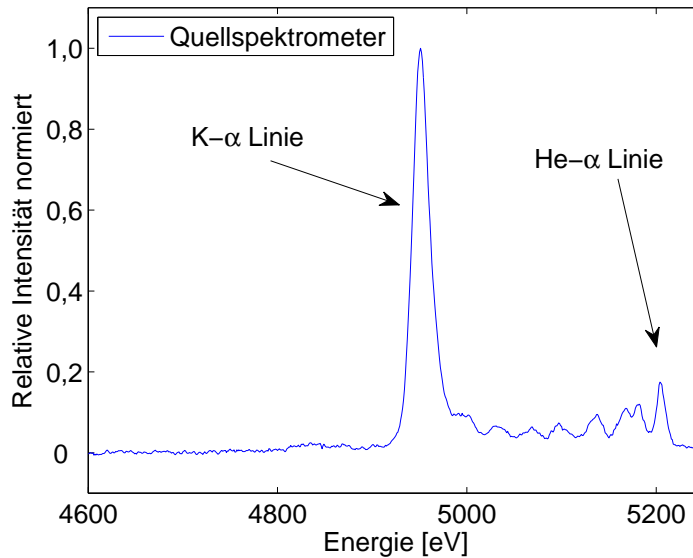


Abbildung 4.8.: Die Abbildung zeigt eine Messung des Quellspektrometers der erzeugten Röntgenstrahlung, mit der K- α Linie bei 4952 eV auf der niederenergetischen Seite. Die höchstenergetische Linie ist die He- α Linie bei 5204 eV, auf deren niederenergetischen Seite sich mehreren Satellitenlinien befinden.

dieses Signal verbreitert dargestellt wird. Aus diesen Daten und den Probendicken wurden die Schockgeschwindigkeiten ermittelt. Der Startzeitpunkt der Schockwelle ist durch das Aufleuchten des Langpulses definiert und der Endzeitpunkt wird durch das Aufleuchten des Schockausbruchs definiert. Dabei kam es vor, dass dieser vom Leuchten des Kurzpulses überdeckt wurde. In diesem Fall wurde für die Auswertung angenommen, dass sich der Schockausbruch im zeitlichen Mittelpunkt des Kurzpulses befand. Dies führt zu einer maximalen Abweichung von 0,4 ns für den Schockausbruch. Für die Auswertung wurden die Aufnahmen entlang der Zeitachse ausgelesen. Für die Bestimmung der Anfänge der Pulse wurde der Punkt verwendet, ab dem die Hälfte der gemittelten Intensität des Pulses oder des Ausbruchs erreicht wurde. Da der Strahlengang für Photonen von der Probenrückseite 150 mm kürzer war als der Weg für die Photonen des Langpulses, wurde für die Berechnung der Schockgeschwindigkeit eine Zeit von 0,5 ns hinzuaddiert. Die Schockgeschwindigkeit konnte für jede Probe in Abhängigkeit der Dicke bestimmt werden. Die Ergebnisse der gemittelten Schockgeschwindigkeiten v_s für jeden Probentyp sind in Tabelle 4.2 angegeben. Aus der gemessenen Schockgeschwindigkeit v_s und bekannten Hugoniot-Daten [Gust 1980, Thiel 1977] für vergleichbare Anfangsdichten, wurde der erreichte Enddruck bestimmt. Dafür wurden die Hugoniot-Daten quadratisch für den Druck in diesem Experiment extrapoliert (siehe Abbildung 4.10). Die quadratische Extrapolation folgt aus der Gleichung $P_1 = \rho_0 v_s v_p$ (siehe Gleichung 2.38 mitte), mit v_s der gemessenen gemittelten Schockgeschwindigkeit, v_p der der Schockgeschwindigkeit zugeordneten Teilchengeschwindigkeit und ρ_0 der Ausgangsdichte, da sich die Schockgeschwindigkeit und Teilchengeschwindigkeit jeweils linear verhalten und zusammen eine Quadratfunktion bilden. Die erreichte Dichte wurde mit der Gleichung 2.26, dem extrapolierten Druck, der Schockgeschwindigkeit und der Anfangsdichte bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.2 angegeben. Damit ist die Position im Dichte-Druck-Phasendiagramm bestimmt.

Graphittyp	Ausgangsdichte ρ_0 [g/cm ³]	Messungen	v_s [km/s]	Laserenergie [J]	Druck [GPa]
Porös	1,30	8	12,0 \pm 0,5	291,7 \pm 53,4	141 \pm 13
Porös	1,84	6	12,3 \pm 0,4	268,7 \pm 27,2	154 \pm 11
Pyrolytisch	2,25	4	13,0 \pm 0,6	243,4 \pm 15,9	183 \pm 20

Tabelle 4.2.: Die Tabelle zeigt die gemittelten Werte für den erreichten Endzustand der verschiedenen Graphittypen. Die Spalte Messungen beschreibt die Anzahl an ausgewerteten Datensätzen für einen Graphittyp und v_s die gemessene Schockgeschwindigkeit. Die Laserenergie ist die kumulierte Energie der schocktreibenden Laser.

Abbildung 4.11 zeigt die Vorgehensweise bei der Bereinigung der Rohdaten, einer einzelnen Messung des 126°-Spektrometers und das Extrahieren der Daten. Dazu wurden neben der eigentlichen Messung zwei weitere Profile entnommen. Letztere lagen oberhalb und unterhalb der Messung, sodass sie kein Streusignal enthalten, sondern nur Untergrund. Anschließend wurde an jedem Profil die in Abschnitt 1.3 vorgestellte Kalibrierung anhand der Abbruchkanten vorgenommen. Im nächsten Schritt wurden die Untergrundmessungen addiert, das Ergebnis durch zwei geteilt

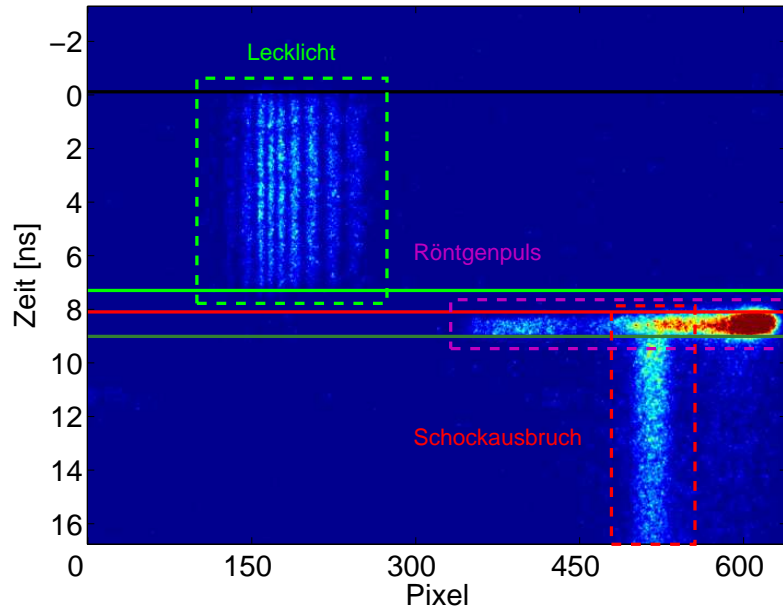


Abbildung 4.9.: Die Abbildung zeigt eine SBK Aufnahme mit einem Langpuls vom Vulcan Lasersystem (linke Hälfte, grünes Rechteck), der als Lecklicht eingekoppelt wurde und als Referenz für den Start der Schockwelle diente. Weiter ist der Schockausbruch zu sehen (rechte Hälfte, rotes Rechteck). Dieser wird noch vom Kurzpuls zur Röntgenerzeugung überdeckt (rechte Hälfte, violetteres Rechteck). Die schwarze Linie markiert den Start der Langpulse und die grüne Linie das Ende, hier bei 7,2 ns. Die rote Linie stellt den Beginn der Röntgenstrahlung bei 8,3 ns dar und die dunkelgrüne Linie bei 9,1 ns das Ende und den spätesten Zeitpunkt, an dem der Schock ausgebrochen ist. Aufgrund der unterschiedlichen Laufstrecken für die Photonen, mussten die Zeiten der rechten Hälfte, im Vergleich zum Langpuls, für die Auswertung der Daten um +0,5 ns korrigiert werden.

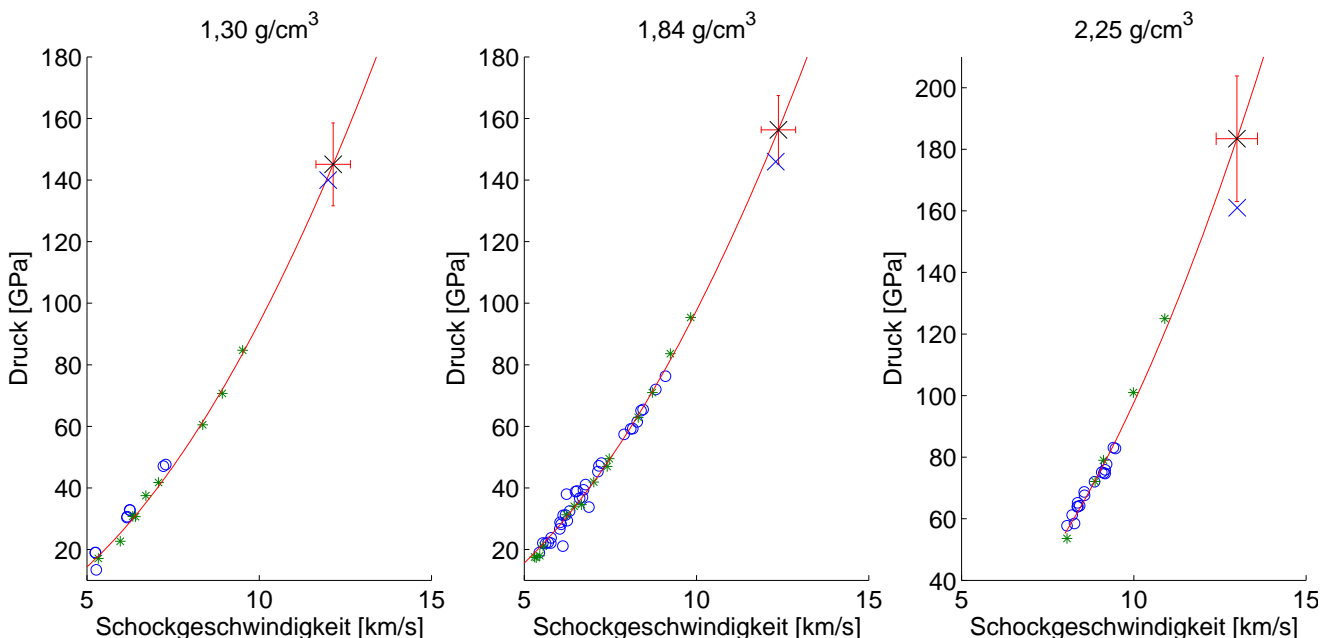


Abbildung 4.10.: Die Abbildung zeigt die Messungen von M. van Thiel [Thiel 1977] (blaue Ringe) und W. H. Gust [Gust 1980] (grüne Sterne), deren Ergebnisse quadratisch in den Druckbereich der WDM extrapoliert wurden (rote Linie). Die schwarzen Kreuze mit den roten Fehlern stammen aus den Geschwindigkeitsmessungen der SBK. Die blauen Kreuze zeigen den mittels HELIOS-Simulationen bestimmten Druck. (Ausgangsdichte: $\rho_0 = 1,30\text{g/cm}^3$ (links), $\rho_0 = 1,84\text{g/cm}^3$ (mitte), $\rho_0 = 2,21\text{g/cm}^3$ (rechts))

und dieses von der Messung subtrahiert. Dafür musste die vertikale Breite der Profile identisch sein, da die Ermittlung der Profile durch die Summation horizontaler Linien erfolgte. Das so erhaltene Spektrum enthält zusätzlich einen dominierenden Anteil an Bremsstrahlung. Dieser konnte am besten mit einem Gauß-Profil genähert werden und wurde vom Signal abgezogen. Dies ergibt das untergrundkorrigierte Spektrum des Streusignals. Aufgrund des schlechten Signal-Rausch-Verhältnisses werden alle Messungen einer Ausgangsdichte addiert.

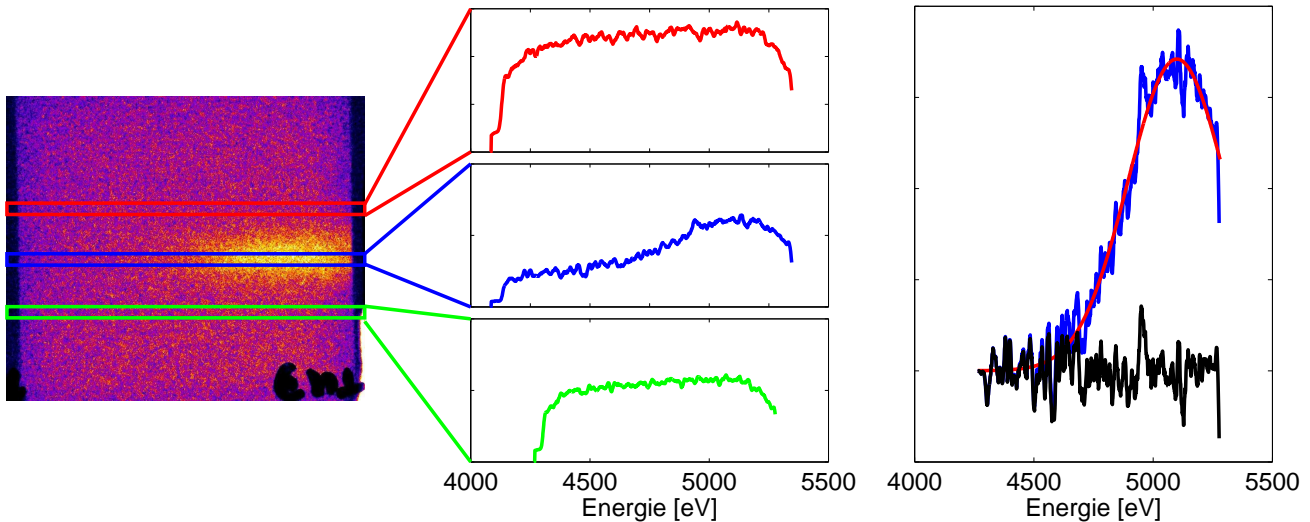


Abbildung 4.11.: Die Abbildung zeigt links: Rohdaten der IP des 126° -Spektrometers. Mitte: Profile oberhalb (rot) und unterhalb (grün) der eigentlichen Messung (blau) für die Untergrundkorrektur durch die belichtete IP. Rechts: IP untergrundbereinigtes Profil (blau), Gauß-Profil für Bremsstrahlung (rot) und das komplett korrigierte Profil (schwarz).

In Abbildung 4.12 sind die Ergebnisse für Messungen an Graphit mit Dichten von $1,30 \text{ g/cm}^3$ und $1,84 \text{ g/cm}^3$ enthalten. Bei diesen Messungen ist ein elastisches Streusignal sichtbar, bei der Energie der $K\text{-}\alpha$ Linie von 4952 eV . Zusätzlich wurde mit Hilfe der Impulsnäherung (siehe Abschnitt 5.3.3) aus dem elastischen Streusignal das inelastische Streusignal berechnet und dargestellt, wofür ein Strukturfaktor von $0,7$ nach [Kraus 2013] angenommen wurde. In Abbildung 4.13 sind die Ergebnisse für Graphit mit der Ausgangsdichte von $2,25 \text{ g/cm}^3$ dargestellt. Bei diesen Messungen ist kein elastisches oder inelastisches Streusignal zu erkennen.

1.5 Interpretation und Diskussion der RAL Daten

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Messungen am RAL interpretiert und mit Simulationen verglichen. Als Simulation für den erreichten Zustand dienen hier 1D HELIOS-Simulationen (siehe Simulationskapitel Abschnitt 2). Der Vergleich mit 1D Simulationen ist möglich, da der Durchmesser der mit dem Lasersystem beleuchteten Fläche mit einem Durchmesser von $\approx 700 \mu\text{m}$ mehr als doppelt so groß ist, wie die Dicke der verwendeten Proben von etwa $100 \mu\text{m}$ und damit eine 1D Schockgeometrie angenommen werden kann. Die Simulationen sind für Anfangsdichten von $1,30 \text{ g/cm}^3$, $1,84 \text{ g/cm}^3$ und $2,25 \text{ g/cm}^3$ durchgeführt worden. Als Laserpuls ist ein vom Vulcan Lasersystem geliefertes zeitliches Pulsprofil, mit einer Anstiegsflanke von $0,5 \text{ ns}$, einem Plateaubereich mit einer Intensität von $8,6 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ über 7 ns , einem Abfallen der Intensität über $0,5 \text{ ns}$ auf Null und einer Wellenlänge von 527 nm nachempfunden worden. Die Dicke der simulierten Proben betrug $120 \mu\text{m}$, die in ein 1200 Zonen großes Lagrange-Netz eingebunden wurden. Für die Zonen wurde ein einfaches Zonenmodell⁵ verwendet, da die simulierten Proben nur aus einem Material bestehen⁶. Als Simulationszeit wurden 12 ns gewählt. Eine längere Simulationszeit war nicht nötig, da der Röntgenpuls zum Untersuchen der Probe 8 ns nach dem Einsetzen der Laserpulse zum Treiben der Schockwelle eintraf. Zu diesem Zeitpunkt hatte die Schockwelle in den Simulationen noch nicht die Probenrückseite erreicht. Dies entspricht der Situation im Experiment, bei der das Untersuchen der Proben ebenfalls vor dem Ausbrechen des Schocks passierte. Die Simulationen sind über die Einkopplereffizienz der Laserenergie k_{ein} auf die gemessene Schockgeschwindigkeit angepasst worden, sodass die simulierte Schockgeschwindigkeit, der gemessenen entspricht. Für die Zustandsgleichung ist die SESAME Tabelle 7832 für Kohlenstoff und für die Opazität des Kohlenstoffes die PROPACEOS 4.0.0 Datenbank verwendet worden. Die Ergebnisse

⁵ Einfaches Zonenmodell: Die Masse innerhalb einer Region ist überall gleich.

⁶ Besteht eine Probe aus mehreren Materialien mit Grenzflächen zwischen diesen, muss ein anderes Zonenmodell verwendet werden, um die Massenänderung anzupassen.

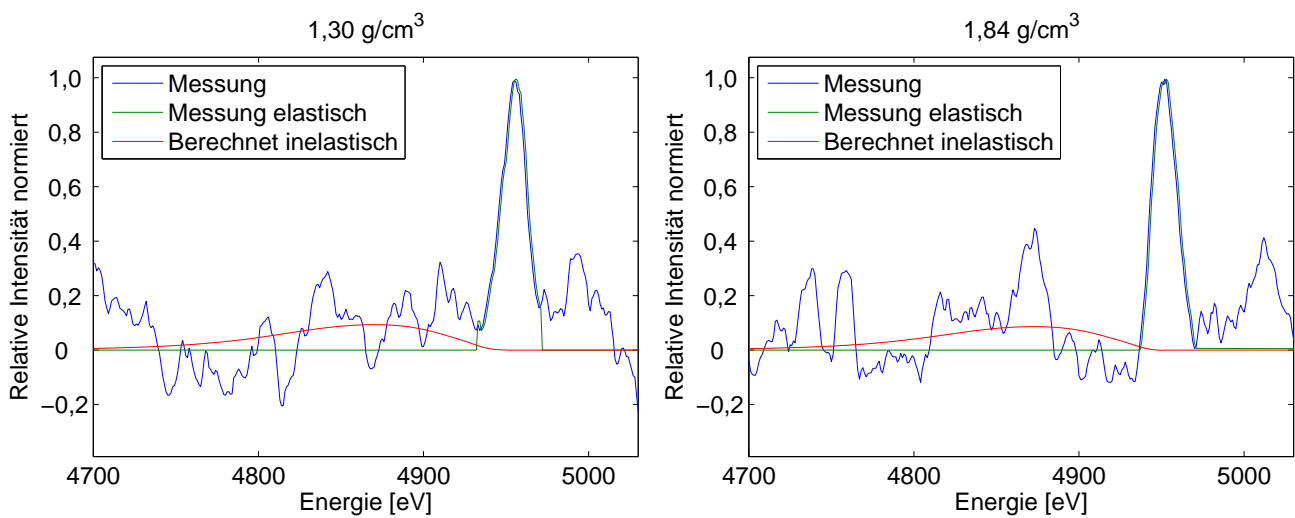


Abbildung 4.12.: Kumulierte Ergebnisse des 126°-Spektrometers für Graphit mit $1,30\text{ g/cm}^3$ und $1,84\text{ g/cm}^3$. Für $1,30\text{ g/cm}^3$ wurde über acht (links) und für $1,84\text{ g/cm}^3$ über sechs (rechts) Messungen gemittelt. Die rote Kurve stellt das aus den jeweiligen elastischen Streusignalen berechnete inelastische Streusignal da.

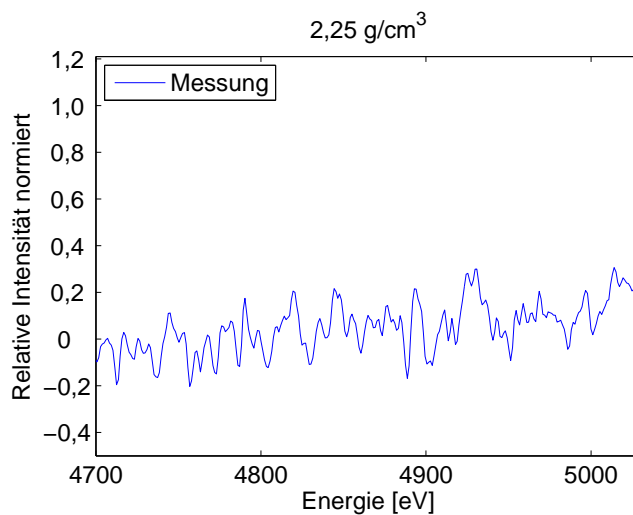


Abbildung 4.13.: Kumulierte Ergebnisse über vier Messungen des 126°-Spektrometers für Graphit mit $2,25\text{ g/cm}^3$. Bei diesem Typ konnte kein Streusignal identifiziert werden.

der Simulationen sind in Tabelle 4.3 angegeben und beziehen sich direkt auf einen Bereich hinter der Schockfront. Im Anhang Abschnitt 3 sind diese Simulationen dargestellt.

Ausgangsdichte ρ_0 [g/cm ³]	k_{ein}	Enddichte ρ_1 [g/cm ³]	Temperatur [K]	Druck [GPa]
1,30	0,54	3,30±0,12	14 500±1 700	140±13
1,84	0,54	3,82±0,10	9 200±900	146±11
2,25	0,59	3,96±0,09	5 700±600	161±15

Tabelle 4.3.: Die Tabelle enthält die Ergebnisse der HELIOS-Simulation, angepasst für die Laserparameter des Experiments am RAL. Die Ergebnisse geben die Parameter hinter der Schockfront zum Zeitpunkt der Wechselwirkung der Röntgenstrahlung mit den Proben wieder, der bei 8 ns nachdem Start der schocktreibenden Laser lag. k_{ein} ist die Einkoppleffizienz der Laserenergie zum treiben der Schockwelle.

Die Simulationsergebnisse des Drucks stimmen damit gut mit den durch Messungen der Schockgeschwindigkeit erhaltenen Ergebnissen überein (siehe Tabelle 4.2 und Abbildung 4.10). Die Simulationen liefern eine Abschätzung der Temperatur und Dichte im Endzustand. Wie in Abbildung 4.1 gezeigt, ist in der gewählten Konfiguration und Photonenenergie kein Streusignal von ungeschocktem Graphit enthalten. Dies bedeutet, dass wenn ein elastisches Streusignal gemessen wird, dieses nicht von festen Strukturen kommen kann. Die Messungen an Graphit mit einer Anfangsdichte von 1,30 g/cm³ und 1,84 g/cm³ zeigen ein Streusignal (siehe Abbildung 4.12) bei der Energie der verwendeten K- α Linie von Vanadium. Bei diesem Signal handelt es sich dementsprechend um elastisch gestreute Photonen. Dem Prinzip der im Theorieteil Abschnitt 5.4 vorgestellten XRTS folgend müsste auch ein inelastisches Streusignal auf der niederenergetischen Seite des gemessenen Signals liegen. Wird ein Strukturfaktor von $S_{\text{ii}} = 0,7$, wie in [Kraus 2013] gezeigt, angenommen, das inelastische Streusignal aus dem elastischen Streusignal berechnet (siehe Gleichung 2.91) und mit der Messung verglichen, zeigt sich, dass das Signal im Rauschen der Messung verschwindet (siehe Abbildung 4.12). Das Vorhandensein des elastischen Streusignals bei den Graphitproben mit reduzierter Dichte spricht dafür, dass diese sich in der flüssigen Phase befanden, während der dritte Graphittyp mit einer Anfangsdichte von 2,25 g/cm³ sich aufgrund des nicht vorhandenen elastischen Signals noch in der festen Phase befand. Aufgrund der Schockgeschwindigkeitsmessungen, der Extrapolation des Drucks und der durch die Simulation bestimmten Temperatur ist die Position im Temperatur-Druck-Phasendiagramm für die drei Ausgangsdichten bekannt. Mit der Information der Phase werden diese nun mit den in der Motivation gezeigten Phasendiagrammen verglichen (siehe Abbildung 4.14). Dieser Vergleich zeigt, dass die Messungen dieses Experiments mit den simulierten Phasenverläufen vereinbar sind. Die erreichten Parameter für die Proben nahe der natürlichen Dichte sprechen für eine feste Phase und die der reduzierten Dichten für eine flüssige. Dies ist in Übereinstimmung mit dem elastischen Streusignal als ein Indikator für den flüssigen Zustand.

Die Aussagen, die mit diesem Experiment am RAL zum Kohlenstoff getroffen werden können, sind:

- Für zwei Graphittypen mit reduzierter Dichte (57,5% und 81,4%) im Vergleich zur natürlichen Dichte ist flüssiger Kohlenstoff in einem komprimierten Zustand erzeugt worden.
- Für komprimierte Graphitproben, deren Ausgangsdichte nahe der natürlichen liegt, konnte kein Streusignal gemessen werden, das auf eine flüssige Probe hinweist.
- Die drei in der Ausgangsdichte unterschiedlichen Graphittypen haben für Laserintensitäten von circa 10^{13} W/cm² im komprimierten Zustand unterschiedliche Temperaturen bei ähnlichen Drücken von etwa 150 GPa.
- Die gemessenen Phasen stimmen mit den simulierten Phasen überein (siehe Abbildung 4.14).

Weiter konnte die Röntgenquelle nicht genügend Photonen liefern, um auch das inelastische Streusignal zu messen und damit den Strukturfaktor zu bestimmen. Die Ergebnisse dieses Experiments wurden veröffentlicht [Helfrich 2015]. Anhand dieser Erkenntnisse wurde ein weiteres Experiment geplant, um den Strukturfaktor unter verschiedenen Streuvektoren k zu untersuchen und zu bestimmen. Um dieses durchzuführen, bedarf es einer stärker kollimierten und intensiveren Röntgenquelle als es durch lasergetriebene Röntgenquellen möglich ist. Als beste verfügbare Röntgenquellen bieten sich dafür XFELs an, die aufgrund der Strahlqualität, Intensität und Repetitionsrate alle Bedingungen erfüllen, um Experimente dieser Art durchzuführen.

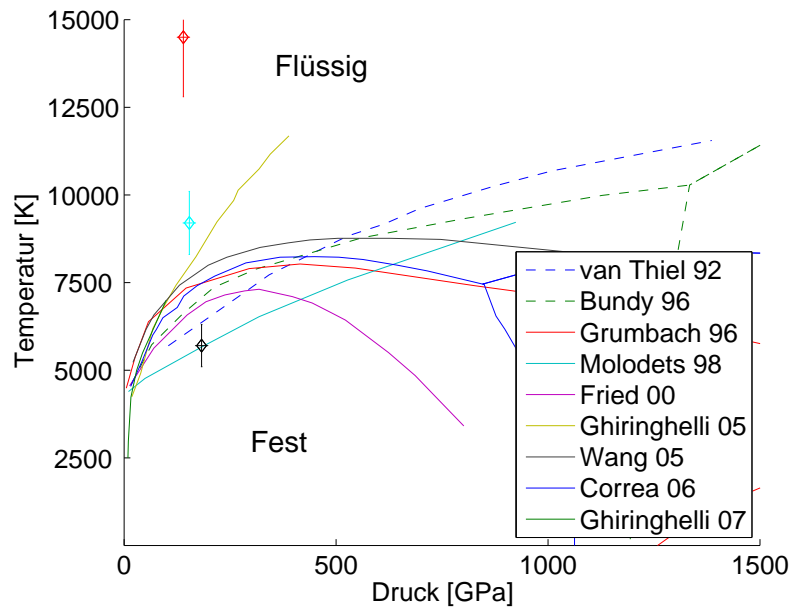


Abbildung 4.14.: Die Abbildung zeigt mehrere Phasendiagramme von Kohlenstoff, die in den letzten Jahren vorhergesagt worden sind. Die Positionen der Messergebnisse der verschiedenen Anfangsdichten sind mit Rauten angegeben (rot $\rho_0 = 1,30 \text{ g/cm}^3$ flüssig, cyan $\rho_0 = 1,84 \text{ g/cm}^3$ flüssig und schwarz $\rho_0 = 2,25 \text{ g/cm}^3$ fest).

2 Experiment LCLS

Im folgenden Abschnitt wird das Experiment vorgestellt, das an der LCLS am SLAC in Kalifornien durchgeführt worden ist. Wie das Experiment am RAL gezeigt hat, ist es möglich ausgehend von Graphit mit verschiedenen Ausgangsdichten ähnliche Drücke und Dichten bei unterschiedlichen Temperaturen im komprimierten Zustand zu erreichen. Aufbauend auf diesen Erkenntnissen wurde das Experiment geplant, um den Verlauf des Strukturfaktors zu messen und den Phasenübergang im Phasendiagramm im Bereich der WDM zu bestimmen. Aufgrund der getesteten Methode für die Erzeugung der WDM und der gleichbleibenden Diagnostiken wurden wieder Probendicken von etwa $100 \mu\text{m}$ Dicke und verschiedene Ausgangsdichten von $1,53 \text{ g/cm}^3$, $1,84 \text{ g/cm}^3$ und $2,21 \text{ g/cm}^3$ verwendet. Diese Proben werden in Abschnitt 2.2 vorgestellt. Die Kompression erfolgte erneut mittels lasergetriebener Schockwellen. Die Bestimmung der Position im Phasendiagramm wurde durch Messen der Schockgeschwindigkeit, der Grenzflächengeschwindigkeit zwischen Graphit und Lithiumfluorid (LiF) und durch Dichtemessungen im geschockten Zustand vorgenommen. Für die Messung der Schockgeschwindigkeit und der Grenzflächengeschwindigkeit wurde ein VISAR-System verwendet. Die Messung der Dichte erfolgte durch die Messung von Debye-Scherrer-Ringen.

Die Bestimmung des Verhaltens des Strukturfaktors für verschiedene Streuvektoren wurde durch Messungen für verschiedene Streuwinkel und der Variation der Photonenenergie erreicht. Die LCLS bietet als Röntgenquelle hierfür einzigartige Bedingungen. Dies betrifft vor allem die Intensität der Strahlung, die relativ freie Auswahl der Photonenenergie und die Röntgenpulslänge im Femtosekundenbereich. Mit diesen ultrakurzen Pulsen ist eine sehr viel genauere Definition des Untersuchungszeitpunkts der Proben möglich. Im Gegensatz zu pikosekundenlangen $K\alpha$ Pulsen entsteht eine Aufnahme, die über einen kürzeren Zeitraum integriert ist. Hinzu kommt, dass aufgrund der spektralen Bandbreite von 0,3% eine Vielzahl von Streuwinkeln verwendet werden kann, ohne dass es zu einer Überlappung mit Bragg-Peaks von ungeschocktem Graphit kommt. Der Strukturfaktor wurde erneut durch Messen des XRTS-Streusignals mittels eines hochauflösenden Kristallspektrometers bestimmt. Im Experiment wurden Röntgenstrahlungsenergien von 4500 eV und 6000 eV verwendet. Für Graphit mit einer Dichte von $2,26 \text{ g/cm}^3$ liegt die Absorptionslänge der niederenergetischen Strahlung bei etwa $168,3 \mu\text{m}$, die der höherenergetischen bei $410,9 \mu\text{m}$ [Henke 1993]. Dabei wurden verschiedene Streuwinkel zwischen 170° und 90° untersucht.

Im folgenden Abschnitt wird zuerst der Aufbau des Experimentes vorgestellt⁷. Weiter wird auf die verwendeten Diagnostiken eingegangen, warum sie verwendet wurden und ihre Besonderheiten (siehe Abschnitt 2.2). Darauf folgt die Kalibrierung der Diagnostiken im Experiment (Abschnitt 2.3). Die Ergebnisse der Messungen werden im darauf folgenden Abschnitt 2.4 vorgestellt und danach in Abschnitt 2.5 diskutiert.

⁷ Das Experiment wurde in fünf Schichten durchgeführt, die als Messtage bezeichnet werden.

2.1 Aufbau LCLS

Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 4.15 skizziert. Er bestand aus einem Transmissionsspektrometer, einem winkelverstellbaren, hochauflösenden Kristallspektrometer (Rückwärtsspektrometer), einem VISAR-System, einem Flächendetektor (CSPAD) und einem Probenhalter, auf dem die Graphitproben montiert waren. Dazu kam ein Lasersystem für die Erzeugung der WDM und die vom FEL bereitgestellte Röntgenstrahlung für die Diagnostiken. Der Aufbau des Experiments

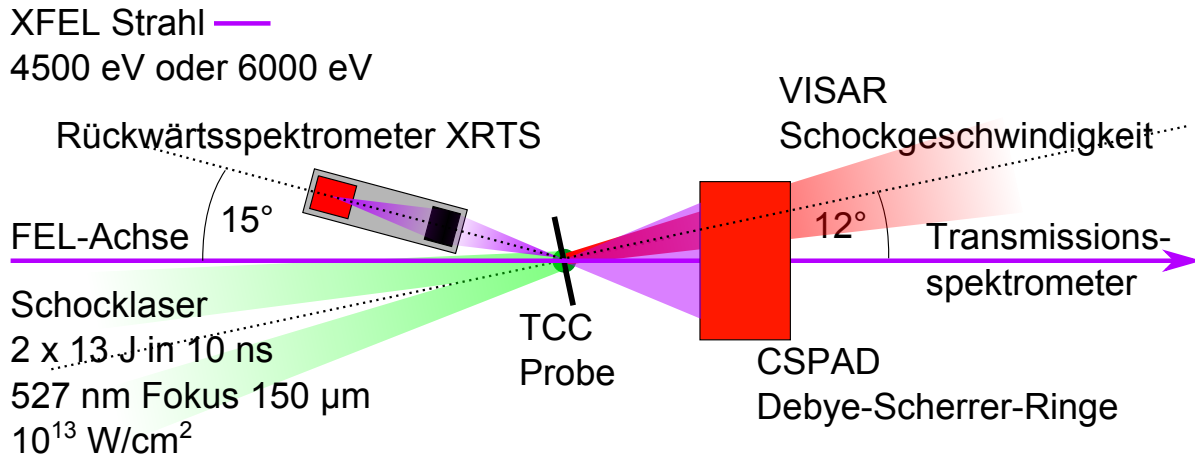


Abbildung 4.15.: Experimentaufbau am LCLS. Die VISAR-Optiken befanden sich in der Hauptebene. Der Aufbau des CSPADs befand sich oberhalb der Strahlebene, wie in Abbildung 4.16 dargestellt.

war auf den Mittelpunkt der Vakuumkammer TCC fixiert, an dem jede Probe positioniert wurde (siehe Abbildung 4.16). Die Proben befanden sich auf einem Probenhalter, auf dem alle Proben für einen Messtag angebracht worden sind (siehe Abbildung 4.17). Das Lasersystem für die Erzeugung der WDM bestand aus einem Laser, dessen Strahl in zwei Teile aufgespalten wurde und jeweils in eine Nd:Glas Verstärkerkette gelangte [Nagler 2015]. Das System hatte eine fundamentale Wellenlänge von 1054 nm und wurde frequenzverdoppelt auf 527 nm. Auf der Probe standen pro Verstärkerkette bis zu 25 J in 25 ns zur Verfügung, mit einer Anstiegszeit von 200 ps und mit einem Jitter von 20 ps. Im Experiment wurden etwa 13 J in 10 ns pro Arm verwendet. Die Strahlen hatten einen Durchmesser von 40 mm und wurden mit Linsen der Brennweite 250 mm auf die Proben fokussiert. Mit Hybridphasenplatten wurde die Intensität gleichmäßig auf den beleuchteten Punkt auf einen Durchmesser von 150 µm verteilt. Dadurch wurde eine Intensität von etwa 10^{13} W/cm^2 erreicht. Die generelle Erzeugung der Röntgenstrahlung, für die Diagnostiken durch einen FEL wurde im Abschnitt 4.2.2 des Kapitels 2 behandelt. Die Strahlparameter im Experiment betragen 4500 eV oder 6000 eV Photonenenergie mit einer spektralen Bandbreite von 0,3% im SASE Modus bei einer Pulslänge von 50 fs. Der Durchmesser im Fokus wurde im Experiment zwischen 20 µm und 40 µm variiert. Die Energie pro Puls betrug zwischen 3,2 mJ und 4,1 mJ, dies entspricht etwa 10^{12} Photonen.

Eine Hauptachse des Experiments für den Aufbau wurde durch die Richtung des FELs, die durch TCC führt, vorgegeben (siehe Abbildung 4.15). Der Probenhalter war bezogen auf diese Achse um 12° gedreht, damit die Probenoberfläche senkrecht zur Richtung des Schocklasers und VISAR-Systems stand. Das VISAR-System diente zum direkten Messen der Schockgeschwindigkeit, zur Bestimmung der Grenzflächengeschwindigkeit und zur Verbesserung der Synchronisation zwischen Röntgenpuls und Schockausbruch während des Experiments. Die Darstellung der Funktionsweise des VISAR-Systems erfolgt in Abschnitt 2.2. Beim Laser des VISAR-Systems handelte es sich um einen fasergekoppelten Einmoden-Laser⁸ mit einer Wellenlänge von 532 nm. Die beiden SBKs des VISAR-Systems waren von Hamamatsu aus der C7700-Serie mit ORCA-R2 Digital CCD Kameras C10600-10B.

Bei der Hauptdiagnostik handelte es sich wie beim Experiment am RAL um ein Kristallspektrometer, wie es schon im Abschnitt 1.2 des RAL Experiments vorgestellt worden ist. Mit diesem Spektrometer wurden die energieaufgelösten XRTS-Spektren aufgenommen, um den Strukturfaktor zu bestimmen. Es wurde in einer von-Hámos-Geometrie aufgebaut und verwendete einen gekrümmten HAPG-Kristall. Die Parameter des HAPG-Kristalls sind in Tabelle 4.1 im Abschnitt 1.3 des RAL Experiments angegeben. Eine komplette Charakterisierung des verwendeten Kristalls wurde von U. Zastrau durchgeführt [Zastrau 2013]. Sein Aufbau befand sich um 15° gedreht von TCC bezogen auf die FEL-Achse. Dieses Spektrometer befand sich auf einem 3-Achsen-Manipulator, mit dem jeder Streuwinkel von 0° bis 90° , bezogen auf die

⁸ In einem Einmoden-Laser wird nur eine Resonatormode angeregt, er hat damit eine minimale Strahldivergenz und eine sehr kleine Linienbreite.

