



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG
Institut für Festkörperforschung

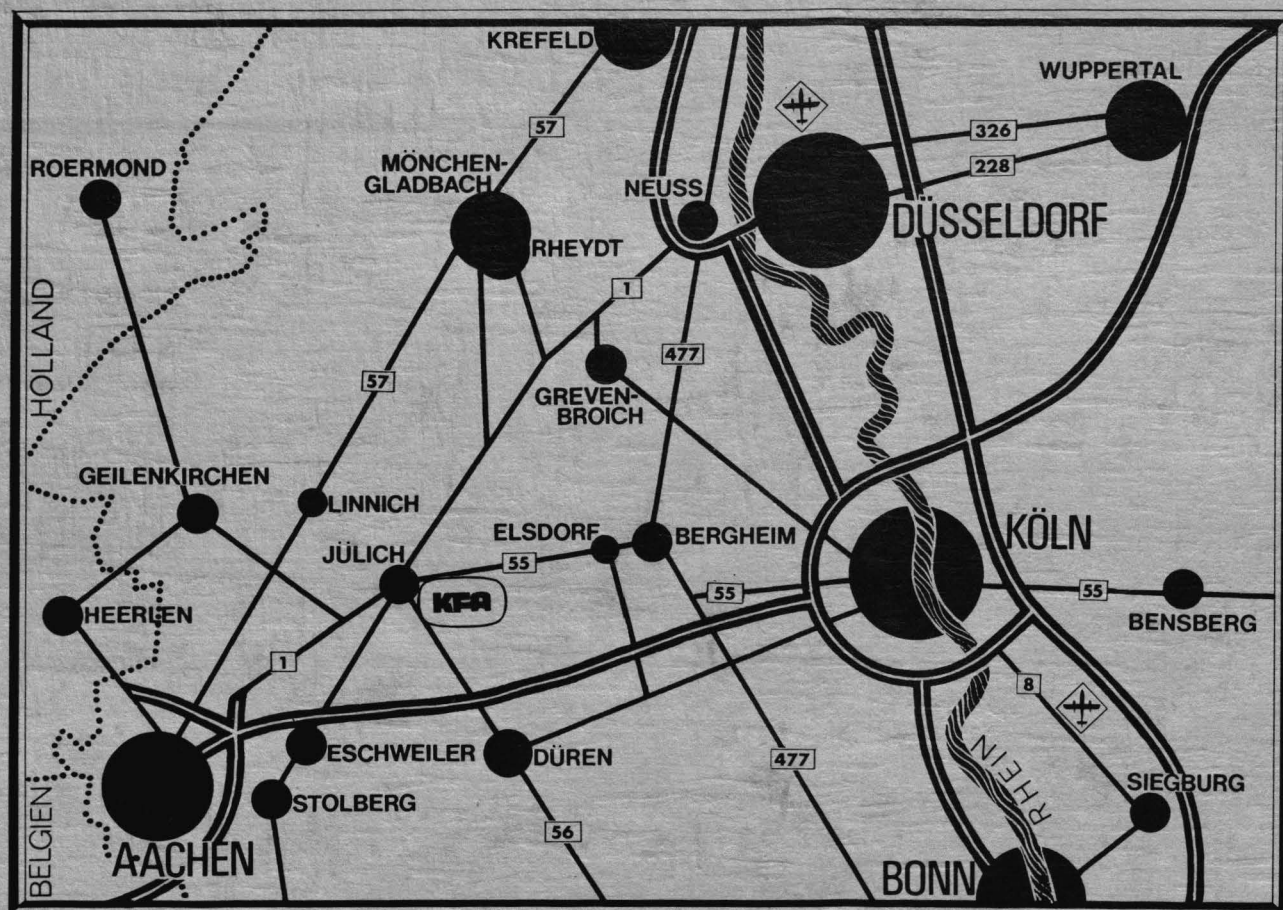
**Die Struktur des Verzerrungsfeldes
von substitutionell gelöstem Wismut in Blei**

von

E. Seitz

**JüI - 1173
März 1975**

Als Manuskript gedruckt



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 1173

Institut für Festkörperforschung Jül - 1173

Dok.: Diffuse Neutron Scattering - Point Defect
 Point Defect - Dilute Alloy Pb-Bi
 Point Defect - Distortion Field
 Point Defect - Structure Determination
 Alloy Pb-Bi - Diffuse Neutron Scattering

Im Tausch zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH,
 Jülich, Bundesrepublik Deutschland

Die Struktur des Verzerrungsfeldes von substitutionell gelöstem Wismut in Blei

von

E. Seitz

ABSTRACT

In order to describe measurements of the coherent diffuse scattering of neutrons from Pb-Bi within the single defect approximation, Schumacher (1969) introduced a model in which the displacement field of the host lattice caused by a given Bismuth atom has trigonal symmetry.

In the present paper, this model, together with other possible models for the displacement field (both with trigonal and tetragonal symmetry), have been used to describe the data. All these models were found to yield roughly equivalent agreement with existing experimental results which, however, extend only over a limited region in reciprocal space. Outside this region, all the models showed considerably more structure, and, furthermore, differences between them were more pronounced.

In an attempt to decide which model for the displacement field is correct, new measurements over an extended range were carried out with an improved resolution, using the D7 diffractometer at the High Flux Reactor in Grenoble. Taking the different resolutions into account, agreement between the present and previous data is good, both as to absolute intensity and scattering pattern. It is notable that the peaks at (110) and (210) (between the Bragg reflections) are much sharper than predicted by any single defect approximation model. These models are adequate however, in the region close the Bragg peaks, i.e., for the displacement field far away from the defects. In particular the model proposed by Schumacher is found to give somewhat better agreement than the others considered.

As an improvement on the single defect approximation, we have assumed an orientational correlation between defects randomly distributed in a region of about 50 Å in diameter. The sharpness of the peaks between the Bragg-reflections is then reproduced.

ZUSAMMENFASSUNG

Zur Beschreibung der Ergebnisse einer früheren Messung der kohärenten diffusen Neutronenstreuung an dem System Pb-Bi war im Rahmen der Einzeldefektnäherung ein nicht inversionssymmetrisches Verzerrungsmodell mit trigonaler Symmetrie vorgeschlagen worden (Schumacher 1969).

Da jenes Modell sehr ungewöhnlich war, ist zunächst versucht worden, mit verschiedenen anderen Modellen mit trigonaler und tetragonaler Symmetrie das Experiment zu beschreiben. Alle Modelle ergeben in einem größeren Bereich des Impulsraumes schärfer strukturierte Streumuster.

Deshalb ist das Experiment mit besserer Auflösung und in einem größeren Meßbereich mit dem Diffraktometer D7 am Hochflußreaktor in Grenoble wiederholt worden.

Der Vergleich mit dem früheren Experiment ergibt im gemeinsamen Meßbereich eine gute Übereinstimmung bzgl. Absolutintensität und Streumuster, wenn die unterschiedliche Auflösung berücksichtigt wird. Tatsächlich sind die beobachteten Peaks bei (110) und (210) zwischen den Bragg-Reflexen viel schärfer als aufgrund der Einzeldefektnäherung erwartet wurde.

In der Nähe der Bragg-Reflexe, d.h. im Realraum weit weg vom Defekt, wird das gemessene Streumuster in Einzeldefektnäherung qualitativ richtig wiedergegeben. Dabei zeigt das schon früher vorgeschlagene Verzerrungsmodell mit trigonaler Symmetrie die bessere Übereinstimmung mit dem Experiment.

Berücksichtigt man eine Orientierungskorrelation zwischen den statistisch verteilten Defekten in einem Bereich von etwa 50 Å Durchmesser, dann kann auch die Schärfe der Peaks zwischen den Bragg-Reflexen richtig wiedergegeben werden.

INHALT	Seite
I Einleitung	1
II Theorie	
1) Streuung thermischer Neutronen	5
2) Diffuse elastische Streuung	10
3) Gitterstatik	15
III Modellrechnungen in der Einzeldefekt-Näherung	
1) in Symmetrierichtungen	20
2) in Nicht-Symmetrierichtungen	42
IV Experimenteller Aufbau	
1) Proben und Kryostat	51
2) Spektrometer und Datenerfassung	53
V Durchführung und Auswertung der Messungen	
1) Untergrund- und Eichmessungen	63
2) Pb-4% Bi	67
3) Pb-2% Bi	78
VI Diskussion der Ergebnisse	86
Anhang: Dispersionskurven und Höhenliniendiagramme für verschiedene Born-von Karman-Fits.	98
Literaturhinweise	103

I EINLEITUNG

Wird die periodische Struktur eines Festkörpers durch den Einbau von Defekten gestört, so tritt in dem Streubild zwischen den Bragg-Reflexen diffuse Streuung auf.

Da die Wellenlängen von Röntgenstrahlen und thermischen Neutronen vergleichbar sind mit den Gitterabständen (einige Angström), stellen sie die geeigneten Hilfsmittel zur mikroskopischen Untersuchung von Defektstrukturen dar. Seit etwa 20 Jahren weisen theoretische Arbeiten auf den Zusammenhang hin, der zwischen der Verzerrung des Gitters in der Umgebung von Defekten und der diffusen Streuung zwischen den Reflexen und in der Nähe der Reflexe besteht. (Für einen Überblick über theoretische Arbeiten s.z.B. Krivoglaz 1969, Dederichs 1973 und Trinkaus 1973). Die diffuse elastische Streuung zwischen den Reflexen ist allerdings um etwa vier Größenordnungen kleiner als die Streuung der normalen Bragg-Reflexe. Außerdem gibt es eine Untergrundstreuung, die oft von der gleichen Größenordnung oder größer ist als die diffuse elastische Streuung. Deshalb hat sich die experimentelle Defektstreuung nur langsam entwickelt. (Für einen Überblick über experimentelle Arbeiten s.z.B. Schmatz 1973, Hanbold 1974 und Bauer, Seitz und Just (kurz BSJ) 1975).

Inzwischen ist die diffuse elastische Neutronenstreuung an den Systemen Pb-Bi, Al-Cu und Al-Mn (mit substitutionellem Fremdatom) und Nb-D (mit interstitiellem Fremdatom) gemessen worden. In dieser Arbeit wird ausführlich über Untersuchungen an dem System Pb-Bi berichtet. In einer Arbeit von Bauer wird ausführlich auf die Systeme Al-Cu, Al-Mn und Nb-D eingegangen, die in der vorliegenden Arbeit gelegentlich erwähnt werden.