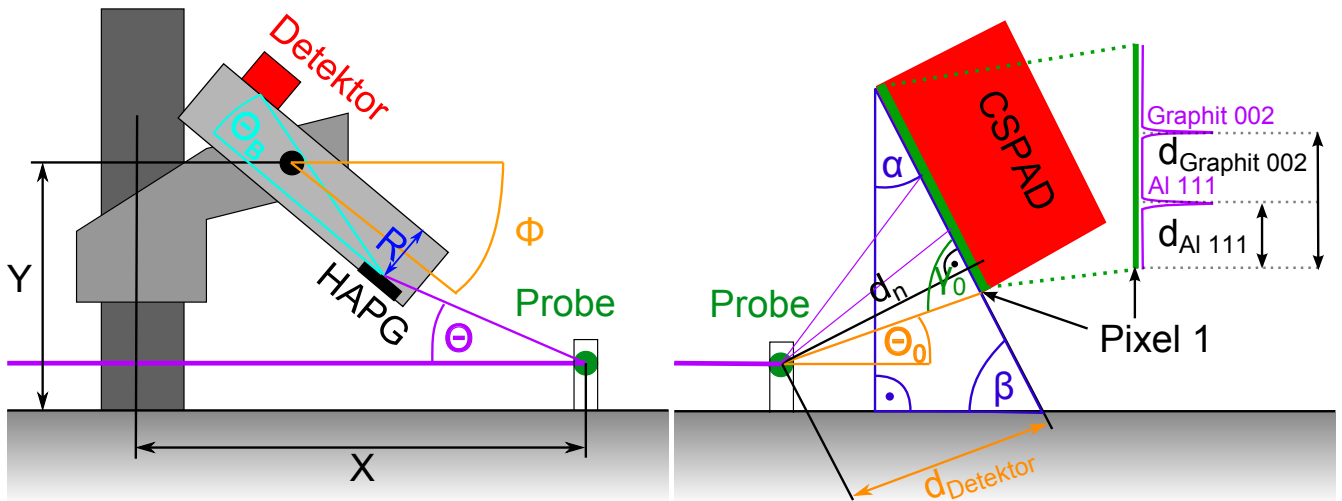


Abbildung 4.16.: Links: Position des Rückwärtspektrometers mit Y , X und Φ den Winkeleinstellmöglichkeiten des Spektrometers, Θ_B dem energieabhängigen Bragg-Winkel des HAPG-Kristalls und Θ dem Streuwinkel. Rechts: Position des CSPAD zur Messung der Debye-Scherrer-Ringe. Der Detektor ist dabei um den Winkel $\alpha = 27^\circ$ zur FEL-Strahlachse geneigt. Die weiteren Angaben sind für die folgende Pixel-Winkel-Kalibrierung des Detektors von Bedeutung.

Vakuumkammerebene, angefahren werden konnte (siehe Abbildung 4.16 links). Zum Unterdrücken von Photonen mit Energien kleiner als 1000 eV waren vor dem Spektrometer 200 μm starke Berylliumfilter montiert. Die Aufnahme der energieaufgelösten Spektren erfolgten mit einem Cornell-SLAC Pixel Array Detector (CSPAD) (siehe Abschnitt 2.2) und nicht wie am RAL mit Bildspeicherplatten. Dieses Spektrometer wird im Folgenden als Rückwärtspektrometer bezeichnet, da es die zurückgestreute Strahlung bezogen auf die Propagationsrichtung des FEL-Strahls aufnimmt.

Auf der FEL-Achse befand sich ein weiterer Detektor zum Messen der durch die Probe transmittierten Photonen (Transmissionsspektrometer). Dieser bestand aus einem Beugungskristall, der den Strahl spektral aufgelöst hatte und der energieabhängig gedreht werden konnte, um die Photonen auf einen Szintillator zu lenken. Das Szintillatorsignal wurde von einer Adimec Opal 1000 [Opal 2016] Kamera aufgenommen. Für die Messung der Debye-Scherrer-Ringe wurde ein Flächendetektor montiert. Es handelte sich dabei um das in Abschnitt 2.2 vorgestellte große CSPAD. Im Folgenden ist mit der Bezeichnung CSPAD immer dieser Detektor gemeint. Die Position kann der Abbildung 4.16 rechts entnommen werden, sie liegt leicht oberhalb der untersuchten Probe und des FEL-Strahls. Das CSPAD wurde gegen den EMP der schocktreibenden Laser abgeschirmt. Dies erfolgte durch eine Ummantelung der Kabel und des Spektrometers selbst mit Aluminiumfolie, soweit dies möglich war. Dieser Detektor wurde für die Messungen mit einer Photonenenergie von 4500 eV entfernt und anschließend wieder aufgebaut. Dies erfolgte aus geometrischen Gründen, da für niedrigere Photonenenergien ein weiteres Kristallspektrometer⁹ näher an den Probenhalter gefahren werden musste (siehe Gleichung 4.1) und nicht genügend Platz für beide Diagnostiken zur Verfügung stand.

2.2 Details der Komponenten am LCLS

In diesem Abschnitt werden die im Experiment verwendeten Komponenten vorgestellt, sofern sie nicht schon am RAL verwendet und im Abschnitt 1.2 berücksichtigt worden sind. Es handelt sich dabei um die Graphitproben, das VISAR-System und die verwendeten Flächendetektoren (CSPADs).

Graphitproben LCLS

Für die Dimensionierung der Proben galten die gleichen Überlegungen wie am RAL. Am LCLS wurden Graphittypen mit Dichten von 1,53 g/cm^3 und 1,84 g/cm^3 vom gleichen Typ wie dem zweiten Typ der am RAL verwendeten Proben, außerdem pyrolytischer Graphit mit einer Dichte von 2,21 g/cm^3 verwendet. Der Graphit mit der Dichte von 1,53 g/cm^3 wurde vom Targetlabor der GSI bezogen, der zweite mit 1,84 g/cm^3 von der Firma SGL Carbon [SGLCarbon], der letzte mit 2,21 g/cm^3 von Goodfellow mit der Bezeichnung C000720. Alle Typen wurden vom Targetlabor der GSI auf eine Dicke von unter 100 μm geschliffen. Anschließend wurden diese vom Targetlabor der *Technischen Universität Darmstadt*

⁹ Im Experiment wurde noch ein Kristallspektrometer in Vorwärtsstreureichtung betrieben. Die Daten dieses Spektrometers sind nicht Teil dieser Arbeit, es wird deshalb nicht weiter erwähnt und dargestellt im Aufbau.

(TU Darmstadt) poliert, um die Oberflächenrauigkeit zu reduzieren. Die Oberflächenrauigkeit wurde mit einem Weißlichtinterferometer auf maximal 150 nm bestimmt. Eine Seite des Graphits wurde zusätzlich mit einer etwa 100 nm dicken Aluminiumschicht bedampft, um die Reflektivität für die VISAR-Messungen zu erhöhen. Für die Proben wurden einzeln die Dicke und ihre Abweichungen gemessen. Dafür wurde die Dicke an fünf Orten in Form eines Kreuzes bestimmt und die Standardabweichung ermittelt. Die Proben wurden gemeinsam auf Probenhaltern für die einzelnen Messtage angebracht (siehe Abbildung 4.17).

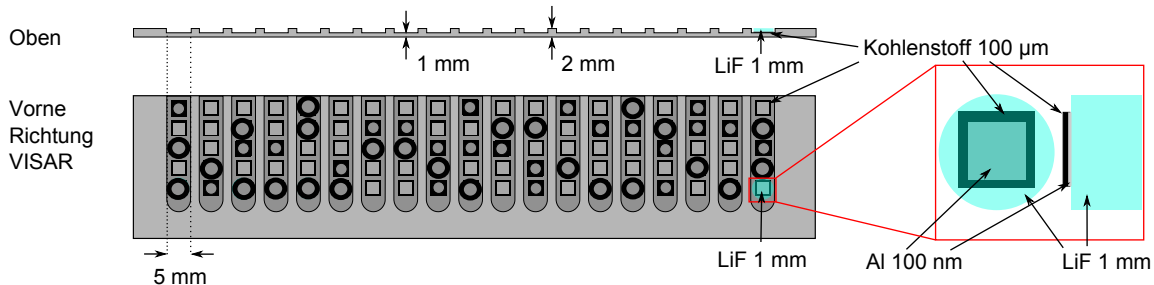


Abbildung 4.17.: Aufbau des Probenhalters mit Proben der verschiedenen Ausgangsdichten, wie sie am LCLS verwendet worden sind. Auf der rechten Seite ist der Aufbau einer Graphit-LiF Probe für die VISAR-Messungen dargestellt.

Für jeden Typ wurden Proben modifiziert, indem an diese ein Lithiumfluorid (LiF) Kristall angebracht wurde, um am Graphit VISAR-Messungen durchzuführen. Das LiF war 1 mm dick und mit einer Antireflexschicht für 532 nm beschichtet, der Wellenlänge des VISARs. Diese wurden auf einem separaten Probenhalter montiert und nicht wie in Abbildung 4.17 dargestellt mit den einfachen Graphitproben zusammen. Der Aufbau des Probenhalters war ansonsten identisch.

VISAR-System

Während mit einer SBK nur die Durchlaufzeit einer Schockwelle gemessen werden kann, ist es mit einem Geschwindigkeits-Interferometer-System für jede Oberfläche (Velocity Interferometer System for Any Reflector, VISAR)-System [Barker 1972] auch möglich, die Schockgeschwindigkeit in transparenten Materialien zu messen. Ein VISAR-System erlaubt es, zeitaufgelöste Geschwindigkeitsmessungen von sich schnell bewegenden Oberflächen unter Verwendung von Laserinterferometrie durchzuführen. Dabei ist die Messung von Geschwindigkeiten bis zu mehreren Kilometern pro Sekunde möglich. Ein VISAR misst dabei die Geschwindigkeit einer sich bewegenden Oberfläche über die Zeit. Ein schematischer Aufbau ist in Abbildung 4.18 links gezeigt. Dabei wird ein Laserstrahl auf die Oberfläche der Probe gerichtet. Von dieser wird das Licht reflektiert und in ein Mach-Zehnder-Interferometer eingekoppelt. In diesem wird das Licht auf zwei Arme aufgeteilt, wobei ein Strahl ein Etalon¹⁰ durchläuft und dabei verzögert wird. Anschließend werden die Strahlen übereinandergelagert und es entstehen Interferenzstreifen, die zeitaufgelöst mit einer SBK aufgenommen werden können (die Funktionsweise von SBKs wurde im Abschnitt 1.2 des am RAL durchgeführten Experiments vorgestellt). Bewegt sich die Oberfläche mit einer Geschwindigkeit v , sind die Interferenzstreifen um die Distanz F zur Lage der sich nicht bewegenden Oberfläche verschoben (Abbildung 4.18 rechts). Die Verschiebung der Interferenzstreifen erfolgt durch die Doppler-Verschiebung der Laserwellenlänge an der sich bewegenden Oberfläche. Diese erfolgt proportional zu der Geschwindigkeit der reflektierenden Oberfläche. Mit diesen Messungen ist es möglich, die Beziehung zwischen Dichte und Druck eines Materials im geschockten Zustand zu bestimmen. Dies erfolgt mit den Rankine-Hugoniot-Gleichungen. Damit ist es möglich, lasergetriebene Schockwellen zu charakterisieren.

Erfolgt die Geschwindigkeitsänderung durch eine Schockwelle sehr schnell, sieht es so aus, als würden die Streifen springen und eine direkte Zuordnung der Geschwindigkeit ist nicht mehr möglich. Die Schwierigkeit der Zuordnung entsteht dadurch, dass nicht bekannt ist, um wie viele Interferenzstreifenbreiten sich das Signal verschoben hat. Es kann sich um exakt einen oder mehrere Breiten verschoben haben. Um die Anzahl der Verschiebungen bestimmen zu können, besteht ein VISAR-System aus zwei einzelnen VISARs mit unterschiedlich dicken Etalons. Dies führt zu unterschiedlichen Geschwindigkeiten pro Interferenzstreifenbreite. Die Geschwindigkeit vpf (velocity per fringe) für eine Interferenzstreifenverschiebung um eine Streifenbreite oder Phasensprung wird nach [Barker 1974] berechnet:

$$vpf = \frac{\lambda_0}{2\tau(1 + \delta)} \quad (4.3)$$

¹⁰ Bei einem Etalon handelt es sich um ein Material mit einem anderen Brechungsindex, um eine Verzögerung zu erzeugen.

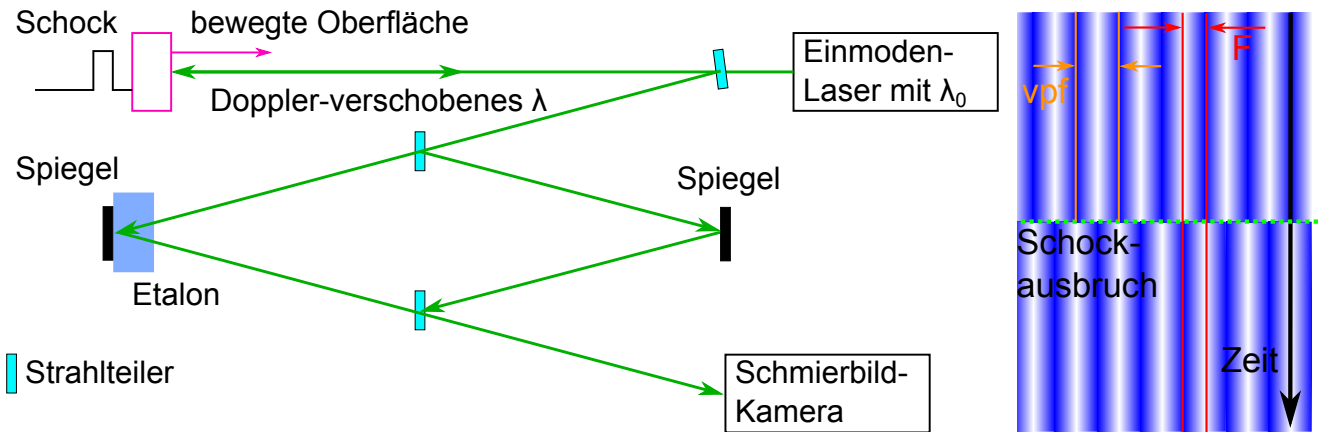


Abbildung 4.18.: Links: Schematische Darstellung eines VISARs im VISAR-Systems am LCLS. Ein 532 nm Laser wird von der Probenrückseite reflektiert und in ein Interferometer in Mach-Zehnder Geometrie geleitet, in dessen einen Arm ein Quarzglas-Etalon mit bekannter Dicke als optische Verzögerung eingesetzt ist. Das Signal gelangt dann in eine SBK und wird aufgenommen. Rechts: VISAR-Aufnahme der Interferenzstreifen mit Verschiebung durch einen Schockausbruch auf halber Höhe (grüne Linie). Der zeitliche Verlauf erfolgt von oben nach unten. Der Abstand zweier Maxima entspricht der Geschwindigkeit v_{pf} . F ist die Verschiebung der Interferenzstreifen durch den Schockausbruch im Vielfachen des Streifenabstandes.

mit λ_0 der Wellenlänge des Lasersystems, δ dem Dispersionskorrekturfaktor und

$$\tau = 2 \frac{h}{c_0} \cdot \left(n_0 - \frac{1}{n_0} \right) \quad (4.4)$$

mit h der Dicke des Etalons, c_0 der Lichtgeschwindigkeit und n_0 dem material- und wellenlängenabhängigen Brechungsindex des Etalons. Für das im Experiment genutzte Quarzglas gilt $n_0 = 1,4603$ für 532 nm Wellenlänge [Malitson 1965]. Der Dispersionskorrekturfaktor δ kann nach

$$\delta = - \frac{n_0}{n_0^2 - 1} \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda=\lambda_0} \quad (4.5)$$

berechnet werden. Er ist material- und wellenlängenabhängig mit $dn/d\lambda = -46309 \text{ m}^{-1}$ für Quarzglas bei 532 nm [Malitson 1965]. Dies ergibt für die im Experiment verwendeten Etalons mit einer Dicke von 5 mm eine $v_{pf_{5\text{mm}}} = 9966 \text{ m/s}$ und für eine Dicke von 8 mm eine $v_{pf_{8\text{mm}}} = 6229 \text{ m/s}$. Die Oberflächengeschwindigkeit v berechnet sich dann nach

$$v = v_{pf} \cdot F \quad (4.6)$$

mit der Anzahl F der Interferenzstreifenverschiebungen.

Durch Expansion der Schockwelle in ein Vakuum geht im Moment des Ausbruchs die Reflektivität der Oberfläche verloren. Dies erlaubt es mit einem VISAR direkt den Schockausbruch zu messen und damit die Schockgeschwindigkeit zu bestimmen. Als beschleunigende Oberfläche wurde am LCLS die Grenzfläche der Probenrückseite beim Ausbrechen der Schockwelle aus dem Material beobachtet. Dafür wurde auf die Rückseite der Proben ein für den Laser transparentes Material angebracht, in das sich die Schockwelle fortsetzen konnte. Damit war es möglich die Grenzflächengeschwindigkeit, die der Teilchengeschwindigkeit des zweiten Materials entspricht, zu messen. Das zweite Material wird in diesem Fall auch Fenster genannt. Damit kann die Teilchengeschwindigkeit des ersten geschockten Materials bestimmt werden. Unter Berücksichtigung der in Abschnitt 4.1.2 des Theoriekapitels behandelten Impedanzanpassung und der Tatsache, dass das Material transparent sein muss, wurde für die Messungen an Graphit Lithiumfluorid (LiF) als Fenstermaterial gewählt. Für die VISAR-Messungen muss Gleichung 4.3 um den Brechungsindex des Fenstermaterials n_{Fenster} erweitert werden zu [Barker 1974]:

$$v_{pf_{\text{Fenster}}} = \frac{\lambda_0}{2\tau(1 + \delta)} \cdot \frac{1}{n_{\text{Fenster}}} \quad (4.7)$$

Dabei ist $v_{pf_{\text{Fenster}}}$ die durch die Interferenzstreifenverschiebung im Fenstermaterial charakterisierte Geschwindigkeit. n_{Fenster} ist der Brechungsindex des Fensters, für LiF bei 532 nm gilt $n_{\text{Fenster}} = 1,3935$ [Li 1976]. Mit einem 5 mm-Etalon

ergibt sich die Geschwindigkeit pro Streifen zu $vpf_{\text{Fenster}} = vpf_{\text{LiF},5\text{mm}} = 7152\text{ m/s}$ und mit einem 8 mm-Etalon eine $vpf_{\text{LiF},8\text{mm}} = 4470\text{ m/s}$. Durch die Schockwelle, die in das LiF gelangt, verändert sich der Brechungsindex des Materials n_{Fenster} , was ebenfalls berücksichtigt werden muss. In diesem Fall kann die wahre Grenzflächengeschwindigkeit v_{wahr} mit

$$\frac{v}{v_{\text{wahr}}} = n_{\text{Fenster},0} - \rho \frac{dn}{d\rho} \quad (4.8)$$

bestimmt werden. Dabei ist ρ die Dichte im komprimierten Zustand, $dn/d\rho$ die Änderung des Brechungsindex in Abhängigkeit von der Dichte, $n_{\text{Fenster},0}$ der Brechungsindex des unkomprimierten Zustands und v die gemessene Grenzflächengeschwindigkeit ohne Fensterkorrekturen [Hayes 2001] (vergleiche Gleichung 4.6). Die Bestimmung der Dichte im geschockten Zustand und von $dn/d\rho$ ist in diesem Experiment nicht möglich. Um die korrekte Grenzflächengeschwindigkeit bestimmen zu können, wird auf die systematischen Messungen von D. Fratanduono zurückgegriffen, mit denen von der gemessenen Grenzflächengeschwindigkeit direkt auf die wahre Grenzflächengeschwindigkeit geschlossen werden kann [Fratanduono 2010]. Die Daten für den in dieser Arbeit relevanten Bereich sind im Anhang Abschnitt 2 in Abbildung B.1 dargestellt.

CSPADS

Am LCLS werden statt IPs Cornell-SLAC Pixel Array Detectors (CSPADs) verwendet, um Röntgenstrahlung direkt aufzunehmen [Blaj 2015]. Der Einsatz solcher Detektoren kann nur an Orten erfolgen, an denen keine starken EMPs auftreten, wie sie zum Beispiel durch Hochenergie-Kurzpuls laser entstehen. Der Vorteil dieser Detektoren ist, dass die Daten sofort zur Verfügung stehen und kein Belüften der Vakuumkammer notwendig ist. Im Experiment wurde für das Kristallspektrometer ein CSPAD mit 400×400 Pixeln verwendet. Weiter ist ein CSPAD mit 825×830 Pixeln zum direkten Messen von Debye-Scherrer-Ringen verwendet worden, dabei erfolgte keine spektrale Auflösung der Strahlung. Die Größe der Pixel beträgt $110 \times 110 \mu\text{m}^2$.

2.3 Kalibrierung und Justierung am LCLS

In Abbildung 4.19 sind die Rohdaten des Rückwärtsspektrometers gezeigt und die Aufnahmen für die Energiekalibrierung. Der roten Kasten zeigt den Bereich, der für die Bestimmung der Spektren verwendet wurde.

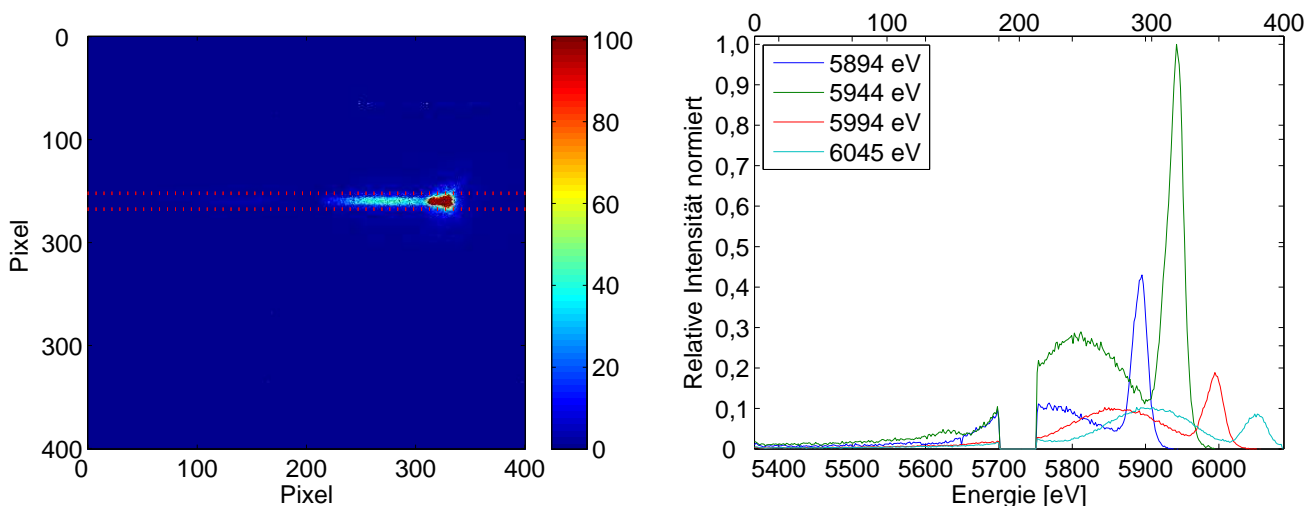


Abbildung 4.19.: Links: Messung des Rückwärtsspektrometers mit rot markiertem Bereich für das Spektrum. Rechts: Gezeigt sind die Aufnahmen für die Energiekalibrierung des Rückwärtsspektrometers in der idealen von-Hámos-Geometrie. Jede der dargestellten Messungen ist über zehn Einzelmessungen gemittelt worden. Der Detektor ist aus zwei Arrays zusammengesetzt, woraus die Aufnahme-lücke zwischen Pixel 185 und 214 resultiert.

Die Energiekalibrierung des Transmissions- und Rückwärtsspektrometer erfolgte durch mehrmaliges Verschieben der Photonenenergie des FELs um 50 eV und des sich dadurch verschiebenden Streusignals auf den Spektrometern um diese Energie. Dieses Vorgehen ist in Abbildung 4.19 rechts für das Rückwärtsspektrometer dargestellt. Die Energieauflösung des Transmissionspektrometers beträgt $(0,344 \pm 0,015)$ eV pro Pixel, die des Rückwärtsspektrometers beträgt

($1,809 \pm 0,026$) eV pro Pixel. Die Ortskalibrierung der Energie auf dem Detektor erfolgte durch die Positionsbestimmung von elastischen Streusignalen bei bekannter FEL-Photonenenergie. Eine Normierung der Intensitäten war nicht notwendig, da nur die Position des elastischen Peaks von Bedeutung für die Energiekalibrierung ist.

Weiter wurde die Detektorfunktion des Rückwärtsspektrometers bestimmt, da diese im Verlauf der Auswertung der XRTS-Spektren benötigt wird. Dies geschah durch Entfalten des gemessenen Signals der K- α Linien von Mangan mit der bekannten natürlichen Pulsform dieser Linien [Hölzer 1997]. Das natürliche Pulsprofil der Manganlinien und das gemessene Signal der Manganlinien sind in Abbildung 4.20 links dargestellt. In der Mitte der Abbildung befindet sich die ermittelte Detektorfunktion. Auf der rechten Seite ist das resultierende Profil aus der Faltung des natürlichen Pulsprofils mit der Detektorfunktion resultierende Profil mit dem gemessenen Signal der Manganlinien dargestellt. Dabei ist zu erkennen, dass die beiden Pulsformen in guter Übereinstimmung sind und die ermittelte Detektorfunktion verwendet werden kann. Die K- α Linienstrahlung wurde durch Bestrahlen einer Manganfolie mit einer Photonenergie von 6 697 eV erzeugt. Diese Energie ist größer als die Energie dieser Linien von 5 887 eV und 5 898 eV. Sie wurden dadurch angeregt und es wurden Photonen emittiert.

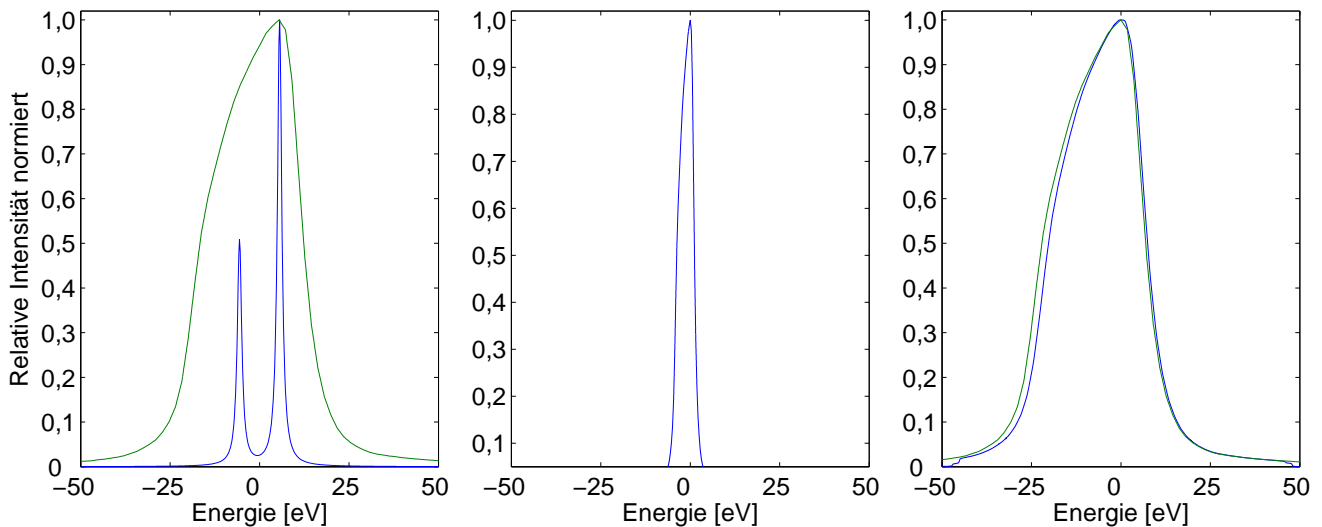


Abbildung 4.20.: Links: Berechnete Linienform der K- α_1 und K- α_2 Linien von Mangan (blau) [Hölzer 1997]. Messsignal der Mangan K- α Linien mit dem Rückwärtsspektrometer (grün). Mitte: Durch Entfaltung bestimmte Detektorfunktion des Rückwärtsspektrometers. Rechts: K- α Linien gefaltet mit der Detektorfunktion (blau) und Messsignal der K- α Linien (grün).

Das Anfahren der einzelnen Streuwinkel im Experiment erfolgte durch die Eingabe des Rückwärtsspektrometerwinkels zur Horizontalen in die Steuerungssoftware des Spektrometers. Der tatsächliche Streuwinkel wurde dann aus der Geometrie des Aufbaus und des eingestellten Winkels berechnet. Die angefahrne Position erfüllte dabei die Bedingungen für die ideale von-Hámos-Geometrie.

Da es sich bei dem CSPAD zum Aufnehmen der Debye-Scherrer-Ringe um einen planaren Detektor handelt, dessen Aufbau sich relativ nahe am Streupunkt TCC befand, lag keine lineare Winkelverteilung auf dem Detektor vor. Im Folgenden wird das Vorgehen zum Berechnen der Winkel-Pixel-Zuordnung des CSPADs beschrieben. Die Winkelbestimmung erfolgte über die Position der Bragg-Peaks der 002-Ebenen von Graphit $d_{\text{Graphit},002} = 3,345 \cdot 10^{-10}$ m und der 111-Ebenen von Aluminium $d_{\text{Al},111} = 2,337 \cdot 10^{-10}$ m. Dafür wurden die Abstände $d_{\text{Graphit},002}$ und $d_{\text{Al},111}$ der Peaks zum ersten Pixel des Detektors bestimmt (siehe Abbildung 4.16 rechts für Winkel-, Abstands- und Positionsbezeichnungen). Unter Berücksichtigung der Photonenergie konnte mit der Bragg-Gleichung der Streuwinkel θ dieser Peaks bestimmt werden. Zusätzlich wurde der Winkel α zwischen der Oberfläche des CSPADs und der Vakuumkammerebene zu 27° bestimmt. Damit konnte der Winkel β bestimmt werden ($\beta = 180^\circ - 90^\circ - \alpha$)¹¹. Mit diesen Informationen, den Rechenregeln für Dreiecke und der Normalen d_n , die von der Detektoroberfläche durch die Probe geht, konnte der Abstand d_{Detektor} zwischen der Probe und dem ersten Pixel des Detektors mit dem Winkel θ_0 berechnet werden. Zusätzlich war die Bestimmung des Winkels γ_0 möglich, der zwischen der Detektoroberfläche und der Verbindungslinie von der Probe zum untersten Pixel des Detektors lag. Damit konnte jeder Pixel des Detektors eindeutig einem Streuwinkel θ zugeordnet werden. Beim Wiederaufbau des Detektors nach den Messungen mit 4 500 eV erfolgte die Winkelkalibrierung über die Position der Bragg-Peaks von Graphit-002, Graphit-010 und Aluminium-111, womit auf den Winkel α verzichtet werden konnte. Dabei wurden wieder

¹¹ Diese Betrachtung gilt nur für den Bereich direkt über dem Röntgenstrahl, an dem auch die Auswertung vorgenommen wurde.

die gleichen Parameter d_{Detektor} , γ_0 und θ_0 bestimmt. Die Kalibrierungskurven für das CSPAD sind in Abbildung 4.21 gezeigt.

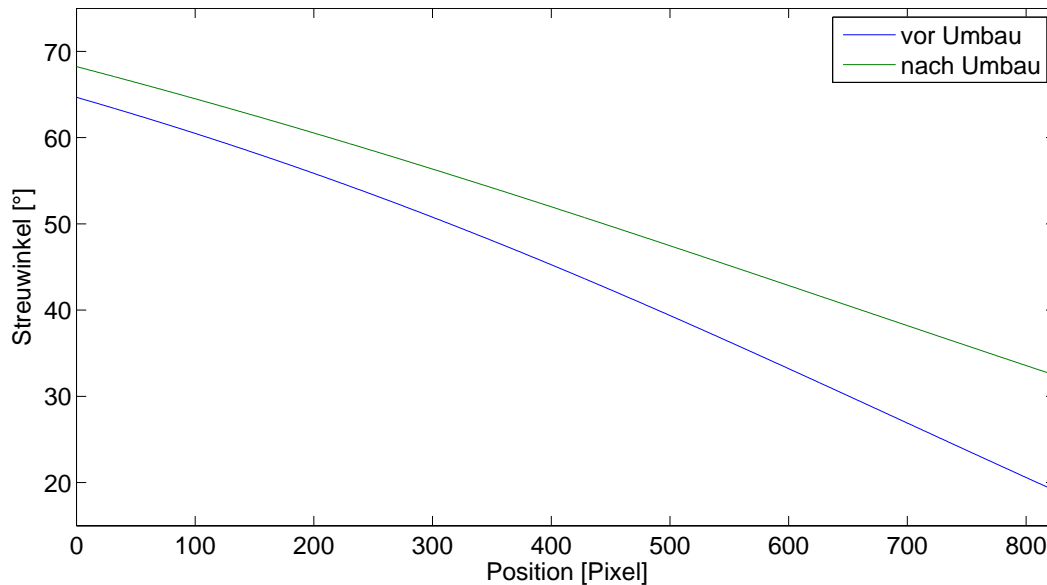


Abbildung 4.21.: Dargestellt ist die Winkelkalibrierung des CSPADs vor und nach dem Experimentumbau, für die Messungen mit 6 000 eV.

Im nächsten Schritt wurde das VISAR-System kalibriert. Das VISAR-System und das Lasersystem gehören zum Standardaufbau am MEC. Dadurch war die zeitliche Synchronisation schon vorher bekannt und es mussten nur geringe Korrekturen vorgenommen werden. Die exakte zeitliche Synchronisation der Systeme konnte über das VISAR-System durchgeführt und überprüft werden. Um den Beginn der Laserpulse für die Bestimmung der Schockgeschwindigkeit zu bestimmen, wurden die Laserpulse direkt mit dem VISAR-System an einem streuenden Objekt an TCC aufgenommen. Dieser Laserstartpunkt lag für die SBK-Aufnahmen des ersten Arms des VISAR-Systems bei Pixel 79,0 und bei Pixel 77,5 für die SBK-Aufnahmen des zweiten Arms¹². Dies entspricht 1,55 ns und 1,18 ns nach der Kalibrierung der SBKs. Für die Kalibrierung der Pixel-Position der SBK-Aufnahmen auf die Zeitachse für ein 20 ns Aufnahmezeitfenster gilt [Nagler 2014]:

$$\text{VISAR 1: Zeit [ns]} = \frac{1,97374 \cdot 10^{-2} \cdot \text{Pixel}}{1} - \frac{2,744 \cdot 10^{-6} \cdot \text{Pixel}^2}{2} + \frac{3,3223 \cdot 10^{-11} \cdot \text{Pixel}^3}{3} + \frac{4,79285 \cdot 10^{-12} \cdot \text{Pixel}^4}{4} \quad (4.9)$$

$$\text{VISAR 2: Zeit [ns]} = \frac{1,488 \cdot 10^{-2} \cdot \text{Pixel}}{1} + \frac{1,059 \cdot 10^{-5} \cdot \text{Pixel}^2}{2} - \frac{6,711 \cdot 10^{-9} \cdot \text{Pixel}^3}{3} \quad (4.10)$$

Die reale Aufnahmezeit der ersten SBK für ein 20 ns Aufnahmezeitfenster entspricht 20,08 ns und der zweiten SBK für 20 ns entspricht 18,37 ns. Im Experiment hat das VISAR-System den Schockausbruch durch Änderung der Reflektivität der Oberfläche gemessen, womit die Schockgeschwindigkeit mit dem Startzeitpunkt ermittelt werden konnte. Für die Messungen an WDM soll möglichst viel Material in diesem Zustand vorhanden sein. Dies ist zum Zeitpunkt des Schockausbruchs der Fall. Der zur Untersuchung genutzte FEL-Röntgenpuls und der Schockausbruch mussten also zeitlich möglichst exakt synchronisiert werden. Da sich die Reflektivität der Aluminiumschicht auf der Probenrückseite durch die Röntgenstrahlung änderte, konnte hierfür das VISAR-System genutzt werden, sofern der Schock noch nicht ausgebrochen war. Der exakte Ausbruch variierte aufgrund der Probendicke, des Probentyps und der Laserintensität (siehe Abbildung 4.33). Im fortschreitenden Experiment konnte die Vorausberechnung des Schockausbruchs und damit die Synchronisation Röntgenpuls zu Schockausbruch stetig verbessert werden. Weiter wurde, um festzustellen ob der Röntgenpuls die Probe heizen konnte, dieser maximal fokussiert (Strahldurchmesser 2 μm) und 600 Messungen in kürzester Zeit mit dem Rückwärtsspektrometer aufgenommen. Dabei konnte keine Veränderung der Pulsform gefunden werden, die auf ein Aufheizen der Probe durch Röntgenpulse hinweisen könnte.

Die Positionierung der Proben erfolgte durch einen 4-Achsen-Manipulator. Die Position wurde durch eine Kamera für jede Probe kontrolliert.

¹² Als Startzeitpunkt wurde die halbe Anstiegsflanke des Pulses gewählt.

2.4 Ergebnisse LCLS

Im Folgenden wird zuerst auf die Positionsbestimmung im Druck-Dichte-Diagramm durch VISAR-Messungen und Röntgenstreuung eingegangen. Im Anschluss erfolgt die Erläuterung der Bestimmung des Strukturfaktors durch XRTS.

2.4.1 Positionsbestimmung Druck-Dichte-Diagramm

Im Experiment wurden für jeden Dichtetyp VISAR-Messungen an Graphit mit aufgeklebtem LiF-Fenster vorgenommen, um mit den Gleichungen 2.38 und 2.39 die Dichte und den Druck im geschockten Graphit bestimmen zu können. Gemessen wurde dafür die Schockgeschwindigkeit $v_{s,C}$ im Graphit und die Teilchengeschwindigkeit $v_{p,LiF}$ im LiF mit dem VISAR-System. In Abbildung 4.22 sind Aufnahmen für beide Arme des VISAR-Systems dargestellt. Auf diesen ist zwischen 10 ns und 11 ns der Schockausbruch durch eine sprunghafte Verschiebung der horizontalen Interferenzstreifen an diesem Punkt zu erkennen. Diese Streifen schieben sich ab 15 ns wieder zurück. In diesem Zeitraum zwischen 10 ns und 15 ns wird die Bewegung der Grenzfläche zwischen Kohlenstoff und LiF beobachtet. Das Zurückschieben der Interferenzstreifen erfolgt, da nach 10 ns der schocktreibende Laserpuls endet und eine Verdünnungswelle entsteht, welche die Schockfront bei 15 ns einholt. Ein Beispiel für die Ergebnisse der VISAR-Daten mit LiF-Fenster ist in Abbildung 4.23 zu

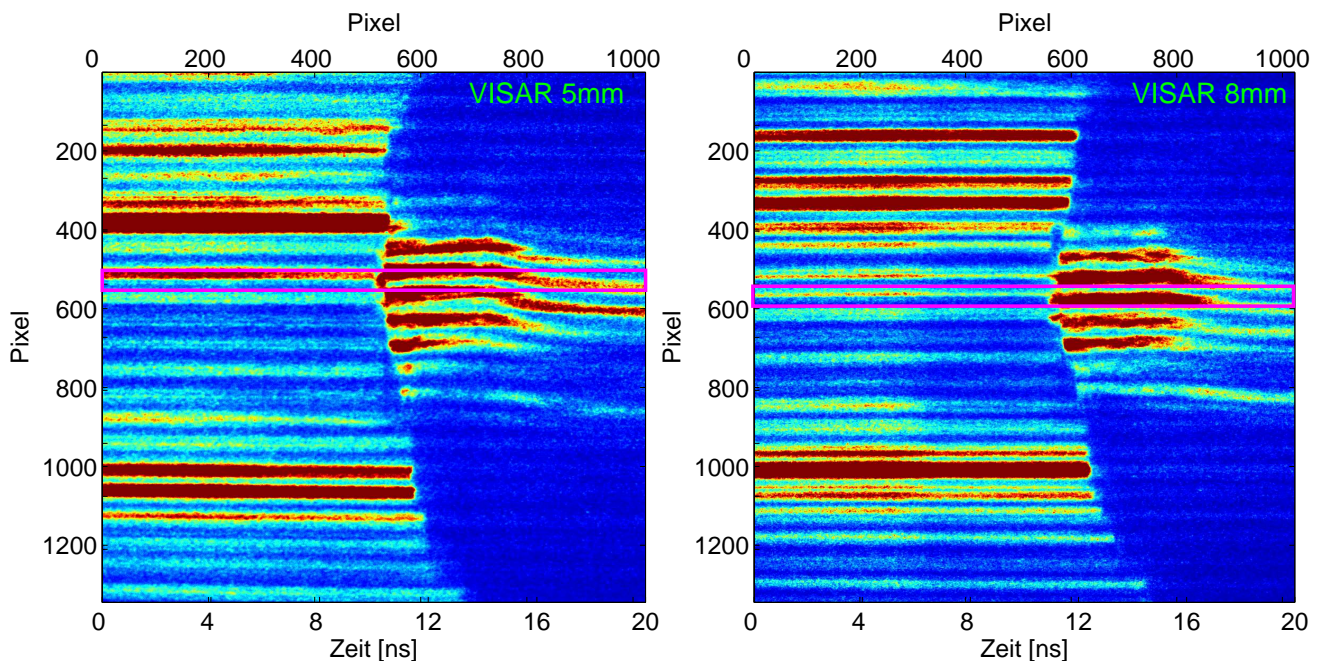


Abbildung 4.22.: Aufnahmen der beiden VISAR-Arme von Graphit mit einem LiF-Fenster, in das sich der Schock fortsetzt. Dabei ist deutlich der Schockausbruch bei etwa 10 ns zu erkennen und das Verschieben und Zurückgehen der vorher ungestörten horizontalen Interferenzstreifen. Die Kästen zeigen den Bereich an, in dem die Geschwindigkeit im zweiten Material bestimmt wurde (siehe Abbildung 4.23). Die x -Achse zeigt die Zeit der gewählten Aufnahmezeitfenster der SBKs an.

sehen. Dort ist deutlich der Schockausbruch bei etwa 10 ns und die darauffolgende Bewegung der Grenzfläche, die der Teilchengeschwindigkeit im LiF entspricht, zu erkennen. Für das Erstellen der Geschwindigkeitsprofile wurde ein horizontaler Bereich der SBK Aufnahmen (siehe Abbildung 4.22) ausgewertet und die Verschiebung eines Interferenzstreifens in diesem betrachtet. Dabei wurde der vertikale Verlauf der Interferenzstreifen als eine periodische Funktion betrachtet, deren Verschiebung eine Geschwindigkeitsänderung darstellt. Dabei gilt, dass der vertikale Abstand zweier Streifenmaxima der Geschwindigkeit v_{pf} (siehe Gleichung 4.3) entspricht. Dieser Wert wurde in Abschnitt 2.2 für die verwendeten Etalons im VISAR-System bestimmt und für die Auswertung verwendet. Aus der Intensitätsänderung einer horizontalen Linie kann dementsprechend die Geschwindigkeit bestimmt werden, in diesem Fall die der Teilchengeschwindigkeit im LiF. Für die Bestimmung der Teilchengeschwindigkeit wurde über mehrere horizontale Linien gemittelt. Anschließend wurde die durch die Druckänderung induzierte Brechungsindexänderung im LiF berücksichtigt und die wahre Teilchengeschwindigkeit bestimmt. Dies erfolgte durch die Anwendung der von D. Fratanduono bestimmten Relationen zwischen gemessener und wahrer Teilchengeschwindigkeit im LiF [Fratanduono 2010] (siehe Anhang Abbildung B.1). Die für die Auswertung benötigte Teilchengeschwindigkeit wurde durch Mitteln der wahren gemessenen Teilchengeschwindigkeit

über mehrere Nanosekunden nach dem Schockausbruch bestimmt und die Standardabweichung errechnet. Die Mittelung der Teilchengeschwindigkeit erfolgte so lange, bis die Teilchengeschwindigkeit begann abzunehmen. Im gezeigten Beispiel wurde die gemittelte Teilchengeschwindigkeit im Zeitraum von etwa 10 ns bis 15 ns bestimmt.

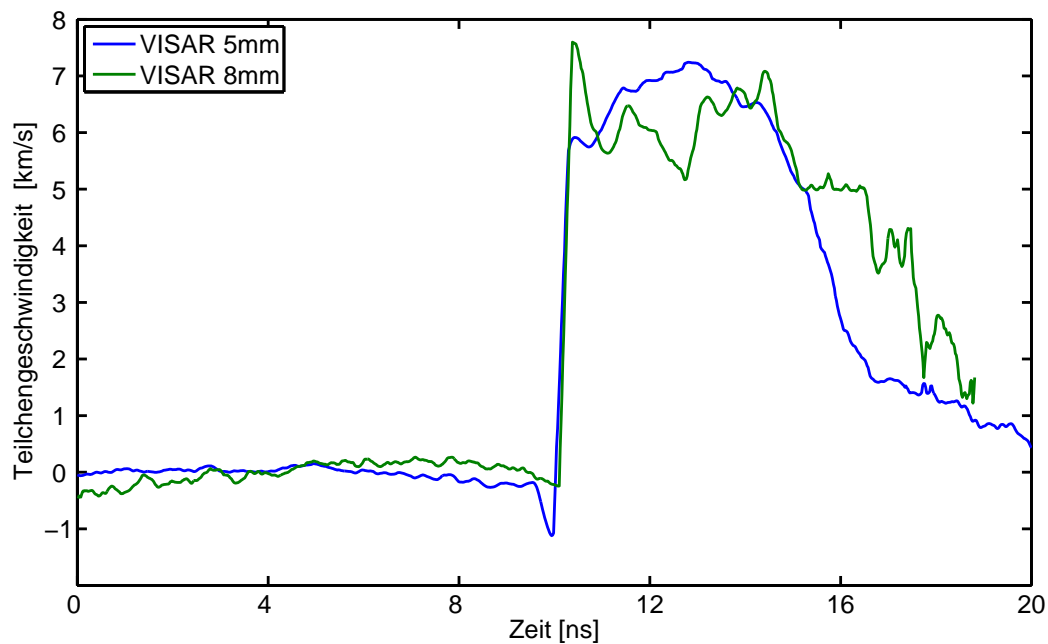


Abbildung 4.23.: Die Teilchengeschwindigkeit $v_{p,\text{LiF}}$ im LiF der in Abbildung 4.22 gezeigten VISAR Aufnahmen. Die dargestellte Teilchengeschwindigkeit ist um die Effekte der druckinduzierten Brechungsindexänderung im LiF korrigiert.

Weiter wurde aus den VISAR-Daten die Schockgeschwindigkeit im Graphit bestimmt, die in allen Messungen auch ohne zusätzliches LiF zugänglich war. Die Schockgeschwindigkeit konnte, wie in Abschnitt 2.3 geschildert, aus dem Startzeitpunkt des Laserpulses und dem Zeitpunkt des Schockausbruchs ermittelt werden. Der Schockausbruch ist in den SBK Aufnahmen klar definiert zu erkennen. Der Startzeitpunkt der Laser wurde in der Kalibrierung bestimmt und unterliegt einem Jitter von 20 ps. Der Fehler konnte für alle Messungen der Schockgeschwindigkeit auf $\Delta v_s < 150 \text{ m/s}$ bestimmt werden. Dieser ergab sich aus der Ungenauigkeit des Auswertens der SBK Aufnahmen, der Abweichung der Probendicke und dem Jitter des Lasersystems. Durch die Teilchengeschwindigkeit im LiF und der SESAME Tabelle 7270 [Lyon 1992] für LiF wurde die Schockgeschwindigkeit und der Druck im LiF bestimmt. Mit den Gleichungen in 2.38 und 2.39 konnte nun der Druck und die Dichte im Kohlenstoff bestimmt werden. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abbildung 4.24 für jeden Graphittypen und den Daten von W. H. Gust und M. van Thiel dargestellt [Gust 1980, Thiel 1977]. Die Ergebnisse der VISAR-Messungen weichen von diesen Messungen zum Teil sehr stark ab und können damit nur als ein grober Richtwert gesehen werden. Die Begründung liegt in der Verbindung zwischen den Graphitproben und dem LiF, welche aneinander geklebt worden sind. Durch diesen Prozess befand sich eine weitere Schicht zwischen diesen beiden Komponenten, dessen Einfluss auf die ursprüngliche Grenzfläche nicht bekannt ist und so nicht erwartet wurde. Dieser Effekt hat dazu geführt, dass viele Messungen gar nicht ausgewertet werden konnten. Es waren zum Teil zwei Interferenzstreifenverschiebungen sichtbar, eine durch das Laufen der Schockwelle in den Klebstoff und eine zweite beim Eintritt in das LiF. Weitere Aufnahmen wurden durch Hohlräume zwischen den Schichten unbrauchbar. Weiteren Einfluss hat die un stetige Geschwindigkeit der beschleunigten Grenzfläche, bei der die Betrachtung des Systems zu einem Zeitpunkt nach der eigentlichen Kompression der Kohlenstoffproben erfolgt.

Um die erreichten Bedingungen im geschockten Kohlenstoff zu bestimmen, bedarf es zwei gemessener Parameter. Im Experiment standen die benötigten LiF-Fenster nur in einer sehr begrenzten Anzahl zur Verfügung. Die Messungen mit den LiF-Fenstern konnten nicht während der Röntgenstreuungsmessungen durchgeführt werden, da diese das XRTS-Signal beeinflussen. Die Messungen mit LiF-Fenstern wurden daher vor den XRTS-Messungen durchgeführt. Um ohne VISAR-Messungen die Dichte und den Druck abschätzen zu können, müsste von der Schockgeschwindigkeit, auf einen zweiten Parameter geschlossen werden. Aufgrund der geringen Datenmenge aus den Messungen mit den LiF wäre die dafür nötige Approximationsfunktion sehr ungenau und damit die Abschätzung des erreichten Punkts im Phasendiagramm ebenfalls schwierig.

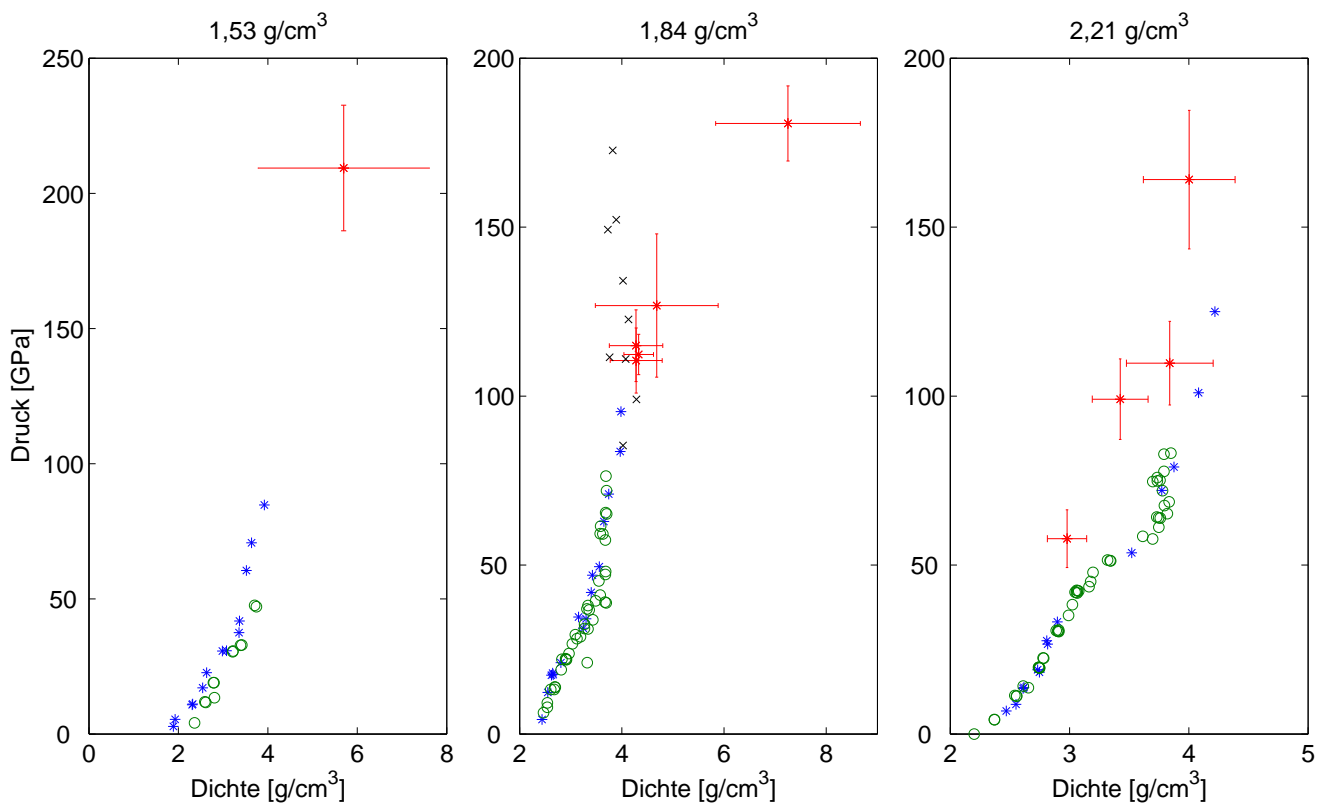


Abbildung 4.24.: Gezeigt werden die erreichten Dichten und Drücke für die VISAR-Messungen mit LiF, die durch die gemessenen Schock- und Teilchengeschwindigkeiten berechnet wurden. Die Ergebnisse sind getrennt nach den unterschiedlichen Ausgangsdichten in Rot dargestellt ($\rho_0 = 1,53 \text{ g/cm}^3$ (links), $\rho_0 = 1,84 \text{ g/cm}^3$ (mitte), $\rho_0 = 2,21 \text{ g/cm}^3$ (rechts)). Blaue Sterne [Gust 1980], Grüne Kreise [Thiel 1977], Schwarze Kreuze [Kraus 2013].

Statt des Messens der Teilchengeschwindigkeit in einem zweiten Material konnte auch die Dichte des geschockten Materials direkt gemessen werden, womit zwei freie Parameter zum Lösen der Rankine-Hugoniot-Gleichungen bekannt waren. Durch das Ausnutzen der Formation von Diamantstrukturen im geschockten Kohlenstoff und dem Verschieben der Debye-Scherrer-Ringe dieser Strukturen war es möglich, die Dichte im geschockten Material zu bestimmen. Die Aufnahme der Debye-Scherrer-Ringe erfolgte mit dem CSPAD. Beispielaufnahmen des CSPADs von ungeschocktem und geschocktem Kohlenstoff mit einer Ausgangsdichte von $1,84 \text{ g/cm}^3$ sind in Abbildung 4.25 dargestellt. Die Aufnahmen zeigen dabei deutlich einen Teil der Ringstruktur im ungeschockten und geschockten Kohlenstoff, dabei sind die Bragg-Peaks der Graphit 002-, 010- und 011-Ebenen im ungeschockten Material zu erkennen. Die Schockwelle hat in den dargestellten Messungen noch nicht die Probenrückseite erreicht, weshalb in der Probe noch ungeschocktes Material vorliegt und ein entsprechendes Streusignal erzeugt wird. Weiter wird im geschockten Material am rechten Rand ein Streusignal der Diamant 111-Ebenen sichtbar.

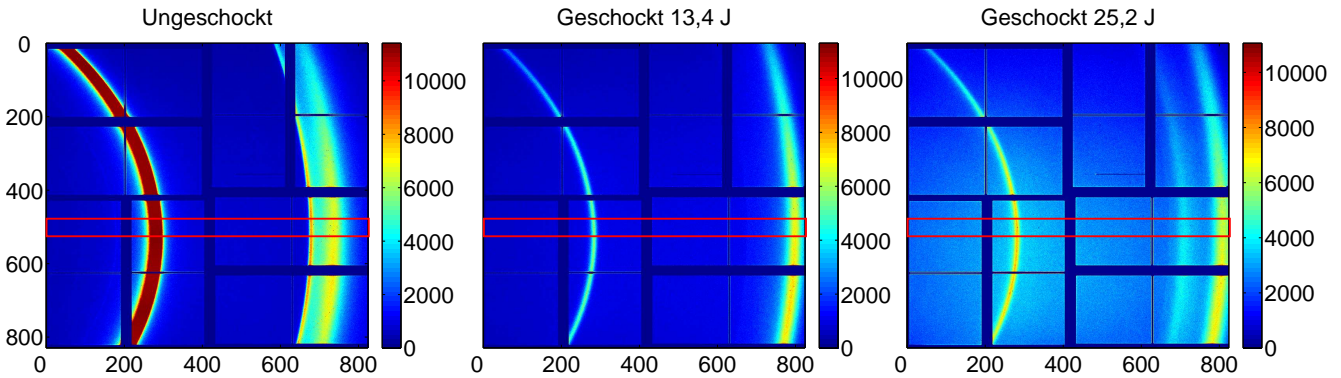


Abbildung 4.25.: Die Abbildungen zeigen Aufnahmen vom CSPAD (siehe Abschnitt 2.2) für eine Graphitprobe mit der Dichte $1,84 \text{ g/cm}^3$ vor dem Schock (links) und im geschockten Zustand mit $13,4 \text{ J}$ Laserenergie für die Kompression (mitte) und eine weitere komprimierte Probe durch eine Laserenergie von $25,2 \text{ J}$ (rechts). Die roten Kästen zeigen den Bereich der Profile, die in Abbildung 4.26 mitte dargestellt sind.

Die Debye-Scherrer-Ringe sind in diesem Fall keine scharfen Linien, da die Proben keine Einkristalle sind, sondern es sich um viele einzelne kleine Strukturen handelt, die das Streusignal erzeugten und im geschockten Zustand zusätzlich noch unterschiedliche Dichten aufweisen konnten. Für die Auswertung wurde der Bereich direkt über dem FEL betrachtet, der durch rote Kästen gekennzeichnet ist. Diese Profile sind in Abbildung 4.26 für jeden eingesetzten Graphittypen dargestellt. Durch den Bragg-Peak der Diamant 111-Ebenen bei 60° bis 65° ist dabei die Formierung der Diamantstruktur ersichtlich. Dieses Signal ist abhängig von der Ausgangsdichte und der eingesetzten Kompressionsenergie unterschiedlich stark ausgeprägt. Dies ist auf die höheren Temperaturen für die Proben mit reduzierter Dichte im komprimierten Zustand zurückzuführen. Für die ungeschockten Graphitproben sind die Streusignale in Abhängigkeit vom Herstellungsprozess der verschiedenen Typen unterschiedlich ausgeprägt. Diese Graphitstreusignale verschwinden im geschockten Zustand. Erfolgt die Untersuchung zu einem Zeitpunkt, an dem noch nicht alles Material der Proben geschockt ist, wird auch ein Streusignal vom ungeschockten Material gemessen und ein schwaches Signal vom Aluminium, das sich auf der Rückseite der Proben befindet.

Die Bestimmung der Dichte erfolgte dabei über die Position des Bragg-Peaks der Diamant-111-Ebenen. Der Abstand dieser Ebenen $d_{\text{Dia},111,\text{mess}}$ konnte direkt über die Bragg-Gleichung mit dem Streuwinkel bestimmt werden. Für den Abstand dieser Ebenen gilt $d_{\text{Dia},111} \propto V^3$, er skaliert damit direkt mit der Dichte. Die erreichte Dichte ρ_C kann über

$$\rho_C = \rho_{\text{Dia}} \cdot \left(\frac{d_{\text{Dia},111}}{d_{\text{Dia},111,\text{mess}}} \right)^3 \quad (4.11)$$

mit der Diamantdichte $\rho_{\text{Dia}} = 3,52 \text{ g/cm}^3$ [Strunz 2001], dem Diamant 111-Ebenenabstand $d_{\text{Dia},111} = 205,9 \text{ pm}$ im natürlichen Zustand¹³ und dem Abstand $d_{\text{Dia},111,\text{mess}}$ der Ebenen im geschockten Material berechnet werden. Der Fehler der bestimmten Dichte ergibt sich aus der Ungenauigkeit des Auslesens des Diamant 111-Bragg-Peaks. Dieser Fehler wurde zu maximal $\Delta\theta = \pm 0,35^\circ$ bestimmt und resultiert aus der Positionierung des Detektors und der damit einhergehenden unterschiedlichen Winkelauflösung. Der durchschnittliche Fehler der Dichtemessungen ist $\pm 0,13 \text{ g/cm}^3$. Die Ergebnisse aller Messungen sind tabellarisch im Anhang Abschnitt 4 angegeben, mit den jeweiligen Einzelfehlern der Dichte und des

¹³ Der Ebenenabstand $d_{\text{Dia},111}$ wurde mit der Software Crystal Diffract Version 6.0.2 bestimmt, unter der Verwendung der in Tabelle 2.1 angegebenen Parameter für kubischen Diamant.

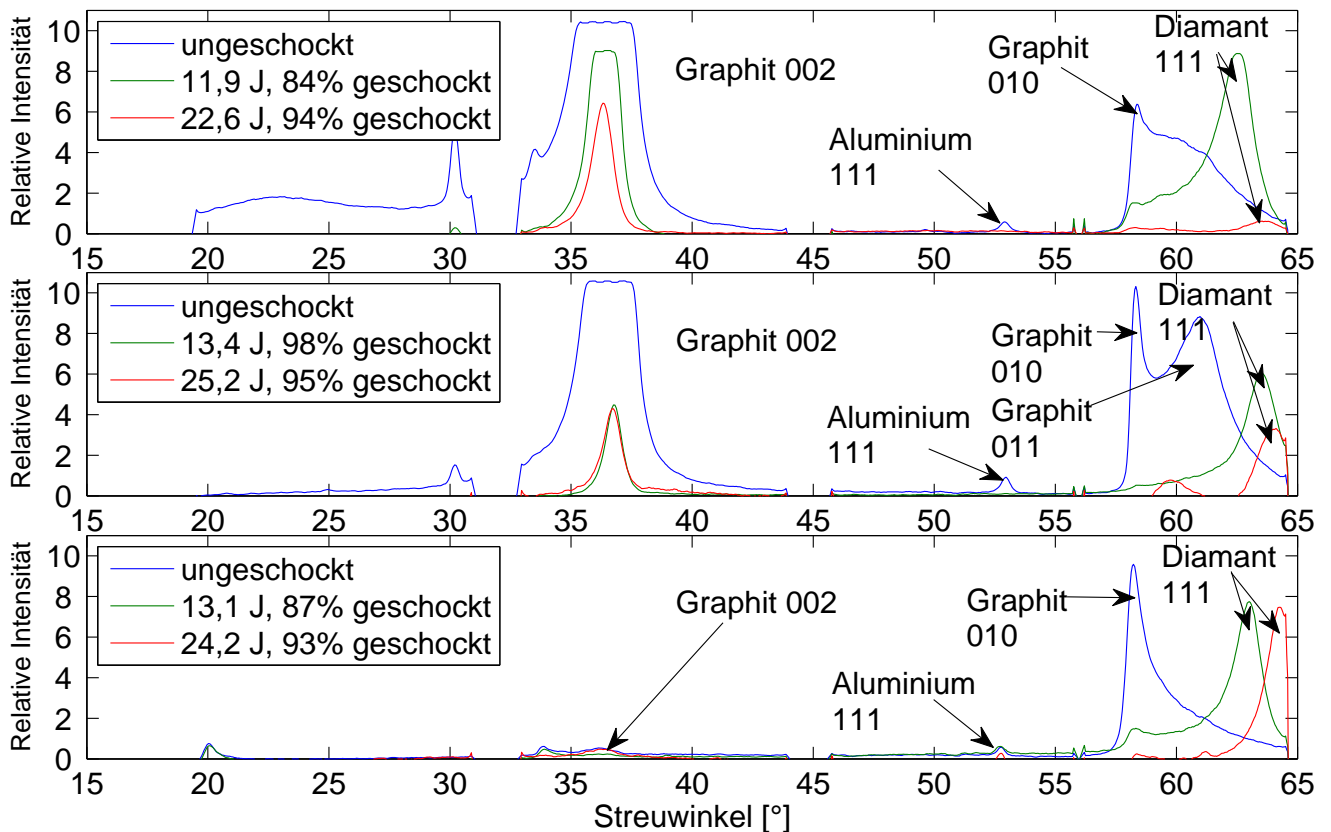


Abbildung 4.26.: Die Grafiken zeigen Profile vom CSPAD für die Graphitdichten von $1,53 \text{ g/cm}^3$ (oben), $1,84 \text{ g/cm}^3$ (mitte) und $2,21 \text{ g/cm}^3$ (unten), von vor und nach der Kompression. Die Aufnahmen zeigen im komprimierten Zustand die Formierung der Diamantstruktur durch den Bragg-Peak der Diamant-111-Ebenen zwischen 60° und 65° und Reststreuensignale von ungeschocktem Graphit. Die Achsenkalibrierung wurde entsprechend der in Abbildung 4.21 gezeigten Kalibrierung durchgeführt. Die Prozentangabe gibt an, wie viel Probenmaterial zum Untersuchungszeitpunkt geschockt waren.

Drucks. Der Druck wurde mit der Dichte und der gemessenen Schockgeschwindigkeit v_s aus Gleichung 2.26 mit einem durchschnittlichen Fehler von ± 7 GPa ermittelt¹⁴. Für die Messungen mit 4 500 eV stand das CSPAD nicht zur Verfügung. Um auch für diese Messungen eine Dichte angeben zu können, wurden aus den Messungen mit CSPAD und der gleichzeitig gemessenen Schockgeschwindigkeit Funktionen bestimmt, mit denen in Abhängigkeit der Ausgangsdichte und der Schockgeschwindigkeit auf die erreichte Dichte geschlossen werden konnte. Der Druck konnte nun wie zuvor unter Beachtung des größeren Fehlers der Dichte bestimmt werden. Unter Berücksichtigung des Fehlers der Schockgeschwindigkeit und der Funktionen ergibt sich der durchschnittliche Fehler zu $\pm 0,15$ g/cm³. Die Ergebnisse der Bestimmung von

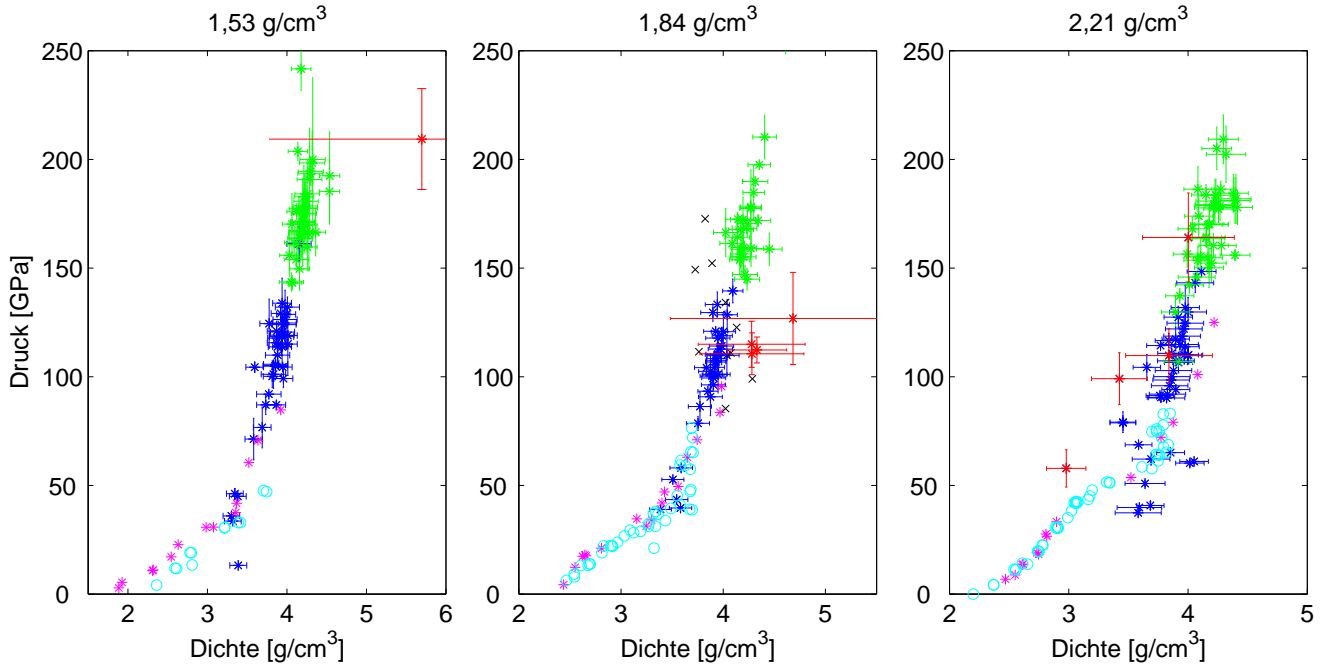


Abbildung 4.27.: Die Grafiken zeigen die erreichte Dichte und den Druck für die Messungen der Dichte durch Debye-Scherrer-Ringe mit dem CSPAD (separiert nach der Ausgangsdichte und der eingesetzten Laserenergie für die Kompression in blau $\approx 12,5$ J und grün $\approx 25,0$ J) und den VISAR-Messungen (rot). Der Druck wurde mit den Rankine-Hugoniot-Gleichungen aus der Schockgeschwindigkeit und der gemessenen Dichte oder Teilchengeschwindigkeit berechnet ($\rho_0 = 1,53$ g/cm³ (links), $\rho_0 = 1,84$ g/cm³ (mitte), $\rho_0 = 2,21$ g/cm³ (rechts)). Sterne magenta [Gust 1980], Kreise cyan [Thiel 1977], Kreuze schwarz nur für $1,84$ g/cm³ [Kraus 2012]).

Druck und Dichte durch VISAR-Messungen und CSPAD-Dichtemessungen sind in Abbildung 4.27 dargestellt. Die Ergebnisse der CSPAD-Dichtemessungen (blau, grün) weisen einen sehr viel geringeren Fehler als die der VISAR-Messungen auf und sind in sich konsistenter, da hier direkt zwei Größen für das Lösen der Rankine-Hugoniot-Gleichungen zur Verfügung stehen und nicht erst über eine indirekte Messung auf die Parameter geschlossen wird. Die VISAR-Messungen und CSPAD-Messungen stimmen im Rahmen der Fehler teilweise überein, sofern Drücke größer 80 GPa betrachtet werden.

Die Abweichungen sind auf die oben genannten Fehler der Verbindung des Graphits mit dem LiF zurückzuführen, welche eine Interpretation der VISAR-Messung erschweren. Da die CSPAD-Messungen bei jeder Messung durchgeführt werden konnten und die VISAR-Messungen nur vorab für eine sehr begrenzte Anzahl an Proben durchgeführt wurden, ist die Methode über die Messung der Debye-Scherrer-Ringe zur Bestimmung des Endzustands im Druck-Dichte-Phasendiagramm besser geeignet und wird für die folgende Auswertung verwendet.

2.4.2 Bestimmung des Strukturfaktors

Nach der Bestimmung der Position im Phasendiagramm werden nun die Daten des Rückwärtsspektrometers für die Phasen- und Temperaturbestimmung analysiert. Die Rohdaten dieses Spektrometers wurden in Abbildung 4.19 links gezeigt. Im Folgenden bezieht sich der Begriff Spektrometer immer auf das Rückwärtsspektrometer, sofern nicht anders angegeben. Für die Untersuchung des Kurvenverlaufs des Strukturfaktors mit dem Spektrometer sind Messungen bei den Energien und Streuwinkeln der in Tabelle 4.4 angegebenen Kombinationen vorgenommen worden. Der Streuwinkel setzt

¹⁴ Der Einzelfehler wurde durch Gaußsche Fehlerfortpflanzung bestimmt.

Energie [eV]	Spektrometerwinkel [°]	Streuwinkel θ [°]	k [10^{10} m^{-1}]
6 000	15	160,57	5,99
6 000	35	143,11	5,76
6 000	45	133,66	5,58
6 000	55	124,05	5,36
4 500	25	152,23	4,43
4 500	30	143,11	4,39
4 500	50	128,87	4,12

Tabelle 4.4.: Die Tabelle enthält die am LCLS verwendete Energie, den eingestellten Spektrometerwinkel, den resultierenden Streuwinkel und den daraus resultierenden Streuvektor k (siehe Gleichung 2.47).

sich zusammen aus dem eingestellten Winkel des Spektrometers und dem 15° Winkel durch die Position des Spektrometers im Aufbau (siehe Abbildung 4.15). Für die Datenauswertung musste zuerst die Spektrometereffizienz des Aufbaus bestehend aus dem HAPG-Kristall, dem Detektor und der Geometrie zwischen Strahlungsquelle, Kristall und Detektor berücksichtigt werden. Alle Messungen müssen um diese Spektrometereffizienz korrigiert werden. Im Folgenden wird auf die Effekte eingegangen, welche die Spektrometereffizienz bestimmen.

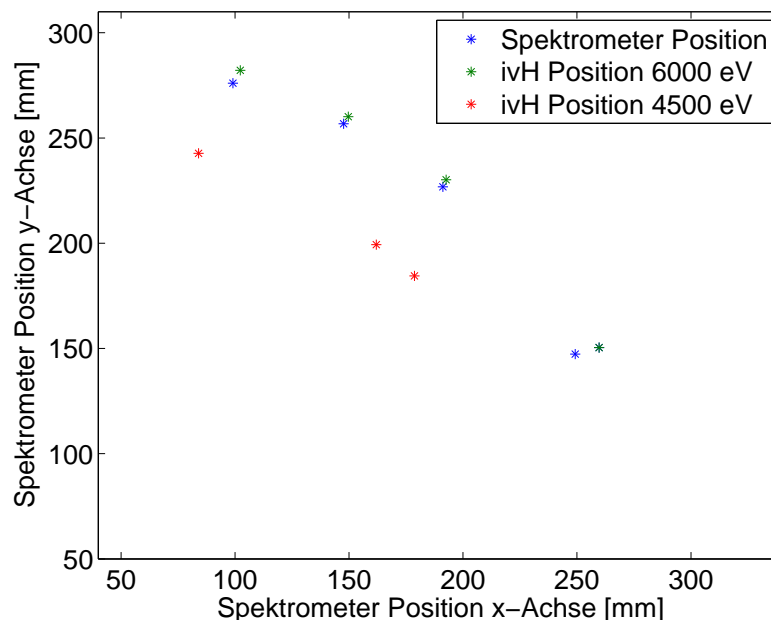


Abbildung 4.28.: Die Abbildung zeigt die angefahrenen Positionen des Spektrometers für 6 000 eV im Experiment (blau) und die Spektrometerpositionen für die ideale von-Hámos-Geometrie (ivH) für 6 000 eV (grün) und 4 500 eV (rot). Die Messungen für 4 500 eV wurden in der idealen von-Hámos-Geometrie durchgeführt. Die x -Achse ist der Abstand des Spektrometers in der Horizontalen und die y -Achse der Abstand in der Vertikalen von der Probe (siehe Abbildung 4.16). Die Werte der Verschiebung zwischen der Spektrometerposition und der idealen von-Hámos-Geometrie sind in Tabelle 4.5 angegeben.

Im Experiment wurde das Spektrometer aus der idealen von-Hámos-Geometrie gefahren, um das Streusignal auf dem Detektor des Spektrometers zu verschieben. Damit ist eine bessere Ausnutzung der Detektorfläche möglich, da diese sich aus zwei Arrays zusammensetzt und sich zwischen diesen eine Lücke befindet. Die Umpositionierung wurde vorgenommen, da das Spektrometer für die Zentralenergie von 6 000 eV aufgebaut war und dieser Wert in der Mitte der Detektionsfläche lag, während im Experiment nur Streusignale aufgenommen wurden, deren Energien auf der niederenergetischen Seite der FEL-Photonenenergie lagen. In Abbildung 4.28 sind die ideale Position des Spektrometers zum Erfüllen der von-Hámos-Geometrie und die angefahrenen Positionen für die Messungen für jeden im Experiment genutzten Streuwinkel angegeben. Die von-Hámos-Geometrie wurde dadurch insofern aufgehoben, dass der Mittelpunkt des Kreises mit dem des Krümmungsradius R des Kristalls nicht mehr auf der Achse zwischen Quelle und Detektor lag. Dies führte zu einer Verschiebung des Signals um weniger als 1 Pixel auf dem Detektor. Dieser Fehler ist damit sehr gering und wird im Weiteren vernachlässigt. Einen weiteren Effekt hat das Verändern der Distanz zwischen der Signalquelle (TCC) und dem

Spektrometer, welches dazu führte, dass der Streupunkt einer bestimmten Energie auf dem HAPG-Kristall verschoben wurde. Dies folgt aus der Bragg-Bedingung, die für eine Energie nur einen bestimmten Winkel akzeptiert und reflektiert. Im Experiment wurde der Peak der elastischen Streuung weiter an den energetisch höheren Rand des Detektors geschoben, indem das Spektrometer an die Probe herangefahren wurde.

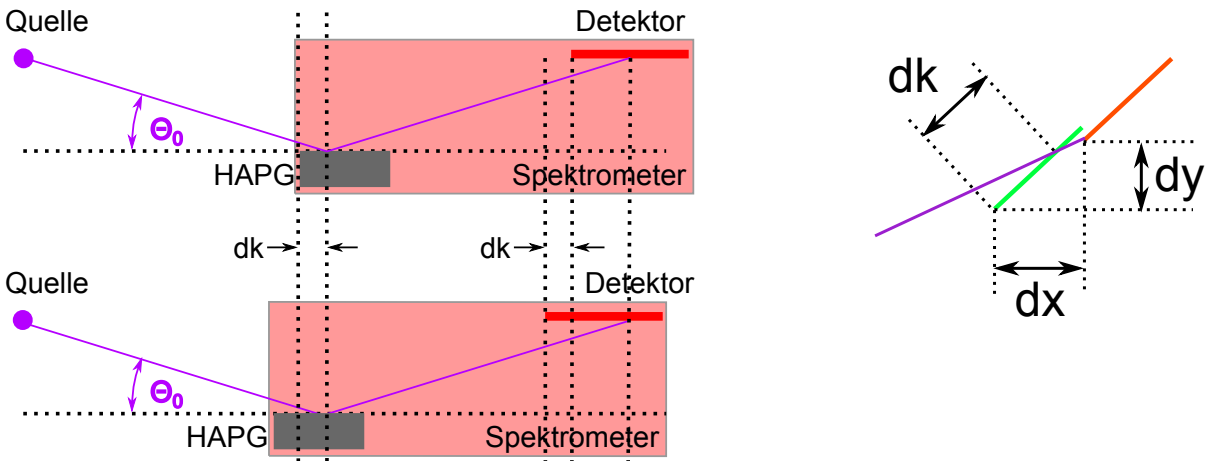


Abbildung 4.29.: Links: Darstellung des Effektes, der eintritt, wenn das Spektrometer bestehend aus Detektor und HAPG-Kristall verschoben wird. Das Signal gelangt nach der Positionsänderung noch zum Detektor und wird dort auf einer anderen Position gemessen als zuvor. Θ_0 ist der Bragg-Winkel. Rechts: Veränderung der Position dk des Signals auf dem Kristall beim Verändern der Spektrometerposition in der x - und y -Achse unter Beibehaltung des Streuwinkels.