Will man die Struktur von einzelnen Punktdefekten (z.B. substitutionelle Fremdatome) durch die Streuung an den verschobenen benachbarten Atomen abbilden, so ist es notwendig, verdünnte Legierungen mit statistisch verteilten Defekten zu untersuchen. Im folgenden werden einige Argumente für die Substitutionsanlage und die statistische Verteilung von 2 und 4 at% Wismut in Blei zusammengestellt. Dazu betrachte man den Ausschnitt aus dem Phasendiagramm des Systems Pb-Bi, das in Abb. 1 wiedergegeben ist. Man beachte die große Löslichkeit von Bi in Pb (≥ 15 at%) im Vergleich z.B. zu der geringen Löslichkeit von einigen at% Ag und Au in Pb (Miller 1970). Die Diffusion von Bi in festem Pb ist zwar etwa dreimal so groß wie die Selbstdiffusion von Pb (Resing und Nachtrieb 1961) jedoch etwa 10^2 - 10^4 mal kleiner als die Diffusion von Ag und Au in Pb (Seith und Keil 1933)^x. Die Änderung des Gitterparameters a von Pb pro Bi-Atom (Konzentration c) ist relativ klein $\Delta a/ac \approx 2\%$ im Vergleich z.B. mit $\Delta a/ac \approx 60\%$ bei einem Frenkel-paar in Al (Ehrhart und Schilling 1973). Die Änderung des Gitterparameters $\Delta a/ac$ ist außerdem linear bis etwa 18 at% Bi bei $T = 20^\circ\text{C}$ (v. Hofe und Hanemann 1940) in Übereinstimmung mit der Löslichkeit in der fcc- α -Phase (vgl. Abb. 1)

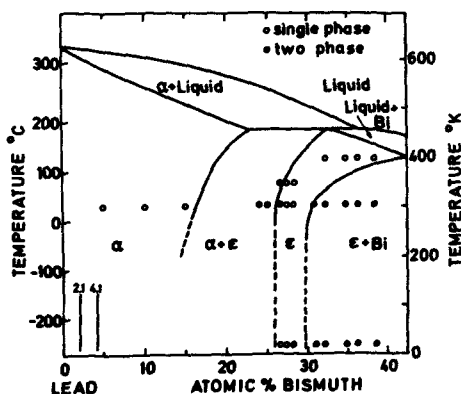


Abb.: 1

Das System Blei-Wismut nach Preece und King (1969).

^x Aus dem Vergleich mit der Selbstdiffusion von Pb, wurde schon 1933 geschlossen, daß sich die Ag- und Au- Atome wenigstens z.T. auf Zwischengitterplätzen befinden (s.a. Miller 1970). Eine Messung des Verzerrungsfeldes zur Untersuchung der Struktur dieser Defekte gibt es bisher noch nicht.

Die vorliegende Arbeit ist eine Fortsetzung von früheren Untersuchungen an dem System Pb-Bi (Simson 1964, Schumacher 1969 und Schumacher, Schmatz und Seitz 1973 (kurz SSS)). Schon damals war das System Pb-Bi für die diffuse Neutronenstreuung wegen des geringen Untergrundes interessant. Die inkohärenten Wirkungsquerschnitte von Pb und Bi sind außerordentlich klein, $\sigma_{\text{ink}}^{\text{Pb}} = (3,0 \pm 0,7) \text{ mbarn (SSS)}$ und $\sigma_{\text{ink}}^{\text{Bi}} = (7,1 \pm 0,6) \text{ mbarn}$ (Scherm 1968). Dem steht der hohe Untergrund der Compton- und Fluoreszenzstreuung bei der Untersuchung mit Röntgenstrahlen gegenüber. Außerdem unterscheiden sich die kohärenten Streulängen (Neutronenstreuung) von Pb und Bi immerhin um etwa 10% im Vergleich zu nur etwa 1% Unterschied in den Formfaktoren (Röntgenstreuung) von Pb und Bi.

So wurde zunächst der "size-effect", die Änderung der Laue-Streuung aufgrund der Gitteraufweitung (s. II.3), bei verschiedenen Konzentrationen (3,7,10 und 13 at% Bi) mit diffuser Neutronenstreuung bei kleinen Streuvektoren $K < 0,3 \text{ \AA}$ nachgewiesen, (Simson 1964, zitiert bei Schmatz 1970).

Es folgte eine Messung in dem K -Bereich von $0,31 \leq K \leq 1,76 \text{ \AA}$ an zwei Einkristallen mit 2.1 und 4.1. at% Bi und $[100]$ bzw. $[110]$ Orientierung (Schumacher 1969, s.a. SSS). Aufgrund der Struktur des Wirkungsquerschnittes der gemessenen diffusen Streuung wurde ein etwas ungewöhnliches Modell der Verschiebung der Pb Atome, die ein Bi Atom umgeben, vorgeschlagen.

Ziel dieser Arbeit war es, jenem Modell nachzugehen und durch weitere Messungen näher zu untersuchen. Dazu werden zunächst verschiedene Defekttypen diskutiert (Verzerrungsfelder mit trigonaler und tetragonaler Symmetrie). Entsprechende Modellrechnungen in Symmetrie- (III,1) und Nichtsymmetrierichtungen (III,2) (gleich in einem größeren K -Bereich) werden mit dem Experiment von Schumacher verglichen.

Diesen Rechnungen wird ein Kapitel (I) vorangeschickt, indem der theoretische Rahmen der Modelle skizziert wird. Im Kapitel IV wird der experimentelle Aufbau für eine Messung mit besserer Auflösung und in einem größeren K -Bereich beschrieben. Im Kapitel V werden entsprechende Messungen an dem System Pb-Bi vorgestellt und im Kapitel VI diskutiert.

II. THEORIE

In diesem Kapitel soll anhand einiger Formeln der theoretische Rahmen skizziert werden, der zur Analyse der vorliegenden Messung verwandt wurde.

Im ersten Abschnitt werden allgemeine Eigenschaften der Streuung unpolarisierter thermischer Neutronen an nicht magnetischen Metallen besprochen. Im zweiten Abschnitt wird der Zusammenhang zwischen der kohärenten diffusen elastischen Streuung aufgrund von substitutionellen Punktdefekten und dem Verschiebungsfeld der einzelnen Defekte aufgezeigt. Im dritten Abschnitt wird die gittertheoretische Berechnung des Verschiebungsfeldes dargestellt (Gitterstatik).

Streuung thermischer Neutronen

Die Kinematik eines Streuprozesses thermischer Neutronen ($1 \text{ meV} \leq E \leq 50 \text{ meV}$) an einem Festkörper wird durch Impuls- und Energieerhaltungssatz im Rahmen der nicht relativistischen Quantenmechanik festgelegt. Der Impulssatz lautet

$$\hbar \underline{k} = \hbar \underline{k}_0 - \hbar \underline{k}_1 \quad (2.1.1)$$

Dabei bezeichnen $\hbar \underline{k}_0$ und $\hbar \underline{k}_1$ die Impulse der ein- und auslaufenden Neutronen, $\hbar \underline{k}$ ist der an das Target übertragene Impuls. Für den Energiesatz gilt entsprechend

$$\hbar \omega = E_0 - E_1 = \frac{(\hbar k_0)^2}{2m} - \frac{(\hbar k_1)^2}{2m} \quad (2.1.2)$$

m ist die Masse des Neutrons, $\hbar \omega > 0$ ist die an das Target abgegebene Energie, $\hbar \omega < 0$ ist die vom Target aufgenommene Energie. Der Streuwinkel zwischen $\underline{k}_0$ und $\underline{k}_1$ sei 2ϑ . Bei fester Einfallsenergie E_0 und 2ϑ als freiem Parameter folgen aus (2.1.1) und (2.1.2) die erlaubten Kombinationen von Impulsübertrag und Energie des auslaufenden Neutrons

$$\hbar k = \sqrt{2m} \left(E_0 + E_1 - 2\sqrt{E_0 E_1} \cos 2\vartheta \right)^{1/2} \quad (2.1.3)$$

Ein entsprechender Zusammenhang zwischen der Energieaufnahme bzw. -abgabe des Targets und dem Impulsübertrag lautet

$$\hbar\omega = 2 E_0 \sin^2 2\vartheta - \frac{(\hbar K)^2}{2m} \mp 2 \cos 2\vartheta \sqrt{E_0 \left(\frac{(\hbar K)^2}{2m} - E_0 \sin^2 2\vartheta \right)} \quad (2.1.4)$$

In Abb. 2 ist diese Abhängigkeit für verschiedene Streuwinkel dargestellt. Als Einfallsenergie wurde $E_0 = 4.24 \text{ meV} = 49.2 \text{ K}$ gewählt, das entspricht einer Wellenlänge der einlaufenden Neutronen von $\lambda = 4.3 \text{ \AA}$. Zum Vergleich sind auch die Kurven für $\lambda = 7 \text{ \AA}$ (Schumacher 1969) bei $2\vartheta = 0$ und 180° eingezeichnet. Im Zusammenhang mit der inelastischen Streuung wird auf dieses Bild wieder zurückgegriffen.

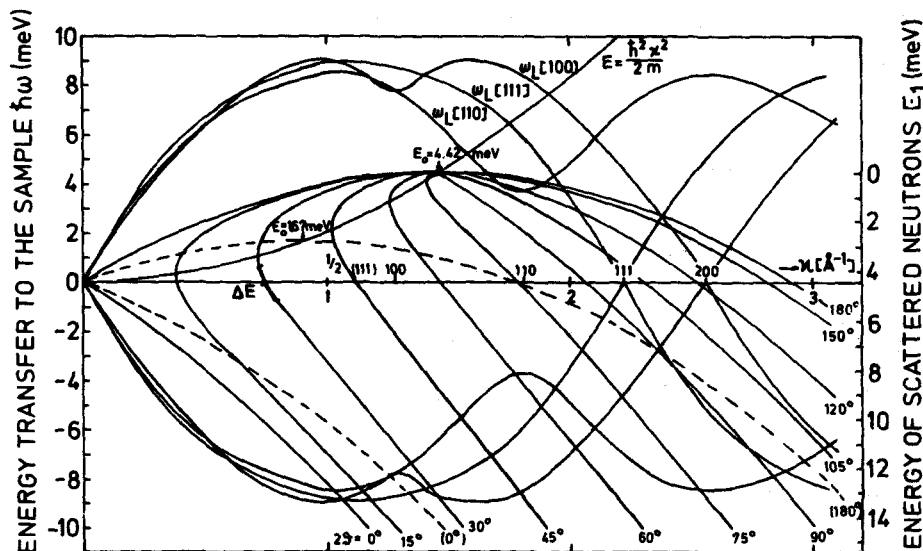


Abb. 2: Kinematik für Neutronen mit Wellenlängen $\lambda = 4.3 \text{ \AA}$ und $\lambda = 7 \text{ \AA}$. Longitudinale Dispersionszweige von Pb (vgl. Abb. 3).

Die Dynamik des Streuprozesses unpolarisierter thermischer Neutronen kann in der ersten Born'schen Näherung beschrieben werden. Für den doppelt differentiellen Wirkungsquerschnitt pro Atom gilt dann (s. z.B. Marshall und Lovesey 1971)

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{1}{N} \frac{K_1}{K_0} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_{\mu} \rho_{\mu} \sum_{\mu'} |\langle K_1 \mu' | \hat{V}(\mathbf{r}) | K_0 \mu \rangle|^2 \quad (2.1.5)$$

$$\cdot \delta(\hbar\omega + E_{\mu} - E_{\mu'})$$

mit dem Fermischen Pseudopotentialoperator

$$\hat{V}(r) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \sum_{n=1}^N b_n \delta(r - \hat{R}_n) \quad (2.1.6)$$

Dabei bezeichnet b_n die Kernstreulänge des gebundenen Atoms am Ort $\underline{R}_n$.