Der Effekt auf die Streugeometrie, der durch das Verringern der Distanz zwischen Quelle und Kristall hervorgerufen wird, ist in Abbildung 4.29 links dargestellt. Die Verschiebung des Signals auf dem Detektor in Pixeln entspricht dabei auch der Verschiebung des Signals auf dem Kristall, da nicht die Geometrie zwischen Kristall und Detektor, sondern nur die Position zwischen Spektrometer und der Probe verändert wird. Die Verschiebung des Signals auf dem Kristall ist in Abbildung 4.29 rechts dargestellt und dort mit dk angegeben. Dabei ist zu beachten, dass die Hypotenuse des Dreiecks, welches durch die Veränderung der Spektrometerposition in der x - und y -Achse entsteht, nicht der Veränderung des Streupunkts auf dem Kristall entspricht. Die Signalverschiebung dk auf dem Kristall kann durch die Verschiebung der Position zur idealen von-Hámos-Geometrie und unter der Bedingung, dass der Einfallswinkel auf dem Kristall nicht verändert wird, bestimmt werden. Dies ist möglich, da im Experiment nur die Position verändert, nicht aber der Winkel des Spektrometers angepasst wurde. Mit der Distanz dk in Millimetern und mit der Pixelgröße von $110 \mu\text{m}$ kann die messbare Verschiebung auf dem Detektor bestimmt werden. In der idealen von-Hámos-Geometrie liegt die gleiche Energie immer auf demselben Punkt auf dem Detektor. Durch die Geometrieänderung wird dieser um die Distanz dk verschoben. Die Verschiebungen von dk sind in Tabelle 4.5 angegeben.

Einen weiteren großen Einfluss auf das Verhalten des Spektrometers hat die Mosaizität des verwendeten HAPG-Kristalls. Aus der Mosaizität α des HAPG-Kristalls kann die Standardabweichung σ eines Gauß-Strahls berechnet werden. Die Mosaizität wird in Grad angegeben. Es gilt der Zusammenhang

$$\sigma = \frac{\alpha}{2,3548}. \quad (4.12)$$

Die Mosaizität gibt einen Bereich um einen Bragg-Winkel an, in dem ein Großteil der Intensität einer Energie gestreut wird und ist keine absolute Grenze. Dementsprechend fällt die gemessene Intensität einer Energie nicht abrupt ab, wenn das Messsignal an den Rand des Kristalls gelangt. Dies ist in Abbildung 4.30 dargestellt. Aufgrund der Mosaizität des HAPG-Kristalls von $0,14^\circ$ [Zastrau 2013], der Photonenenergie von 6000 eV , dem Abstand AK (siehe Abbildung 4.4) und dem Krümmungsradius R des Kristalls (siehe Tabelle 4.1), ergibt sich eine Kreisfläche mit dem Durchmesser von $1,33 \text{ mm}$ auf dem Kristall, auf dem die Energie gestreut wird (bei 4500 eV ist der Durchmesser $0,75 \text{ mm}$)¹⁵. Wird die Energie betrachtet, die genau auf der Kante des Kristalls liegt, dann gelangt nur noch die Hälfte der Intensität auf den Detektor,

¹⁵ Die Durchmesser beziehen sich hierbei auf die Projektion des Gauß-Profiles auf den ebenen Kristall.

Spektrometerwinkel [°]	Photonenergie [eV]	dx [mm]	dy [mm]	dk [mm]	dk [Pixel]
15	6 000	-10,5	-3,1	5,90	8
35	6 000	-1,4	-3,4	1,98	18
45	6 000	-2,1	-3,3	2,75	25
55	6 000	-3,2	-6,2	3,03	28
25	4 500	0	0	0	0
30	4 500	0	0	0	0
50	4 500	0	0	0	0

Tabelle 4.5.: Die Tabelle enthält die Verschiebung des Spektrometers aus der idealen von-Hámos-Geometrie und die Pixelpositionskorrekturwerte dk für die Verschiebung der Intensitätsabbruchkante auf dem Detektor des Rückwärtsspektrometers. Im Experiment wurden zweimal Messungen unter einem Winkel von 15° mit unterschiedlichen Positionen durchgeführt. Die Messungen bei 4 500 eV sind in der idealen von-Hámos-Geometrie durchgeführt worden.

da nur noch die eine Hälfte des Signals vom Kristall gestreut werden kann. Im Resultat verringert sich die Intensität des Signals und die Form bleibt erhalten. Aufgrund der Krümmung des Kristalls entspricht dieser Vorgang einem Gauß-Profil, das im Zweidimensionalen über eine Kante geschoben wird und die Gesamtintensität sich aus dem Integral des Signals vor der Kante zusammensetzt (siehe Abbildung 4.30).

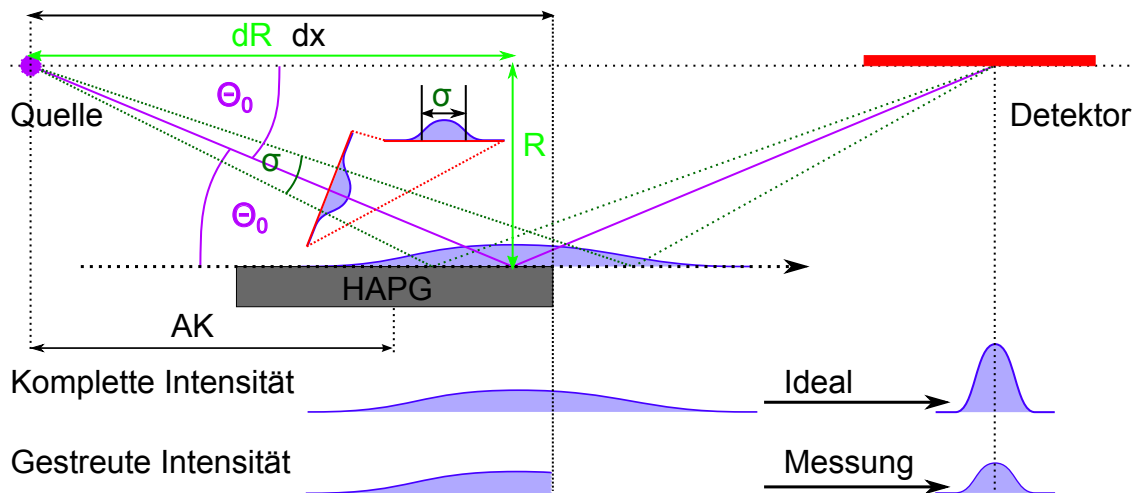


Abbildung 4.30.: Die Abbildung zeigt das Vorgehen für das Bestimmen der Intensitätskorrekturfunktion für das Rückwärtsspektrometer. dx ist der Abstand zwischen der Quelle der gestreuten Strahlung und dem Ende des HAPG-Kristalls, R ist der Radius des Kristalls, dR ist der Abstand des Mittelpunktes des projizierten und gestreuten Gauß-Profiles auf dem Kristall zur Quelle, σ die Standardabweichung des Gauß-Profiles und Θ_0 ist der Bragg-Winkel. Die komplette Intensität ist die Intensität einer bestimmten Energie, wenn das Signal komplett gestreut wird und den Detektor erreicht. Die gestrene Intensität ist die Intensität, die den Kristall trifft und vom Detektor gemessen wird.

Um die Messungen zu korrigieren, muss die Energie gefunden werden, ab der das Signal anfängt vom Kristall zu laufen und damit das Pixel auf dem Detektor, ab dem die Intensität korrigiert werden muss. Die Form dieser Funktion wird durch die Integrale eines projizierten Gauß-Profiles auf einer Ebene bestimmt, wobei sich der Ort des Profils auf der Ebene ändert und die Integration nur bis zu einem bestimmten Punkt durchgeführt wird. Die Bestimmung dieser Funktion erfolgt schrittweise durch den sich verändernden photonenergieabhängigen Bragg-Winkel θ_0 , wodurch der Ort der Streuung auf dem Kristall verschoben wird. Im ersten Schritt wird über das komplette Profil integriert. Dieses Integral bildet den ersten Wert und wird zum Normieren der Funktion verwendet. Für jeden folgenden Schritt wird über einen geringeren Teil des projizierten Gauß-Profiles integriert, bis das Integral null ergibt¹⁶. Dies entspricht dem Verhalten, dass immer weniger Anteile des Signals vom Kristall gestreut werden.

¹⁶ Als Nullgrenze wurde eine 3σ Umgebung gesetzt.

Für die Korrektur der Spektrometereffizienz ist das Ende des Integrationsbereichs die Kante des Kristalls im Abstand dx von der Strahlungsquelle (siehe Abbildung 4.30), welche sich aus dem Abstand AK der entsprechenden Photonenenergie und der halben Länge des HAPG-Kristalls von 16 mm ergibt. Für das Erstellen der Funktion wird die Energie mit der Energieauflösung des Spektrometers von 1,809 eV schrittweise erhöht.

Mit Gleichung 4.12 kann aus der Mosaizität α die Standardabweichung des Gauß-Profiles berechnet, unter Berücksichtigung des Bragg-Winkels auf den Kristall projiziert und eine Detektoreffizienzkurve berechnet werden. Die Detektoreffizienzkurve ist stark von der Mosaizität abhängig, die auch den Punkt auf dem Detektor beeinflusst, ab dem die Intensität korrigiert werden muss. Für die Bestimmung der richtigen Detektoreffizienzkurve wurde eine Näherung nach der Methode der kleinsten quadratischen Abweichung durchgeführt. Dafür wurden Messungen bei gleicher FEL-Strahlintensität an unterschiedlichen Orten auf dem Kristall aufgenommen und mit verschiedenen berechneten Detektoreffizienzkurven verglichen. Als Messungen dafür wurden die Energiekalibrierungsmessungen verwendet (siehe Abbildung 4.19 rechts). Diese Messungen wurden schnell hintereinander durchgeführt, sodass die Intensität des FELs nur einer sehr kleinen Schwankung unterlag und die gestreute Intensität gleich blieb. Um Einflüsse des Streumaterials zu minimieren, wurde dabei die gleiche Probe verwendet. Für die Vergleichbarkeit der Messungen wurden diese auf das Maximum der inelastischen Streuung normiert, da bei dieser davon ausgegangen werden kann, dass die Gesamtintensität dieses Signals auf dem Kristall lag und zum Detektor gelangt ist (siehe Abbildung 4.31 links).

Die für die Näherung variierten Parameter sind das Pixel auf dem Detektor, ab dem die gemessene Intensität korrigiert werden muss, die Mosaizität und die Intensität der gemessenen Maxima. Die Variation der Maxima musste durchgeführt werden, da nicht garantiert ist, dass das inelastische Streusignal der höchsten Energiekalibrierungsmessung komplett auf dem Kristall lag. Zusätzlich ist für die Näherung ein Punkt eingefügt, ab dem sicher das Gesamtsignal auf dem Kristall liegt und einer, ab dem sicher kein Signal mehr auf dem Kristall ist (siehe Abbildung 4.31 rechts). Das Ergebnis dieser Näherung ist, dass eine Mosaizität von $0,408^\circ$ vorliegt und dass das erste Pixel für die ideale von-Hámos-Geometrie, der intensitätskorrigiert werden muss, das Pixel 232 des Detektors ist. Die Näherung ergibt weiter, dass die Intensität der Messungen der Energiekalibrierung mit der höchsten Energie nur 98 % der theoretischen Intensität beträgt. Eine Mosaizität von $0,408^\circ$ bei einer Energie von 6 000 eV entspricht einem Signaldurchmesser von 3,88 mm auf dem Kristall, auf dem diese Energie gestreut wird. Für 4 500 eV und diese Mosaizität ergibt sich ein Signaldurchmesser von 2,18 mm. Die Betrachtung einer größeren Fläche auf dem Kristall führt direkt zu einer Erhöhung der Mosaizität. Zusätzlich muss aufgrund der Kristallkrümmung ein Streifen betrachtet werden, der die gesamte Kristallbreite (30 mm) abdeckt und 3,88 mm breit ist (siehe Abbildung 4.5). Diese Fläche ergibt eine deutlich größere Fläche als $1 \times 2 \text{ mm}^2$, auf der die Mosaizität von $0,14^\circ$ des HAPG-Kristalls bestimmt worden ist [Zastrau 2013]. Dies führt zu einer höheren Mosaizität für die Gesamtfläche. Weitere Abweichungen kommen zustande, da hier nicht die Mitte des Kristalls betrachtet wird, an der die Mosaizität von $0,14^\circ$ bestimmt worden ist, sondern der Rand des Kristalls. Am Rand des Kristalls kommen zusätzlich Effekte wie das Abheben der etwa 100 μm dicken HAPG-Folie vom Glassubstrat hinzu oder Gebrauchsspuren, die durch jahrelanges Ein- und Ausbauen entstehen, da der Kristall im Jahr 2009 vermessen und das Experiment 2014 durchgeführt wurde. Unter Berücksichtigung dieser Effekte ist diese deutlich höhere Mosaizität plausibel [Zastrau 2016].

Der Begriff Mosaizität ist in diesem Fall nicht mehr angebracht, da mit ihm eine Eigenschaft des Kristalls beschrieben wird, während hier auch weitere Effekte mit berücksichtigt werden. Es handelt sich um die Breite des Intensitätsverlusts, die für eine perfekte Kante der Mosaizität gleichgesetzt ist und entsprechend auch mit einem Winkel angegeben werden kann.

Die Intensitätskorrekturkurve für die Pixel des Detektors ergibt sich aus der mit der Breite des Intensitätsverlusts von $0,4080^\circ$ und der Anfangsposition bei Pixel 232 berechneten Detektoreffizienzkurve zu:

$$\text{Intensitätskorrekturkurve} = \frac{1}{\text{Detektoreffizienzkurve}}. \quad (4.13)$$

Diese ist für die ideale von-Hámos-Geometrie in Abbildung 4.31 rechts dargestellt. Da diese im Experiment nicht exakt eingehalten und das Spektrometer verschoben wurde (siehe Abbildung 4.29 rechts), muss die Anfangsposition angepasst werden, ab der das Herunterlaufen vom Kristall beginnt. Dafür muss der in Tabelle 4.5 angegebene Wert dk in Pixeln für den entsprechenden Winkel von der Anfangsposition der idealen von-Hámos-Geometrie bei Pixel 232 abgezogen und die Kurve entsprechend verschoben werden.

Für die Auswertung wurden nur Messungen korrigiert und verwendet, in denen keine Anteile des elastischen Streusignals von der Korrekturkurve um mehr als den Faktor 2 korrigiert werden mussten. Der Faktor 2 wurde gewählt, da ab diesem Punkt weniger als 50% des Signals auf dem Kristall liegen und damit die Fehler sehr groß werden. Dafür wurde für jede Messung die Position des elastischen Streusignals mit einem Gauß-Profil angenähert und dessen Schwerpunkt bestimmt. Zu diesem Punkt wurde die Halbwertsbreite des Gauß-Profiles addiert und dieser Wert als Signalgrenze der Messung festgelegt. In der idealen von-Hámos-Geometrie wird ab dem Pixel 349 um einen Faktor größer 2 korrigiert. Alle Messungen

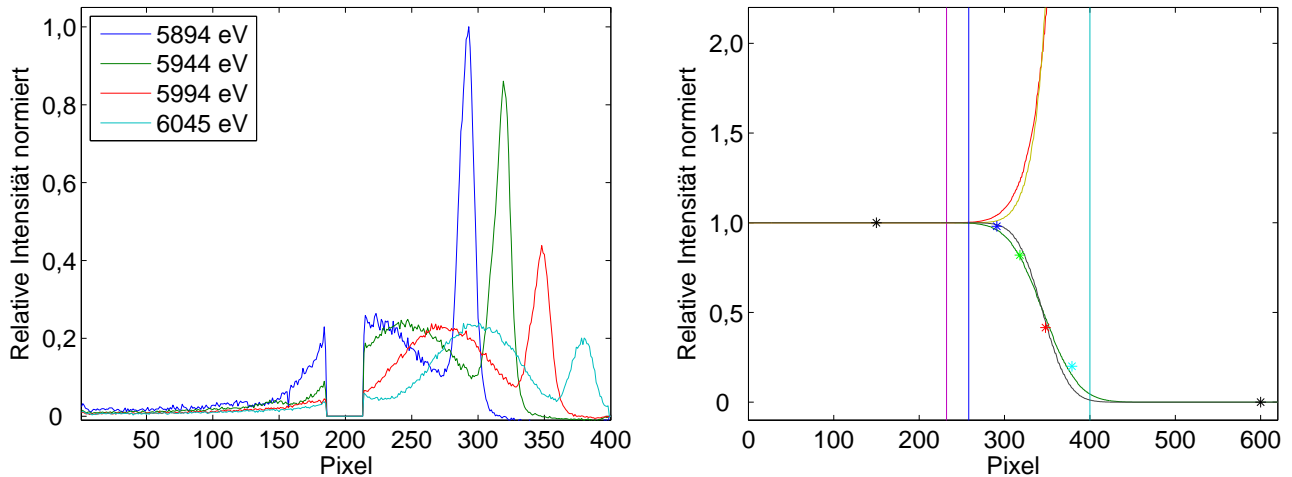


Abbildung 4.31.: Links: Messungen der Energiekalibrierung des Rückwärtsspektrometers (siehe Abbildung 4.19) normiert auf die Intensität der inelastischen Streuung. Rechts: Optimierung der Mosaizität und Herunterlaufen vom Kristall. Die Sterne sind die Maxima der elastischen Streuung aus den links dargestellten Messungen, ergänzt um einen Punkt für ein komplettes Streusignal (Stern bei Pixel 150, schwarz) und einen Nullpunkt (Stern bei Pixel 600, schwarz). Die Effizienz des Spektrometers für 6000 eV ist in Grün und für 4500 eV in Schwarz dargestellt. Die Korrekturfunktion für die Effizienz jedes Pixels für 6000 eV ist in Rot und für 4500 eV in Gelb dargestellt. Das erste Pixel das korrigiert wird ist Pixel 232 für 6000 eV (linie, magenta) und Pixel 258 für 4500 eV (linie, blau). Das Ende des Detektionsbereichs des Detektors ist in Cyan markiert, der Bereich, ab dem das Signal anfängt vom Kristall zu laufen, ist für 6000 eV in Magenta und für 4500 eV in Blau dargestellt.

mit einer Signalgrenze oberhalb dieses Pixels oder des entsprechenden um dk korrigierten Pixels werden nicht ausgewertet. Damit etwaiges Rauschen nicht von der Korrekturkurve verstärkt und nennenswert zum Signal beiträgt, werden alle Pixelpositionen zehn Pixel oberhalb der Signalgrenze auf null gesetzt. Beispiele für korrigierte Messungen sind in Abbildung 4.32 dargestellt. Im Folgenden sind alle gezeigten Messungen um die Detektoreffizienz korrigiert. Sämtliche Fehler werden im Weiteren mit dem Wert der Detektoreffizienzkurve am Punkt der Signalgrenze multipliziert. Dies stellt eine Obergrenze für den verursachten Fehler der korrigierten Messungen dar.

Bisher wurden nur die Messungen bei 6000 eV betrachtet. Im Folgenden wird die Intensitätskorrektur für 4500 eV betrachtet. Die Breite des Intensitätsverlusts wird maßgeblich von der Mosaizität des Kristalls bestimmt. Die Mosaizität ist eine von der genutzten Photonenenergie unabhängige Größe. Da für 4500 eV keine Messung der Detektoreffizienz durchgeführt worden ist, wurde für die Detektoreffizienzkurve für 4500 eV ebenfalls die Breite des Intensitätsverlusts von $0,408^\circ$ verwendet. Der Fehler durch die Randeffekte wird damit nicht mehr korrekt berücksichtigt. Durch die verringerte Photonenenergie ist die Akzeptanzfläche durch die Mosaizität kleiner und die Randeffekte haben nur für Signalpositionen einen größeren Einfluss die näher am Rand sind, während Energien die weiter vom Rand entfernt sind geringeren Randeinflüssen unterliegen.

Für das Bestimmen der zu verwendenden Detektoreffizienzkurve musste der Pixel ermittelt werden, ab dem das Signal begann vom Kristall zu laufen. Dafür wurden die Ergebnisse des unkorrigierten Strukturformfaktors betrachtet¹⁷. Die gemittelten Messergebnisse des Strukturformfaktors bei $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ sollten aufgrund der Nähe zueinander sehr ähnlich sein. Da diese Messungen jedoch an verschiedenen Orten auf dem Kristall stattgefunden haben, weichen die Ergebnisse stärker voneinander ab als durch die Veränderung des Streuvektors k erwartet wurde. Die Positionsabweichungen kommen von unterschiedlichen Photonenenergien des FELs, da sich diese langsam über mehrere Stunden veränderte. Die Korrektur der Photonenenergie ist zeitaufwendig und wird im Experiment erst bei größeren Abweichungen durchgeführt. Die gemittelten Signalgrenzen für $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ liegen bei den Pixelpositionen 334 und 319. Für die Bestimmung des ersten Pixels, der korrigiert werden muss, wurde der Startpunkt der Detektoreffizienzkurve so lange variiert, bis die Ergebnisse des Strukturformfaktors für $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ gleich sind (siehe Abbildung 4.40). Die Lösung dieser Funktion ist eindeutig. Dafür wurden die Strukturformfaktoren für jede variierte Detektoreffizienzkurve bestimmt und die gemittelten Ergebnisse des gleichen Typs

¹⁷ Die Daten sind vor der Auswertung mit der korrigierten Detektoreffizienz schon einmal ausgewertet worden.

untereinander verglichen. Damit wurde der Pixel 258 bestimmt, ab dem die Intensität für Messungen bei 4 500 eV korrigiert werden muss. Die Detektoreffizienzkurve für 4 500 eV ist in Abbildung 4.31 dargestellt.

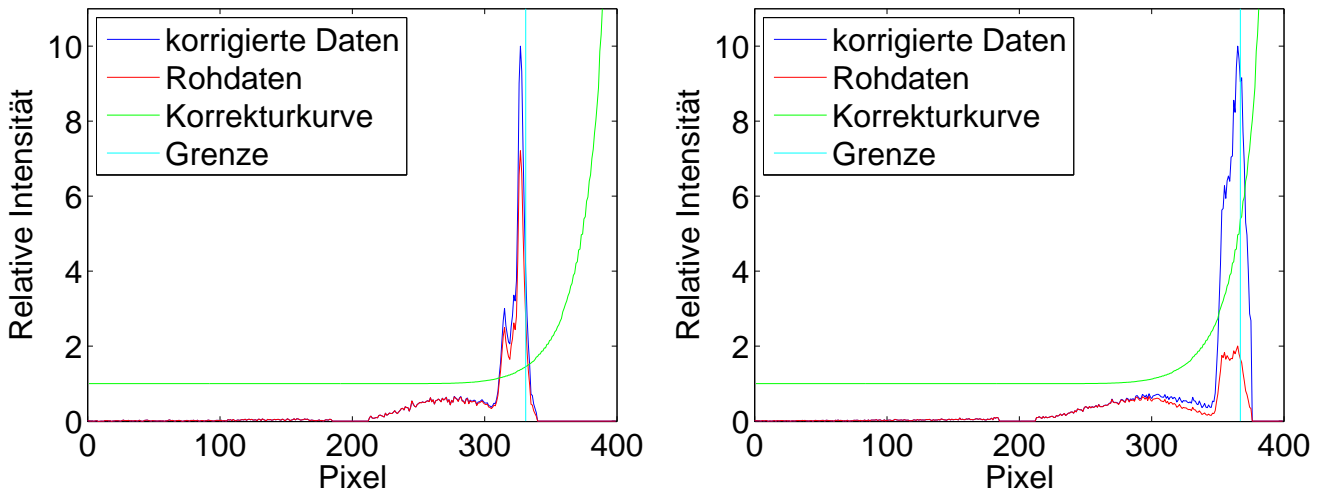


Abbildung 4.32.: Links: Intensitätskorrigierte Messung, die in der Auswertung verwendet wird. Rechts: Intensitätskorrigierte Messung, die aufgrund der großen Korrektur nicht verwendet wird. Die Korrekturkurve gibt den Faktor an, mit dem jede Pixelposition für die Intensitätskorrektur zu multiplizieren ist.

Ist eine Probe nicht vollständig geschockt, enthält das Streusignal sowohl Streuung von geschocktem als auch von ungeschocktem Material. Das Verhältnis von geschocktem zu ungeschocktem Material in der geschockten Messung lässt sich mit den VISAR-Messungen bestimmen. Der Röntgenpuls verursacht beim Wechselwirken mit der Probe ebenfalls eine Veränderung der Reflektivität der Aluminiumschicht der Probenrückseite (siehe Abbildung 4.33). Diese Änderung der Reflektivität wurde mit dem VISAR aufgenommen und liegt nur vor, wenn der Messzeitpunkt vor dem Ausbruch der Schockwelle liegt und dementsprechend das Streusignal auch Anteile von ungeschocktem Material enthält. Liegt der Röntgenpuls zeitlich nach dem Schockausbruch, ist die gesamte Probe geschockt und das Streusignal resultiert nur vom geschockten Material.

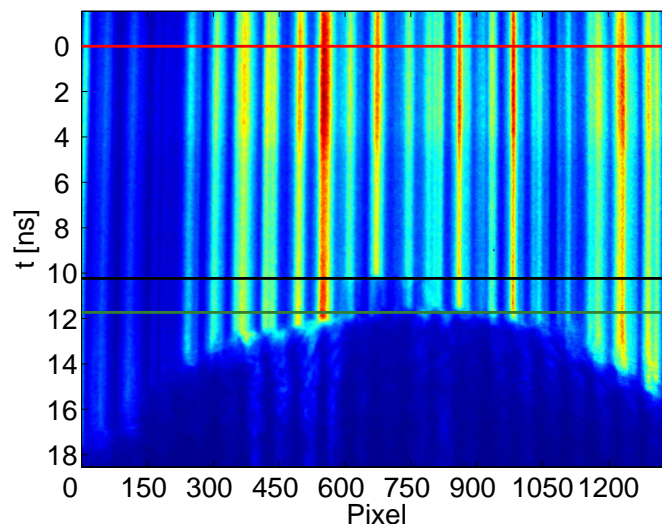


Abbildung 4.33.: Die Abbildung zeigt eine VISAR-Aufnahme. Durch den bekannten Startzeitpunkt des schocktreibenden Lasers bei 0 ns (rote Linie), dem Schockausbruch (grüne Linie) bei 11,8 ns und der Probendicke kann die Schockgeschwindigkeit bestimmt werden. Bei 10,2 ns (schwarze Linie) ist die Wechselwirkung des Röntgenpulses mit der Probe und dem Aluminium sichtbar (Pixel 630-730). Durch die Wechselwirkung ändert sich die Reflektivität der Oberfläche und der Anteil an geschocktem Material zum Zeitpunkt der Messung kann bestimmt werden.

Während des Experiments wurden an jeder Probe sowohl Messungen am ungeschockten als auch am geschockten Material vorgenommen. Die Messungen am ungeschockten Material dienen der Charakterisierung des Streuverhaltens des ungeschockten Materials. Nachdem die Intensitätskorrektur der Messungen am ungeschockten und geschockten Material durchgeführt wurde, werden im nächsten Schritt die Messungen am geschockten Material von Streuteilen durch ungeschockte Anteile bereinigt. Ein Beispiel für ungeschockten und geschockten Kohlenstoff ist in Abbildung 4.34 links

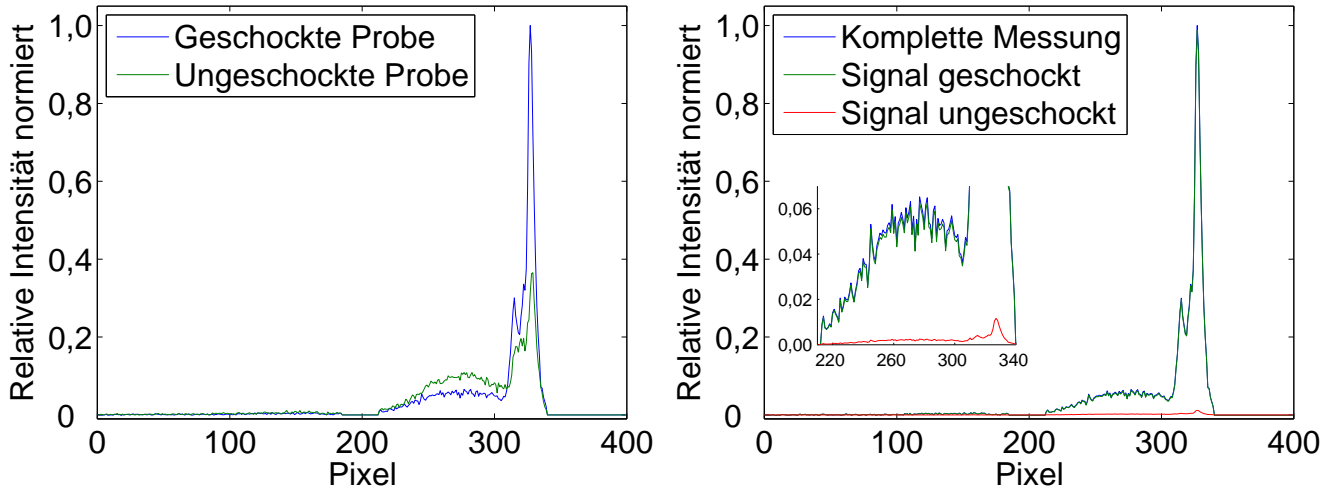


Abbildung 4.34.: Links: Streusignal einer 91,2 µm dicken Probe im ungeschockten und geschockten Zustand, die zu 89,3% geschockt ist. Rechts: Die Messung nach der Bereinigung von Streubeiträgen von ungeschocktem Material. Der Signalbeitrag vom ungeschockten Material ist aufgrund des Transmissionsverlusts der Streugeometrie zusätzlich reduziert. Der Bereich des inelastischen Streusignals ist zusätzlich vergrößert dargestellt.

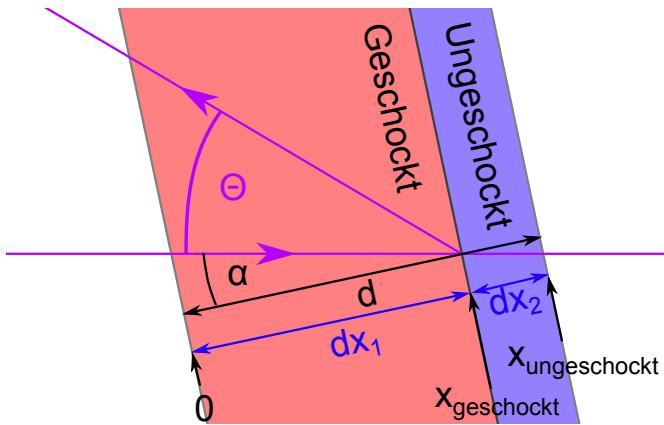
dargestellt. Dabei ist zu erkennen, dass sich das Signalverhältnis zwischen elastisch und inelastisch gestreutem Signal verändert hat. Im Experiment wurde versucht, an möglichst vielem Material im geschockten Zustand zu messen, gleichzeitig sollte der Schock noch nicht ausgebrochen sein, um gut definierte Bedingungen zu haben und ein Auseinanderlaufen der Probe zu verhindern. Das exakte Synchronisieren des Röntgenpulses mit dem Schockausbruch ist aufgrund der nicht exakt vorherzusagenden Laufzeit der Schockwelle durch die Probe nicht möglich. Die meisten Proben waren zum Zeitpunkt der Messung zu mehr als 95% geschockt.

Im Allgemeinen setzt sich die Gesamtintensität der zurückgestreuten Strahlung aus Streuung an verschiedenen Orten in der Probe und dem Zustand des Materials zusammen. Die Beiträge von den Orten sind abhängig von der zurückgelegten Distanz der Strahlung in der Probe. Streuung, die auf der strahlungsquellenabgewandten Seite in der Probe stattfindet, wird stärker in der Probe selbst absorbiert als Streuung, die auf der strahlungsquellenzugewandten Seite stattfindet. Der Intensitätsverlust der Strahlung beim Durchqueren einer Probe ergibt sich aus der Gleichung 2.15. Daraus lässt sich auch die verbleibende zurückgestreute Intensität I_{abs} in Abhängigkeit der im Material zurückgelegten Strecke zur Eingangsintensität I_0 bestimmen zu:

$$I_{\text{abs}}(x_0, x_1, l_0) = \frac{I_0}{l_0} \int_{x_0}^{x_1} e^{\left(\frac{1}{\cos(\alpha)} + \frac{1}{\cos(180^\circ - \alpha - \theta)}\right) \frac{x}{l_0}} dx. \quad (4.14)$$

Dabei ist l_0 die Absorptionslänge im Material, α die Drehung der Schockrichtung zum FEL, θ der Streuwinkel zum Spektrometer und x der Abstand von der Oberfläche in Schockausbreitungsrichtung. Eine Erklärung der Winkel ist in Abbildung 4.35 zu sehen.

Um den Anteil des geschockten Materials am Streusignal zu bestimmen, wird wie folgt vorgegangen: Durch die Dicke der Probe $d = dx_1 + dx_2$ und den 12° -Winkel α zwischen der Röntgenstrahlung und der Probennormalen kann die Propagationsdistanz der Strahlung im geschockten dx_1 und im ungeschockten dx_2 Material durch die VISAR-Messungen bestimmt werden. Die Intensität des Streusignals am geschockten Material $I_{\text{geschockt}}$ kann mit der Eingangsintensität der Strahlung I_0 direkt mit der Gleichung 4.14 und der Distanz $x_{\text{geschockt}}$ bestimmt werden. Für das Streusignal am ungeschockten Material $I_{\text{ungeschockt}}$ muss zuerst die reduzierte Intensität $I_{0,\text{red}}$ nach der Transmission der Strahlung durch das geschockte Material bestimmt werden. $I_{0,\text{red}}$ kann mit Gleichung 4.18 und der Distanz dx_1 zwischen x_0 und $x_{\text{geschockt}}$ mit



Photonenenergie [eV]	Dichte ρ_0 [g/cm ³]	Absorptionslänge l [μm]
4500	1,53	108,646
4500	1,84	100,068
4500	2,20	97,503
4500	4,00	95,404
6000	1,53	265,312
6000	1,84	244,367
6000	2,20	238,101
6000	4,00	231,763

Abbildung 4.35.: Links: Streugeometrie für Intensitätsbeiträge zum Gesamtstreusignal. θ ist der Streuwinkel zum Spektrometer und $\alpha = 12^\circ$ der Winkel zwischen Röntgenstrahl und Probe. d ist die Probendicke, dx_1 der Anteil des geschockten Materials und dx_2 der Anteil des ungeschockten Materials. $x_{\text{geschockt}}$ ist der Punkt zwischen geschocktem und ungeschocktem Material und $x_{\text{ungeschockt}}$ der Punkt, an dem die Probe endet. Rechts: Absorptionslängen für Kohlenstoff bei verschiedenen Dichten und Photonenergien [Henke 1993].

der Absorptionslänge $l_{\text{geschockt}}$ berechnet werden. Im nächsten Schritt wird das Streusignal vom ungeschockten Material mit der Gleichung 4.14 mit den Integralgrenzen $x_{\text{geschockt}}$ und $x_{\text{ungeschockt}}$ und der Absorptionslänge $l_{\text{ungeschockt}}$ bestimmt. Dieses Streusignal muss, bevor es gemessen wird, durch das geschockte Material transmittieren, dessen Intensität sich wieder nach Gleichung 2.15 reduziert. Die Intensität des gemessenen Streusignals I_{Mess} ergibt sich damit zu:

$$I_{\text{Mess}} = I_{\text{geschockt}} + I_{\text{ungeschockt}} \quad (4.15)$$

$$I_{\text{geschockt}} = I_{\text{abs}}(0, x_{\text{geschockt}}, l_{\text{geschockt}}) \quad (4.16)$$

$$I_{\text{ungeschockt}} = I_{0,\text{red}} \cdot I_{\text{abs}}(x_{\text{geschockt}}, x_{\text{ungeschockt}}, l_{\text{ungeschockt}}) \cdot e^{-\frac{dx_1}{\cos(180^\circ - \alpha - \theta)} l_{\text{geschockt}}} \quad (4.17)$$

$$I_{0,\text{red}} = I_0 \cdot e^{-\frac{dx_1}{\cos(\alpha)} l_{\text{geschockt}}} \quad (4.18)$$

Die Absorptionslängen l sind in Abbildung 4.35 für die Anfangsdichten und für $4,00 \text{ g/cm}^3$, was der Dichte im geschockten Zustand entspricht, angegeben. Für die Berechnung der Streusignale wurde die Absorptionslänge entsprechend der gemessenen Dichte für jede Probe verwendet (die Dichten sind über die Messungen mit dem CSPAD bestimmt worden).

Ein anschauliches Beispiel für die Korrektur der Streusignale ist in Abbildung 4.36 dargestellt. Aus den Messungen für die geschockte und ungeschockte Probe, wurde jeweils das Verhältnis zwischen dem elastischen und inelastischen Streusignal bestimmt. Dabei enthält das Signal des geschockten Materials auch Anteile vom ungeschockten Material. Durch die VISAR-Messungen konnte der prozentuale Anteil an geschocktem und ungeschocktem Material und damit die Ausdehnung des geschockten Materials dx_1 und ungeschockten Materials dx_2 bestimmt werden. Mit dieser Information und den Gleichungen 4.16 und 4.17 konnte die Streusignalintensität in die Anteile des geschockten ($I_{\text{geschockt}}$) und ungeschockten ($I_{\text{ungeschockt}}$) Materials separiert werden. Damit ist das Intensitätsverhältnis zwischen diesen beiden Anteilen in der geschockten Probe bekannt. Das Intensitätsverhältnis zwischen elastisch (I_{el}) und inelastisch (I_{inel}) gestreuter Intensität des ungeschockten Materials konnte direkt durch die Messungen der ungeschockten Probe bestimmt werden. Durch die dadurch bekannten Verhältnisse konnten die Streusignalintensitäten der elastischen und inelastischen Streuung der ungeschockten Probe im richtigen Verhältnis vom Streusignal der elastischen und inelastischen Streuung der geschockten Probe abgezogen werden.

Nachdem die Messungen des Spektrometers um die Detektoreffizienz korrigiert und von Streusignalen von ungeschocktem Material bereinigt sind, sind die Messungen ausgewertet worden. Um den Strukturfaktor zu bestimmen, wurde das Streusignal der elastischen und inelastischen Streuung betrachtet. Für die Bestimmung des Strukturfaktors wurde ein von G. Gregori entwickelter Code zum Auswerten von Röntgenstreuspektren (X-ray Scattering, XRS) verwendet (XRS-Code Version 6.1.0)¹⁸. Die Eingabeparameter für die jeweiligen Messungen waren die Photonenergie, die Dichte der geschockten Probe und die Energiepulsform der Röntgenstrahlung, letztere gemessen mit dem Transmissionsspektrometer.

¹⁸ Die physikalischen Grundlagen, auf denen dieser Code arbeitet, können den Veröffentlichungen von G. Gregori zu diesem Thema entnommen werden [Gregori 2003, Gregori 2004].

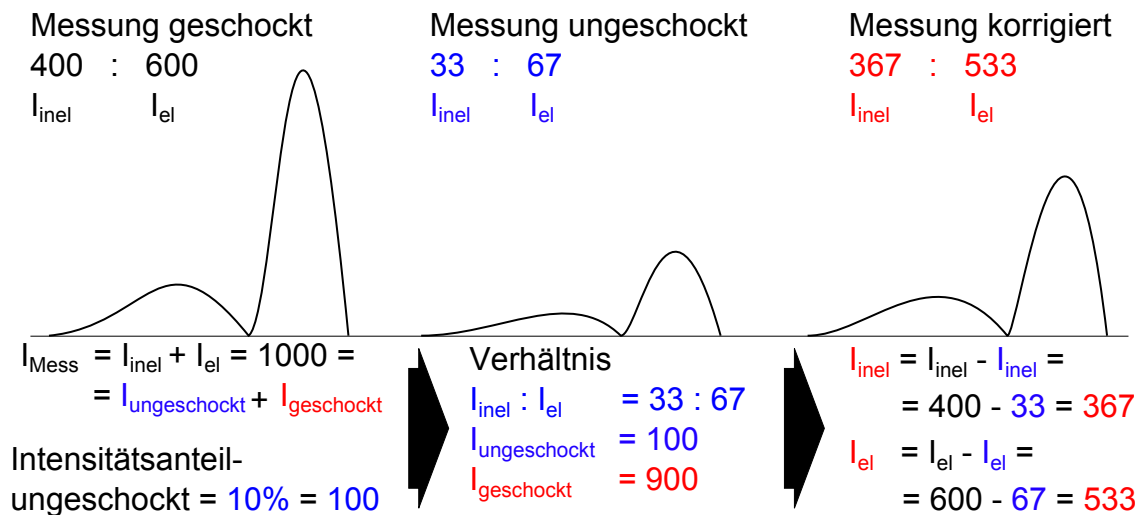


Abbildung 4.36.: Die Abbildung zeigt ein Beispiel für das Vorgehen zur Korrektur der Streusignale, um Streuung am ungeschockten Material rauszurechnen.

Der Code bestimmt aus dem elastischen Streusignal das inelastische Streusignal und damit den Strukturfaktor. Beispiele für die Messungen des Transmissionsspektrometers, welche das Spektrum des Röntgenpulses zeigt, ist 6000 eV in Abbildung 4.37 dargestellt. Die gezeigte Pulsform entspricht der Pulsform des elastischen Streusignals. Für die Messungen bei 4500 eV war die Beugungseffizienz des Kristalls des Transmissionsspektrometers zu gering, um qualitativ gute Messungen zu erhalten, sodass für diese Messungen direkt das elastische Streusignal des Rückwärtsspektrometers verwendet wurde. Dabei bestand die Problematik darin, dass die Signale vom elastischen und inelastischen Signal teilweise überlagern und eine exakte Trennung nicht möglich war. Zum Trennen dieser beiden Streusignale wurde das inelastische Signal mit einem Gauß-Profil genähert und vom Gesamtspektrum abgezogen. Das übrig bleibende elastische Streusignal wurde im Anschluss als Eingabe für den XRS-Code verwendet.

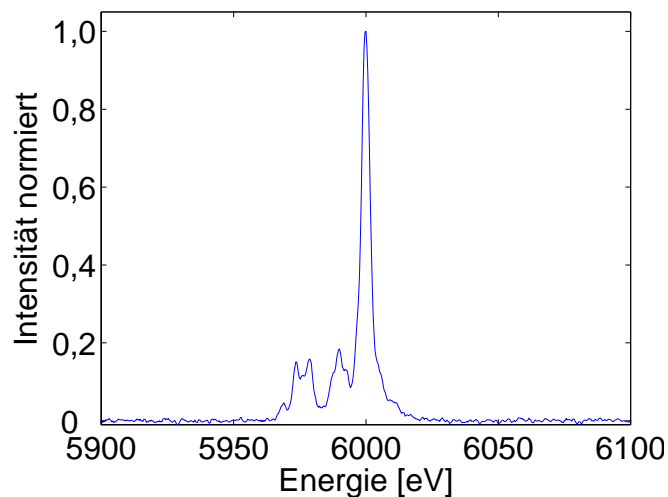


Abbildung 4.37.: Messung des Transmissionsspektrometers für 6000 eV. Dieses Spektrum wurde aus dem rot markierten Bereich der Rohdaten in Abbildung 4.19 links erstellt. Das Spektrum zeigt die Energieverteilung des Röntgenpulses.

Der Code berechnet die Form des inelastischen Signals in Abhängigkeit der oben genannten Parameter. Wurden als Eingabe die Messungen des Transmissionsspektrometers verwendet, musste das Ergebnis des Codes mit der Detektorfunktion des Rückwärtsspektrometers gefaltet werden. Wurde als Eingabe die Messung des Rückwärtsspektrometers verwendet, entfiel dieser Schritt. Das erhaltene Spektrum aus elastischem und inelastischem Signal wurde dann mit dem gemessenen Signal verglichen, bis die Kurven (Messung und Rechnung) maximal übereinstimmen. Dafür wurden die Integrale der Simulation und der Messung für das elastische und inelastische Streusignal miteinander verglichen. Die Detektorlücke

wurde dafür mit einer linearen Funktion zwischen den Pixeln 185 und 214 aufgefüllt. Der Startwert für Pixel 185 entsprach den Mittelwert der Pixel 180 bis 184 und der Endwert für Pixel 214 wurde aus den Mittelwert der Pixel 215 bis 219 ermittelt. Ist dies erreicht, wurde der vom Code für diese Bedingungen ermittelte Strukturfaktor als Ergebnis genommen. Da der Strukturfaktor über die Integrale der elastischen und inelastischen Streuung bestimmt wurde, wurde für die Fehlerbestimmung ein Abweichen der Integrale von $\pm 5\%$ angenommen. Unter dieser Annahme wurde der dazugehörige Strukturfaktor bestimmt und vom zuerst bestimmten Strukturfaktor abgezogen, um den Fehler des Strukturfaktors zu bestimmen. Diese Differenzen sind im Folgenden als Fehler des Strukturfaktors bezeichnet. Aufgrund der Korrekturen der Detektoreffizienz müssen diese Fehler noch mit dem Korrekturfaktor der Effizienz der ausgewerteten Signalgrenze multipliziert werden. In Abbildung 4.38 ist das Ergebnis des Codes verglichen mit einer Messung dargestellt. Dieser Code wurde auf alle Messungen angewendet. Die erhaltenen Ergebnisse für die Strukturfaktoren sind in Abbildung 4.39 dargestellt. Die Ergebnisse dieser Abbildung sind tabellarisch im Anhang Abschnitt 4 angegeben. Die Interpretation und Analyse dieser Daten, in Kombination mit den Daten der Positionsbestimmung im Phasendiagramm, erfolgt im folgenden Abschnitt.

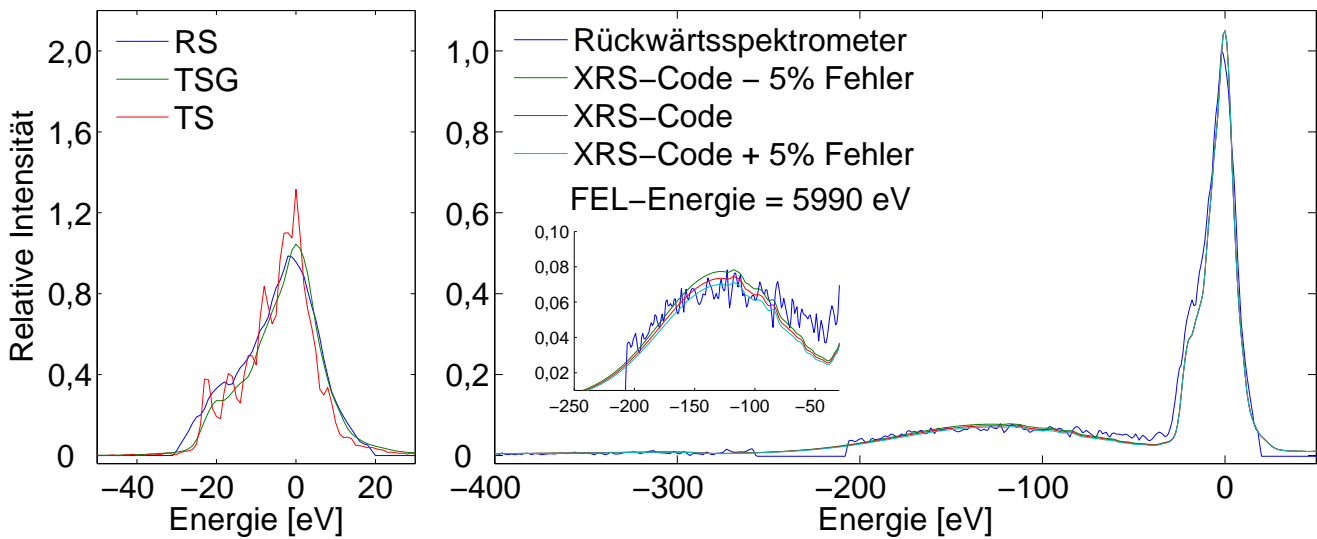


Abbildung 4.38.: Die Abbildung zeigt das Ergebnis einer Messung und des XRS-Codes für diese Messung. Die Energieachse ist um die FEL-Energie versetzt. Links: Messung des Transmissionsspektrometers (TS), welche als Eingabe für die Form der elastischen Streuung für den XRS-Code diente. Zusätzlich ist das Transmissionsspektrometersignal gefaltet mit der Detektorfunktion des Rückwärtsspektrometers (TSG) und das elastische Streusignal, gemessen mit dem Rückwärtsspektrometer (RS), dargestellt. Rechts: Ergebnis des XRS-Codes gefaltet mit der Detektorfunktion des Rückwärtsspektrometers (rot) und zum Vergleich die korrigierte Messung des Rückwärtsspektrometers (blau). Zusätzlich sind die Ergebnisse unter Berücksichtigung der $\pm 5\%$ -Abweichung in Grün und Cyan dargestellt. Der resultierende Strukturfaktor ist $S_{ii} = 1,76 \pm 0,18$. Der Bereich des inelastischen Streusignals ist zusätzlich vergrößert dargestellt.

2.5 Interpretation und Diskussion der LCLS Daten

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Messungen am LCLS interpretiert und mit Simulationen verglichen. Dabei ist zu beachten, dass die zum Vergleich gezeigten Simulationen sich immer auf eine bestimmte Dichte beziehen und damit nur eine erste Zuordnung des gemessenen Strukturfaktors zu einer Temperatur ermöglichen.

In Abbildung 4.40 sind auf der linken Seite die Ergebnisse der Strukturformmessungen (Einzelmessungen in Abbildung 4.39) gemittelt in Abhängigkeit von der Ausgangsdichte der Graphittypen und der eingesetzten Laserenergie, erzeugt durch ein oder zwei Laser, dargestellt. Der angegebene Fehler ist die Standardabweichung. In der gleichen Abbildung rechts sind die Ergebnisse für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ vergrößert dargestellt. Diese Ergebnisse sind in Tabelle 4.6 angegeben. Zusätzlich ist die aus der Laserenergie resultierende Schockgeschwindigkeit v_s mit angegeben. Für die Vergleichbarkeit des erreichten Endzustandes ist die Schockgeschwindigkeit der Laserintensität vorzuziehen. Die Schockgeschwindigkeit ist unabhängig von Einkoppelungsmechanismen der Laserenergie oder Schwankungen der Laserintensität, für die Erzeugung des komprimierten Zustandes und findet direkt Eingang in die Rankine-Hugoniot-Gleichungen für die Positionsbestimmung im Phasendiagramm.

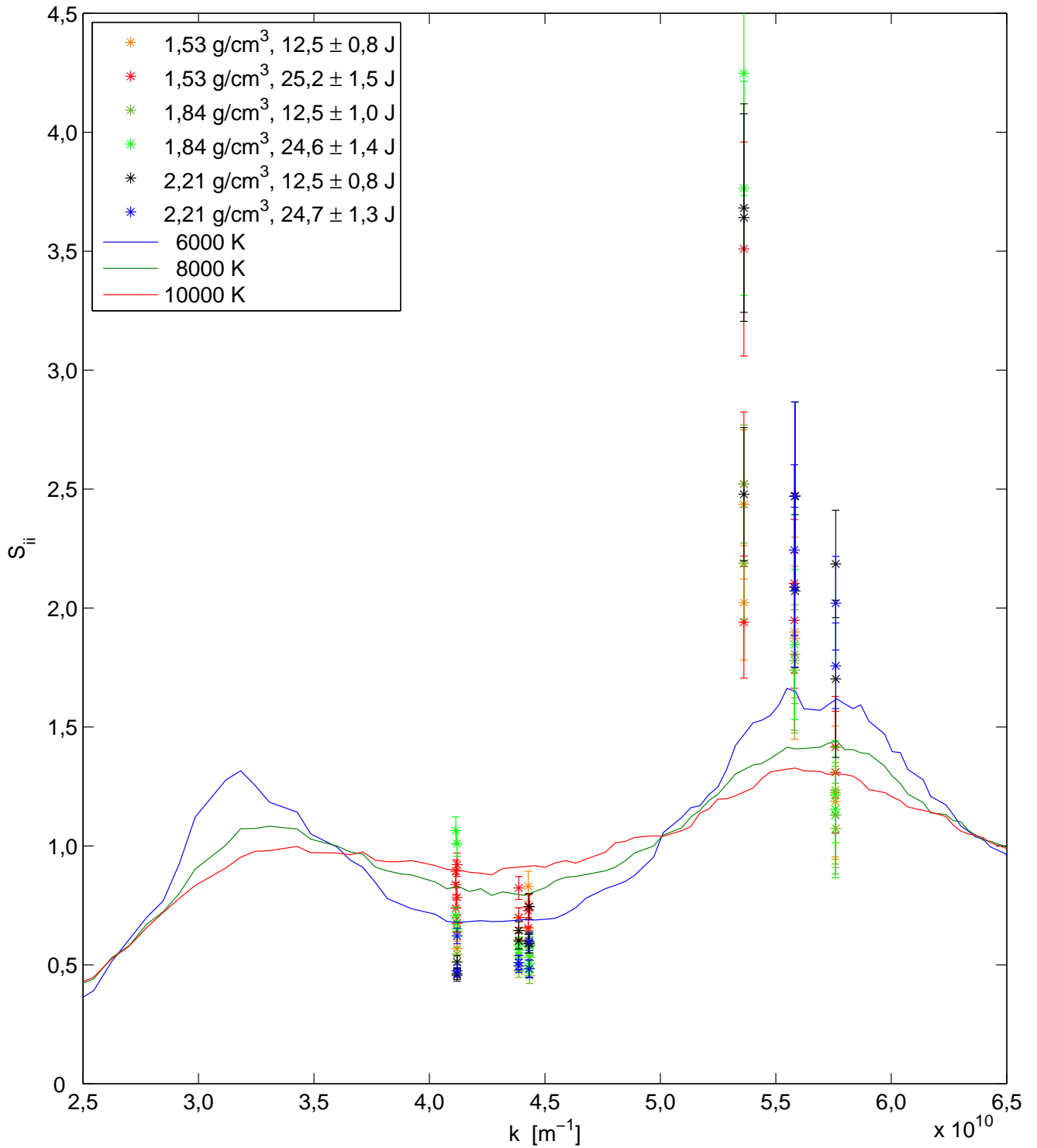


Abbildung 4.39.: Die Abbildung zeigt alle Einzelmessungen des Strukturfaktors für alle im Experiment untersuchten Streuvektoren. Dabei wird nach der Dichte der Ausgangsprobe und der Verwendung von einem oder zwei Lasern für die Kompression unterschieden und dementsprechend, ob mit 12,5 J oder 25,0 J Laserenergie komprimiert wurde. Als Vergleich sind drei DFT-MD Simulationen von flüssigem Kohlenstoff für eine Dichte von $4,00 \text{ g/cm}^3$ bei unterschiedlichen Temperaturen gezeigt (siehe Simulationskapitel Abschnitt 3.3). Das Ergebnis und die Fehler jeder Messung kann den Tabellen im Anhang 4 entnommen werden.

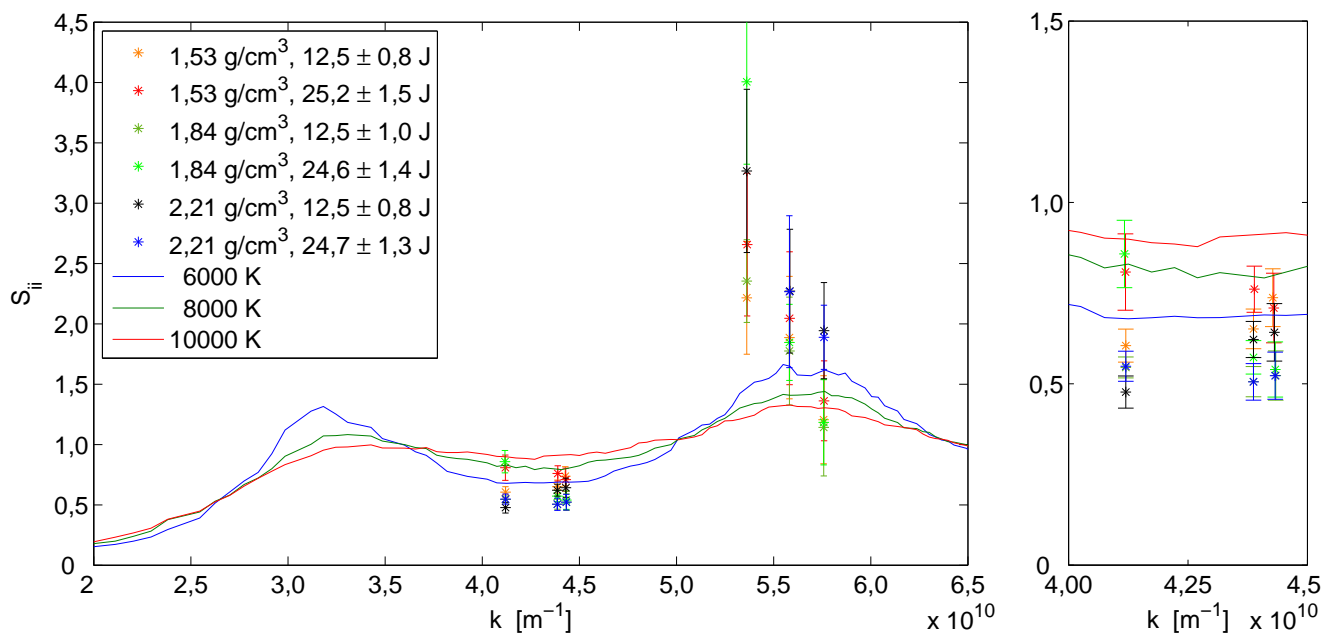


Abbildung 4.40.: Links: Gemittelte Strukturfaktoren der in Abbildung 4.39 gezeigten Einzelmessungen bezogen auf den Probenotyp und die eingesetzte Laserenergie. Rechts: Detailausschnitt der linken Ergebnisse für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Zum Vergleich sind DFT-MD Simulationen für flüssigen Kohlenstoff bei einer Dichte von $4,00 \text{ g/cm}^3$ bei unterschiedlichen Temperaturen gezeigt.

k [10^{10} m^{-1}]	Dichte ρ_0 [g/cm ³]	Laser	Energie [J]	v_s [km/s]	Dichte ρ_1 [g/cm ³]	Druck [GPa]	S_{ii}	Temperatur [K]
4,12	1,53	1	$11,8 \pm 0,3$	$11,0 \pm 0,5$	$3,90 \pm 0,06$	113 ± 11	$0,61 \pm 0,05$	5700^{+100}_{-100}
4,12	1,84	1	$13,7 \dagger$	$11,3 \pm 0,2 \ddagger$	$4,04 \pm 0,10 \ddagger$	$129 \pm 7 \ddagger$	$0,55 \pm 0,03 \ddagger$	5600^{+100}_{-100}
4,12	2,21	1	$12,3 \pm 1,0$	$10,7 \pm 0,6$	$3,92 \pm 0,07$	112 ± 16	$0,48 \pm 0,05$	5300^{+100}_{-100}
4,12	1,53	2	$24,0 \pm 0,5$	$13,4 \pm 0,7$	$4,22 \pm 0,09$	177 ± 19	$0,81 \pm 0,11$	7800^{+3100}_{-1600}
4,12	1,84	2	$24,0 \pm 0,5$	$12,7 \pm 0,5$	$4,23 \pm 0,07$	168 ± 16	$0,86 \pm 0,09$	9200^{+5700}_{-1900}
4,12	2,21	2	$24,4 \pm 0,3$	$12,9 \pm 0,2$	$4,20 \pm 0,03$	175 ± 6	$0,55 \pm 0,04$	5600^{+100}_{-100}
4,39	1,53	1	$11,6 \pm 0,2$	$10,7 \pm 0,2$	$3,87 \pm 0,02$	107 ± 4	$0,65 \pm 0,05$	5900^{+500}_{-200}
4,39	1,84	1	$12,0 \pm 0,6$	$10,6 \pm 0,5$	$3,94 \pm 0,07$	110 ± 13	$0,51 \pm 0,04$	5500^{+100}_{-100}
4,39	2,21	1	$11,9 \pm 0,6$	$10,8 \pm 0,6$	$3,93 \pm 0,07$	114 ± 15	$0,62 \pm 0,05$	5800^{+200}_{-200}
4,39	1,53	2	$23,7 \pm 0,9$	$13,0 \pm 0,2$	$4,17 \pm 0,01$	165 ± 2	$0,76 \pm 0,06$	7200^{+1100}_{-1100}
4,39	1,84	2	$23,2 \pm 0,1$	$12,7 \pm 0,4$	$4,23 \pm 0,06$	168 ± 13	$0,57 \pm 0,05$	5700^{+100}_{-100}
4,39	2,21	2	$24,0 \pm 0,8$	$12,9 \pm 0,3$	$4,20 \pm 0,04$	174 ± 9	$0,51 \pm 0,05$	5400^{+200}_{-200}
4,43	1,53	1	$13,1 \pm 1,0$	$11,5 \pm 0,4$	$3,97 \pm 0,05$	126 ± 9	$0,74 \pm 0,08$	6900^{+1500}_{-1000}
4,43	1,84	1	$11,3 \pm 0,5$	$10,5 \pm 0,2$	$3,92 \pm 0,01$	107 ± 2	$0,52 \pm 0,07$	5500^{+200}_{-200}
4,43	2,21	1	$12,1 \pm 0,9$	$10,3 \pm 0,5$	$3,87 \pm 0,06$	101 ± 12	$0,64 \pm 0,08$	5900^{+800}_{-300}
4,43	1,53	2	$24,9 \pm 0,3$	$13,1 \pm 0,2$	$4,18 \pm 0,02$	167 ± 4	$0,71 \pm 0,10$	6300^{+1400}_{-500}
4,43	1,84	2	$24,1 \pm 0,7$	$13,4 \pm 1,3$	$4,32 \pm 0,20$	191 ± 49	$0,54 \pm 0,08$	5500^{+200}_{-200}
4,43	2,21	2	$23,4 \pm 1,2$	$12,6 \pm 0,5$	$4,16 \pm 0,08$	165 ± 17	$0,52 \pm 0,07$	5500^{+200}_{-200}

Tabelle 4.6.: Die Tabelle zeigt die gemittelten Ergebnisse über alle Messungen für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ eines Graphittyps, in Abhängigkeit der Schockgeschwindigkeit v_s (\dagger eine Messung, \ddagger Fehler der Einzelmessung).

Zum Vergleichen der Messergebnisse werden DFT-MD Simulationen verwendet (siehe Abschnitt 3.2 im Simulationskapitel). Bei der ersten Betrachtung wird deutlich, dass der gemessene Strukturfaktor für die Streuvektoren $k = 5,36 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 5,58 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 5,76 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ deutlich über den Simulationsergebnissen liegt. Werden die gemessenen Strukturfaktoren mit DFT-MD Simulationen für verschiedene Strukturen wie Graphit, Diamant und hexagonalen Diamant bei verschiedenen Temperaturen (siehe Abbildung 4.41 oben rechts, mitte links und mitte rechts) verglichen, ist ersichtlich, dass in dem Bereich für $k > 5 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ für alle Strukturtypen die Möglichkeit der Bragg-Streuung existiert. Die Positionen der Bragg-Peaks sind durch die Bereiche, an denen der Strukturfaktor in Form eines Peaks größer wird und anschließend wieder abfällt, zu erkennen. Bei der Betrachtung der Simulationen ist wichtig, dass es sich, sobald die Bragg-Peaks verschwunden sind, um eine Flüssigkeit handelt. Ab diesem Punkt kann nicht mehr zwischen den Strukturen Graphit, Diamant und hexagonaler Diamant unterschieden werden. Das vorliegende Material wird dann im Folgenden nur als Kohlenstoff bezeichnet. In den Überschriften der abgebildeten Strukturfaktorverläufe wird die Bezeichnung der Ausgangsstruktur der Simulationen beibehalten.

Das schwach vorhandene Streusignal von Diamant auf dem CSPAD zeigt, dass bei der Kompression nicht nur eine Graphitstruktur mit verschiedenen Dichten oder flüssiger Kohlenstoff vorliegt, sondern auch Teilbereiche, in denen eine Diamantstruktur erzeugt worden ist (siehe Abbildung 4.26). Dabei sind nicht nur kubische, sondern auch hexagonale Diamantstrukturen [Kraus 2016]¹⁹ erzeugt worden. Dies geschieht durch den schnellen Kompressionsprozess, bei dem kleine Teilstücke der Proben bestehend aus der Graphitstruktur aneinandergespresst, die Hohlräume im Material aufgefüllt und dabei aufgeheizt werden. Dabei können die Außenbereiche der Teilstücke abreißen, verbiegen oder sich verflüssigen, während der Kern der Teilstücke nicht zerstört und geheizt, sondern nur komprimiert wird und eine Strukturänderung erfährt. Das Verhalten dieser Kernstücke kann als ein Schweben eines Teilchens in einer Flüssigkeit betrachtet werden, wobei die Flüssigkeit einen Druck von außen auf das Teilchen ausübt. Dies führt dazu, dass kleine Bereiche in der Probe feste Strukturen aufweisen. Es liegen demnach keine reinen Proben vor, sondern welche, die Graphit, Diamant oder hexagonalen Diamant enthalten können. Damit kann es zur Bragg-Streuung an diesen Strukturen kommen, wenn die Bragg-Bedingung erfüllt wird. Die Bragg-Streuung überlagert das elastische Streusignal der XRTS und führt dazu, dass der berechnete Strukturfaktor größer wird ($S_{ii} \propto (I_{el} + I_{Bragg})/I_{inel}$), vergleiche Gleichung 2.91.

Werden die Simulationen in Abbildung 4.41 oben links für eine Diamantstruktur bei verschiedenen Dichten betrachtet, ist die Verschiebung der Bragg-Peaks in Abhängigkeit der Dichte zu erkennen. Dargestellt sind die im Experiment erreichten Dichten. Aufgrund der Präparationstechnik und der Kurzlebigkeit der Proben kann nicht von einer streng homogenen Probe, sondern von einer inhomogenen Dichteverteilung ausgegangen werden. Dies geben auch die Messungen der Debye-Scherrer-Ringe wieder (siehe Abbildung 4.26), in denen ein breites Signal für die Dichtebestimmung über das Streusignal der Diamant-111-Ebenen gemessen worden ist. Das Vorhandensein von Bereichen mit unterschiedlichen Dichten bedeutet, dass die durch Bragg-Peaks abgedeckten Bereiche zusätzlich verbreitert sind und die Möglichkeit, dass Streuung an festen Strukturen stattfindet, weiter erhöht ist. Aus der Betrachtung der Positionen der Bragg-Peaks dieser Strukturen und der DFT-MD Simulationen für die im Experiment erreichten Dichten kann für die Messungen des Strukturfaktors für $k > 5 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ nicht davon ausgegangen werden, dass das gemessene Signal nur von einer reinen Flüssigkeit stammt. Dies wird deutlich, wenn der gemessene Strukturfaktor für $k = 5,36 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ genauer betrachtet wird. Bei diesen Messungen sind Werte für $S_{ii} > 3,5$ bestimmt worden. Dieser Wert spricht nicht für eine rein flüssige Probe und ist nicht vereinbar mit den Simulationen für eine Flüssigkeit. Die gemessenen Daten widersprechen dabei nicht den Simulationen von reinen flüssigen Kohlenstoff, da der bestimmte Strukturfaktor nicht kleiner als der Wert der Simulation ist. Er wird durch die zusätzliche Bragg-Streuung modifiziert und es kann keine Aussage darüber getroffen werden, wie stark die Beeinflussung durch periodische Festkörperstrukturen ist.

Werden die Daten des CSPADs hinzugezogen, ist zu erkennen, dass das Diamantsignal der Debye-Scherrer Ringe für die Proben mit reduzierter Dichte und hoher Laserintensität sehr viel schwächer ist, als für geringe Intensitäten und höhere Ausgangsdichten (siehe Abbildung 4.26). Diesen Trend geben auch die Messungen des Strukturfaktors wieder, bei dem sich der Strukturfaktor für die geschockten Proben mit hoher Laserintensität und reduzierter Dichte näher an den Ergebnissen der Simulation befindet als für geringe Laserintensität (siehe Abbildung 4.40 Messungen für $k > 5 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$). Dies spricht für das Erreichen einer Probe mit einer höheren Temperatur, da für höhere Temperaturen von einer Probe mit höherem flüssigen Anteil auszugehen ist, die weniger Reststrukturen enthält. Dieses Verhalten wird besonders deutlich für die Messungen an Proben mit $1,53 \text{ g/cm}^3$ und $1,84 \text{ g/cm}^3$ Ausgangsdichte sowie dem Einsatz von zwei Lasern für das Schocken der Proben für $k = 5,76 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. In diesem Bereich stimmen die Messungen wieder gut mit dem Simulationenwert überein. Eine exakte Aussage aus diesen Daten für eine sichere Phasen- und Temperaturbestimmung ist aufgrund der großen Fehler und des unbekanntem Einflusses von festen

¹⁹ Diese Informationen wurden aus der Analyse der Streudaten des CSPADs des vorgestellten Experimentes gewonnen. Die exakte Analyse dieser Daten ist nicht Teil dieser Arbeit. Die CSPAD Daten wurden für diese Arbeit nur auf die erreichte Dichte im geschockten Material hin untersucht.

Strukturen nicht möglich (siehe Abbildung 4.40 links). Die Daten in diesem Bereich zeigen nur den Trend und dass die Ergebnisse der DFT-MD Simulationen den Messergebnissen nicht widersprechen. Dieses Verhalten, dass die Proben mit geringerer Dichte und hoher Laserintensität wärmer sind und weniger Reststrukturen enthalten geht aus den Strukturfaktormessungen für $k = 5,76 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ deutlich hervor. Eine Überlagerung von Streusignalen mehrerer Phasen kann nicht nur bei $k > 5 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ vorliegen, sondern bei einem genaueren Vergleich der DFT-MD Simulation auch für Graphit und hexagonalen Diamant mit den Messungen des Strukturfaktors bei $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Dies wird deutlich bei der Betrachtung der Positionen der Bragg-Peaks für hexagonalen Diamant mit einer Dichte von $4,00 \text{ g/cm}^3$ (vergleiche Abbildung 4.41 mitte rechts hexagonaler Diamant für $4,39 \text{ g/cm}^3$). Diese liegen bei $k = 3,00 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 3,17 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 3,38 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 4,36 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 5,19 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 5,63 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 6,0 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Der Peak bei $k = 4,36 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ liegt sehr nahe an den Messpositionen $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Der Einfluss von festen Strukturen kann für diese Streuvektoren nicht ausgeschlossen werden. Die Messungen, für die die geringste Beeinflussungen durch feste Strukturen zu erwarten sind, liegen bei $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Zusätzlich kann diesen Messungen, aufgrund der im vorherigen Abschnitt vorgestellten Intensitätskorrekturen, am meisten vertraut werden, da das Signal nahezu komplett auf dem Detektor lag und deshalb kaum Korrekturen vorgenommen worden sind²⁰.

Da es sich beim Verflüssigen durch Schockkompression von porösen Proben nicht um einen komplett stetigen Prozess handelt und keine homogene flüssige Probe vorliegt, muss ein Kriterium gewählt werden, ab dem von einer flüssigen Probe ausgegangen werden kann. Im nächsten Schritt werden die Strukturfaktorsimulationen für Graphit, Diamant und hexagonalen Diamant in Abbildung 4.41 für verschiedene Temperaturen bei $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ betrachtet. Eine große Veränderung des simulierten Strukturfaktors erfolgt für Graphit zwischen 7 000 K und 8 000 K, bei Diamant zwischen 8 000 K und 9 000 K und für hexagonalen Diamant zwischen 6 000 K und 7 000 K. Zwischen diesen Sprungtemperaturen findet die Phasenänderung statt, bei der die Bragg-Peaks verschwinden und der Strukturfaktor einen kontinuierlichen Verlauf annimmt. Ab dieser Temperatur liegt der Strukturfaktor unabhängig von der Temperatur bei allen Kohlenstoffstrukturen oberhalb von 0,8 für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ bis $4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Es kann damit für alle Messungen, bei denen der Strukturfaktor diesen Wert überschritten hat, von einer Flüssigkeit ausgegangen werden. Dies gilt unabhängig von möglichen Strukturen, die vorher erzeugt worden sind. Dieser Wert wird im Folgenden als Grenzwert angesehen, ab dem von einer Flüssigkeit ausgegangen wird. Der Phasenübergang ist dabei nicht nur von der Temperatur, sondern auch von der Dichte und dem Druck abhängig.

Die Parameter Dichte, Druck und Temperatur beeinflussen die Position des Phasenübergangs, aber nicht die Art der Änderung des Strukturfaktors beim Phasenübergang und wie er sich in einem definierten Abstand im Phasendiagramm zu diesem verhält. Wird ein Strukturfaktor größer als 0,8 gemessen, liegt die Probe immer als Flüssigkeit vor, für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, die unabhängig von der Position im Phasendiagramm ist. Der Strukturfaktor von 0,8 ist nur ein Anhaltspunkt für den Phasenübergang. Für eine genauere Analyse muss der Strukturfaktor bei der entsprechenden Dichte für jeden Streuvektor einzeln betrachtet werden. Der Einfluss der Dichte auf den Strukturfaktorverlauf ist in Abbildung 4.41 unten links dargestellt. Für den Bereich der betrachteten Dichte und Streuvektoren verschiebt sich der Verlauf des Strukturfaktors dabei in Abhängigkeit der Dichte näherungsweise linear mit zunehmender Dichte in Richtung höherer Streuvektoren.

Im Folgenden werden die Messungen für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ genauer analysiert. In Tabelle 4.6 sind die gemittelten Werte für alle Strukturfaktormessungen bezogen auf die Ausgangsdichte ρ_0 und die erreichte Schockgeschwindigkeit für diese Messungen angegeben. Die Ergebnisse zeigen, dass für gleiche Schockgeschwindigkeiten, bei unterschiedlichen Ausgangsdichten, etwa die gleiche Dichte und der gleiche Druck für die geschockten Proben vorliegen. Bei Schockgeschwindigkeiten um die $11,0 \text{ km/s}$ lag die erreichte Dichte zwischen $3,85 \text{ g/cm}^3$ und $4,04 \text{ g/cm}^3$ bei einem Druck zwischen 100 GPa und 128 GPa . Für höhere Schockgeschwindigkeiten von etwa $13,0 \text{ km/s}$ lag die erreichte Dichte zwischen $4,16 \text{ g/cm}^3$ und $4,32 \text{ g/cm}^3$ und bei einem Druck zwischen 165 GPa und 191 GPa . Dies entspricht den Erkenntnissen und Erwartungen nach den am RAL vorgenommenen Voruntersuchungen (siehe Abschnitt 1.5).

Für den Streuvektor $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ liegt der gemittelte Strukturfaktor S_{ii} beim Einsatz von $(12 \pm 1) \text{ J}$ für die Kompression bei alle Proben unterhalb von 0,8, womit diese Proben als fest anzusehen sind. Die Messungen mit einer Ausgangsdichte von $2,21 \text{ g/cm}^3$ haben einen Strukturfaktor von $0,48 \pm 0,05$, während für die reduzierten Ausgangsdichten von $1,84 \text{ g/cm}^3$ und $1,53 \text{ g/cm}^3$ ein höherer Strukturfaktor von $0,55 \pm 0,03$ und $0,61 \pm 0,05$ gemessen wurde. Dies kann als ein Einsetzen der Phasenänderung gesehen werden. Dieses Verhalten entspricht den Vorhersagen, dass Proben mit reduzierter Dichte während der Kompression stärker aufgeheizt werden (siehe Abschnitt 4.1.3 im Theoriekapitel).

²⁰ Aufgrund der Signalposition musste die hochenergetische Kante des Signals um weniger als 5% angehoben werden, um den Signalverlust auszugleichen.