Die Mittelung über die Anfangszustände des Targets μ mit Wahrscheinlichkeiten p_μ besteht erstens aus einer Mittelung über Kernspinorientierungen und Isotopenverteilung, zweitens über Anfangszustände im Impulsraum, die entsprechend einem Boltzmann Gesetz bei der Temperatur T verteilt sind mit $p_\mu = \frac{1}{Z} \exp(-E_\mu/k_B T)$ und $\sum_\mu p_\mu = 1$. Diese beiden Mittelungsprozesse können unabhängig voneinander durchgeführt werden. Summiert man noch über die Endzustände μ' des Targets mit Hilfe der Energie δ -Funktion, dann wird aus (2.1.6)

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega}(\underline{k}, \omega) = \frac{1}{4\pi} \frac{K_1}{K_0} \left\{ \sum_{\nu=1}^{\nu_0} \frac{\sigma_{\text{ink},\nu}}{4\pi} S_{\text{ink},\nu}(\underline{k}, \omega) + \sum_{\nu,\lambda} b_\nu b_\lambda S_{\nu\lambda}(\underline{k}, \omega) \right\} \quad (2.1.7)$$

Dabei bezeichnen b_ν und b_λ die mittleren kohärenten Streulängen der einzelnen Elemente im Target $\nu = 1, \dots, \nu_0$ (kohärenter Anteil der ersten Mittelung). Bei den Abweichungen von diesen Mittelwerten nimmt man an, daß sie statistisch verteilt sind für jedes Element (inkohärenter Anteil der ersten Mittelung).

$$b_\nu = \overline{b_n^\nu}, \quad \frac{\sigma_{\text{ink},\nu}}{4\pi} = \overline{|b_n^\nu|^2} - |\overline{b_n^\nu}|^2 \quad (2.1.8)$$

Ein Überblick über die kohärenten Streulängen b_ν und die inkohärenten Wirkungsquerschnitte $\sigma_{\text{ink},\nu}$ ist z.B. in BSJ gegeben. Speziell für das System Pb-Bi finden sich folgende Angaben in der Literatur: $b_{\text{Pb}} = 0.9404 \cdot 10^{-12}$ cm, $b_{\text{Bi}} = 0.8523 \cdot 10^{-12}$ cm (Schull 1972), $\sigma_{\text{ink},\text{Pb}} = (1.3 \pm 0.5)$ mbarn, $\sigma_{\text{ink},\text{Bi}} = (7.1 \pm 0.6)$ mbarn (Scherm 1968), $\sigma_{\text{ink},\text{Pb}} = (3.0 \pm 0.7)$ mbarn (SSS 1973). Abweichungen von der statistischen Verteilung der Isotope eines Elementes (Dichtefluktuationen) führen zu kohärenter diffuser Streuung (s. nächsten Abschnitt).

Die Streufunktionen $S_{\nu\lambda}(\underline{k}, \omega)$ und $S_{\text{ink},\nu}(\underline{k}, \omega)$ beschreiben die statischen und dynamischen Eigenschaften des Systems. Sie sind die Fouriertransformierten in Raum und Zeit der Paarkorrela-

tionsfunktionen und der Selbstkorrelationsfunktionen. Korreliert werden die Dichteoperatoren $\rho_{\mu}(\underline{r}, t) = \sum_{n\nu}^{N\nu} \delta(\underline{r} - \underline{R}_{n\nu}(t))$ zur Zeit $t=0$ und zur Zeit t ($\sum_{\nu} N_{\nu} = N$). Für $t \rightarrow \infty$ ist diese Korrelation aufgehoben ($t > 10^{-10}$ sec). Dieser Anteil der Korrelationsfunktionen führt in den Streufunktionen zu Energie δ -Funktionen $\delta(\omega)$, d.h. zur elastischen Streuung. In harmonischer Näherung für die Kernschwingungen gilt für den kohärenten elastischen Wirkungsquerschnitt

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega}(\underline{k})_{\text{koh, el}} &= \frac{1}{N} \sum_{\nu, \lambda}^{N\nu} b_{\nu} b_{\lambda} \sum_{n\nu, n\lambda}^{N\nu, N\lambda} e^{-W_{n\nu}} e^{-W_{n\lambda}} e^{-i\underline{k} \cdot (\underline{R}_{n\nu} - \underline{R}_{n\lambda})} \\ &= \frac{1}{N} \left| \sum_{n=1}^N b_n e^{-W_n} e^{-i\underline{k} \cdot \underline{R}_n} \right|^2 \end{aligned} \quad (2.1.9)$$

Für den inkohärenten elastischen Wirkungsquerschnitt folgt

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\underline{k})_{\text{mkoh, el}} = \frac{1}{N} \sum_{\nu=1}^{N\nu} \frac{\sin^2 k_{\nu}}{4\pi} \sum_{n\nu=1}^{N\nu} e^{-2W_{n\nu}(\underline{k})} \quad (2.1.10)$$

Der Debye-Waller-Faktor e^{-W_n} dämpft die elastische Streuung am mittleren Gitter aufgrund der Wahrscheinlichkeit für inelastische Streuung (bei jeder Temperatur). W_n ist als thermischer Mittelwert gegeben

$$W_n(\underline{k}) = \frac{1}{2} \langle (\underline{k} \cdot \hat{\underline{v}}_n)^2 \rangle \quad (2.1.11)$$

$\langle \hat{\underline{v}}_n \rangle$ ist die mittlere thermische Verschiebung des Atoms am Ort $\underline{R}_n$. Für ein kubisches Gitter gilt $W(\underline{k}) = \frac{1}{6} \underline{k}^2 \cdot \langle \hat{\underline{v}}^2 \rangle$. Um die Temperaturabhängigkeit von $W(\underline{k})$ zu studieren, nimmt man ein Debye-Spektrum für die Phononzustandsdichte an und erhält für tiefe Temperaturen $T \ll \Theta_D$ (Θ_D = Debye-Temperatur in Kelvin)

$$W(\underline{k}) = \frac{\underline{k}^2}{M \Theta_D} \left[1 + \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^2 \frac{2\pi^2}{3} \right] \frac{70.7}{4} \quad (2.1.12)$$

Dabei ist M die Masse der schwingenden Atome in atomaren Masseneinheiten ($\underline{k}$ in $\text{\AA}^{-1}$).

Der restliche Anteil der Korrelationsfunktionen führt in den Streufunktionen zu inelastischer Streuung. Das Ergebnis läßt sich in harmonischer Näherung als Summe über Ein-Phonon-, Zwei-Phonon-, ... Beiträge schreiben. Hier sei nur der kohärente

Ein-Phonon-Wirkungsquerschnitt für einatomare Gitter zitiert

$$\frac{d\sigma^2}{d\Omega d\omega} \quad \begin{matrix} (\underline{k}, \omega) \\ \text{Koh., Ein-Phonon} \end{matrix} = \frac{1}{N} \frac{\kappa_1}{\kappa_0} b^2 e^{-2W} \sum_{j,q} \frac{\kappa^2(\underline{k} \cdot \underline{E}_j(q))^2}{2M\hbar\omega_{q,j}} + (2.1.13)$$

$$+ \{ n_j(q) \cdot \delta(\omega + \omega_{q,j}) \sum_{\underline{\tau}_{hkl}} \delta(\underline{k} + \underline{q} - \underline{\tau}_{hkl})$$

$$+ (n_j(q) + 1) \cdot \delta(\omega - \omega_{q,j}) \sum_{\underline{\tau}_{hkl}} \delta(\underline{k} - \underline{q} - \underline{\tau}_{hkl}) \}$$

Dabei stellen die Terme, die $\delta(\omega + \omega_{q,j}) \delta(\underline{k} + \underline{q} - \underline{\tau}_{hkl})$ enthalten, Streuprozesse dar, in denen ein Phonon der Frequenz $\omega_{q,j}$ vernichtet wird, während die Terme, die $\delta(\omega - \omega_{q,j}) \delta(\underline{k} - \underline{q} - \underline{\tau}_{hkl})$ enthalten, Phononerzeugung beschreiben. $\underline{E}_j(q)$ ist der Polarisationsvektor des Phonons. $n_j(q)$ gibt die thermische Besetzungszahl des Phonons (j, q) an

$$n_j(q) = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_j(q)}{k_B T}} - 1} \quad (2.1.14)$$

$\underline{q}$ ist der reduzierte Wellenzahlvektor $\underline{k} = \underline{q} + \underline{\tau}_{hkl}$, $\underline{\tau}_{hkl}$ ein reziproker Gittervektor.

Abb. 3 zeigt die Phonondispersionskurven von Pb.

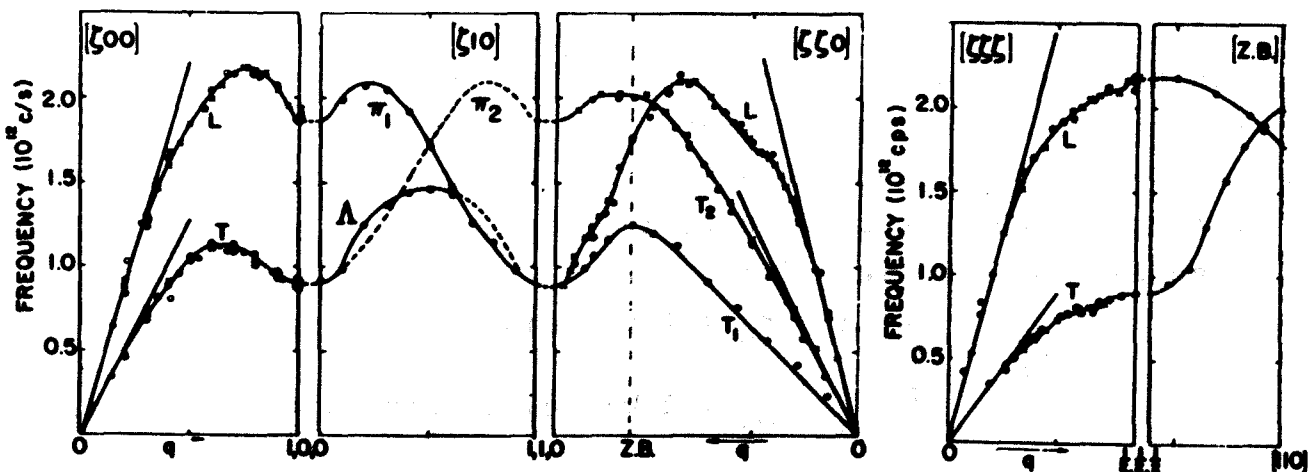


Abb. 3:

Phonondispersionskurven von Pb bei 100 K (Brockhouse et al. 1962).