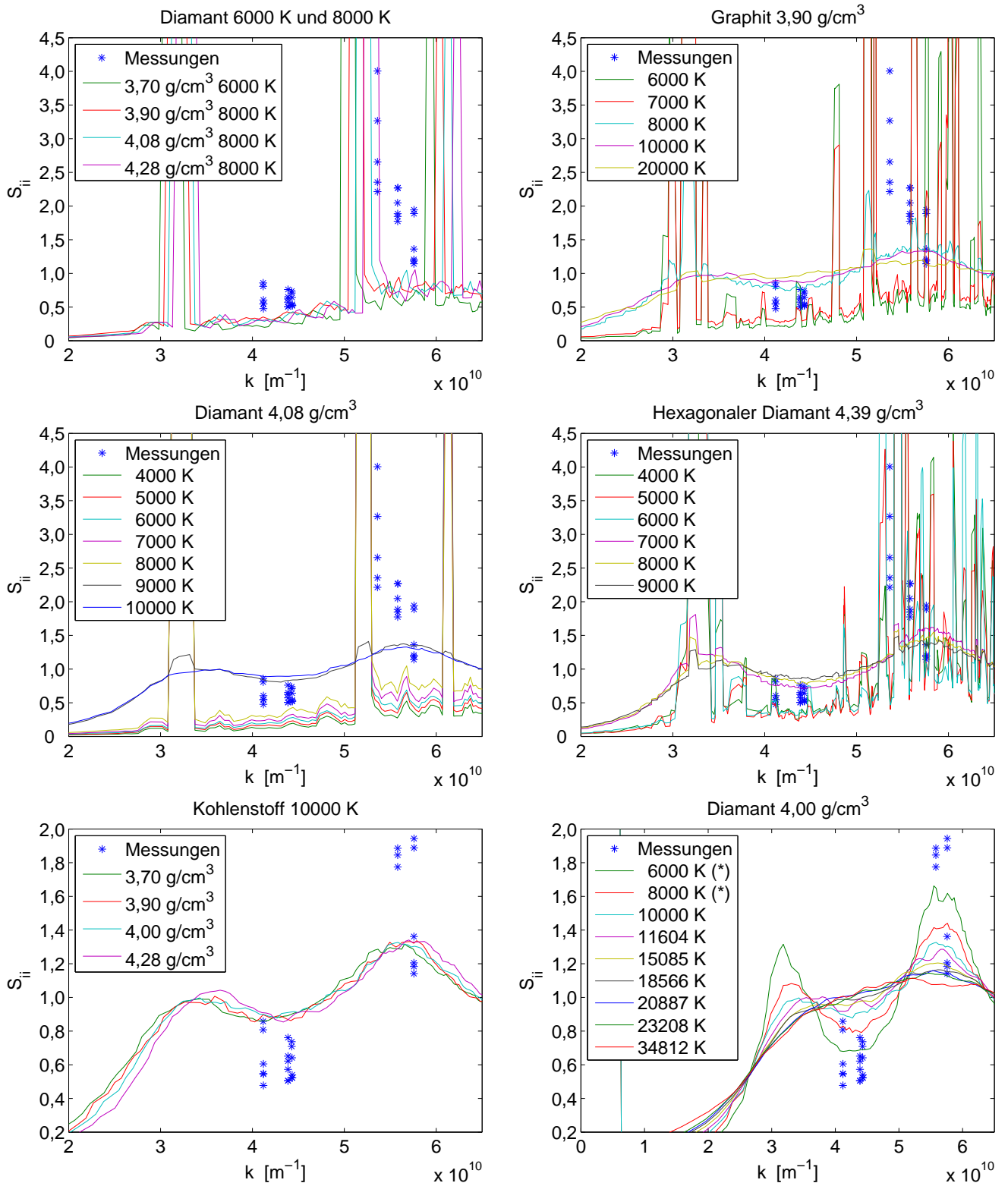


Abbildung 4.41.: Die Grafiken zeigen die in Abbildung 4.40 dargestellten gemittelten Messungen des Strukturfaktors und DFT-MD Simulationen ausgehend von verschiedenen Kohlenstoffstrukturen. Oben links: Einfluss der Dichte auf die Position der Bragg-Peaks. Oben rechts: Graphitstruktur mit einer Dichte von $3,90 \text{ g/cm}^3$ für Temperaturen zwischen $6\,000 \text{ K}$ und $20\,000 \text{ K}$. Mitte links: Diamantstruktur mit einer Dichte von $4,08 \text{ g/cm}^3$ für Temperaturen zwischen $4\,000 \text{ K}$ und $10\,000 \text{ K}$. Mitte rechts: Hexagonale Diamantstruktur mit einer Dichte von $4,39 \text{ g/cm}^3$ für Temperaturen zwischen $4\,000 \text{ K}$ und $9\,000 \text{ K}$. Unten links: flüssiger Kohlenstoff mit einer Temperatur von $10\,000 \text{ K}$ bei verschiedenen Dichten. Unten rechts: Diamantstruktur mit einer Dichte von $4,00 \text{ g/cm}^3$ für Temperaturen zwischen $10\,000 \text{ K}$ und $34\,812 \text{ K}$. (*) Simulationen mit einer Dichte von $4,00 \text{ g/cm}^3$ für $6\,000 \text{ K}$ und $8\,000 \text{ K}$, die in der flüssigen Phase gestartet sind.

Durch den Einsatz von (24 ± 1) J erreichten die Proben mit einer Ausgangsdichte von $1,53 \text{ g/cm}^3$ und $1,84 \text{ g/cm}^3$ einen Wert von $0,81 \pm 0,11$ und $0,86 \pm 0,09$, womit diese Proben als flüssig angesehen werden können.

Die Ergebnisse mit einer Ausgangsdichte von $1,84 \text{ g/cm}^3$ werden stark beeinflusst durch zwei Messungen, bei denen eine relativ erhöhte Schockgeschwindigkeit gemessen wurde und damit deutlich wärmer geworden sind als vergleichbare Messungen. Damit lässt sich der höhere Wert für den gemittelten Strukturfaktor für die Ausgangsdichte von $1,84 \text{ g/cm}^3$ im Vergleich zu den Messungen für $1,53 \text{ g/cm}^3$ erklären ($S_{ii} = 1,01 \pm 0,05$ und $S_{ii} = 1,06 \pm 0,06$ für $1,84 \text{ g/cm}^3$). Die Proben mit einer Ausgangsdichte von $2,21 \text{ g/cm}^3$ und (24 ± 1) J Laserenergie erreichten einen Wert von $S_{ii} = 0,55 \pm 0,04$. Dieser Wert entspricht dem Strukturfaktor für Proben mit reduzierter Dichte von $1,84 \text{ g/cm}^3$ und (12 ± 1) J, bei denen dieser Wert für eine eingesetzte, aber nicht abgeschlossene Phasenänderung spricht. Dies stimmt mit den Messergebnissen am RAL überein, in dem kein elastisches Streusignal für Graphit mit der Ausgangsdichte von $2,25 \text{ g/cm}^3$ gemessen worden ist. Somit lag für diese Messung kein flüssiger Kohlenstoff vor. Dass die Proben mit der geringsten Dichte den höchsten Strukturfaktor und die Proben mit der höchsten Dichte den geringsten Strukturfaktor aufweisen, zeigen auch die Messungen für $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$.

In Abbildung 4.42 oben sind die erreichten Drücke und Dichten sowie der Strukturfaktor für die Messungen mit $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ dargestellt. Weiter ist der Phasenübergang aufgrund der Strukturformmessungen als Hintergrundfarbe dargestellt. In Abbildung 4.42 unten befinden sich die entsprechenden Angaben für $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, die aufgrund der relativen Nähe zueinander zusammen dargestellt werden. Der im Hintergrund dargestellte Phasenübergang basiert in beiden Fällen auf den Messungen für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Diese Abbildungen zeigen damit den Übergang von festem zu flüssigem Kohlenstoff in Abhängigkeit von Dichte und Druck und das für die verschiedenen Streuvektoren, ähnliche Zustände im Druck-Dichte-Diagramm erreicht wurden. Zusätzlich erweitern sie die bereits vorhandenen Daten von M. van Thiel und W. H. Gust durch Schockkompression in einem Bereich von bis zu 200 GPa durch Messung der Schockgeschwindigkeit und einer direkten Dichtemessung. Der Vorgang der Phasenänderung setzt für die Ausgangsdichte von $1,53 \text{ g/cm}^3$ bei 110 GPa ein und ist bei 180 GPa abgeschlossen. Für die Dichte von $1,84 \text{ g/cm}^3$ startet der Prozess der Phasenumwandlung bei 130 GPa und ist bei 170 GPa abgeschlossen. Bei der Ausgangsdichte von $2,21 \text{ g/cm}^3$ konnte noch keine Phasenumwandlung festgestellt werden. Es wurde nur ein Einsetzen der Phasenumwandlung bei 175 GPa gemessen, eine Aussage über die abgeschlossenen Phasenänderungen kann damit nicht getroffen werden.

Aufgrund der unterschiedlichen Streuvektoren, werden für den gemessenen Strukturfaktor verschiedene Werte erwartet. Die Strukturformmessungen für die Streuvektoren von $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ befinden sich systematisch unter den Werten für den Streuvektor $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Dies kann zu Teilen auf die Position im Verlauf des Strukturformfaktors zurückgeführt werden, da sich diese Messungen mehr in der Sohle des Tals zwischen den Peaks befinden und nicht an der Flanke (vergleiche Abbildung 4.41 unten rechts). Dieses Verhalten wird für höhere Dichten noch gravierender, da sich der Strukturformfaktor für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ in diesem Fall auf der Flanke immer weiter nach oben schiebt (vergleiche die Verschiebung des Strukturformfaktorverlaufs in Abbildung 4.41 unten links).

Eine Besonderheit ist bei den Messungen für die Proben mit einer Ausgangsdichte von $2,21 \text{ g/cm}^3$ für $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ zu erkennen (siehe Abbildung 4.42 unten). Bei diesen wurde ein höherer Strukturformfaktor für die niedrigeren Schockgeschwindigkeiten bestimmt als für die höheren. Dies ist dadurch begründet, dass sich in diesem Bereich (siehe Abbildung 4.41 oben rechts für 6 000 K zwischen $k = 4,30 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1} - 4,50 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$) im komprimierten Material ein Bragg-Peak von Graphit befindet. Für die höheren Schockgeschwindigkeiten und damit höheren Temperaturen ist der Einfluss dieses Bragg-Peaks geringer und beeinflusst den untersuchten Strukturformfaktor weniger.

Für eine Temperaturbestimmung des erreichten Zustands ist aus den Simulationen für flüssigen Kohlenstoff mit einer Dichte von $4,00 \text{ g/cm}^3$ der Strukturformfaktor für alle simulierten Temperaturen bestimmt worden (siehe Abbildung 4.41 unten rechts). Die exakte Temperaturbestimmung erfolgte aufgrund der begrenzten Zahl an Simulationen mittels linearer Interpolation zwischen den aus den Simulationen erhaltenen Punkten. Die Punkte ergeben sich aus dem Strukturformfaktor und der zugehörigen Simulationstemperatur in Abhängigkeit des Streuvektors. Zur Temperaturbestimmung für Strukturformfaktoren kleiner als von der Simulation für 6 000 K vorhergesagt, wurde ein Strukturformfaktor von null für alle Streuvektoren bei einer Temperatur von 3 900 K angenommen. Diese Temperatur entspricht der Sublimationstemperatur von Graphit unter Normalbedingungen [Zazula 1997]. Dies kann als Näherung angenommen werden, da für einen Festkörper ein Strukturformfaktor von nahe null abseits der Bragg-Peaks erwartet wird.

Die dargestellten Simulationen (siehe Abbildung 4.41 unten rechts) für 6 000 K und 8 000 K sind in der flüssigen Phase gestartet, zusätzlich wurde eine Simulation für 4 000 K durchgeführt. Dabei ist das Material in den Simulationen bei 6 000 K und 8 000 K flüssig geblieben, wobei die Teilchenbewegung für 6 000 K kurz vor dem Stillstand ist. Während der

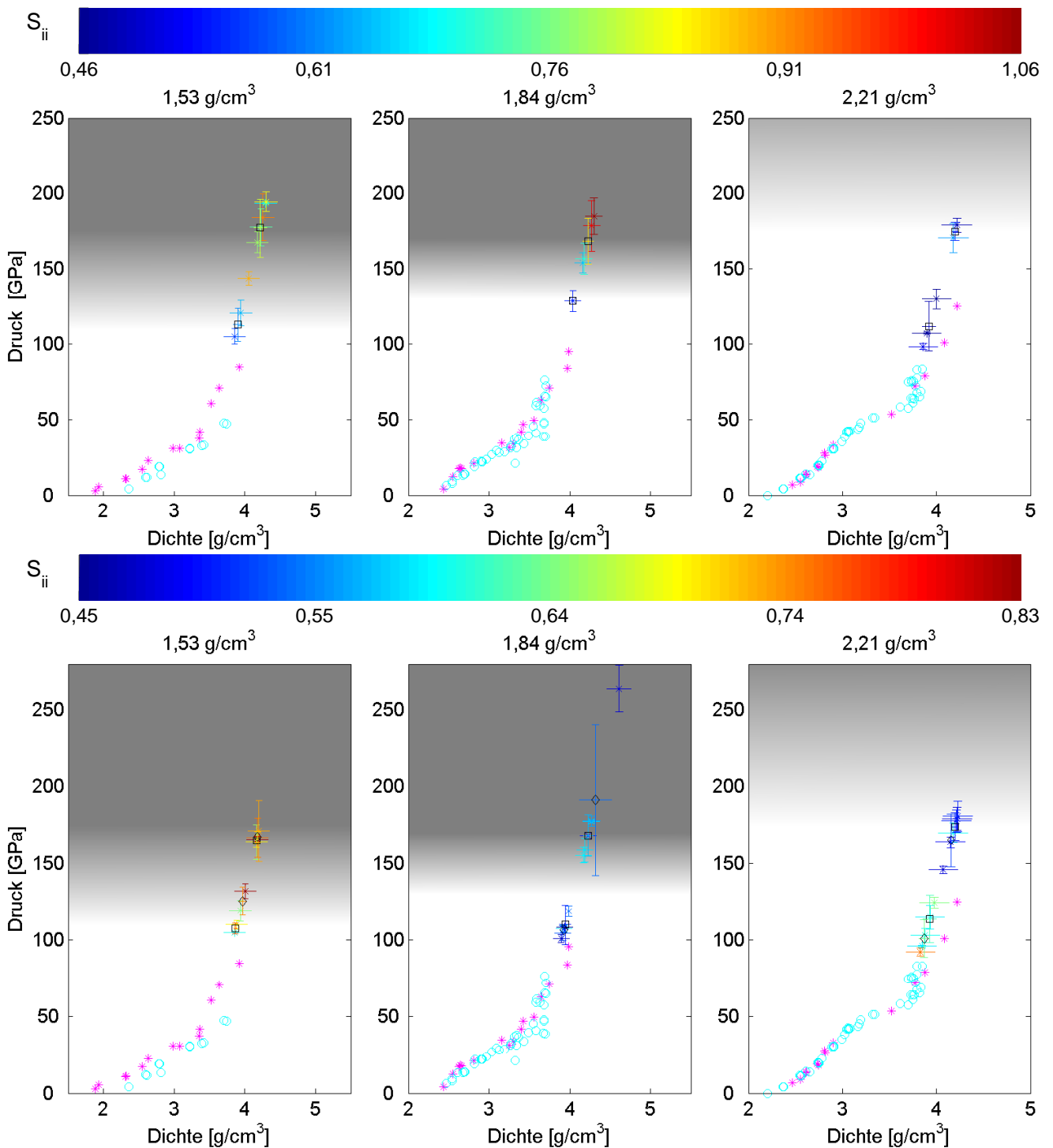


Abbildung 4.42.: Die Abbildung zeigt die gemessenen Strukturformfaktoren für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ (oben), $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ (unten) in Abhängigkeit der Ausgangsdichte, des Drucks und der Dichte ($\rho_0 = 1,53 \text{ g/cm}^3$ (links), $\rho_0 = 1,84 \text{ g/cm}^3$ (mitte), $\rho_0 = 2,21 \text{ g/cm}^3$ (rechts)). Die Strukturformfaktormessungen der letzten beiden Streuvektoren können zusammen dargestellt werden, da sie dicht beieinanderliegen und entsprechend ähnlich sind. Zusätzlich sind die gemittelten Werte aus Tabelle 4.6 mit schwarzen Quadraten ($k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$), schwarzen Rauten ($k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$) und Fehlerbalken entsprechend der Farbcodierung eingetragen. Die Änderung der Hintergrundfarbe von weiß (fest) nach grau (flüssig) stellt die Phasenänderung dar, basierend auf den Erkenntnissen der Strukturformfaktormessungen und den DFT-MD Simulationen (Sterne magenta [Gust 1980], Kreise cyan [Thiel 1977]).

Kohlenstoff für 4 000 K nach kurzer Simulationszeit in eine feste Phase übergeht (vergleiche Abbildung 3.1 oben links).

Der Vorteil von Simulationen, die in der flüssigen Phase starten ist, dass, gegenüber Simulationen die in der festen Phase gestartet sind, eine Temperaturzuordnung über den Strukturfaktor für niedrigere Temperaturen möglich ist, bevor der simulierte Festkörper sich aufgelöst hat. Von der simulationsseitigen Betrachtung muss keine Energie im System verteilt werden um die Bindungen zu lösen und eine Flüssigkeit zu erhalten. Die benötigte Energie ist für die verschiedenen Strukturen unterschiedlich. Weiter wird der Strukturfaktor nicht von Anteilen der festen Phase beeinflusst, wenn die Probe in der Simulation erst nach einer gewissen Zeit flüssig wird.

Der Einfluss der Dichte auf den Strukturfaktor (siehe Abbildung 4.41 unten links) ist für die Analyse wie folgt berücksichtigt worden. Bei der Betrachtung des Verlaufs des Strukturfaktors für verschiedene Dichten bei gleicher Temperatur ist zu erkennen, dass sich der Verlauf im Dichtebereich zwischen $3,70 \text{ g/cm}^3$ und $4,28 \text{ g/cm}^3$ in etwa linear für den Streuvektor zwischen $3 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $6 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ verschiebt²¹. Dies erlaubt es, den Strukturfaktorverlauf der Simulationen für $4,00 \text{ g/cm}^3$, entsprechend der Dichte für die jeweilige Messung zu verschieben und über den gemessenen Strukturfaktor anhand des verschobenen Verlaufs die Temperatur zu bestimmen. Die Temperaturen für die gemittelten Strukturfaktoren sind in Tabelle 4.6 mit angegeben. Die Temperaturen der Einzelmessungen für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ sind in Abbildung 4.43 dargestellt und werden dort mit Rechnungen von M. van Thiel, F. P. Bundy, M. P. Grumbach, A. M. Molodets, L. E. Fried, L. M. Ghiringhelli, X. Wang und A. A. Correa [Thiel 1992, Bundy 1996, Grumbach 1996, Molodets 1998, Fried 2000, Ghiringhelli 2005, Wang 2005] und [Correa 2006] verglichen. Der dargestellte Fehler der Temperatur ist jeweils durch den Fehler des Strukturfaktors der Einzelmessungen bestimmt worden. Dabei ist die Bestimmung der Temperatur für feste Proben nicht ideal, da der Temperaturverlauf hier über einen großen Bereich linear genähert wurde. Die Temperaturangabe in diesen Bereichen ist damit nur ein Näherungswert. Für Temperaturen oberhalb von 10 000 K sind die oberen Fehler sehr groß. Dies liegt daran, dass die Differenz der Strukturfaktorverläufe durch das Zusammenlaufen der Kurven immer weiter abnimmt, während sich der Fehler des Strukturfaktors weitgehend linear verhält. Weiter gibt es eine obere Temperaturgrenze für den Strukturfaktor, ab dem dieser nur noch sehr langsam ansteigt. Aufgrund dieses Verhaltens konnte für zwei Messungen von Graphit mit der Ausgangsdichte von $1,84 \text{ g/cm}^3$ durch den Vergleich mit den Simulationen die Temperatur nicht mehr bestimmt werden: $S_{ii} = 1,01 \pm 0,05 \Rightarrow T > 20\,000 \text{ K}$ und $S_{ii} = 1,06 \pm 0,06 \Rightarrow T > 20\,000 \text{ K}$. Aus den unteren Fehlergrenzen der Strukturfaktoren ergeben sich die Temperaturen $S_{ii} = 1,01 - 0,05 = 0,96 \Rightarrow T = 15\,700 \text{ K}$ und $S_{ii} = 1,06 - 0,06 = 1,00 \Rightarrow T = 19\,900 \text{ K}$, in Abhängigkeit der jeweiligen Dichte.

Die Phasenbestimmung in Abhängigkeit der Dichte erfolgt durch die im Simulationskapitel Abschnitt 3.3 (siehe Abbildung 4.41 unten rechts) bestimmte Schmelzkurve anhand der durch die Strukturfaktormessungen bestimmten Temperatur und der durch Röntgenbeugung bestimmten Dichte. Beim Vergleich der Messungen für die verschiedenen Streuvektoren bezogen auf Temperatur und Druck fällt auf, dass trotz sehr ähnlicher Endzustände (siehe Tabelle 4.6) nur für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ einige Messungen als flüssig beschrieben werden können und für $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ weniger Proben in der flüssigen Phase vorliegen. Da die Signalgrenze für $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ bei Pixel 319 und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ bei Pixel 334 mehr am Rand des HAPG-Kristalls im Spektrometer lag, haben Randeffekte auch eine größere Bedeutung als für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ bei Pixel 308. In der durchgeführten Intensitätskorrektur wurden die Kristallparameter für Messungen bei 6 000 eV bestimmt und die gewonnene Breite des Intensitätsverlusts für die Bestimmung der Korrekturfunktion für die Messungen bei 4 500 eV verwendet. Die bestimmte Breite des Intensitätsverlusts für 6 000 eV enthält dabei auch die Randeffekte für 6 000 eV, die sich bei 4 500 eV anders auswirken können und die Korrektur unbekannt beeinflussen. Für die Bestimmung der Korrekturfunktion wurde die Fläche, an der gestreut wurde, über eine perfekte Kante geschoben. Der Verlust der Intensität nur im elastischen Streusignal führt dazu, dass der ermittelte Strukturfaktor niedriger ist, als der tatsächliche Wert. Durch den dadurch zu klein bestimmten Strukturfaktor wird auf eine zu niedrigere Temperatur geschlossen. Ein weiterer Hinweis dafür, dass die Intensitätskorrektur für 4 500 eV nicht alle Randeffekte berücksichtigt, ist, dass im Druck-Dichte-Diagramm für $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ die gleichen Parameter erreicht wurden wie bei den Messungen für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, aber deren Temperaturen unterhalb dieser Messungen liegen. Eine genauere Korrektur der Daten ist ohne weitere Kenntnisse über die Randeffekte des Kristalls nicht möglich.

Die aussagekräftigsten Ergebnisse, denen am meisten vertraut werden kann, sind die aus den Messungen für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ gewonnenen, da diese nur minimal korrigiert worden sind und die realen Randeffekte weniger Einfluss besitzen. Beim Vergleich dieser Ergebnisse mit den Simulationen liegen die Simulationsergebnisse von L. M. Ghiringhelli, A. M. Molodets, M. van Thiel, L. E. Fried und F. P. Bundy abseits der Messwerte, während die Übereinstimmungen mit den Simulationen von M. P. Grumbach, X. Wang und A. A. Correa am größten sind. Die letzteren Simulationen basieren auf

²¹ Die Verschiebung von $S_{ii} = 0,5$ zwischen den Dichten $3,70 \text{ g/cm}^3$ und $4,28 \text{ g/cm}^3$ bei $k \approx 3 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ beträgt $\Delta k_3 = 0,24 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, für $k \approx 6 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $S_{ii} = 1,2$ beträgt die Verschiebung $\Delta k_6 = 0,23 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$.

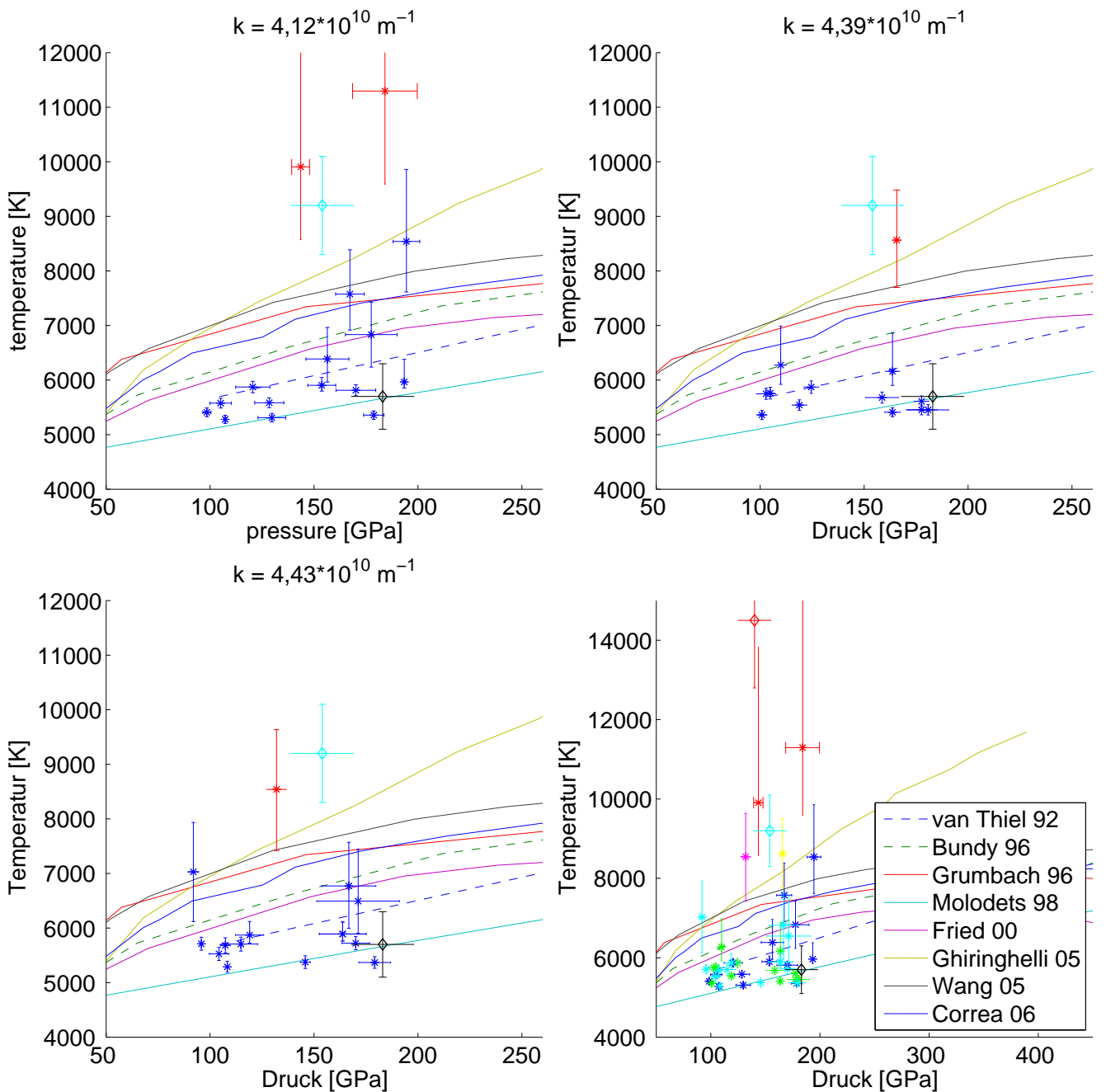


Abbildung 4.43.: Die Abbildungen zeigen die in der Motivation gezeigten Phasendiagramme von Kohlenstoff mit den Ergebnissen der Messungen vom LCLS. Oben links $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, oben rechts $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und unten links $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ für flüssigen Kohlenstoff (rot) und für festen Kohlenstoff (blau). Unten rechts sind diese Ergebnisse zusammengefasst: rot/blau $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, gelb/grün $k = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, magenta/cyan $k = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ (die erste Farbe markiert flüssige Zustände und die zweite feste Zustände). Als Grenze für den Übergang von fest zu flüssig wurde die in Abbildung 3.1 unten rechts gezeigte Kurve verwendet. Zusätzlich sind die Messergebnisse der verschiedenen Anfangsdichten $\rho_0 = 1,30 \text{ g/cm}^3$ (rot, flüssig), $\rho_0 = 1,84 \text{ g/cm}^3$ (cyan, flüssig) und $\rho_0 = 2,25 \text{ g/cm}^3$ (schwarz, fest) vom RAL-Experiment mit Rauten angegeben.

dem Prinzip der DFT-MD und verwenden Troullier-Martins Pseudopotentiale für die Wellenfunktionen [Troullier 1991]. Die Simulation von M. P. Grumbach verwendet für die Austausch-Korrelation die LDA, während X. Wang und A. A. Correa die GGA verwendeten. Diese drei Modelle sind die am besten geeigneten um das System *warmer dichter Kohlenstoff* zu beschreiben.

Zum weiteren Vergleichen der Messergebnisse sind Helios Simulationen für die Parameter der Messungen bei $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ durchgeführt worden. Die Ergebnisse sind in Tabelle B.4 im Anhang angegeben. Es wurden die gleichen Simulationsparameter wie am RAL verwendet, dabei wurde das Laserpulsprofil entsprechend angepasst und die Simulationen auf die gemessenen Schockgeschwindigkeiten optimiert. Die Auswertung der Simulationen erfolgte hinter der Schockfront zum Zeitpunkt der Wechselwirkung des Röntgenpulses mit der Probe. Die Simulationsergebnisse zeigen, dass diese den Phasenübergang nicht richtig berücksichtigen und eine höhere Temperatur bestimmen, während sich der simulierte Druck im Rahmen der Fehler in guter Übereinstimmung mit dem gemessenen Druck befindet. Der Vergleich der simulierten Dichte mit der gemessenen Dichte und deren Abweichung ist ein Hinweis auf die Fehler, die durch die Verwendung der Hydrodynamik Simulationen entstehen. Bei diesen Simulationen wird nicht berücksichtigt, dass ein Phasenübergang stattfindet und ein poröses Material komprimiert wird. Die Simulationsergebnisse geben die gemessenen Dichten meist zu niedrig an. Dabei werden die Abweichung zu den Messungen größer, je geringer die Ausgangsdichte der Proben und je größer die Porosität ist. Damit stellt die Bestimmung der Temperatur über den Strukturfaktor eine Alternative zu diesen Simulationen dar, da sie die den Phasenübergang berücksichtigt.

Abschließend lässt sich aus den Daten ein Bereich des Phasenübergangs bestimmen (siehe Abbildung 4.42 oben). Eine exakte Temperatur für den Phasenübergang lässt sich nicht ermitteln, da besonders für das kältere Material, welches noch nicht flüssig ist, schon ein von Null verschiedener Strukturfaktor gemessen wurde. Dieser liegt deutlich über dem Untergrund der DFT-MD Simulationen und ist nicht mit einer starren Struktur vereinbar. Dieser Untergrund lässt sich durch den schnell ablaufenden Prozess der Schockkompression erklären. Die Kompression des Materials erfolgt durch die Schockfront, in unter 250 ps (siehe Abbildung 4.24 Anstiegszeit der Grenzflächengeschwindigkeit), wodurch die vorher starre Struktur schon in Teilen aufgehoben und die Probe erwärmt wird. Damit lässt sich der von Null abweichende Strukturfaktor für diesen festen Zustand erklären, während für Messungen, die nicht von festen Strukturen beeinflusst werden, wie bei $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ein Strukturfaktor von größer als 0,8 einer Flüssigkeit zugeordnet werden kann. Aufgrund der Formierung von Diamantstrukturen und deren Existenz zum Zeitpunkt der Messung kann nicht von einer reinen Flüssigkeit gesprochen werden. Die Temperaturbestimmung ist nur in Bereichen möglich, die nicht von Bragg-Peaks abgedeckt werden. Durch den Vergleich mit der Gesamtheit der DFT-MD Simulationen kann von einem Punkt gesprochen werden, ab dem der Strukturfaktor definitiv einer Flüssigkeit zuzuordnen ist und die Temperatur dieser bestimmt werden kann. Durch die Betrachtung von Simulationen, die in der flüssigen Phase starten, ist es weiter möglich den Bereich der Temperaturbestimmung auf Proben zu erweitern, die geschockt worden sind, aber noch nicht als flüssig angesehen werden.

5 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde das Verhalten von Kohlenstoff im Bereich der warmen dichten Materie (WDM) untersucht. Dabei wurde die Temperatur in diesem Bereich durch Messungen des Strukturfaktors mit Röntgen-Thomson-Streuung (XRTS) und dem Vergleich mit DFT-MD Simulationen bestimmt sowie der Verlauf des Strukturfaktors betrachtet. Die Probenpräparation erfolgte mittels lasergetriebener Schockwellen und die Untersuchung der Proben mit Röntgenstrahlung, welche durch lasergetriebene Röntgenquellen oder Röntgen-Freie-Elektron-Laser erzeugt wurde. Dafür sind zwei Experimente durchgeführt worden.

Mit dem ersten Experiment am *Rutherford Appleton Laboratory* (RAL) ist gezeigt worden, dass es durch die Verwendung von Graphitproben mit unterschiedlicher Ausgangsdichte ($1,30 \text{ g/cm}^3$, $1,84 \text{ g/cm}^3$ und $2,25 \text{ g/cm}^3$) möglich ist, ähnliche Dichten und Drücke im Endzustand zu erreichen. Durch die Entropiezunahme während des Kompressionsprozesses wurden unterschiedliche Temperaturen in Abhängigkeit der Ausgangsdichte erreicht. Die größte Entropieänderung und damit die höchste Temperatur, erhalten dabei die Proben mit der geringsten Ausgangsdichte. Die Proben wurden mit der Methode der XRTS untersucht. Der im Experiment verwendete Streuvektor von $k = 4,47 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ war so gewählt, dass er sich in einem Bereich befand, in dem sich der Strukturfaktor während des Phasenübergangs stark verändert und das Messsignal nicht von möglichen Streueffekten von ungeschocktem Graphit überlagert wurde. Das Messen eines elastischen Streusignals bei Proben mit reduzierter Dichte zeigt, dass sich diese in einer flüssigen Phase befinden, da das elastische Streusignal bei Kohlenstoff für $k = 4,47 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ erst signifikant entsteht, wenn sich der Kohlenstoff in flüssiger Form befindet. Es konnten Proben mit Anfangsdichten von $1,30 \text{ g/cm}^3$ und $1,84 \text{ g/cm}^3$ bei einer Dichte von $(3,30 \pm 0,12) \text{ g/cm}^3$ und $(3,82 \pm 0,10) \text{ g/cm}^3$, bei Drücken von $(141 \pm 13) \text{ GPa}$ und $(154 \pm 11) \text{ GPa}$ und Temperaturen von $(14\,500 \pm 1\,700) \text{ K}$ und $(9\,200 \pm 900) \text{ K}$ verflüssigt werden. Proben mit einer Ausgangsdichte von $2,25 \text{ g/cm}^3$ können im geschockten Zustand bei $(3,96 \pm 0,09) \text{ g/cm}^3$, $(183 \pm 20) \text{ GPa}$ und $(5\,700 \pm 600) \text{ K}$ als fest angenommen werden. Diese Ergebnisse stimmen mit den vorhergesagten Phasendiagrammen überein.

Aufbauend auf den Erkenntnissen des ersten Experiments, wurde ein zweites Experiment an der *Linac Coherent Light Source* (LCLS) am *Stanford Linear Accelerator Center* durchgeführt. Bei diesem wurden Graphitproben mit Dichten von $1,53 \text{ g/cm}^3$, $1,84 \text{ g/cm}^3$ und $2,21 \text{ g/cm}^3$ verwendet, um ähnliche Drücke und Dichten bei unterschiedlichen Temperaturen zu erreichen wie im ersten Experiment. Zusätzlich wurde eine Variation der Laserintensität der schocktreibenden Laser vorgenommen, um einen größeren Bereich der zugänglichen Endzustände abzudecken ($7 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ und $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$). Die erreichte Dichte im geschockten Zustand lag zwischen $(3,83 \pm 0,15) \text{ g/cm}^3$ und $(4,30 \pm 0,16) \text{ g/cm}^3$ bei einem Druck zwischen 100 GPa und 200 GPa . Dabei konnte die Dichte mittels Röntgenbeugung bestimmt werden. Die Bestimmung des Drucks erfolgte über die Rankine-Hugoniot-Gleichungen mittels der gemessenen Schockgeschwindigkeit und der Dichte.

Mit der Verwendung eines Röntgen-Freie-Elektron-Laser für das Messen des XRTS-Signals war es möglich, Streuspektren von bisher unerreichter Qualität aufzunehmen und diese zu analysieren. Durch die Verwendung dieser schmalbandigen und in der Energie variablen Röntgenquelle war es möglich, den Strukturfaktor für Streuvektoren von $k_1 = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_2 = 4,39 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_3 = 4,43 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_4 = 5,36 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_5 = 5,58 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k_6 = 5,76 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ zu untersuchen. Die Analyse der Strukturfaktormessungen und der Vergleich mit DFT-MD Simulationen für den erreichten Endzustand ergaben, dass die gemessenen Strukturfaktoren für $k_4 = 5,36 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$, $k_5 = 5,58 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ und $k_6 = 5,76 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ größer waren als durch die Simulationen erwartet. Dies ist auf die Formation von kubischen Diamantstrukturen als auch von hexagonalen Diamantstrukturen und verbleibenden Graphitstrukturen zurückzuführen, deren Bragg-Peaks in diesem Bereich liegen und das elastische Streusignal der XRTS überlagern. Dabei ist die Beeinflussung durch feste Strukturen für höhere Laserintensitäten und reduzierte Ausgangsdichten der Proben deutlich geringer, kann aber nicht ausgeschlossen werden. Diese Messungen erlauben eine grobe Bestätigung der vorhergesagten Strukturfaktoren für diese Streuvektoren. In dem Bereich um $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ befinden sich keine Bragg-Peaks von festen Strukturen. In ihm konnte erstmalig dem Endzustand eine Temperatur zugeordnet werden, in dem der gemessene Strukturfaktor mit DFT-MD Simulationen verglichen wurde. Dabei sind Simulationen verwendet worden, die speziell für die erreichten Parameter durchgeführt worden sind. Abhängig von der Ausgangsdichte variiert der gemessene Strukturfaktor zwischen $0,46 \pm 0,02$ und $0,92 \pm 0,05$ für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Dies entspricht Temperaturen von $5300^{+100}_{-100} \text{ K}$ bis $11100^{+5700}_{-1400} \text{ K}$. Bei Dichten von $(3,84 \pm 0,15) \text{ g/cm}^3$ bis $(4,30 \pm 0,16) \text{ g/cm}^3$ und Drücken von $(99 \pm 2) \text{ GPa}$ und $(195 \pm 6) \text{ GPa}$. Für einen Strukturfaktor von größer als $0,8$ für $k = 4,12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ kann diesem Druck- und Dichtebereich eine flüssige Phase zugeordnet werden.

6 Ausblick

Der Einsatz von lasergetriebenen Schockwellen erlaubt die Untersuchung von Materie, die in dem extremen Parameterbereich der WDM liegen und mit dem Zustand im Inneren von Planeten vergleichbar ist. Diese Bedingungen sind auf der Erdoberfläche nicht alltäglich, aber für ein Verständnis des Universums und den Anwendungen der Physik im 21. Jahrhundert sind diese Untersuchungen von Bedeutung.

Im Experiment konnte gezeigt werden, dass aus der Messung des Strukturfaktors die Temperatur im warmen dichten Kohlenstoff bestimmt werden kann. Eine weitere Änderung des Strukturfaktors wird für noch höhere Temperaturen erwartet. Unter diesen Bedingungen sollte die Doppelpeakstruktur des Strukturfaktorverlaufs verschwinden und sich auf einen Peak reduzieren (siehe Abbildung 4.41 unten rechts). Durch den Vergleich mit den Simulationen ist eine Temperaturbestimmung bis zu Temperaturen von 20 000 K im Kohlenstoff möglich. Oberhalb dieser Temperatur wird die Veränderung des Strukturfaktors zu gering um eine Temperaturbestimmung durchzuführen. Dieser Bereich kann durch mehrfaches Schocken oder Schocken aus verschiedenen Richtungen erreicht werden. Bei diesen Temperaturen sollten auch keine Reststrukturen von Graphit, Diamant oder hexagonalem Diamant mehr vorhanden sein, die das Messsignal überlagern. Dabei kann das Heizen der Probe beispielsweise auch durch einen Teilchenstrahl erfolgen. Dafür werden hochintensive Teilchenstrahlen benötigt, wie sie von laserbasierten Beschleunigungsmechanismen oder von der zukünftigen *Facility for Antiproton and Ion Research* (FAIR) bereitgestellt werden können. Der Vorteil der FAIR Einrichtung ist die Möglichkeit der Erzeugung größerer und damit homogenerer Proben.

Durch die Messung des Phasenübergangs von Kohlenstoff im Zustand der WDM können die Messergebnisse dieser Arbeit dazu beitragen, die Simulationen für den Phasenverlauf von Kohlenstoff zu verbessern. Dieses ist wichtig für die Bestrebung auf der Erde Energie durch die Fusion von leichten Elementen oder Wasserstoffisotopen zu gewinnen. Dafür werden zwei Wege verfolgt: zum einen die Trägheitsfusion, in der eine Probe sehr stark und schnell komprimiert wird und die Fusion in Bruchteilen von Sekunden abläuft und zum anderen die Methode des magnetischen Einschlusses, bei dem die Fusion länger aufrecht erhalten wird. Ein Problem an der *National Ignition Facility* in Kalifornien/USA auf dem Weg zur Trägheitsfusion ist, dass sich die äußerste Hülle bestehend aus Kunststoffen oder hochdichtem Kohlenstoff mit dem zu fusionierenden Deuterium-Tritium-Gemisch vermischt oder es zu einer erneuten Kristallisation des Kohlenstoffs nach dem ersten Schock der Probe kommt, bevor die eigentliche Zündung der Fusion erfolgt. An diesem Punkt können die Ergebnisse dieser Arbeit helfen, die Prozesse im Kohlenstoff nach dem ersten Schock besser zu verstehen.