Um einen schnellen Überblick darüber zu erhalten, ob bei den gewählten experimentellen Streuparametern ($\lambda, 2\nu_j^Q$) in dem zu untersuchenden System inelastische Streuung möglich ist (Ein-Phonon-Prozesse), zeichnet man die (longitudinalen) Phonondispersionskurven in den $\omega(\underline{k})$ -Plot (Abb. 2). An den Schnittpunkten ist ein Ein-Phonon-Prozeß mit dem Gewicht $n_j(q)$ (2.1.14) zu erwarten. Man erkennt bei der vorliegenden Wahl von $\lambda = 4.3 \text{ \AA}$, daß auch bei tiefen Temperaturen Ein-Phonon-Prozesse (Phonon-Erzeugung) in Pb auftreten können, im Gegensatz zur Wahl von $\lambda = 7 \text{ \AA}$ (SSS).

Diffuse elastische Streuung

Um die kohärente elastische Streuung an einer binären Legierung mit substitutionellen nicht magnetischen Fremdatomen zu beschreiben (vgl. Krivoglaz 1969), ist es bequem, folgenden Ansatz für den kohärenten elastischen differentiellen Wirkungsquerschnitt pro Atom zu machen (vgl. 2.1.9)

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\underline{k}) = \frac{1}{N} \left(b_W \sum_{n=1}^N e^{-W_n^W} e^{i\underline{k} \cdot (\underline{r}_n + \underline{u}_n)} + \sum_{n=1}^N c_n (b_F e^{-W_n^F} - b_W e^{-W_n^W}) e^{i\underline{k} \cdot (\underline{r}_n + \underline{u}_n)} \right) \quad (2.2.1)$$

N ist die Gesamtzahl der Atome; b_W , b_F , $\exp-W^W$, $\exp-W^F$ sind die mittleren Streulängen und die Debye-Waller-Faktoren der Wirtsgitteratome bzw. der Fremdatome; $\underline{r}_n$ bezeichnet die thermischen Gleichgewichtslagen des regulären Referenzgitters, das aufgrund der Fremdatome homogen verzerrt ist; $\underline{u}_n$ bezeichnet die statischen Verschiebungen der Atome von den neuen Referenzplätzen $\underline{r}_n$ aufgrund einer gegebenen Defektverteilung. c_n sind die Besetzungszahlen; für sie gilt:

$$c_n = \begin{cases} 1 & \underline{r}_n \text{ ist mit einem Fremdatom besetzt} \\ 0 & \underline{r}_n \text{ ist mit einem Wirtsgitteratom besetzt} \end{cases} \quad (2.2.2)$$

Rufen die Fremdatome Verschiebungsfelder hervor, die nicht die Symmetrie des Referenzgitters besitzen, sondern im fcc Gitter z.B. eine dreizählige Achse auszeichnen, so führt man einen weiteren Index j ($j=1, \dots$) ein. Er numeriert die äquivalenten Orientierungen (kurz Defekttypen). $c_n^j = 1$, wenn das Fremdatom auf Platz $\underline{r}_n$ den Defekttyp j besitzt.

Bei nahezu statistischer Verteilung der Fremdatome ist es sinnvoll, mittlere Konzentrationen c_j , c und die entsprechenden Abweichungen (Konzentrationsfluktuationen) Δc_n^j , Δc_n einzuführen.

$$c^j = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N c_n^j, \quad c_n = \sum_{j=1}^J c_n^j \quad (2.2.3)$$

$$c = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^J \sum_{n=1}^N c_n^j = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N c_n = \sum_{j=1}^J c^j \quad (2.2.4)$$

$$c_n^j = c^j + \Delta c_n^j, \quad c_n = c + \Delta c_n \quad (2.2.5)$$

Unter der Annahme des Superpositionsprinzips für die Verschiebungsfelder der einzelnen Defekte - ein Defekt vom Typ j am Ort $\underline{R}_m$ verschiebt das Atom am Ort $\underline{R}_n$ um $\underline{s}_{n,m}^j$ im idealen Gitter - gilt im neuen Referenzgitter (s. z.B. Krivoglaz 1969)

$$\underline{u}_n = \sum_j \sum_m \Delta c_m^j \underline{s}_{n,m}^j \quad (2.2.6)$$

Bei substitutionellen Defekten handelt es sich meist um kleine Verschiebungen mit $\underline{k} \cdot \underline{u}_n \ll 1$, so daß es genügt, den linearen Term in der Entwicklung der Exponentialfunktionen in (1) mitzunehmen. Die Debye-Waller-Faktoren W_n^W und W_n^F sind Mittelwerte, die bei gegebener Defektverteilung zu bilden sind. Sie sind damit theoretisch schwer zugänglich. Das Problem vereinfacht sich wieder bei statistischer Verteilung der Atome. Insbesondere wird man bei kleinen Konzentrationen von substitutionellen Fremdatomen annehmen dürfen, daß die Fremdatome bei vergleichbarer Masse (wie z.B. Pb-Bi) mit den Wirtsatomen "mitschwingen", d.h. $W_n^F = W_n^W$. Bei tiefen Temperaturen $T \ll \Theta_D$ gibt es nur Nullpunktschwingungen. Für nicht zu große $\underline{k}$ (2.1.12) kann dann allgemein $e^{-W_n^W} \approx e^{-W_n^F} \approx 1$ gesetzt werden.

Mit diesen Näherungen wird aus (1)

$$\begin{aligned} \frac{dS}{d\Omega}(\underline{k}) = & \frac{1}{N} \left| b_W \sum_{n=1}^N e^{i\underline{k} \cdot \underline{r}_n} \left[1 + i\underline{k} \cdot \sum_{j=1}^J \sum_{m=1}^N \Delta c_m^j \underline{s}_{n,m}^j \right] \right. \\ & \left. + (b_F - b_W) \sum_{n=1}^N (c + \Delta c_n) e^{i\underline{k} \cdot \underline{r}_n} \left[1 + i\underline{k} \cdot \sum_{j=1}^J \sum_{m=1}^N \Delta c_m^j \underline{s}_{n,m}^j \right] \right|^2 \end{aligned} \quad (2.2.7)$$

$$\begin{aligned}
\frac{dS}{d\Omega}(\underline{k}) &= \frac{1}{N} \left| \left((1-c) b_W + c b_F \right) \sum_{n=1}^N e^{i \underline{k} \cdot \underline{r}_n} \right. \\
&\quad + (b_F - b_W) \sum_{n=1}^N \Delta C_n e^{i \underline{k} \cdot \underline{r}_n} + (1-c) b_W + c b_F \cdot i \underline{k} \cdot \sum_{j,n,m} \Delta C_m^j \underline{s}_{n,m}^j e^{i \underline{k} \cdot \underline{r}_n} \\
&\quad \left. + (b_F - b_W) \sum_{n=1}^N \Delta C_n e^{i \underline{k} \cdot \underline{r}_n} \cdot i \underline{k} \cdot \sum_{j=1}^J \sum_{m=1}^N \Delta C_m^j \underline{s}_{n,m}^j \right|^2 \\
&= \frac{1}{N} \left| \sum_1 + \sum_2 + \sum_3 + \sum_4 \right|^2
\end{aligned} \tag{2.2.8}$$

Die Bedeutung der vier Summen $\sum_i$ ist folgende:

$|\sum_1|^2$ liefert die (gegenüber dem Wirtsgitter) verschobenen Bragg-Reflexe mit der mittleren Streulänge $\bar{b}_W$

$$\bar{b}_W = (1-c) b_W + c b_F \tag{2.2.9}$$

für $\underline{k} = \underline{\tilde{r}}_{hkl}$ mit $\underline{\tilde{r}}_{hkl} \cdot \underline{r}_n = 2\pi \cdot m$. In den Phasenfaktoren $\exp(i \underline{k} \cdot \underline{r}_n)$ von (8) empfiehlt sich demnach die Einführung des auf die 1. Brillouin-Zone reduzierten Wellenvektors $\underline{q}$

$$\underline{k} = \underline{\tilde{r}}_{hkl} + \underline{q} \tag{2.2.10}$$

$2\text{Re} \sum_1^* (\sum_2 + \sum_3 + \sum_4)$ führen zu einer Dämpfung der Bragg-Reflexe (statischer Debye-Waller-Faktor). $|\sum_2 + \sum_3 + \sum_4|^2$ beschreibt die diffuse Streuung. Ihre Ursachen sind erstens Konzentrationsfluktuationen, $\sum_2$ ist proportional zur Fourier-Transformierten der Konzentrationsfluktuationen

$$\tilde{c}(\underline{q}) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \Delta C_n e^{i \underline{q} \cdot \underline{r}_n} = \frac{1}{N(b_F - b_W)} \sum_2 \tag{2.2.11}$$

d.h., es gibt prinzipiell diffuse elastische Streuung aufgrund von Konzentrationsfluktuationen auch ohne Beitrag der Verzerrungsstreuung. Bei Spezialfällen wie z.B. AlCr mit $b_{Al} \approx b_{Cr}$ empfehlen sich daher Parallelexperimente mit diffuser Röntgenstreuung.

Eine zweite Ursache für die diffuse Streuung sind die Fluktuationen der statischen Verzerrungen

$$\begin{aligned}
\sum_3 &= i \bar{b}_W \underline{k} \cdot \sum_j \sum_m \Delta C_m^j e^{i \underline{q} \cdot \underline{r}_m} \sum_n \underline{s}_{n,m}^j e^{i \underline{q} \cdot (\underline{r}_n - \underline{r}_m)} \\
&= i \bar{b}_W N \sum_j \tilde{c}^j(\underline{q}) \underline{k} \cdot \tilde{\underline{s}}^j(\underline{q})
\end{aligned}$$

mit der Fouriertransformierten der defektypabhängigen Konzentrationsfluktuationen

$$\tilde{c}^j(q) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \Delta c_n^j e^{iq \cdot r_n} \quad (2.2.12)$$

und der Fouriertransformierten des Verschiebungsfeldes eines einzelnen Defektes im Ursprung

$$\tilde{s}^j(q) = \sum_{n=1}^N s_n^j e^{iq \cdot r_n} \quad (2.2.13)$$

Dabei wurde angenommen, daß das Verschiebungsfeld $s_{n,m}^j$ nur vom Abstandsvektor zwischen Fremdatom (m) und verschobenem Wirtsgitteratom (n) abhängt (bzgl. Oberflächenkorrekturen s. z.B. Eisenriegler 1971). Man beachte den Skalenfaktor ($\Delta a/a$) zwischen dem Abstand der Atome (n) und (m) im Wirtsgitter: $R_n - R_m$ (für $s_{n,m}^j$) und im neuen Referenzgitter: $r_n - r_m \sim \frac{\Delta a}{a} (R_n - R_m)$. Der Term $\sum_4$ wird gemäß der Annahme kleiner Konzentrationsfluktuationen und $\underline{k} \cdot \underline{u} \ll 1$ als Korrektur höherer Ordnung im folgenden weggelassen.

Mit den Definitionen (2.2.9-13) schreibt sich der differentielle Wirkungsquerschnitt für diffuse elastische Streuung pro Defektatom

$$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega}(\underline{k}) = \frac{N}{c} \left| (\epsilon_F - \epsilon_W) \tilde{c}(q) + i \bar{\epsilon}_W \sum_{j=1}^J \tilde{c}^j(q) \underline{k} \cdot \tilde{s}^j(q) \right|^2 \quad (2.2.14)$$

(14) wird der Ausgangspunkt für die Beschreibung von Korrelationen zwischen verschiedenen Defektypen sein.

Bei statistischer Verteilung der Defekte mit den Konzentrationen c^j für die Defekte vom Typ j, läßt sich (2.2.14) vereinfachen zu

$$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega}(\underline{k}) = \left\{ \sum_j c^j |A^j(\underline{k})|^2 - \left| \sum_j c^j A^j(\underline{k}) \right|^2 \right\} \frac{1}{c} \quad (2.2.15)$$

mit der Amplitude

$$A^j(\underline{k}) = \epsilon_F - \epsilon_W + i \bar{\epsilon}_W \underline{k} \cdot \tilde{s}^j(q) \quad (2.2.16)$$

Bei kleinen Konzentrationen und Gleichverteilung der Defekttypen, d.h. $c^j = c/J$, wird aus (2.2.15)

$$\frac{1}{c} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega}(\underline{k}) = \frac{1}{J} \sum_j |b_F - b_W + i b_W \underline{k} \cdot \underline{\tilde{S}}^j(\underline{q})|^2 \quad (2.2.17)$$

(2.2.17) war der Ausgangspunkt für die theoretische Beschreibung in SSS und ist als Einzeldefektnäherung bekannt. Statistisch verteilte Punktdefekte rufen aufgrund der Verzerrung des Gitters eine kohärente diffuse elastische Streuung hervor. Sie stellt sich in der Einzeldefektnäherung als inkohärente Überlagerung der diffusen Streuung aufgrund der Verzerrung der einzelnen Defekte dar.

Die Analyse eines Streuexperimentes gemäß (2.2.17) gestattet demnach die Bestimmung der Fouriertransformierten des Verschiebungsfeldes eines Einzeldefektes als Modulation der Laue-Streuung $|b_F - b_W|^2$ bis auf einen unbekannten Phasenfaktor. Kein Phasenfaktor tritt auf, wenn es sich um einen Defekt mit inversionssymmetrischem Verschiebungsfeld handelt

$$\underline{S}(\underline{r}) = -\underline{S}(-\underline{r}) \quad (2.2.18)$$

so folgt aus (13)

$$\underline{\tilde{S}}(\underline{q}) = 2i \sum_{n=1}^{N/2} \underline{S}_n \sin(\underline{q} \cdot \underline{r}_n) \quad (2.2.19)$$

wobei die Summe nur über je einen der beiden inversionssymmetrischen Plätze zu erstrecken ist.

Der Spezialfall eines inversionssymmetrischen Verschiebungsfeldes hat eine weitere experimentell sehr leicht überprüfbare Konsequenz. Unter Ausnutzung der Translationsinvarianz im reziproken Gitter folgt für diesen Fall

$$\underline{S}(\frac{1}{2}\underline{\tau}_{hke}) = \underline{S}(\frac{1}{2}\underline{\tau}_{hke} - \underline{\tau}_{hke}) = \underline{S}(-\frac{1}{2}\underline{\tau}_{hke}) = -\underline{S}(\frac{1}{2}\underline{\tau}_{hke}) = 0. \quad (2.2.20)$$

Bei allen Punkten $\underline{k} = \frac{1}{2}\underline{\tau}_{hkl}$ im reziproken Gitter verschwindet demnach der Beitrag der Verzerrung zur diffusen Streuung, es bleibt nur die Laue-Streuung übrig.

Gitterstatik

Das Problem der theoretischen Beschreibung eines diffusen Streuexperimentes besteht nunmehr darin, Aussagen über das Verschiebungsfeld bzw. dessen Fouriertransformierte zu machen.

Zur Lösung dieses Problems entwickelten Matsubara (1952) und Kanzaki (1957) die Gitterstatik in Analogie zur Gitterdynamik.

In harmonischer Näherung gilt folgender Zusammenhang zwischen den Frequenzen der Gitterschwingungen $\omega_j(q)$ und der dynamischen Matrix $\underline{\tilde{\Phi}}(q)$ im ungestörten Kristall

$$M \omega_j^2(q) \underline{\epsilon}_j(q) = \underline{\tilde{\Phi}}(q) \underline{\epsilon}_j(q) \quad (2.3.1)$$

Dabei bezeichnet M die Masse der Gitteratome, $\underline{\tilde{\Phi}}(q)$ ist die Fouriertransformierte der Kopplungsparameter Matrix $\underline{\Phi}(\underline{R}_n)$

$$\underline{\tilde{\Phi}}(q) = \sum_n \underline{\Phi}(\underline{R}_n) e^{i q \cdot \underline{R}_n} \quad (2.3.2)$$

und $\underline{\epsilon}_j(q)$ ist der Polarisationsvektor der dynamischen Verschiebung (vgl. 2.1.13). In Anlehnung an (2.3.1) macht man in der Gitterstatik folgenden Ansatz für das statische Verschiebungsfeld eines Defektes im Ursprung

$$\underline{\tilde{\Phi}}(q) \cdot \underline{\tilde{S}}(q) = \underline{\tilde{F}}(q) \quad (2.3.3)$$

$\underline{\tilde{\Phi}}(q)$ ist die dynamische Matrix des ungestörten Kristalls und z.B. aus einem Born-v.-Karman-Fit an die experimentell bestimmten Phonondispersionskurven zu berechnen (s.u.). Damit ist das Problem der Gitterverzerrung auf die Frage nach den Kräften $\underline{F}(\underline{R}_n)$ (Kanzaki-Kräfte) zurückgeführt, die diese Gitterverzerrung hervorrufen.

$$\underline{\tilde{F}}(q) = \sum_n \underline{F}(\underline{R}_n) e^{i q \cdot \underline{R}_n} \quad (2.3.4)$$

Mit anderen Worten, statt des langreichweitigen Verschiebungsfeldes, das durch die Kopplung zwischen den Gitteratomen bedingt ist,^x gilt es nun, eine kurzreichweitige Kraft zu berechnen.

Der noch zu leistende Rechenaufwand zur Pa-

^x Bei einem Born-v.-Karman-Fit ist es üblich, die Kopplung bis zur 8. Schale mitzunehmen, das bedeutet z.B. 26 Fitparameter in einem fcc-Gitter (vgl. Tabelle 3, Seite 43).

rametrisierung von $\underline{F}(\underline{R}_n)$ ist damit drastisch reduziert (vgl. Kapitel III).

Tatsächlich wird die Problematik der Berechnung von $\underline{s}(\underline{r})$ durch die Formulierung (4) teilweise verdeckt. Sie wird z.B. deutlich, wenn man die Kraft $\underline{F}(\underline{R}_n)$ als Gradient der Potentialdifferenz $V_{\Delta} = V_D - V$ schreibt. Dabei soll V_D das Zwei-Teilchen-Zentralkraftpotential mit Defekt im Ursprung und neuen Ruhelagen $\underline{R}_n + \underline{s}(\underline{R}_n)$ bezeichnen im Unterschied zum Potential V der Wirtsatome mit Ruhelagen $\underline{R}_n$. Dann gilt für $\underline{F}(\underline{R}_n)$ in harmonischer Näherung

$$\underline{F}(\underline{R}_n) = - \underline{\nabla}_n \left\{ V_{\Delta} + \sum_{\underline{e}} \underline{s}(\underline{R}_{\underline{e}}) \cdot \underline{\nabla}_{\underline{e}} V_{\Delta} \right\}_{\underline{R}_n} \quad (2.3.5)$$

Das heißt, die Kanzaki-Kräfte $\underline{F}(\underline{R}_n)$ müssen in (2.3.5) selbstkonsistent bzgl. $\underline{s}(\underline{R}_n)$ bestimmt werden.

Für die $\underline{s}(\underline{R}_n)$ gilt es, folgendes Gleichungssystem zu lösen:

$$\begin{aligned} \underline{s}(\underline{R}_n) &= V_0 \int_{B_2} \frac{d^3 q}{(2\pi)^3} \underline{s}(q) e^{-i q \cdot \underline{R}_n} \\ &= V_0 \int_{B_2} \frac{d^3 q}{(2\pi)^3} \underline{\phi}^{-1}(q) \sum_{m=1}^M \underline{\nabla}_m \left\{ V_{\Delta} + \sum_{\underline{e}} \underline{s}(\underline{R}_{\underline{e}}) \cdot \underline{\nabla}_{\underline{e}} V_{\Delta} \right\}_{\underline{R}_m} e^{i q \cdot (\underline{R}_m - \underline{R}_n)} \end{aligned} \quad (2.3.6)$$

wobei V_0 das Volumen der primitiven Einheitszelle ist.

In der Literatur wurden verschiedene Potentiale für V_D und V verwandt, z.B. Lennard-Jones-Typ für festes Ar (Kanzaki 1957), Born-Mayer-Typ für Cu (Seeger, Mann und v. Jan (1962)). Die freien Parameter dieser Potentialansätze wurden an experimentelle Daten gefittet. Für Leerstellen in Alkali-Metallen verwendeten z.B. Flocken und Hardy (1969) $V_{\Delta} = -V$. Die in (2.3.5) benötigten 1. und 2. Ableitungen von V_{Δ} sind in diesem Fall die gleichen, die auch für $\underline{\phi}(\underline{R}_n)$ benötigt werden, d.h. sie lassen sich aus den bekannten Kopplungsparametern berechnen, ohne explizit ein Potential einführen zu müssen.

Der Versuch, $\underline{s}(\underline{R}_n)$ gemäß Gl. (6) ohne Fitparameter nur aus grundlegenden Prinzipien (first principles) zu berechnen, ist bisher nur für "einfache Metalle" mit nahezu freier Elektronengas-Konfiguration (simple metals, Alkali, Al, ...) im Rahmen der Pseudopotentialtheorie (s. z.B. Harrison 1966) durchgeführt worden

(Benedek und Baratoff (1971, 1973), Baratoff und Seitz (1975)). In der Pseudopotentialtheorie wird auf einer mikroskopischen Skala die direkte Coulomb-Wechselwirkung und die durch Elektronenabschirmung verursachte indirekte Ion-Ion Wechselwirkung in zweiter Ordnung der Störungstheorie berücksichtigt. Sie beschreibt bei den einfachen Metallen recht gut deren Phononspektren (Heine und Weaire (1971)). Die ähnlichen Abhängigkeiten von $\underline{\phi}(\underline{R}_n)$ und $\underline{E}(\underline{R}_n)$ vom Potential im Rahmen der Gitterstatik lassen vermuten, daß die Pseudopotentialtheorie auch in der Lage ist, die Verschiebungsfelder annähernd richtig wiederzugeben. Bisher existiert aber keine Messung von $\underline{s}(\underline{q})$ in diesen Systemen.