Neben den Problemen bei der Fusion selbst bleibt die Fragestellung der Reaktorkonstruktion sowohl für die Trägheitsfusion als auch für den magnetischen Einschluss offen. Die innere Wand des Fusionsreaktors muss den Bedingungen, welche durch das Fusionsplasma erzeugt wird, über einen langen Zeitraum standhalten und den Wärmetransport an dahinter liegende Wärmetauscher für die Energiegewinnung gewährleisten. Weiterhin dürfen sich keine Bestandteile der Reaktorwand lösen und mit dem Plasma interagieren. Aufgrund der unterschiedlichen Belastung der Wand in Abhängigkeit des Orts und des Einsatzzwecks werden eine Vielzahl von Wandmaterialien zum Einsatz kommen.

Es gibt somit ein gesteigertes Interesse, kohlenstoffhaltige Verbindungen zu untersuchen. Dies sind zum einen Kunststoffe für die Ummantelung des Fusionsgemisches und zum anderen widerstandsfähige, kohlenstoffhaltige Materialien für den Aufbau der Wandmaterial tragenden Konstruktion von Fusionskraftwerken oder der Wandmaterialien selbst [Lässer 2007, Duffy 2010]. Um diese Fragestellungen rund um den Einfluss von Kohlenstoffverbindungen zu untersuchen, sind weitere Experimente geplant.

Eins der möglichen Materialien für die Reaktorinnenwand oder für die tragende Konstruktion der Innenwandmaterialien in Fusionskraftwerken ist Siliziumcarbid. Zu diesem Material soll ein Experiment am Z6 Experimentierplatz der GSI in diesem Jahr durchgeführt werden. Dabei soll ebenfalls das Verhalten von Siliciumcarbid im Bereich der WDM bei 100 GPa untersucht werden. Der Experimentablauf ähnelt dabei dem des vorgestellten RAL-Experiments. Die Schwierigkeit besteht darin, dass die Struktur, bestehend aus Silizium und Kohlenstoff, komplizierter als eine reine Kohlenstoffstruktur ist. Dies resultiert aus der größeren Ordnungszahl des Siliziums, womit die Simulationen schwieriger und rechenintensiver werden.

Das zweite Experiment wird die Phasentrennung von Kohlenwasserstoffen im Bereich der WDM untersuchen. Dieses Experiment wird zum aktuellen Zeitpunkt im Mai 2016 an der LCLS durchgeführt. Dabei sollen die gleichen Techniken,

wie sie in dieser Arbeit verwendet wurden, eingesetzt werden. Für das Erreichen der WDM Bedingungen werden die getesteten Methoden der lasergetriebenen Schockkompression mit verschiedenen Schockarten verwendet: Einfach-Schock, Doppel-Schock und Rampen-Kompression. Gemessen wird dabei der Strukturfaktor, der sensitiv auf die Mischung und Entmischung des Kohlenstoffs und Wasserstoffs ist.

Durch das Aufkommen von weiteren XFELs neben der LCLS und SACLA wie der European XFEL stehen für zukünftige Experimente weitere Experimentierplätze zur Verfügung. Die großen Vorteile von XFELs sind die variable Photonenenergie und die sehr viel schmalere spektrale Bandbreite, gegenüber lasergetriebenen Röntgenquellen. Das *High-Energy-Density* Labor des European XFEL ist speziell für die Untersuchung von Materie im Bereich der Festkörperdichte und extremen Drücken ausgelegt [Nakatsutsumi 2013]. Damit ist es möglich, in den nächsten Jahren eine steigende Zahl an Experimenten auf dem Gebiet der WDM durchzuführen.

Literaturverzeichnis

- [Andruszkow 2000] J. Andruszkow, B. Aune, V. Ayvazyan, N. Baboi, R. Bakker, V. Balakin, D. Barni, A. Bazhan, M. Bernard, A. Bosotti, J. C. Bourdon, W. Brefeld, R. Brinkmann, S. Buhler, J.-P. Carneiro, M. Castellano, P. Castro, L. Catani, S. Chel, Y. Cho, S. Choroba, E. R. Colby, W. Decking, P. Den Hartog, M. Desmons, M. Dohlus, D. Edwards, H. T. Edwards, B. Faatz, J. Feldhaus, M. Ferrario, M. J. Fitch, K. Flöttmann, M. Fouaidy, A. Gamp, T. Garvey, C. Gerth, M. Geitz, E. Gluskin, V. Gretchko, U. Hahn, W. H. Hartung, D. Hubert, M. Hüning, R. Ischebek, M. Jablonka, J. M. Joly, M. Juillard, T. Junquera, P. Jurkiewicz, A. Kabel, J. Kahl, H. Kaiser, T. Kamps, V. V. Katelev, J. L. Kirchgessner, M. Körfer, L. Kravchuk, G. Kreps, J. Krzywinski, T. Lokajczyk, R. Lange, B. Leblond, M. Leenen, J. Lesrel, M. Liepe, A. Liero, T. Limberg, R. Lorenz, Lu Hui Hua, Lu Fu Hai, C. Magne, M. Maslov, G. Materlik, A. Matheisen, J. Menzel, P. Michelato, W.-D. Möller, A. Mosnier, U.-C. Müller, O. Napoly, A. Novokhatski, M. Omeich, H. S. Padamsee, C. Pagani, F. Peters, B. Petersen, P. Pierini, J. Pflüger, P. Piot, B. Phung Ngoc, L. Plucinski, D. Proch, K. Rehlich, S. Reiche, D. Reschke, I. Reyzl, J. Rosenzweig, J. Rossbach, S. Roth, E. L. Saldin, W. Sandner, Z. Sanok, H. Schlarb, G. Schmidt, P. Schmüser, J. R. Schneider, E. A. Schneidmiller, H.-J. Schreiber, S. Schreiber, P. Schütt, J. Sekutowicz, L. Serafini, D. Sertore, S. Setzer, S. Simrock, B. Sonntag, B. Sparr, F. Stephan, V. A. Sytchev, S. Tazzari, F. Tazzioli, M. Tigner, M. Timm, M. Tonutti, E. Trakhtenberg, R. Treusch, D. Trines, V. Verzilov, T. Vielitz, V. Vogel, G. v. Walter, R. Wanzenberg, T. Weiland, H. Weise, J. Weisend, M. Wendt, M. Werner, M. M. White, I. Will, S. Wolff, M. V. Yurkov, K. Zapfe, P. Zhogolev und F. Zhou, *First observation of self-amplified spontaneous emission in a free-electron laser at 109 nm wavelength*, Physical Review Letters, 85, 3825, 2000
- [Anta 2000] J. A. Anta und A. A. Louis, *Probing ion-ion and electron-ion correlations in liquid metals within the quantum hypernetted chain approximation*, Physical Review B, 61, 11400, 2000
- [Barker 1972] L. M. Barker und R. E. Hollenbach, *Laser interferometer for measuring high velocities of any reflecting surface*, Journal of Applied Physics, 43, 4669, 1972
- [Barker 1974] L. M. Barker und K. W. Schuler, *Correction to the velocity-per-fringe relationship for the VISAR interferometer*, Journal of Applied Physics, 45, 3692, 1974
- [Batani 2004] D. Batani, 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, *Hugoniot data for carbon at megabar pressures*, Physical Review Letters, 92, 065503, 2004
- [Bearden 1967] J. A. Bearden, *X-Ray Wavelengths*, Reviews of Modern Physics, 39, 78, 1967
- [Bell 1986] F. Bell, *On the Compton defect*, The Journal of Chemical Physics, 85, 303, 1986
- [Ben-Kish 2000] A. Ben-Kish, A. Fisher, E. Cheifetz und J. L. Schwob, *Extreme ultraviolet-vacuum ultraviolet spectrum detection using image plates*, Review of Scientific Instruments, 71, 2651, 2000
- [Benuzzi 2002] A. Benuzzi-Mounaix, M. Koenig, G. Huser, B. Faral, D. Batani, E. Henry, M. Tomasini, B. Marchet, T. A. Hall, M. Boustie, T. De Resseguier, M. Hallouin, F. Guyot, D. Andrault und T. Charpin, *Absolute equation of state measurements of iron using laser driven shocks*, Physics of Plasmas, 9, 2466, 2002
- [Bergstrom 1997] P. M. Bergstrom und R. H. Pratt, *An overview of the theories used in compton scattering calculations*, Radiation Physics and Chemistry, 50, 3, 1997
- [Binder 1999] H. Binder, *Lexikon der chemischen Elemente - Das Periodensystem in Fakten, Zahlen und Daten*, Hirzel Verlag, Stuttgart/Leipzig, 1999
- [Blaj 2015] G. Blaj, 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, *X-ray detectors at the Linac Coherent Light Source*, Journal of Synchrotron Radiation, 22, 577, 2015
- [Bloch 1974] B. J. Bloch und L. B. Mendelsohn, *Atomic L-shell Compton profiles and incoherent scattering factors: Theory*, Physical Review A, 9, 129, 1974

-
- [Bloch 1975] B. J. Bloch und L. B. Mendelsohn, *Comparison of methods for calculating atomic shielding factors*, Physical Review A, 12, 1197, 1975
- [Bohm 1951] D. Bohm und D. Pines, *A Collective Description of Electron Interactions. I. Magnetic Interactions*, Physical Review, 82, 625, 1951
- [Bohm 1953] D. Bohm und D. Pines, *A Collective Description of Electron Interactions: III. Coulomb Interactions in a Degenerate Electron Gas*, Physical Review, 92, 609, 1953
- [Bradley 2004] D. K. Bradley, J. H. Eggert, D. G. Hicks, P. M. Celliers, S. J. Moon, R. C. Cauble und G. W. Collins, *Shock Compressing Diamond to a Conducting Fluid*, Physical Review Letters, 93, 195506, 2004
- [Bragg 1913] W. H. Bragg und W. L. Bragg, *The Reflexion of X-rays by Crystals*, Proceedings of the Royal Society A, 88, 428, 1913
- [Bundy 1967] F. P. Bundy und J. S. Kasper, *Hexagonal Diamond - A new form of carbon*, Journal of Chemical Physics, 46, 3437, 1967
- [Bundy 1996] F. P. Bundy, W. A. Bassett, M. S. Weathers, R. J. Hemley, H. U. Mao und A. F. Goncharov, *The pressure-temperature phase and transformation diagram for carbon*, Carbon, 34, 41, 1996
- [Carroll 2014] D. Carroll, Wissenschaftlicher Kontakt RAL, Persönliche Korrespondenz zur Konversionseffizienz der CPA des Vulcan Lasersystems in der TAW, 2014
- [Chihara 1987] J. Chihara, *Difference in X-ray scattering between metallic and non-metallic liquids due to conduction electrons*, Journal of Physics F: Metal Physics, 17, 295, 1987
- [Chihara 2000] J. Chihara, *Interaction of photons with plasmas and liquid metals—photoabsorption and scattering*, Journal of Physics: Condensed Matter, 12, 231, 2000
- [Chung 2000] D. D. L. Chung, *Flexible Graphite for Gasketing, Adsorption, Electromagnetic Interference Shielding, Vibration Damping, Electrochemical Applications, and Stress Sensing*, Journal of Materials Engineering and Performance, 9, 161, 2000
- [Correa 2006] A. A. Correa, S. A. Bonev und G. Galli, *Carbon under extreme conditions: Phase boundaries and electronic properties from first-principles theory*, Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 103, 1204, 2006
- [Correa 2008] A. A. Correa, L. X. Benedict, D. Young, E. Schwegler und S. A. Bonev, *First-principles multiphase equation of state of carbon under extreme conditions*, Physical Review B, 78, 24101, 2008
- [Currat 1971] R. Currat, P. D. DeCicco und R. Kaplow, *Compton Scattering and Electron Momentum Density in Beryllium*, Physical Review B, 3, 243, 1971
- [Ding 2009] Y. Ding, A. Brachmann, F.-J. Decker, D. Dowell, P. Emma, J. Frisch, S. Gilevich, G. Hays, Ph. Hering, Z. Huang, R. Iverson, H. Loos, A. Miahnahri, H.-D. Nuhn, D. Ratner, J. Turner, J. Welch, W. White und J. Wu, *Measurements and Simulations of Ultralow Emittance and Ultrashort Electron Beams in the Linac Coherent Light Source*, Physical Review Letters, 102, 254801, 2009
- [Demtröder 2007] W. Demtröder, *Laserspektroskopie*, Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York, 2007
- [Drake 2006] R. P. Drake, *High-Energy-Density Physics*, Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York, 2006
- [Duffy 2010] D. M. Duffy, *Fusion power: a challenge for materials science*, Philosophical Transactions of the Royal Society A, 368, 3315, 2010
- [Dufour 2007] P. Dufour, J. Liebert, G. Fontaine und N. Behara, *White dwarf stars with carbon atmospheres*, Nature, 450, 522, 2007
- [Eisenberger 1970] P. Eisenberger und P. M. Platzman, *Compton scattering of x rays from bound electrons*, Physical Review A, 2, 415, 1970
- [Eliezer 2002] S. Eliezer, *The Interaction of High-Power Lasers with Plasmas*, Institute of Physics Publishing, Bristol, 2002

-
- [Erskine 1991] D. J. Erskine und W. J. Nellis, *Shock-induced martensitic phase transformation of oriented graphite to diamond*, Nature, 349, 317, 1991
- [Eggert 2009] J. H. Eggert, D. G. Hicks, P. M. Celliers, D. K. Bradley, R. S. McWilliams, R. Jeanloz, J. E. Miller, T. R. Boehly und G. W. Collins, *Melting temperature of diamond at ultrahigh pressure*, Nature Physics, 6, 40, 2009
- [Fortov 1996] V. Fortov, G. Kanel, A. Utkin, O. Vorobiev, G. Kessler, H. Karow, K. Baumung, B. Goelund und V. Light, *Intense shock waves in hot dense matter generated by high-power light ion beams*, American Institute of Physics Conference Proceedings, 369, 1060, 1996
- [Fratanduono 2010] D. E. Fratanduono, PhD Thesis, *The Index of Refraction of Lithium Fluoride at Pressures in Excess of 100 GPa*, University of Rochester, Rochester, New York, 2010
- [Fried 2000] L. E. Fried und W. M. Howard, *Explicit Gibbs free energy equation of state applied to the carbon phase diagram*, Physical Review B, 61, 8734, 2000
- [Garcia 2008] E. Garcia Saiz, 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, *Probing warm dense lithium by inelastic X-ray scattering*, Nature Physics, 4, 940, 2008
- [Gasser 1983] F. Gasser and C. Tavard, *Atomic K- and L-shell Compton defects for the study of electronic structures*, Physical Review A, 27, 117, 1983
- [Gericke 2010] D. O. Gericke, J. Vorberger, K. Wünsch und G. Gregori, *Screening of ionic cores in partially ionized plasmas within linear response*, Physical Review E, 81, 065401, 2010
- [Gericke 2010b] D. O. Gericke, K. Wünsch, A. Grinenko und J. Vorberger, *Structural Properties of Warm Dense Matter*, Journal of Physics: Conference Series 220, 012001, 2010
- [Ghiringhelli 2005] L. M. Ghiringhelli, J. H. Los, E. J. Meijer, A. Fasolinoud und D. Frenkel, *Modeling the Phase Diagram of Carbon*, Physical Review Letters, 94, 145701, 2005
- [Ghiringhelli 2007] L. M. Ghiringhelli, C. Valeriani, E. J. Meijer und D. Frenkel, *Local Structure of Liquid Carbon Controls Diamond Nucleation*, Physical Review Letters, 99, 055702, 2007
- [Glenzer 2009] S. H. Glenzer und R. Redmer, *X-ray Thomson scattering in high energy density plasmas*, Reviews of Modern Physics, 81, 1625, 2009
- [Gregori 2003] G. Gregori, S. H. Glenzer, W. Rozmus, R. W. Lee und O. L. Landen, *Theoretical model of X-ray scattering as a dense matter probe*. Physical Review E, 67, 26412, 2003
- [Gregori 2004] G. Gregori, S. H. Glenzer, F. J. Rogers, S. M. Pollaine, O. L. Landen, C. Blancard, G. Faussurier, P. Renaudin, S. Kuhlbrodt und R. Redmer, *Electronic structure measurements of dense plasmas*, Physics of Plasmas, 11, 2754, 2004
- [Grover 1979] R. Grover, *Does diamond melt?*, The Journal of Chemical Physics, 71, 3824, 1979
- [Grumbach 1996] M. P. Grumbach und R. M. Martin, *Phase diagram of carbon at high pressure: Analogy to silicon*, Solid State Communications, 100, 61, 1996
- [Gust 1980] W. H. Gust, *Phase transition and shock-compression parameters to 120 GPa for three types of graphite and for amorphous carbon*, Physical Review B, 22, 4744, 1980
- [Hamamatsu Photonics K.K.] High dynamic range streak camera C7700 series Datenblatt, <https://www.hamamatsu.com/jp/en/product/category/5001/5011/5045/C7700-11/index.html>, 20.12.2015
- [Hayes 2001] D. Hayes, *Unsteady compression waves in interferometer windows*, Journal of Applied Physics 89, 6484, 2001
- [Helfrich 2015] J. Helfrich, D. Kraus, A. Ortner, S. Frydrych, G. Schaumann, N. J. Hartley, G. Gregori, B. Kettle, D. Riley, D. C. Carroll, M. M. Notley, C. Spindloe und M. Roth, *Investigation of the solid-liquid phase transition of carbon at 150 GPa with spectrally resolved X-ray scattering*, High Energy Density Physics, 14, 38, 2015

-
- [Henke 1993] B. L. Henke, E. M. Gullikson und J. C. Davis, *X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission and reflection at $E=50\text{-}30000$ eV, $Z=1\text{-}92$* , Atomic Data and Nuclear Data Tables Volume 54, 181, 1993
- [Hohenberg 1964] G. Hohenberg und W. Kohn, *Inhomogeneous Electron Gas*, Physical Review B, 136, 864, 1964
- [Holm 1989] P. Holm und R. Ribberfors, *First correction to the nonrelativistic Compton cross section in the impulse approximation*, Physical Review A, 40, 6251, 1989
- [Hölzer 1997] G. Hölzer, M. Fritsch, M. Deutsch, J. Härtwig und E. Färster, *$K_{\alpha 1,2}$ and $K_{\beta 1,3}$ x-ray emission lines of the 3d transition metals*, Physical Review A, 56, 6, 1997
- [van Horn 1991] H. M. van Horn, *Dense Astrophysical Plasmas*, Science 252, 384, 1991
- [Huang 2012] Z. Huang und I. Lindau, *Free-electron lasers: SACLA hard-X-ray compact FEL*, Nature Photonics, 6, 505, 2012
- [Hubbel 1999] J. H. Hubbel, *Review of photon interaction cross section data in the medical and biological context*, Physics in Medicine and Biology, 44, R1-R22, 1999
- [Ichimaru 1982] S. Ichimaru, *Strongly coupled plasmas: high-density classical plasmas and degenerate electron liquids*, Reviews of Modern Physics, 54, 1017, 1982
- [Issolah 1988] A. Issolah, B. Levy, A. Beswick und G. Loupiau, *Compton scattering beyond the impulse approximation: Application to the core electrons of carbon*, Physical Review A, 38, 4509, 1988
- [Izumi 2006] N. Izumi, R. Snavely, G. Gregori, J. A. Koch, H.-S. Park und B. A. Remington, *Application of imaging plates to x-ray imaging and spectroscopy in laser plasma experiments (invited)*, Review of Scientific Instruments 77, 10E325, 2006
- [Jackson 1975] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics, 2nd edn*, John Wiley & Sons, New York, 1975
- [James 1962] R. W. James, *The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays*, Ox Bow, Woodbridge, CT, 1962
- [Knudson 2008] M. D. Knudson, M. P. Desjarlais und D. H. Dolan, *Shock-Wave Exploration of the High-Pressure Phases of Carbon*, Science 322, 1822, 2008
- [Kohn 1965] W. Kohn und L. J. Sham, *Quantum Density Oscillations in an Inhomogeneous Electron Gas*, Physical Review A, 137, 1697, 1965
- [Koenig 2010] M. Koenig, A. Benuzzi-Mounaix, E. Brambrink, A. Nourou, A. Ravasio, H. Wei, T. Vinci, S. Mazevet, F. Ocelli, G. Morard, F. Guyot, T. D. Resseguier und E. Lescoute, *Simulating earth core using high energy lasers*, High Energy Density Physics, 6, 210, 2010
- [Kraus 2012] D. Kraus, *Characterization of phase transitions in warm dense matter with X-ray scattering*, Dissertation, TU Darmstadt, 2012
- [Kraus 2013] D. Kraus, 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, *Probing the Complex Ion Structure in Liquid Carbon at 100 GPa*, Physical Review Letters, 111, 255501, 2013
- [Kraus 2013 Support Material] D. Kraus, 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, *Probing the Complex Ion Structure in Liquid Carbon at 100 GPa Online Supporting Material*, Physical Review Letters, 111, 255501, 2013
- [Kraus 2016] D. Kraus, A. Ravasio, M. Gauthier, D. O. Gericke, J. Vorberger, S. Frydrych, J. Helfrich, L. B. Fletcher, G. Schaumann, B. Nagler, B. Barbrel, B. Bachmann, E. J. Gamboa, S. Göde, E. Granados, G. Gregori, H. J. Lee, P. Neumayer, W. Schumacher, T. Döppner, R. W. Falcone, S. H. Glenzer und M. Roth, *Nanosecond formation of diamond and lonsdaleite at shock compression of graphite*, Nature Communications 7, 10970, 2016
- [Kremp 2005] D. Kremp, M. Schlanges und W. D. Kraeft, *Quantum Statistics of Nonideal Plasmas*, Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2005
- [Kresse 1993] G. Kresse und J. Hafner, *Ab initio molecular dynamics for liquid metals*, Physical Review B, 47, 558, 1993

-
- [Kresse 1994] G. Kresse und J. Hafner, *Ab initio molecular-dynamics simulation of the liquid-metal-amorphous semiconductor transition in germanium*, Physical Review B, 49, 14251, 1994
- [Kresse 1996] G. Kresse und J. Furthmüller, *Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set*, Physical Review B, 54, 11169, 1996
- [Kritcher 2007] A. L. Kritcher, P. Neumayer, M. K. Urry, H. Robey, C. Niemann, O. L. Landen, E. Morse und S.H. Glenzer, *K-alpha conversion efficiency measurements for X-ray scattering in inertial confinement fusion plasmas*, High Energy Density Physics, 3, 156, 2007
- [Kritcher 2008] A. L. Kritcher, P. Neumayer, J. Castor, T. Döppner, R. W. Falcone, O. L. Landen, H. J. Lee, R. W. Lee, E. C. Morse, A. Ng, S. Pollaine, D. Price und S. H. Glenzer, *Ultrafast x-ray Thomson scattering of shock-compressed matter*, Science, 322, 69, 2008
- [Kritcher 2009] A. L. Kritcher, P. Neumayer, C. R. D. Brown, P. Davis, T. Döppner, R. W. Falcone, D. O. Gericke, G. Gregori, B. Holst, O. L. Landen, H. J. Lee, E. C. Morse, A. Pelka, R. Redmer, M. Roth, J. Vorberger, K. Wünsch und S. H. Glenzer, *Measurements of ionic structure in shock compressed lithium hydride from ultrafast x-ray Thomson scattering*, Physical Review Letters, 103, 245004, 2009
- [Krüger 2007] A. Krüger, *Neue Kohlenstoffmaterialien Eine Einführung*, Teubner, Wiesbaden, 2007
- [Kubo 1957] R. Kubo, *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, 570, 1957
- [Kurdyumov 2012] A. V. Kurdyumov, V. F. Britun, V. V. Yarosh, A. I. Danilenko und V. B. Zelyavskii, *The Influence of the Shock Compression Conditions on the Graphite Transformations into Lonsdaleit and Diamond*, Journal of Superhard Materials, 34, 19, 2012
- [Landau 1962] L. D. Landau und E. M. Lifshitz, *The classical theory of fields 2nd Rev. ed.*, Pergamon Press, Oxford, 1962
- [Landau 1995] L. D. Landau, E. M. Lifshitz und L. P. Pitaevskii, *Electrodynamics of Continuous Media Physical 2nd edition, Landau and Lifshitz Course in Theoretical Physics. Vol. 8*, Pergamon Press, Oxford, 1995
- [Lässer 2007] R. Lässer, N. Baluc, J.-L. Boutard, E. Diegele, S. Dudarev, M. Gasparotto, A. Möslang, R. Pippin, B. Riccardi und B. van der Schaaf, *Structural materials for DEMO: The EU development, strategy, testing and modelling*, Fusion Engineering and Design, 82, 511, 2007
- [LCLS/MEC 2016] Maschinenparameter LCLS im Matter in Extreme Conditions Labor Internetpräsenz, https://portal.slac.stanford.edu/sites/lcls_public/Instruments/mec/Pages/Specifications.aspx, Zugriff: 3.04.2016
- [Lee 2002] R. W. Lee, H. A. Baldis, R. C. Cauble, O. L. Landen, J. S. Wark, A. Ng, S. J. Rose, C. Lewis, D. Riley, J.-C. Gauthier und P. Audebert, *Plasma-based studies with intense x-ray and particle beam sources*, Laser and Particle Beams, 20, 527, 2002
- [Legall 2006] H. Legall, H. Stiel, A. Antonov, I. Grigorieva, V. Arkadiev und A. Bjeoumikhov, *A new generation of X-ray optics based on pyrolytic graphite, in proceedings of FEL, BESSY Berlin, Germany, 2006*
- [LePape 2010] S. Le Pape, P. Neumayer, C. Fortmann, T. Döppner, P. Davis, A. Kritcher, O. Landen und S. H. Glenzer, *X-ray radiography and scattering diagnosis of dense shock-compressed matter*, Physics of Plasmas, 17, 056309, 2010
- [Li 1976] H. H. Li, *Refractive index of alkali halides and its wavelength and temperature derivatives*, Journal of Physical and Chemical Reference Data, 5, 329, 1976
- [Lindl 2004] J. D. Lindl, P. Amendt, R. L. Berger, S. G. Glendinning, S. H. Glenzer, S. W. Haan, R. L. Kauffman, O. L. Landen und L. J. Suter, *The physics basis for ignition using indirect-drive targets on the National Ignition Facility*, Physics of Plasmas 11, 339, 2004
- [Lovesey 1984] S. W. Lovesey, *Theory of neutron scattering from condensed matter, vol. 1 and 2*, Oxford University Press, Oxford, 1984
- [Lyon 1992] S. P. Lyon und J. D. Johnson, *SESAME: The Los Alamos National Laboratory Equation of State Database*, LANL Report No. LA-UR-92-3407, 1992

- [Ma 2014] T. Ma, 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. Zastra, S. H. Glenzer und T. Döppner, *Observations of strong ion-ion correlations in dense plasmas*, Physics of Plasmas, 21, 056302, 2014
- [MacFarlane 2006] J. J. MacFarlane, I. E. Golovkin und P. R. Woodruff, *HELIOS-CR - A 1-D Radiation-Magnetohydrodynamics Code with Inline Atomic Kinetics Modeling*, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 99, 381, 2006
- [MacKinnon 2014] A. J. MacKinnon, N. B. Meezan, J. S. Ross, S. Le Pape, L. Berzak Hopkins, L. Divol, D. Ho, J. Milovich, A. Pak, J. Ralph, T. Döppner, P. K. Patel, C. Thomas, R. Tommasini, S. Haan, A. G. MacPhee, J. McNaney, J. Caggiano, R. Hatarik, R. Bionta, T. Ma, B. Spears, J. R. Rygg, L. R. Benedetti, R. P. J. Town, D. K. Bradley, E. L. Dewald, D. Fittinghoff, O. S. Jones, H. R. Robey, J. D. Moody, S. Khan, D. A. Callahan, A. Hamza, J. Biener, P. M. Celliers, D. G. Braun, D. J. Erskine, S. T. Prisbrey, R. J. Wallace, B. Kozioziemski, R. Dylla-Spears, J. Sater, G. Collins, E. Storm, W. Hsing, O. Landen, J. L. Atherton, J. D. Lindl, M. J. Edwards, J. A. Frenje, M. Gatu-Johnson, C. K. Li, R. Petrasso, H. Rinderknecht, M. Rosenberg, F. H. Séguin, A. Zylstra, J. P. Knauer, G. Grim, N. Guler, F. Merrill, R. Olson, G. A. Kyrala, J. D. Kilkenny, A. Nikroo, K. Moreno, D. E. Hoover, C. Wild und E. Werner, *High-density carbon ablator experiments on the National Ignition Facility*, Physics of Plasmas 21, 056318, 2014
- [Madey 1971] J. Madey, *Stimulated Emission of Bremsstrahlung in a Periodic Magnetic Field*, Journal of Applied Physics 42, 1906, 1971
- [Madhusudhan 2012] N. Madhusudhan, K. K. M. Lee und O. Mousis, *A possible carbon-rich interior in Super-Earth 55 Cancri e*, The Astrophysical Journal Letters, 759, 2, 2012
- [Malitson 1965] I. H. Malitson, *Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica*, Journal of the Optical Society of America, 55, 1205, 1965
- [Meadowcroft 2008] A. L. Meadowcroft, C. D. Bentley und E. N. Stott, *Evaluation of the sensitivity and fading characteristics of an image plate system for x-ray diagnostics*, Review of Scientific Instruments, 79, 113102, 2008
- [Mermin 1965] N. D. Mermin, *Thermal Properties of the Inhomogeneous Electron Gas*, Physical Review, 137, A1441, 1965
- [Mizogawa 1997] T. Mizogawa, *An X-ray spectrometer using a two-dimensional PSPC and a flat crystal*, Physica Scripta, 1997, 403, 1997
- [DuMond 1929] J. W. M. DuMond, *Compton Modified Line Structure and its Relation to the Electron Theory of Solid Bodies*, Physical Review, 33, 643, 1929
- [Molodets 1998] A. M. Molodets, *Free Energy of Diamond*, Combustion, Explosion, and Shock Waves, 34, 94, 1998
- [Moore 1973] A. W. Moore, *Chemistry and physics of carbon: highly oriented pyrolytic graphite*, Marcel Dekker, New York, 1973
- [Mulser 2010] P. Mulser und D. Bauer, *High power laser-matter interaction*, Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York, 2010
- [Mundy 2008] C. J. Mundy, A. Curioni, N. Goldman, I. F. W. Kuo, E. J. Reed, L. E. Fried und M. Ianuzzi, *Ultrafast transformation of graphite to diamond: An ab initio study of graphite under shock compression*, The Journal of Chemical Physics, 128, 184701, 2008
- [Nagler 2014] B. Nagler SLAC Wissenschaftlicher Kontakt und MEC Verantwortlicher, *Persönliche Korrespondenz Kalibration Schmierbild Kameras VISAR MEC*, 2014
- [Nagler 2015] B. Nagler, 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, *The Matter in Extreme Conditions instrument at the Linac Coherent Light Source*, Journal of Synchrotron Radiation, 22, 520, 2015
- [Nakatsutsumi 2013] M. Nakatsutsumi und T. Tschentscher, *CONCEPTUAL DESIGN REPORT Scientific Instrument High Energy Density Physics (HED)*, XFEL.EU TR-2013-003, 2013
- [Nellis 2001] W. J. Nellis, A. C. Mitchell und A. K. McMahan, *Carbon at pressures in the range 0.1-1 TPa (10 Mbar)*, Journal of Applied Physics, 90, 696, 2001

-
- [Neumayer 2010] P. Neumayer, C. Fortmann, T. Döppner, P. Davis, R. W. Falcone, A. L. Kritcher, O. L. Landen, H. J. Lee, R. W. Lee, C. Niemann, S. Le Pape und S. H. Glenzer, *Plasmons in Strongly Coupled Shock-Compressed Matter*, Physical Review Letters, 105, 075003, 2010
- [Notley 1997] M. Notley, A. Damerfell, J. Leach, D. Neely, G. Tallents, J. Lin, R. Smith und S. J. Pestehe, *The Von Hamos Spectrometer - a hard X-ray diagnostic*, CLF Annual Report, 1997/98
- [Opal 2016] Internetpräsenz des Herstellers der OPAL-1000 Kamera, LCLS Transmissionsspektrometer http://www.adimec.com/en/Service_Menu/News/Introduction_OPAL-1000 24.04.2016
- [Paakkari 1974] T. Paakkari und P. Suortti, *Experimental Compton-scattering cross sections for Si and Ge*, Physical Review B, 9, 1756, 1974
- [Paterson 2008] I. J. Paterson, R. J. Clarke, N. C. Woolsey und G. Gregori, *Image plate response for conditions relevant to laser-plasma interaction experiments*, Measurement Science and Technology, 19, 9, 2008
- [Pauling 1932] L. Pauling und J. Sherman, *Screening Constants for Many-electron Atoms*, Zeitschrift für Kristallographie, 1, 81, 1932
- [Pepler 1993] D. A. Pepler, C. N. Danson, R. Bann, I. N. Ross, R. M. Stevenson, M. J. Norman, M. Desselberger und Oswald Willi, *Focal spot smoothing and tailoring for high-power laser applications*, Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series, 1870, 76, 1993
- [Perdew 1996] J. P. Perdew, K. Burke und M. Ernzerhof, *Generalized Gradient Approximation Made Simple*, Physical Review Letters, 77, 3865, 1996
- [Pines 1952] D. Pines und D. Bohm, *A Collective Description of Electron Interactions: II. Collective vs Individual Particle Aspects of the Interactions*, Physical Review, 85, 338, 1952
- [Redmer 2005] R. Redmer, H. Reinholz, G. Ropke, R. Thiele und A. Holl, *Theory of X-ray Thomson scattering in dense plasmas*, IEEE Transactions on Plasma Science, 33, 1, 2005
- [Reichl 2004] L. E. Reichl, *A modern course in statistical physics*, Wiley-VCH, 2nd edition, 2004
- [Renninger 1956] M. Renninger, *Absolut-Vergleich der stärksten Röntgenreflexe verschiedener Kristalle*, Zeitschrift für Kristallographie, 107, 464, 1956
- [Riley 2002] D. Riley, N. C. Woolsey, D. McSherry, F. Y. Khattak und I. Weaver, *He-like x-ray line emission from laser irradiated sources*, Plasma Sources Science and Technology, 11, 484, 2002
- [Ross 1981] M. Ross, *The ice layer in Uranus and Neptune-diamonds in the sky?*, Nature, 292, 435, 1981
- [RDGroupSCSS 2005] R D Group SCSS XFEL, *SCSS X-FEL conceptual design report*, RIKEN Harima Institute, SPring-8, 1-1-1, Kouto, Mikazuki, Sayo, Hyogos Japan, 679-5148, 2005
- [Rubenchik 1991] A. M. Rubenchik, *Handbook of Plasma Physics, Physics of Laser Plasma, Vol. 3*, North-Holland, New York, 1991
- [Schmüser 2009] P. Schmüser, M. Dohlus und J. Rossbach, *Ultraviolet and Soft X-Ray Free-Electron Lasers*, Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York, 2009
- [Sherman 2012] B. L. Sherman, H. F. Wilson, D. Weeraratne und B. Militzer, *Ab initio simulations of hot dense methane during shock experiments*, Physical Reviews B, 86, 224113, 2012
- [SGLCarbon] SGL Carbon, Special Graphite Grade R 6650. Datenblatt R 6650/01.01/D/E, 2012
- [Spitzer 1953] L. Spitzer und R. Härm, *Transport Phenomena in a Completely Ionized Gas*, Physical Reviews, 89, 977, 1953
- [Stanley 2004] S. Stanley und J. Bloxham, *Convective-region geometry as the cause of Uranus' and Neptune's unusual magnetic fields*, Nature, 428, 151, 2004
- [Strickland 1985] D. Strickland und G. Mourou, *Compression of amplified chirped optical pulses*, Optics Communications, 56, 219, 1985

-
- [Ströck 2006] M. Ströck, Kohlenstoff, http://de.wikipedia.org/w/index.php?title=Datei:Eight_Allotropes_of_Carbon.png&filetimestamp=20080511205146 Zugriff: 25.12.2015
- [Strunz 2001] H. Strunz und E. H. Nickel, *Strunz Mineralogical Tables, Chemical-Structural Mineral Classification System. 9. Auflage*, Stuttgart, 2001
- [Thiel 1977] M. van Thiel, *Compendium of shock wave data*, Lawrence Livermore Laboratory Report UCRL-50108, 1977
- [Thiel 1992] M. van Thiel und F. H. Ree, *High-pressure liquid-liquid phase change in carbon*, Physical Review B, 48, 3591, 1992
- [Thorne 1999] A. Thorne, U. Litzén und S. Johannson, *Spectrophysics – Principles and Applications*, Springer, Berlin Heidelberg New York, 1999
- [Troullier 1991] N. Troullier und José Luís Martins, *Efficient pseudopotentials for plane-wave calculations*, Physical Review B, 43, 1991
- [Vechten 1973] J. A. van Vechten, *Quantum Dielectric Theory of Electronegativity in Covalent Systems. III. Pressure-Temperature Phase Diagrams, Heats of Mixing, and Distribution Coefficients*, Physical Review B, 7, 1479, 1973
- [Vinko 2012] S. M. Vinko, O. Ciricosta, B. I. Cho, K. Engelhorn, H. K. Chung, C. R. D. Brown, T. Burian, J. Chalupsky, R. W. Falcone, C. Graves, V. Hajkova, A. Hingginbotham, L. Juha, J. Krzywinski, H. J. Lee, M. Messerschmidt, C. D. Murphy, Y. Ping, A. Scherz, W. Schlotter, S. Toleikis, 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, *Creation and diagnosis of a solid-density plasma with an X-ray free-electron laser*, Nature, 482, 59, 2012
- [Vocadlo 2003] L. Vocadlo, D. Alfe, M. J. Gillan, I. G. Wood, J. P. Brodholt und G. D. Price, *Possible thermal and chemical stabilization of body-centred-cubic iron in the Earth's core*, Nature, 424, 536, 2003
- [VULCANLaser] Internetpräsenz des RAL <http://www.clf.rl.ac.uk/Facilities/Vulcan/12248.aspx> 26.10.2015
- [Wang 2005] X. Wang, S. Scandolo und R. Car, *Carbon phase diagram from Ab Initio molecular dynamics*, Physical Review Letters, 95, 185701, 2005
- [Waasmaier 1995] D. Waasmaier und A. Kirfel, *New analytical scattering-factor functions for free atoms and ions*, Acta Crystallographica Section A, 51, 416, 1995
- [Wise 1986] J. S. Wise und L. C. Chhabildas, *Shock Waves in Condensed Matter; Laser Interferometer Measurements of Refractive Index in Shock-Compressed Materials*, edited by Y. M. Gupta, Plenum, New York, 1986
- [Workman 2001] J. Workman und G. A. Kyrala, *X-ray yield scaling studies performed on the OMEGA laser*, Review of Scientific Instruments, 72, 678, 2001
- [Wünsch 2011] K. Wünsch, *Theory of X-ray Thomson Scattering in Warm Dense Matter*, PhD thesis, University of Warwick, 2011
- [Yu 2000] L. H. Yu, M. Babzien, I. I. Ben-Zvi, L. DiMauro, A. Doyuran, W. Graves, E. Johnson, S. Krinsky, R. Malone, I. I. Pogorelsky, J. Skaritka, G. Rakowsky, L. Solomon, X. J. Wang, M. Woodle, V. V. Yakimenko, S. Biedron, J. Galayda, E. Gluskin, J. Jagger, V. V. Sajaev und I. Vasserman, *High-gain harmonic-generation free-electron laser*, Science, 289, 932, 2000
- [Yu 2003] L. H. Yu, L. DiMauro, A. Doyuran, W. S. Graves, E. D. Johnson, R. Heese, S. Krinsky, H. Loos, J. B. Murphy, G. Rakowsky, J. Rose, T. Shaftan, B. Sheehy, J. Skaritka, X. J. Wang und Z. Wu, *First ultraviolet high-gain harmonic-generation free-electron laser*, Physical Review Letters, 91, 074801, 2003
- [Zastra 2012] U. Zastra, C. R. D. Brown, T. Döppner, S. H. Glenzer, G. Gregori, H. J. Lee, H. Marschner, S. Toleikis, O. Wehrhan und E. Förster, *Focal aberrations of large-aperture HOPG von-Hamos x-ray spectrometers*, Journal of Instrumentation, 7, 09015, 2012
- [Zastra 2013] U. Zastra, A. Woldegeorgis, E. Förster, R. Loetzsch, H. Marschner und I. Uschmann, *Characterization of strongly-bent HAPG crystals for von-Hamos x-ray spectrographs*, Journal of Instrumentation, 8, 10006, 2013
- [Zastra 2016] U. Zastra, Diskussion über die Mosaizität der am LCLS MEC verwendeten HAPG Kristalle, Persönlichesgespräch, GSI, 12.01.2016

[Zazula 1997] J. M. Zazula, *On Graphite Transformations at High Temperature and Pressure Induced by Absorption of the LHC Beam*, CERN, LHC Project Note 78, 1997

[Zeldovic 1966] Y. B. Zeldovic und Y. P. Raizer, *Physics of shock waves and high-temperature hydrodynamic phenomena*, Academic Press, New York London, 1966

A Veröffentlichungen

1 Autor

- J. Helfrich, D. Kraus, A. Ortner, S. Frydrych, G. Schaumann, N. J. Hartley, G. Gregori, B. Kettle, D. Riley, D. C. Carroll, M. M. Notley, C. Spindloe und M. Roth Investigation of the solid-liquid phase transition of carbon at 150 GPa with spectrally resolved X-ray scattering, *High Energy Density Physics*, 14, 38, 2015
- J. Helfrich, S. Frydrych, G. Schaumann, B. Barbrel, J. Vorberger, D. O. Gericke, B. Bachmann, L. B. Fletcher, E. J. Gamboa, S. Göde, M. Gauthier, E. Granados, H. J. Lee, B. Nagler, A. Ravasio, W. Schumaker, T. Döppner, R. W. Falcone, S. H. Glenzer, M. Roth und D. Kraus, Investigation of Warm Dense Carbon in the 100-200 GPa Regime, *News and Reports from High Energy Density generated by Heavy iOn and Laser Beams 2013 - 2014*

2 Co-Autor

- D. Kraus, A. Ravasio, M. Gauthier, D. O. Gericke, J. Vorberger, S. Frydrych, J. Helfrich, L. B. Fletcher, G. Schaumann, B. Nagler, B. Barbrel, B. Bachmann, E. J. Gamboa, S. Göde, E. Granados, G. Gregori, H. J. Lee, P. Neumayer, W. Schumaker, T. Döppner, R. W. Falcone, S. H. Glenzer und M. Roth, Nanosecond formation of diamond and lonsdaleite by shock compression of graphite, *Nature Communications* 7, 10970, 2016
- D. Kraus, J. Vorberger, J. Helfrich, D. O. Gericke, B. Bachmann, V. Bagnoud, B. Barbrel, A. Blazevic, 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. 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. Wunsch, S. H. Glenzer, M. Roth und R. W. Falcone, The complex ion structure of warm dense carbon measured by spectrally resolved x-ray scattering, *Physics of Plasmas*, 22, 5, 2015
- W. Cayzac, V. Bagnoud, M. M. Basko, S. Bedacht, A. Blazevi, S. Busold, O. Deppert, M. Ehret, A. Frank, D. O. Gericke, L. Hallo, J. Helfrich, E. Kjartansson, A. Knetsch, D. Kraus, G. Malka, A. Ortner, K. Pepitone, G. Schaumann, T. Schlegel, D. Schumacher, An. Tauschwitz, J. Vorberger, F. Wagner und M. Roth, Ion energy loss at the stopping-power maximum in a laser-generated plasma, *News and Reports from High Energy Density generated by Heavy iOn and Laser Beams 2013 - 2014*
- S. Krüger, F. Witte, J. Helfrich und J. Grottemeyer, Mass-analyzed-threshold-ionization (MATI) spectroscopy of 1,2,3-substituted halogenated benzenes via different intermediate vibrational states in the S_1 state, *RSC Advances*, 5, 937, 2014

B Anhang

1 SGL Carbon

Eigenschaft	Wert	Test Standard
Durchschnitts Korngröße	7 μm	-
Material Dichte	1,84 g/cm^3	DIN IEC 604113/203
Porosität	10 Vol. %	DIN 66133
Porengröße	0,8 μm	DIN 66133
Druckfestigkeit	0,15 GPa	DIN 51910
Aschewert	< 100 ppm	DIN 51903

Tabelle B.1.: Materialeigenschaften Kohlenstoff bezogen von SGL Carbon [SGLCarbon], für das Experiment am RAL.