Da die Abweichungen der Fermiflächen des Blei von der einer Fermikugel mit Radius $k_F^{\text{Pb}} (= 1.6 \text{ \AA}^{-1})$ bisher als klein angesehen werden (1-2 eV im Vergleich zu $E_F^{\text{Pb}} = 9.5 \text{ eV}$), wird auch Blei zu den "einfachen" Metallen gezählt (Heine und Weaire 1971). Dennoch ist es bisher nicht gelungen, im Rahmen der Pseudopotentialtheorie die Phononfrequenzen von Blei richtig wiederzugeben (Harrison 1966). Die dritte Ordnung der Störungstheorie bringt zwar wesentliche Verbesserungen (keine imaginären Frequenzen mehr), aber noch keine Übereinstimmung (Bertoni et al. 1974). Die Autoren machen die Vernachlässigung sowohl der Verzerrungen der Fermifläche (nun also doch entscheidend), die erst in die vierte Ordnung der Störungstheorie eingehen, als auch die Vernachlässigung der Spin-Bahn-Kopplung für die Diskrepanzen verantwortlich. Da die dynamischen Verschiebungen im Blei z.Zt. noch so schlecht verstanden werden, erscheint es unwahrscheinlich, daß die statischen Verzerrungen im Blei durch eine Rechnung in diesem Rahmen der Pseudopotentialtheorie richtig wiedergegeben werden können.

Für das System Pb-Bi wird man daher versuchen, Kanzaki-Kraftmodelle mit geeigneter Parameterisierung zu entwerfen, die die gemessene Streuerverteilung richtig wiedergeben. Die einzelnen Modelle werden im nächsten Kapitel ausführlich vorgestellt.

Als Abschluß dieses Kapitels werden einige Formeln für das Verzerrungsfeld weit weg vom Defekt zusammengestellt und Folgerungen für die diffuse Streuung gezogen. Auf den Spezialfall q in Symmetrierichtung wird kurz im nächsten Kapitel noch einmal eingegangen.

Aus (2.3.4) folgt für $q \rightarrow 0$

$$\text{mit } \underline{\tilde{F}}(q) \underset{q \rightarrow 0}{\propto} i \underline{P} \cdot \underline{q} \quad (2.3.7)$$

$$\underline{P}_{\alpha\beta} = \sum_n \underline{F}_\alpha(\underline{R}_n) R_{\beta,n} \quad (2.3.8)$$

wobei $\sum \underline{F}(\underline{R}_n) = 0$ (verschwindende Gesamtkraft) und $\underline{P}_{\alpha\beta} = \underline{P}_{\beta\alpha}$ (drehmomentfreie Kräftedipole) zu beobachten sind. Für einen isotropen Defekt $\underline{P}_{\alpha\beta} = P_0 \delta_{\alpha\beta}$ in einem isotropen Medium $\underline{\phi}(q) \propto M v_L^2 q^2 \delta_{\alpha\beta}$ folgt damit aus (2.3.3) für $q \rightarrow 0$

$$\underline{\tilde{S}}(q) = i \frac{P_0}{M v_L^2} \cdot \frac{q}{q^2} \quad (2.3.9)$$

bzw.

$$\underline{S}(\underline{r}) = \frac{V_0 P_0}{4\pi M v_L^2} \cdot \frac{\underline{r}}{r^3} = \frac{P_0}{4\pi c_{11}} \frac{\underline{r}}{r^3} \quad (2.3.10)$$

(2.3.10) ist das aus der Kontinuumstheorie bekannte $1/r^2$ Verhalten, mit $c_{11} = M v_L^2 / V_0$ (Eshelby 1956). Auch im Fall eines anisotropen Mediums gilt $\underline{\tilde{\phi}}(q) \propto q^2 \underline{\tilde{\phi}}(\underline{e})$ (s. z.B. Dederichs und Leibfried (1969)). Dabei ist aber $\underline{\tilde{\phi}}(\underline{e})$ eine tensorielle Funktion von $\underline{e} = \underline{q}/q$. Für einen beliebigen Kräftedipol $\underline{P}$ ergibt sich damit aus

$$\underline{\tilde{S}}(q) \propto i \underline{\tilde{\phi}}^{-1}(\underline{e}) \cdot \underline{P} \cdot \frac{q}{q^2} \quad (2.3.11)$$

für große Abstände immer noch ein $1/r^2$ -Verhalten für das Verschiebungsfeld $\underline{s}(\underline{r})$. Es hängt jedoch in komplizierter Weise von der Orientierung von $\underline{r}$ bzgl. der Kristallachsen ab.

Die Kontinuumstheorie verknüpft nun die Volumenänderung pro Defektatom ΔV_D (≥ 0) mit der Spur des Kräftedipols. Für einen kubischen Kristall gilt (Eshelby 1956)

$$S_p \underline{P} = 3K \Delta V_D - 9K V_0 \frac{\Delta a}{a_c} \quad (2.3.12)$$

wobei K der Kompressionsmodul und $\frac{\Delta a}{a_c}$ die Gitterparameteränderung pro Defektatom sind, d.h., zwei durch unabhängige Messungen bestimmte Größen.

Betrachtet man nun die diffuse Streuung bei $\underline{k} \rightarrow 0$ (2.2.14ff), so folgt aus (2.3.11), daß die Laue-Streuung im wesentlichen durch die im allgemeinen kleine Volumenänderung modifiziert wird

$|\Delta V_D/V_0| \lesssim 0.1$ bei substitutionellen Defekten). In der Nähe der Bragg-Reflexe ($\underline{k} \rightarrow \underline{\tilde{k}}_{hkl}$) ist die Laue-Streuung jedoch vernachlässigbar gegenüber der sehr intensitätsstarken Verzerrungsstreuung (Huang, 1947), die für statistisch verteilte Punktdefekte mit $1/q^2$ ansteigt.

Die Information, die man aus der Messung der Huang-Streuung erhält, ist jedoch beschränkt auf die Stärke und Symmetrie des Verschiebungsfeldes weit weg vom Defekt (Trinkaus 1972). Eine relativ intensitätsarme Messung im Zwischenreflexgebiet dagegen, ermöglicht auch Aussagen über das Kraftfeld in der Nähe der Defekte und kann gegebenenfalls zwischen Kraftfeldern unterscheiden, die gemäß (2.3.8) zum gleichen Kräftedipol führen.

Auf die "semidiskreten" Methoden zur Berechnung des Verschiebungsfeldes wird hier nicht näher eingegangen. Die Einteilung in einen defektnahen Bereich, der gittertheoretisch behandelt wird, und einen defektfernen Bereich, der elastizitätstheoretisch behandelt wird, erscheint relativ willkürlich (Computer-Zeit). Außerdem treten bei elastisch anisotropen Medien Konvergenzprobleme auf (Tewordt 1958).

III. MODELLRECHNUNGEN 1

Im Rahmen der Einzeldefektnäherung (2.2.17) werden in diesem und in dem nächsten Kapitel Modelle für das Verzerrungsfeld von Bi in Pb diskutiert und mit dem Streuexperiment von Schumacher (1969) verglichen. Die Modelle werden auf der Grundlage der Gitterstatik (S. 15 ff) als Kanzaki-Kraft-Modelle formuliert. Durch die Anpassung an experimentelle Daten wird angenommen, daß die Konsistenzbedingung (2.3.6) bzgl. der verschiebungsfeldabhängigen Kräfte erfüllt ist. Bei der Parameterisierung der Kräfte $\underline{F}(\underline{R}_n)$ wird darauf geachtet, daß im Limes langer Wellen ($\underline{k} \rightarrow 0$) der Zusammenhang zwischen der Spur der Kräftedipole $\text{Sp} \underline{P}^j$ und der Gitterparameteränderung pro Defekt $\Delta a/a$ erhalten bleibt.

In diesem Abschnitt (III.1) soll die diffuse elastische Streuung für die drei Symmetrierichtungen $[001]$, $[111]$ und $[110]$ und im nächsten Abschnitt (III.2) für die Ebenen $(\bar{1}10)$ und (001) berechnet werden.

Für das System PbBi lautet die Einzeldefektnäherung (2.2.17)

$$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega}(\underline{k}) = \frac{1}{J} \sum_{j=1}^J \left| b_{\text{Bi}} - b_{\text{Pb}} + i b_{\text{Pb}} \underline{k} \cdot \underline{\Phi}^{-1}(\underline{q}) \cdot \underline{\tilde{F}}^j(\underline{q}) \right|^2 \quad (3.1.1)$$

Der Zusammenhang zwischen dem Wirkungsquerschnitt $d\sigma/d\Omega$ und den Kanzaki-Kräften $\underline{\tilde{F}}^j$ vereinfacht sich wesentlich, wenn $\underline{k}$ (und damit auch $\underline{q}$) in einer Symmetrierichtung liegt. Um zu sehen, daß in diesem Fall von $\underline{\Phi}^{-1}(\underline{q})$ nur $1/M\omega^2(\underline{q})$ übrig bleibt, nehme man an, daß der Streuvektor $\underline{k}$ durch die Drehmatrix $\underline{D}$ in die Form $\underline{D} \cdot \underline{k} = \underline{k}(1,0,0) = \underline{k}^S$ gebracht wird. Dann gilt auch

$$\underline{\Phi}_{\text{Diagonal}}^{-1}(\underline{q}) = \underline{D} \cdot \underline{\Phi}^{-1}(\underline{q}) \cdot \underline{D}^{-1} = \frac{1}{M_{\text{Pb}}} \begin{pmatrix} 1/\omega_L^2(\underline{q}) & 0 & 0 \\ 0 & 1/\omega_{T_1}^2(\underline{q}) & 0 \\ 0 & 0 & 1/\omega_{T_2}^2(\underline{q}) \end{pmatrix}$$

Führt man nun in das Produkt $\underline{k} \cdot \underline{\Phi}^{-1} \cdot \underline{\tilde{F}}$ zweimal den Einheitsoperator $\underline{E} = \underline{D}^{-1} \cdot \underline{D}$ ein, dann sieht man, daß $\underline{k}^S$ aus $\underline{\Phi}_{\text{Dia}}^{-1}(\underline{q})$ genau die longitudinalen Frequenzen (in Symmetrierichtung) herausprojiziert

$$\begin{aligned} \underline{\kappa} \cdot \underline{\Phi}^{-1} \cdot \underline{\tilde{F}} &= \underline{\kappa} \cdot \underline{D}^{-1} \cdot \underline{D} \cdot \underline{\Phi}^{-1} \cdot \underline{D}^{-1} \cdot \underline{D} \cdot \underline{\tilde{F}} = \underline{\kappa}^s \cdot \underline{\Phi}^{-1} \cdot \underline{D} \cdot \underline{\tilde{F}} \quad (3.1.2) \\ &= \frac{1}{M \omega_L^2} \underline{\kappa}^s \cdot \underline{D} \cdot \underline{\tilde{F}} = \underline{\kappa} \cdot \underline{\tilde{F}} / M \omega_L^2 \end{aligned}$$

Dann gilt statt (3.1.1)

$$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega}(\underline{\kappa}) = \frac{1}{J} \sum_j \left| b_{Bj} - b_{PB} + i b_{PB} \frac{\underline{\kappa} \cdot \underline{\tilde{F}}^j(q)}{M \omega_L^2(q)} \right|^2 \quad (3.1.3)$$

Auch wenn die Mittelung über die möglichen Defektkonfigurationen durchgeführt ist, bleibt der sehr einfache Zusammenhang zwischen dem Wirkungsquerschnitt und dem Kanzaki-Kraft-Modell bestehen. Deshalb empfiehlt es sich, die Formeln für den Wirkungsquerschnitt für das zur Diskussion stehende Modell zunächst in den Symmetrierichtungen hinzuschreiben, sei es zum Vergleich mit schon vorliegenden Daten eines diffusen Streuexperimentes, sei es zur Planung eines solchen.