2 Geschwindigkeiten im LiF

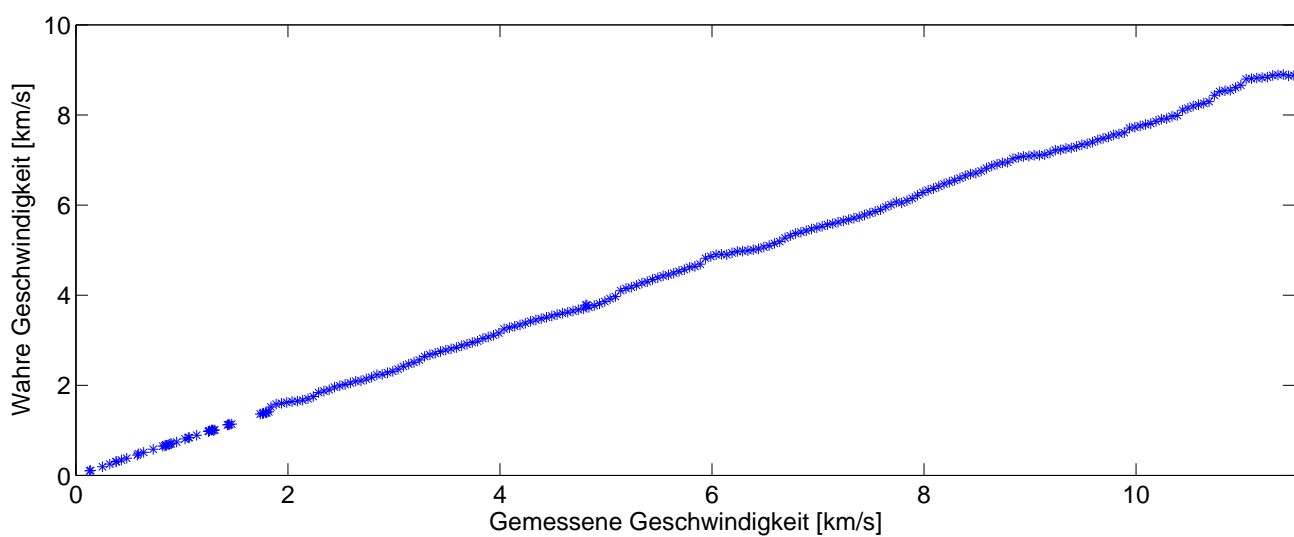


Abbildung B.1.: Dargestellt ist die wahre Geschwindigkeit einer Grenzfläche beobachtet durch ein LiF Fenster, in Abhängigkeit der gemessenen Geschwindigkeit mit einem VISAR-System. Die Daten entstammen der Arbeit von D. Fratanduono [Fratanduono 2010] und wurden bei einer Wellenlänge von 532 nm aufgenommen. Diese Wellenlänge entspricht der Wellenlänge des VISAR-Systems am LCLS.

3 Ergebnisse HELIOS-Simulationen

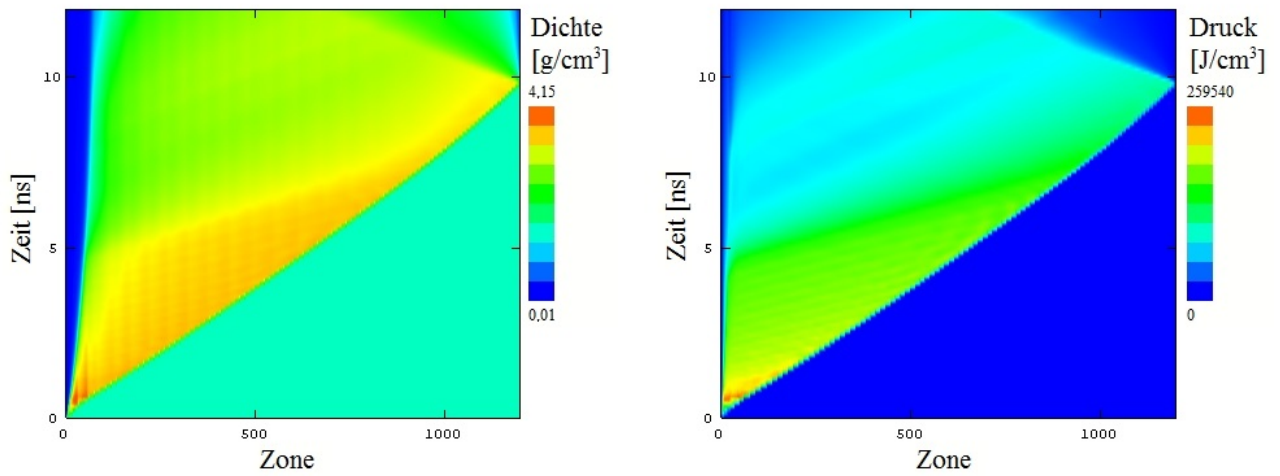


Abbildung B.2.: Ergebnisse der HELIOS-Simulation für die verwendeten Kohlenstoffproben mit einer Dichte von $1,30 \text{ g/cm}^3$ am RAL.

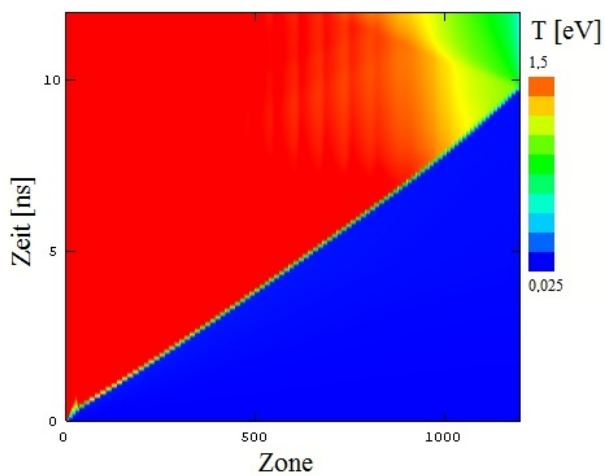


Abbildung B.3.: Ergebnisse der HELIOS-Simulation für die verwendeten Kohlenstoffproben mit einer Dichte von $1,30 \text{ g/cm}^3$ am RAL.

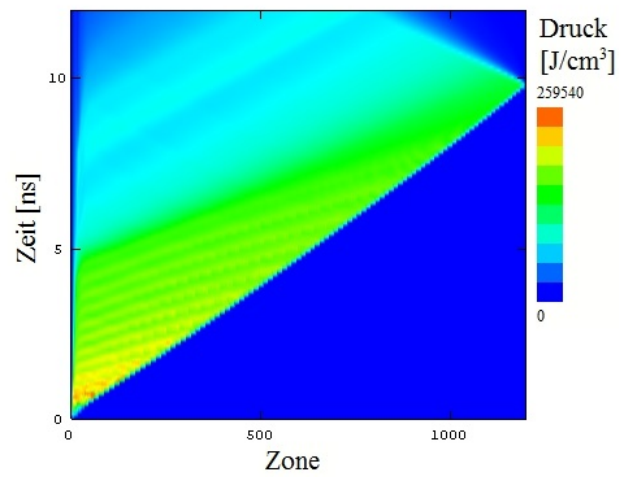
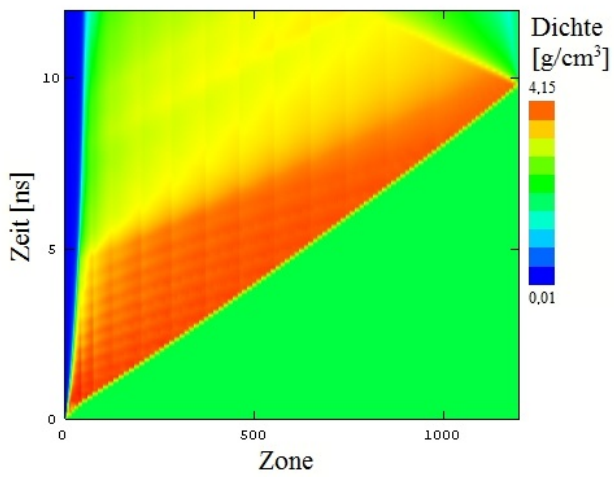


Abbildung B.4.: Ergebnisse der HELIOS-Simulation für die verwendeten Kohlenstoffproben mit einer Dichte von $1,84 \text{ g/cm}^3$ am RAL.

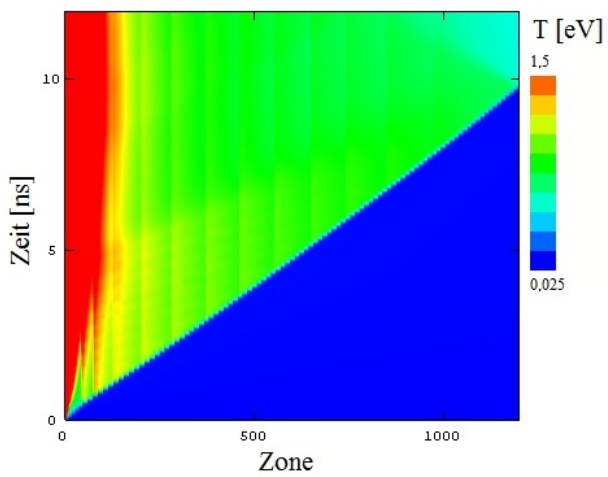


Abbildung B.5.: Ergebnisse der HELIOS-Simulation für die verwendeten Kohlenstoffproben mit einer Dichte von $1,84 \text{ g/cm}^3$ am RAL.

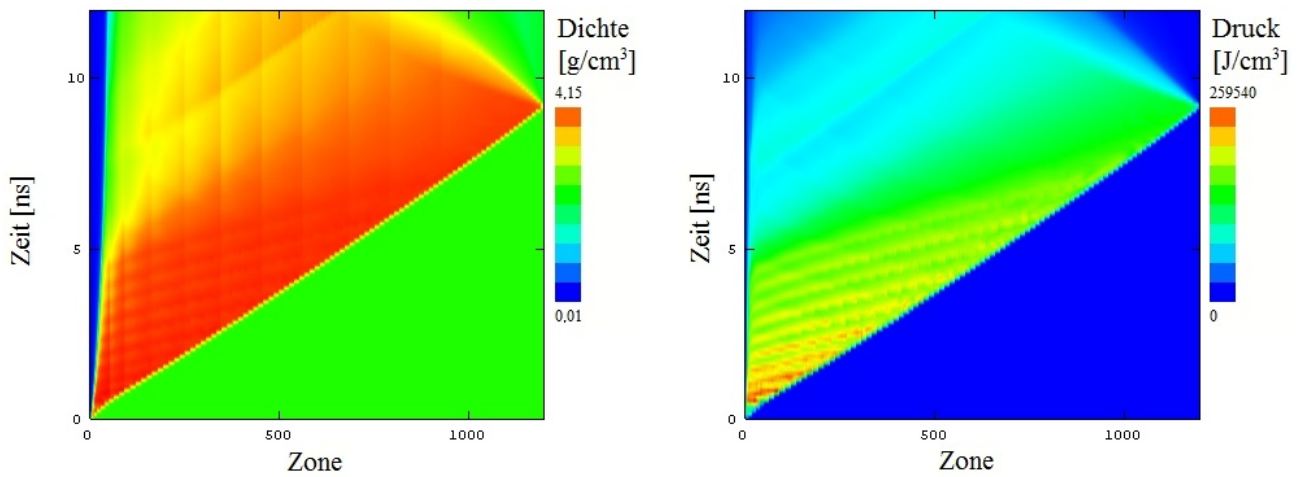


Abbildung B.6.: Ergebnisse der HELIOS-Simulation für die verwendeten Kohlenstoffproben mit einer Dichte von $2,25 \text{ g/cm}^3$ am RAL.

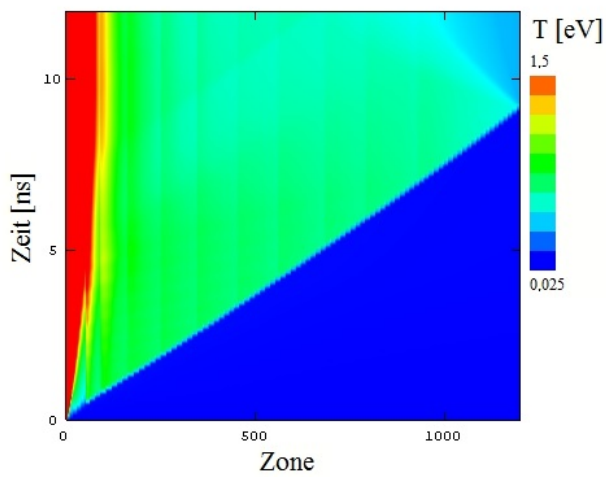


Abbildung B.7.: Ergebnisse der HELIOS-Simulation für die verwendeten Kohlenstoffproben mit einer Dichte von $2,25 \text{ g/cm}^3$ am RAL.

4 Ergebnisse Ion-Ion-Strukturfaktor und Helios Simulationen

Im Folgenden sind die Ergebnisse aller einzelnen Messungen des am LCLS durchgeführten Experimentes angegeben. Für jeden Probe sind die gemessenen Parameter: S_{ii} Ion-Ion-Strukturfaktor, v_s Schockgeschwindigkeit, ρ_1 Dichte, P Druck jeweils mit Fehler, die FEL-Energie und die kumulierte Laserenergie. Im Anschluss befinden sich die Ergebnisse der Helios Simulationen für $k = 4, 12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$.

Messung	Dichte [g/cm ³]	k [10 ¹⁰ m ⁻¹]	v_s [km/s]	S_{ii}	Laser [J]	Dichte [g/cm ³]	Druck [GPa]
97	2,21	5,76	13,0±0,2	1,76±0,18	25,2	4,38±0,12	184± 9
98	2,21	5,76	13,3±0,2	2,02±0,20	26,3	4,15±0,12	184± 5
100	2,21	5,76	11,6±0,2	2,19±0,23	13,7	3,98±0,12	132±10
102	2,21	5,76	9,9±0,2	1,70±0,33	12,5	3,77±0,12	91± 3
104	1,84	5,76	10,1±0,2	1,07±0,19	12,7	3,91±0,12	99± 2
106	1,84	5,76	10,6±0,2	1,13±0,22	12,7	3,94±0,12	110± 5
107	1,84	5,76	10,5±0,2	1,24±0,18	13,4	4,04±0,12	110±10
108	1,84	5,76	9,7±0,2	1,13±0,20	11,5	3,87±0,12	91± 9
109	1,84	5,76	12,3±0,2	1,15±0,29	26,4	4,27±0,12	159± 8
110	1,84	5,76	12,4±0,2	1,21±0,20	25,2	4,20±0,12	160±10
111	1,53	5,76	13,8±0,2	1,31±0,26	26,9	4,54±0,13	192±20
112	1,53	5,76	13,5±0,2	1,42±0,21	27,8	4,54±0,13	185±15
114	1,53	5,76	9,8±0,2	1,19±0,23	11,9	3,73±0,11	87± 5
115	1,53	5,76	9,7±0,2	1,22±0,28	11,9	3,87±0,12	87± 3
117	2,21	5,58	11,9±0,2	2,07±0,32	13,2	4,06±0,16	143± 5
118	2,21	5,58	10,8±0,2	2,47±0,39	12,8	3,86±0,12	111± 3
119	2,21	5,58	12,8±0,2	2,47±0,40	25,6	4,18±0,12	170± 4
120	2,21	5,58	13,2±0,2	2,24±0,36	27,1	4,27±0,12	186± 4
121	2,21	5,58	12,8±0,2	2,09±0,34	25,1	4,17±0,12	170± 2
122	1,53	5,58	13,5±0,2	1,95±0,29	27,1	4,29±0,15	179± 7
123	1,53	5,58	13,6±0,2	2,09±0,29	25,7	4,30±0,15	181± 7
124	1,53	5,58	13,4±0,2	2,10±0,38	25,3	4,06±0,12	170±14
125	1,53	5,58	11,0±0,2	1,90±0,28	13,0	4,01±0,12	115±15
126	1,53	5,58	10,3±0,2	1,87±0,42	13,2	3,96±0,12	99± 4
127	1,84	5,58	11,7±0,2	1,78±0,31	14,1	3,94±0,12	133± 6
128	1,84	5,58	10,7±0,2	1,81±0,21	13,1	3,97±0,12	113± 3
129	1,84	5,58	11,1±0,2	1,74±0,25	12,9	3,93±0,12	121± 2
130	1,84	5,58	12,7±0,2	1,85±0,32	25,5	4,14±0,12	164±12
145	2,21	5,36	10,5±0,2	3,64±0,44	13,0	4,00±0,12	110± 4
146	2,21	5,36	10,3±0,2	3,68±0,44	12,7	3,87±0,15	100± 2
147	2,21	5,36	10,5±0,2	2,48±0,28	13,0	3,92±0,12	107± 5
150	1,53	5,36	13,2±0,2	1,94±0,23	25,4	4,24±0,15	170±14
151	1,53	5,36	13,0±0,2	3,51±0,45	25,6	4,28±0,12	166±17
152	1,53	5,36	13,9±0,2	2,52±0,30	28,6	4,36±0,16	191±24
153	1,53	5,36	11,8±0,2	2,02±0,24	13,5	3,92±0,12	129± 3
154	1,53	5,36	11,2±0,2	2,44±0,31	13,0	4,01±0,12	119± 3
155	1,53	5,36	11,7±0,2	2,19±0,25	13,5	3,99±0,12	129± 2
156	1,84	5,36	12,1±0,2	4,25±0,51	24,6	4,45±0,13	159± 7
157	1,84	5,36	13,4±0,2	3,76±0,45	28,1	4,31±0,12	190±10
158	1,84	5,36	10,7±0,2	2,19±0,24	13,6	3,98±0,12	114± 9
159	1,84	5,36	10,1±0,2	2,52±0,25	11,9	3,95±0,12	101± 7

Tabelle B.2.: Die Tabelle enthält die bestimmten Parameter für jede verwendete Probe am LCLS, für Messungen mit 6 000 eV.

Messung	Dichte [g/cm ³]	k [10 ¹⁰ m ⁻¹]	v_s [km/s]	S_{ii}	Laser [J]	Dichte [g/cm ³]	Druck [GPa]	Temperatur [K]
210	1,53	4,43	11,8±0,2	0,83±0,06	12,4	4,01±0,15	132± 5	8 500 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
212	1,53	4,43	11,3±0,2	0,64±0,05	13,8	3,94±0,15	119± 7	5 900 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
213	2,21	4,43	10,1±0,2	0,59±0,04	13,1	3,85±0,15	96± 2	5 700 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
214	1,53	4,43	13,0±0,2	0,66±0,04	24,9	4,17±0,15	164±11	5 900 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
215	1,53	4,43	13,1±0,2	0,74±0,05	24,6	4,18±0,15	167±13	6 800 ⁺⁸⁰⁰ ₋₈₀₀
216	1,53	4,43	13,3±0,2	0,73±0,07	25,1	4,20±0,15	171±20	6 500 ⁺¹⁰⁰⁰ ₋₆₀₀
218	1,84	4,43	15,5±0,2	0,48±0,04	23,0	4,61±0,15	264±15	5 300 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
219	2,21	4,43	12,8±0,2	0,60±0,04	24,7	4,18±0,16	170± 7	5 700 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
220	2,21	4,43	13,0±0,2	0,48±0,04	23,2	4,22±0,16	179± 8	5 400 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
221	2,21	4,43	12,0±0,2	0,48±0,04	22,4	4,07±0,16	146± 3	5 400 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
222	2,21	4,43	10,9±0,2	0,59±0,04	11,9	3,93±0,15	115± 8	5 700 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
223	2,21	4,43	9,9±0,2	0,75±0,05	11,4	3,83±0,15	92± 3	7 000 ⁺⁹⁰⁰ ₋₉₀₀
224	1,84	4,43	12,3±0,2	0,59±0,04	24,2	4,17±0,10	155± 5	5 700 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
225	1,84	4,43	13,0±0,2	0,58±0,04	24,5	4,27±0,10	177± 2	5 600 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
226	1,84	4,43	12,7±0,2	0,51±0,03	24,6	4,23±0,10	168± 2	5 400 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
227	1,84	4,43	10,5±0,2	0,58±0,05	10,9	3,93±0,10	107± 3	5 700 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
228	1,84	4,43	10,5±0,2	0,45±0,03	11,8	3,93±0,10	108± 2	5 300 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
229	1,84	4,43	10,3±0,2	0,53±0,04	11,2	3,91±0,10	104± 5	5 500 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
230	2,21	4,39	10,4±0,2	0,60±0,03	11,5	3,88±0,15	103± 5	5 300 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
231	2,21	4,39	11,3±0,2	0,64±0,04	12,3	3,98±0,15	125± 4	5 900 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
232	2,21	4,39	13,1±0,2	0,51±0,03	24,8	4,23±0,16	181±10	5 500 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
233	2,21	4,39	13,0±0,2	0,51±0,03	24,0	4,21±0,16	178± 7	5 500 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
234	2,21	4,39	12,6±0,2	0,50±0,03	23,2	4,15±0,16	164± 4	5 400 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
235	1,53	4,39	13,0±0,2	0,70±0,04	24,3	4,16±0,15	164± 3	6 200 ⁺⁷⁰⁰ ₋₃₀₀
236	1,53	4,39	13,1±0,2	0,82±0,05	23,0	4,17±0,15	166± 3	8 200 ⁺⁹⁰⁰ ₋₈₀₀
238	1,53	4,39	10,9±0,2	0,70±0,05	11,7	3,88±0,15	110± 3	6 300 ⁺⁷⁰⁰ ₋₄₀₀
239	1,53	4,39	10,7±0,2	0,60±0,03	11,4	3,85±0,15	105± 2	5 800 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
240	1,84	4,39	13,0±0,2	0,56±0,03	23,1	4,27±0,10	178± 3	5 600 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
241	1,84	4,39	12,4±0,2	0,58±0,03	23,3	4,18±0,10	159± 8	5 700 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
242	1,84	4,39	10,9±0,2	0,54±0,04	11,5	3,99±0,10	119± 4	5 500 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
243	1,84	4,39	10,2±0,2	0,47±0,03	12,4	3,89±0,10	101± 3	5 400 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
244	2,21	4,12	12,8±0,2	0,62±0,03	24,6	4,18±0,16	170±10	5 800 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
245	2,21	4,12	13,0±0,2	0,47±0,03	24,2	4,22±0,16	179± 5	5 400 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
246	2,21	4,12	11,4±0,2	0,46±0,02	13,3	4,00±0,15	130± 7	5 300 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
247	2,21	4,12	10,2±0,2	0,51±0,03	12,1	3,86±0,15	99± 3	5 400 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
248	2,21	4,12	10,6±0,2	0,46±0,03	11,4	3,90±0,15	107± 2	5 300 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
249	1,84	4,12	12,2±0,2	0,65±0,03	23,5	4,16±0,10	154± 7	5 900 ⁺⁵⁰⁰ ₋₁₀₀
250	1,84	4,12	13,0±0,2	1,01±0,05	24,5	4,27±0,10	178±17	> 20 000†
252	1,84	4,12	11,3±0,2	0,54±0,03	13,7	4,04±0,10	129± 7	5 600 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
254	1,53	4,12	13,1±0,2	0,78±0,04	23,3	4,18±0,15	167± 7	7 500 ⁺⁸⁰⁰ ₋₆₀₀
255	1,53	4,12	13,7±0,2	0,92±0,05	23,6	4,26±0,16	184±16	11 000 ⁺⁵⁷⁰⁰ ₋₁₄₀₀
257	1,53	4,12	11,3±0,2	0,64±0,03	12,0	3,95±0,15	121± 8	5 900 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
258	1,53	4,12	10,7±0,2	0,57±0,03	11,6	3,86±0,15	105± 5	5 600 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀
259	1,53	4,12	14,0±0,2	0,67±0,04	24,7	4,30±0,16	193±13	6 000 ⁺¹⁰⁰ ₋₅₀₀
272	1,53	4,11	14,0±0,2	0,84±0,04	24,2	4,30±0,16	195± 6	8 900 ⁺¹¹⁰⁰ ₋₁₀₀₀
273	1,53	4,11	13,5±0,2	0,74±0,04	24,0	4,23±0,15	178±12	6 800 ⁺⁶⁰⁰ ₋₆₀₀
274	1,53	4,11	12,2±0,2	0,89±0,05	24,2	4,06±0,15	144± 7	9 900 ⁺³⁹⁰⁰ ₋₁₃₀₀
277	1,84	4,11	12,3±0,2	0,71±0,04	23,7	4,17±0,10	156±10	6 400 ⁺⁶⁰⁰ ₋₄₀₀
278	1,84	4,11	13,2±0,2	1,06±0,06	24,4	4,30±0,11	185±12	> 20 000†

Tabelle B.3.: Die Tabelle enthält die bestimmten Parameter für jede verwendete Probe am LCLS, für Messungen mit 4 500 eV. †: Temperatur oberhalb des durch die DFT-MD Simulationen bestimmaren Bereichs.

Messung	Dichte	v_s	Dichte	Dichte	Druck	Druck	Temperatur	Temperatur
	[g/cm ³]	[km/s]	Messung	Helios	Messung	Helios	Messung	Helios
			[g/cm ³]	[g/cm ³]	[GPa]	[GPa]	[K]	[K]
244	2,21	12,8±0,2	4,18±0,16	4,03±0,06	170±10	183±23	5 800 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀	4 900± 200
245	2,21	13,0±0,2	4,22±0,16	3,98±0,07	179± 5	171±22	5 400 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀	6 600± 300
246	2,21	11,4±0,2	4,00±0,15	3,88±0,07	130± 7	112±19	5 300 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀	4 200± 200
247	2,21	10,2±0,2	3,86±0,15	3,81±0,06	99± 3	89±17	5 400 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀	3 000± 100
248	2,21	10,6±0,2	3,90±0,15	3,83±0,08	107± 2	96±15	5 300 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀	3 100± 200
249	1,84	12,2±0,2	4,16±0,10	3,82±0,09	154± 7	138±16	5 900 ⁺⁵⁰⁰ ₋₁₀₀	7 500± 300
250	1,84	13,0±0,2	4,27±0,10	3,84±0,07	178±17	163±20	> 20 000†	9 400± 400
252	1,84	11,3±0,2	4,04±0,10	3,82±0,05	129± 7	133±14	5 600 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀	7 600± 300
254	1,53	13,1±0,2	4,18±0,15	3,56±0,07	167± 7	151±12	7 500 ⁺⁸⁰⁰ ₋₆₀₀	13 600± 600
255	1,53	13,7±0,2	4,26±0,16	3,72±0,07	184±16	186±13	11 000 ⁺⁵⁷⁰⁰ ₋₁₄₀₀	15 500± 800
257	1,53	11,3±0,2	3,95±0,15	3,47±0,08	121± 8	118±10	5 900 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀	10 500± 400
258	1,53	10,7±0,2	3,86±0,15	3,55±0,10	105± 5	109±15	5 600 ⁺¹⁰⁰ ₋₁₀₀	8 000± 500
259	1,53	14,0±0,2	4,30±0,16	3,65±0,12	193±13	186±20	6 000 ⁺¹⁰⁰ ₋₅₀₀	14 600± 400
272	1,53	14,0±0,2	4,30±0,16	3,65±0,10	195± 6	187±18	8 900 ⁺¹¹⁰⁰ ₋₁₀₀₀	17 100± 1 000
273	1,53	13,5±0,2	4,23±0,15	3,64±0,10	178±12	166±17	6 800 ⁺⁶⁰⁰ ₋₆₀₀	13 800± 800
274	1,53	12,2±0,2	4,06±0,15	3,63±0,09	144± 7	157±15	9 900 ⁺³⁹⁰⁰ ₋₁₃₀₀	14 200± 700
277	1,84	12,3±0,2	4,17±0,10	3,81±0,10	156±10	141±19	6 400 ⁺⁶⁰⁰ ₋₄₀₀	7 500± 300
278	1,84	13,2±0,2	4,30±0,11	3,84±0,08	185±12	163±18	> 20 000†	9 400± 200

Tabelle B.4.: Die Tabelle enthält die Ergebnisse der Helios Simulationen für die Messungen für $k = 4, 12 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$.

C Danksagung

Für das Eröffnen einer neuen Welt für mich und dem Arbeiten an einem der spannendsten Themen auf dieser Welt. Dem Mut einer völlig unbekanntenen Person die Möglichkeit zu bieten, frei zu arbeiten und nebenbei noch andere Forschungsgebiete zu sehen. Der Integration in ein tolles Team und einer offenen Tür, danke ich Professor Dr. Markus Roth. Es war eine lange und interessante Reise, eine tolle und einzigartige Zeit, die mich persönlich verändert hat. Danke Markus.

Weiter danke ich Herrn Professor Dr. Oliver Boine-Frankenheim für das unkomplizierte Übernehmen des Zweitgutachtens zu dieser Arbeit.

Ein großer Dank geht an Dr. Dominik Kraus, ohne den vieles nicht möglich gewesen wäre. Von Deutschland über England bis nach Kalifornien standest du mir zur Seite. Für immer wieder klärende Gespräche und Erklärungen eines am Anfang Unwissenden. Vielen Dank Dominik.

Dr. Gabriel Schaumann für seinen Einsatz und Ideen in allen Bezügen der Probenherstellung.

Dr. Dennis Schumacher, dafür dass er einem immer wieder weitergeholfen hat, wenn wir an Z6 und nhelix experimentiert und gelernt haben.

Ein großer Dank geht an Dr. Jan Vorberger für die durchgeführten Simulationen zum Kohlenstoff und die klärenden Gespräche, wie diese funktionieren und entstehen. Ebenfalls danke ich Dr. Dirk Gericke für weitere klärende Gespräche in Belangen der Theorie der Simulationen.

Ich danke dem Experimentteam am Rutherford Appleton Laboratory, bestehend aus Dominik Kraus (zum x-ten Mal), Alex Ortner, David Carroll, Margreth Notley, Brandon Kettle und Niclas Hartley. Dazu kommt der Dank an das Personal des Vulcan Lasers für einige freiwillige verlängerte Schichten und dem Target Fabrikations Team um Chris Spindloe.

Dem Team um Dr. Gabriel Schaumann im Targetlabor der TU für das Polieren der Proben für das LCLS Experiment (Simon Frydrych, Alexandra Tebartz, Tina Ebert, Annika Kleinschmidt, Olliver Deppert und Markus Hesse). Und im selben Atemzug auch dem Targetlabor der GSI für die Unterstützung in diesem und den immer wiederkehrenden Experimenten an Z6.

Dem Experimentteam am LCLS bestehend aus Dominik Kraus, Bob Nagler, Hae Ja Lee, Eric Galtier, Eduardo Granados, Simon Frydrych, Benjamin Barbreil, Tilo Döppner, Benjamin Bachmann, Luke Fletcher, Eliseo Gamboa, Maxence Gauthier, Sebastian Goede, Will Schumaker, Alessandra Ravasion und dem Operator Team der LCLS.

Der Arbeitsgruppe M. Roth sowie der Plasmaphysik an der GSI. Danke Abel Blažević für die Möglichkeiten hier an der GSI und den schönen Arbeitsplatz.

Meinen Studenten Steffen Sander, Yannik Zobus, Christoph Bläser, Jonas Ohland und Elvar Kjartansson, bei denen ich gelernt habe, was es heißt, Studenten zu betreuen und bei denen ich immer wieder feststellen durfte, dass man doch schon einiges weiß und kann, wenn man selbst mal wieder gar nicht weiterkam oder wusste. Hier nochmal einen Dank an meine ehemaligen Betreuer aus meiner Kieler Zeit.

So eine Arbeit wäre natürlich auch nichts ohne die Menschen, die sie Korrektur gelesen haben. Vielen vielen Dank!

Ich danke Arda, Doulen, Theresa, Seppi, Sweti, Titzen, Melli, Flo, Anne, Daniel, Torben, Jana, Richard, Alexa, Karim, Katharina, Johannes, Gesa, Anna, Sven, Jakob, Phil, Paddy, Mellanie, Lisa(Zwerg), Holger, Jörn, Lilli, Aaron, Erik, Claudia, Simon(klein), Simon(groß), Simon(kleinster), Annika, Diana, Wilfried, Alex O, Alex E, Alex K, Alex T, Victor, Philipp, Fabia, Vincent, Dennis und Frauuke, Stefan, Robert, Thorsten, Abel, Flo, Elvar, Dominik, Anke, Gabriel, Yannik, Steffen, Paul, Witold, Bogdan, Gabi, Olli, Christian, Michael, Severine, Eva, Hans, Sabrina, Stef, Fabian, Björn, Dominik, Niels, Edwin, Nico, Kathrin, Till, Cami, Crisy, Feli, Isa, Babs, Flo, Sylvia, Günther, Moritz, Mo, Astrid, Dagmar, Volker, Gesa, Aki, Felix, Hermann, Karen, Mark, Kerstin, Jost, Lutz, Gabriela, jenen die ich vergessen habe ... meiner Mutter und meinem Vater für die Zeit mit euch allen.



D Lebenslauf

Persönliche Daten

Name Jan Martin Helfrich
Geburtstag 03.11.1986 in Schleswig
Staatsbürgerschaft deutsch

Schule & Studium

1993 – 1997 Grundschule Schule Nord Schleswig
1997 – 2003 Realschule Bruno-Lorenzen-Schule Schleswig
2003 – 2006 Berufliche Schulen des Kreises Schleswig-Flensburg
2007 – 2012 Studium der Physik an der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel
08.2011 – 08.2012 Diplomarbeit: *REMPI und MATI von aromatischen Halogenverbindungen und aromatischen Carbonsäuren*
11.2012 – 11.2016 Promotion an der TU Darmstadt
Dissertation: *Röntgen-Thomson-Streuung an warmem dichten Kohlenstoff*

Berufspraxis

2006 – 2007 Grundwehrdienst
2010 – 2011 Hiwi ITAP CAU Kiel Praktikumsbetreuung
2011 – 2012 Hiwi IPC CAU Kiel Projekt + Praktikumsbetreuung
11.2012 – 11.2016 Wissenschaftlicher Mitarbeiter an der TU Darmstadt

Forschungsauslandsaufenthalte

2012-2016 Rutherford Appleton Laboratory, Vereinigtes Königreich (7 Wochen)
SLAC National Accelerator Laboratory, USA (3 Wochen)