Erstens kann man dann praktisch ohne numerische Analyse feststellen, ob das betreffende Modell bei $\underline{\kappa} = \frac{1}{2} \underline{\tau}_{hk1}$ einen Beitrag zusätzlich zur Laue-Streuung liefert oder nicht (die Frage nach der Inversionssymmetrie des Verzerrungsfeldes, s. S. 14). Zweitens kann man ohne großen numerischen Aufwand die Wirkungsquerschnitte für die Werte von $\underline{\kappa}$ berechnen, für die $\omega_L(q)$ bekannt ist.

Einige der Anmerkungen zu dem Fall $\underline{\kappa} \rightarrow 0$, zu dem Modell mit kubischen Kanzaki-Kräften und zum Dreibein-Modell, die in den folgenden Abschnitten gemacht werden, finden sich auch schon in der Arbeit von Schumacher (1969).

Im Spezialfall langer Wellen (für das kleinste gemessene $\kappa \approx 0.3 \text{ \AA}^{-1} \approx 0.2 \frac{\text{g}}{\text{cm}^2}$ gilt noch $\omega_L = \kappa v_L$ (vgl. Abb. 3 S. 9) hängt $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ nur noch von der Richtung von $\underline{\kappa}$ ab (vgl. (2.3.11)) und es können makroskopische Grenzwerte eingesetzt werden. Die erste Richtungsabhängigkeit ist durch die elastische Anisotropie des Pb gegeben $d^{\text{Pb}} = c_{11} - c_{12} - 2c_{44} = 2.86 \cdot 10^{11} \text{ dyn/cm}^2$ bei 10 K (vgl. Tabelle 1). Für die Geschwindigkeiten der Schallwellen in den drei Symmetrierichtungen gelten folgende Beziehungen $v_{100}^2 = c_{11}/\rho$, $v_{111}^2 = (c_{11} - \frac{2}{3}d)/\rho$, $v_{110}^2 = (c_{11} - \frac{d}{2})/\rho$. Dabei bezeich-

net $\rho = M/V_0$ die Dichte von Pb. Eine zweite Richtungsabhängigkeit könnte durch eine nicht kubische Symmetrie des Defektes hervorgerufen werden, $\underline{\tilde{K}}^j(q) \approx i \underline{\tilde{K}}^j \cdot \underline{p}^j \cdot \underline{q}$ mit $p_{\alpha\beta} \neq p_0 \delta_{\alpha\beta}$ in Symmetrierichtungen.

Die Messungen sind zwischen 6 und 9 K durchgeführt worden. Nicht alle experimentellen Daten, die für die Berechnung des Wirkungsquerschnitts benötigt werden, sind bei diesen Temperaturen bekannt. Zum Vergleich ist deshalb in der folgenden Tabelle die Temperaturabhängigkeit der elastischen Konstanten, des Gitterparameters und daraus abgeleiteter Größen dargestellt.

T	c_{11}	c_{12}	c_{44}	a	v_{100}^2	v_{111}^2	v_{110}^2	$\frac{\rho K}{v_{100}^2}$	$\frac{\rho K}{v_{111}^2}$	$\frac{\rho K}{v_{110}^2}$
[K]	$[10^{11} \text{ dyn/cm}^2]$			[Å]	$[10^6 \text{ m}^2/\text{sec}^2]$			-	-	-
10	5.55	4.54	1.94	4.907	4.77	5.44	6.00	0.879	0.771	0.699
100	5.39	4.46	1.80	4.919	4.66	5.29	5.82	0.885	0.779	0.709
293	4.97	4.24	1.50	4.950	4.38	4.94	5.38	0.902	0.799	0.734
10/100	1.03	1.02	1.08	0.998	1.02	1.03	1.03	0.99	0.99	0.985
10/293	1.12	1.07	1.29	0.991	1.09	1.10	1.11	0.975	0.965	0.95

Tabelle 1: Temperaturabhängigkeit der elastischen Konstanten, des Gitterparameters von Pb und daraus abgeleiteter Größen

Die adiabatischen elastischen Konstanten c_{11} , c_{12} und c_{44} und der Kompressionsmodul $K = (c_{11} + 2c_{12})/3$ der Tabelle 1 sind mit der Ultraschall-Pulsechomethode von Waldorf und Alers (1962) gemessen worden. Die Autoren geben einen Fehler von $\leq 0.5\%$ an. Der Gitterparameter bei 20°C ist $a = (4.9501 \pm 0.0001)\text{Å}$ (Klug 1946). Für die Temperaturabhängigkeit fanden Stokes und Wilson (1941) $\Delta a/a = (28.15 \cdot 10^{-6} + 23.6 \cdot 10^{-9} \cdot \Delta T \pm 0.3 \cdot 10^{-6}) \Delta T$.

Nimmt man an, daß das Verzerrungsfeld kubische Symmetrie besitzt, dann gilt mit $p_{\alpha\beta} = p_0 \delta_{\alpha\beta} = 3 K V_0 \Delta a/a c$ (2.3.12)

$$i \frac{\kappa \cdot \tilde{F}(q)}{M \omega_L^2(q)} = - \frac{P_0}{M v_L^2} = - \frac{3\kappa}{9 v_L^2} \cdot \frac{\Delta a}{a c}$$

Dann bleibt für den Wirkungsquerschnitt (3.1.3)

$$\frac{1}{c} \cdot \frac{d\tilde{\sigma}}{d\Omega}(\underline{\kappa}) = \left[b_{\text{B}} - b_{\text{PB}} - b_{\text{PB}} \frac{3\kappa}{9 v_L^2} \cdot \frac{\Delta a}{a c} \right]^2 \quad (3.1.4)$$

Bestimmt man die Gitterparameteränderung pro Defektatom $\Delta a/a c$ aus der Messung der diffusen elastischen Streuung bei $\kappa_{[100]} = 0.31 \text{ \AA}^{-1}$, $\frac{1}{c} \frac{d\tilde{\sigma}}{d\Omega} = (17 \pm 2.5) \frac{\text{mbarn}}{\text{sterad} \cdot \text{Defektatom}}$ (vgl. Abb. 6, S. 26), dann erhält man einen Wert von $\Delta a/a c = (1.8 \pm 0.36) 10^{-2}$. Das stimmt relativ gut mit den aus der Literatur bekannten Daten überein (vgl. Abb. 4) (Hayasi 1939 und Tyzack and Raynor 1954 bei $T = 293 \text{ K}$ und v. Hofe und Hanemann 1940 bei $T = 293 \text{ K}$ und $384,5 \text{ K}$. Die Fehlerangaben in Abb. 4 beziehen sich auf den Bereich kleiner Konzentrationen $c < 5 \%$. Als charakteristische Temperatur ist die Debye Temperatur $\Theta_D = 105.3 \text{ K}$ bei 4 K (Waldorf and Alers 1962) miteingezeichnet.

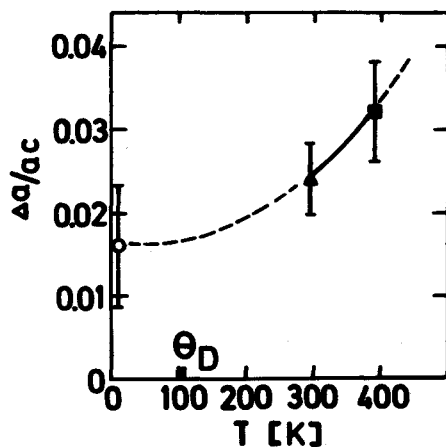


Abb. 4:

Gitterparameteränderung pro Bi-Atom.

Berechnet man mit $\Delta a/a c = (1.8 \pm 0.36) 10^{-2}$ die Wirkungsquerschnitte für $\underline{\kappa} \parallel [111]$ und $\underline{\kappa} \parallel [110]$ mit Hilfe von (3.1.4) und Tabelle 1, dann ergeben sich die Werte (15.5 ± 3.1) bzw. $(14.6 \pm 2.9) \text{ mbarn/sterad} \cdot \text{Defektatom}$. Der Vergleich mit den experimentellen Daten bei $\kappa = 0.31 \text{ \AA}^{-1}$: (14.3 ± 2.1) und $(14.7 \pm 2.2) \text{ mbarn/sterad Defektatom}$ (vgl. Abb. 6, S.) zeigt eine gute Übereinstimmung innerhalb der Fehler.

Wie sich später zeigen wird (vgl. Abb. 10, S. 31), liegt die Richtungsabhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für kleine κ aufgrund von nicht kubischen Verzerrungsfeldern innerhalb der ex-

perimentellen Fehler. Deshalb wird der unter der Annahme eines kubischen Verzerrungsfeldes gewonnene Wert für die Gitterparameteränderung auch bei der Parameterisierung derjenigen Kana-ki-Kräfte zugrunde gelegt, die nicht die kubische Symmetrie des Wirtsgitters besitzen. Die Bedingung für die Spur der Dipolkräfte lautet damit (vgl. 2.3.12) $\frac{1}{3} \text{Sp}P = P_0 = (7.8 \pm 1.5) \cdot 10^{-13} \text{ dyn/cm} = (0.49 \pm 0.10) \text{ eV}$.

Bevor die Charakteristika der einzelnen Modelle beschrieben werden, muß noch kurz auf ein allen gemeinsames numerisches Problem eingegangen werden.

Um den Wirkungsquerschnitt (3.1.3) in dem gesamten gemessenen K -Bereich in den drei Symmetrierichtungen zu berechnen, werden die longitudinalen Frequenzen unter $T = 10 \text{ K}$ benötigt. Dazu bieten sich die Messungen bei $T = 5 \text{ K}$ von Furrer und Hälg (1970) an. In Nicht-Symmetrierichtungen müßte man allerdings auf deren Born-v.-Karman-Fit zurückgreifen. Er basiert aber nur auf 4 Schalen und zeigt Abweichungen von mehreren Prozent von den gemessenen Daten (vgl. Abb. A3a, S. 100). Statt dessen wurde für die Berechnungen in diesem Abschnitt der Born.-v.-Karman-Fit mit 8 Schalen von Ng und Brockhouse (1967) zugrunde gelegt (vgl. Abb. A1, S. 98). Er beschreibt innerhalb von 1-2 % die Daten bei $T = 100 \text{ K}$. Die Frequenzen bei 5 K liegen im Mittel um 4 % über denen bei 100 K und wurden entsprechend korrigiert. Die Abb. 5 zeigt die Temperaturabhängigkeit der longitudinalen Frequenzen auch in Nicht-Symmetrierichtungen. (Ohne Kenntnis der Messungen von Furrer und Hälg wurde bei SSS aufgrund des geringeren Anstiegs der Frequenzen zwischen 300 K und 100 K (Stedman et al. 1967, vgl. auch Abb. 5) nur ein Korrekturfaktor 1.02 statt 1.04 angebracht. Das bedeutet einen Unterschied von 8 % für $1/c \, d\sigma/d\Omega(1/2\tilde{\epsilon}_{220})$ (vgl. z.B. 3.1.13). Aus der Temperaturabhängigkeit der elastischen Konstanten folgt für die longitudinalen Frequenzen bei kleinen q eine geringere Temperaturabhängigkeit zwischen 10 und 100 K, dagegen eine etwas stärkere zwischen 100 K und 293 K (vgl. ν_L^2 in Tabelle 1).

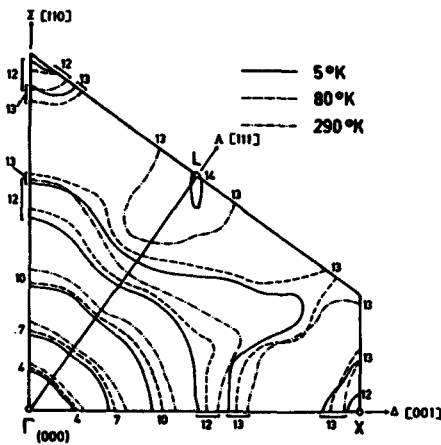


Abb. 5:

Kurven konstanter Frequenz ω_L [THz]
für Pb (Furrer und Hälg 1970).

Kubischer Defekt

Besitzt das Verzerrungsfeld des Defektes die (kubische) Symmetrie O_h des Wirtsgitters, so kann man für die Kanzaki-Kraft am Ort $\underline{R}_n$ in der Schale s als einfachsten Ansatz folgende Parameterisierung wählen (3.1.5) $\underline{F}(\underline{R}_{ns}) = f_s \underline{R}_{ns}/R_s$.

Dann gilt für $\tilde{\underline{F}}(\underline{q})$ nach (2.3.4)

$$\begin{aligned} \tilde{\underline{F}}(\underline{q}) &= \sum_s f_s/R_s \sum_{n_s}^{N_s} \underline{R}_{n_s} e^{i\underline{q} \cdot \underline{R}_{n_s}} \\ &= 2i \sum_s f_s/R_s \sum_{n_s}^{N_s/2} \underline{R}_{n_s} \sin \underline{q} \cdot \underline{R}_{n_s} \end{aligned} \quad (3.1.6)$$

dabei ist die Summe über N Atome in Teilsummen über N_s Atome in S Schalen zerlegt worden. Für die Dipolkraft folgt aus (2.3.8)

$$\underline{P}_{\alpha\beta} = \sum_s f_s/R_s \sum_{n_s}^{N_s} R_{\alpha,n_s} R_{\beta,n_s} = \frac{1}{3} \sum_s N_s f_s R_s \delta_{\alpha\beta} \quad (3.1.7)$$

und damit für $\text{Sp} \underline{P}$ mit (2.3.12)

$$\text{Sp} \underline{P} = 3 P_o = \sum_s N_s f_s R_s = 9 K \cdot V_o \cdot \frac{\Delta a}{a c} \quad (3.1.8)$$

In einem Modell, in dem die Kanzaki-Kräfte nur an den nächsten Nachbar-Atomen angreifen, ist f_1 durch (3.1.8) schon festgelegt.

$$f_1 = \frac{P_o}{2\sqrt{2} a} = \frac{3 K \cdot V_o}{2\sqrt{2} a} \cdot \frac{\Delta a}{a c} = (5.6 \pm 1.1) \cdot 10^{-6} \text{ dyn.} \quad (3.1.9)$$

Werden Kanzaki-Kräfte an nächsten (f_1) und übernächsten Nachbar-Atomen (f_2) mitgenommen, gibt es einen freien Parameter z.B. f_2 ,

f_1 ist dann bestimmt durch die Nebenbedingung

$$SpP = 12 f_1 \frac{a}{\sqrt{2}} + 6 f_2 a = 6\sqrt{2} a \left(f_1 + \frac{f_2}{\sqrt{2}} \right) \quad (3.1.10)$$

Für die Wirkungsquerschnitte in den drei Symmetrierichtungen gelten nach diesem Modell folgende Beziehungen gemäß (3.1.3)

$$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\xi, \hat{c}_{200}) = \left[b_{Bi} - b_{Pb} - b_{Pb} \frac{8\sqrt{2}\pi\xi}{aM\omega_{100}^2(q)} \left\{ f_1 \sin \xi \cdot 2\pi + \frac{1}{\sqrt{2}} f_2 \sin \xi \cdot 4\pi \right\} \right]^2$$

$$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\xi, \hat{c}_{111}) = \left[b_{Bi} - b_{Pb} - b_{Pb} \frac{6\sqrt{2}\pi\xi}{aM\omega_{111}^2(q)} \left\{ f_1 + \frac{f_2}{\sqrt{2}} \right\} \sin \xi \cdot 2\pi \right]^2 \quad (3.1.11)$$

$$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\xi, \hat{c}_{110}) = \left[b_{Bi} - b_{Pb} - b_{Pb} \frac{8\sqrt{2}\pi\xi}{aM\omega_{110}^2(q)} \left\{ (f_1 + \frac{1}{\sqrt{2}} f_2) \sin \xi \cdot 4\pi + 2f_1 \sin \xi \cdot 2\pi \right\} \right]^2$$

Dabei wurde zur besseren Übersicht der Winkelfunktionen ξ mit $\kappa = \xi \cdot \hat{c}_{hkl}$ eingeführt.

Die experimentellen Daten von Schumacher (1969) sind in Abb. 6 dargestellt zusammen mit einer Modellrechnung nach (3.1.11) mit $f_2 = 0$ (strichpunktierte Linie).

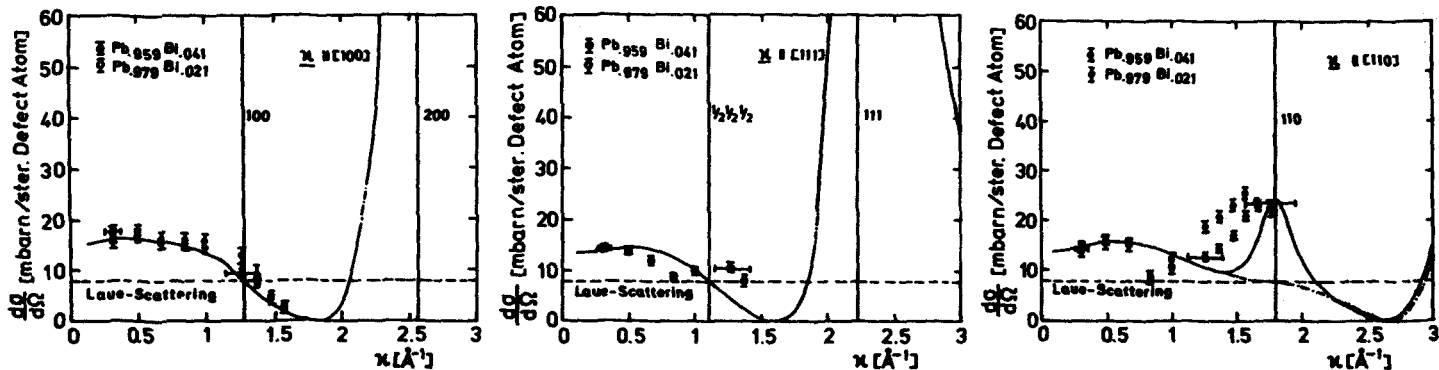


Abb. 6: Diffuse elastische Streuung an $Pb_{0.979}Bi_{0.021}$ und $Pb_{0.959}Bi_{0.041}$. Modellrechnungen für Kanzaki-Kräfte an nächsten Nachbar-Atomen: kubische Symmetrie (strichpunktierte Linie), trigonale Symmetrie (Dreibein-Modell) (durchgezogene Linie). Laue-Streuung (gestrichelte Linie). (Schumacher 1969).

* Ein Beispiel für den Fall $f_2 = -2f_1$, d.h. $SpP=0$, könnte $AlAg$ sein wegen $(\Delta a/ac)AlAg=0$. $f_1 > 0$ (< 0) führt für $\kappa \geq 0.3\text{\AA}^{-1}$ (vgl. 3.1.11) zu einer negativen (positiven) Abweichung von der [relativ großen] Laue-Streuung [für Ag^{107}] in [100] und [110]-Richtung und zu keiner Abweichung in [111]-Richtung.

Zunächst gibt es bei kleinen $\underline{K}$, etwa $(0.3 \dots 0.6)\text{\AA}^{-1}$, eine gute Obereinstimmung mit dem Experiment. Auch für größere $\underline{K}$ wird der Intensitätsverlauf in $[100]$ -Richtung richtig wiedergegeben. Die Abweichung bei $\underline{K} = 2\pi/a (1,0,0)$ bei der Messung mit dem $\text{Pb}_{0.979}\text{Bi}_{0.021}$ Kristall deutet allerdings auf ein nicht inversionssymmetrisches und damit nicht kubisches Verzerrungsfeld hin (vgl. S. 14).

Qualitativ richtig wird die Modulation der Laue-Streuung (gestrichelte Linie) auch in der $[111]$ -Richtung beschrieben. Die Oszillationen der experimentellen Daten um die gerechnete Kurve liegen aber außerhalb der experimentellen Fehler. Wieder weist die Abweichung bei $\underline{K} = 2\pi/a (1,1,1)$ auf ein nicht kubisches Verzerrungsfeld hin. Wegen der $[100]$ -Orientierung des $\text{Pb}_{0.979}\text{Bi}_{0.021}$ Kristalls gibt es mit dieser Probe keine Messung in $[111]$ -Richtung. Am auffallendsten aber sind die Oszillationen der experimentellen Daten um die gerechnete Kurve in $[110]$ -Richtung. Insbesondere gibt es in der Nähe von $\underline{K} = 2\pi/a (1,1,0)$ einen starken Anstieg der Streuintensität in krassem Widerspruch zur Annahme eines kubischen Verschiebungsfeldes.

Da kein Kanzaki-Modell, das von einem kubischen Verzerrungsfeld ausgeht (Ansatz (3.1.5)), diese experimentellen Daten beschreiben kann, muß angenommen werden, daß das Verschiebungsfeld von Bi in Pb nicht die kubische Symmetrie des Wirtsgitters besitzt.

Dieses einfache Modell ist jedoch ein guter Ansatz zur Beschreibung der Verzerrungsstreuung im System AlCu . Abb. 7 zeigt den Vergleich einer solchen Rechnung mit der Messung der diffusen elastischen Streuung an einem $\text{Al}_{0.992}\text{Cu}_{0.008}$ Einkristall bei $T = 800\text{ K}$ (Bauer und Seitz 1974). Die relativ großen Wirkungsquerschnitte im Vergleich zum System PbBi sind erstens durch den relativ großen Streulängenunterschied bedingt - die Laue-Streuung für AlCu ist 172.3 im Vergleich zu 7.8 mbarn/sterad und Defektatom -, zweitens durch die größere Gitterparameteränderung $\Delta a/a_c = -0.12$ (Bletry 1970).

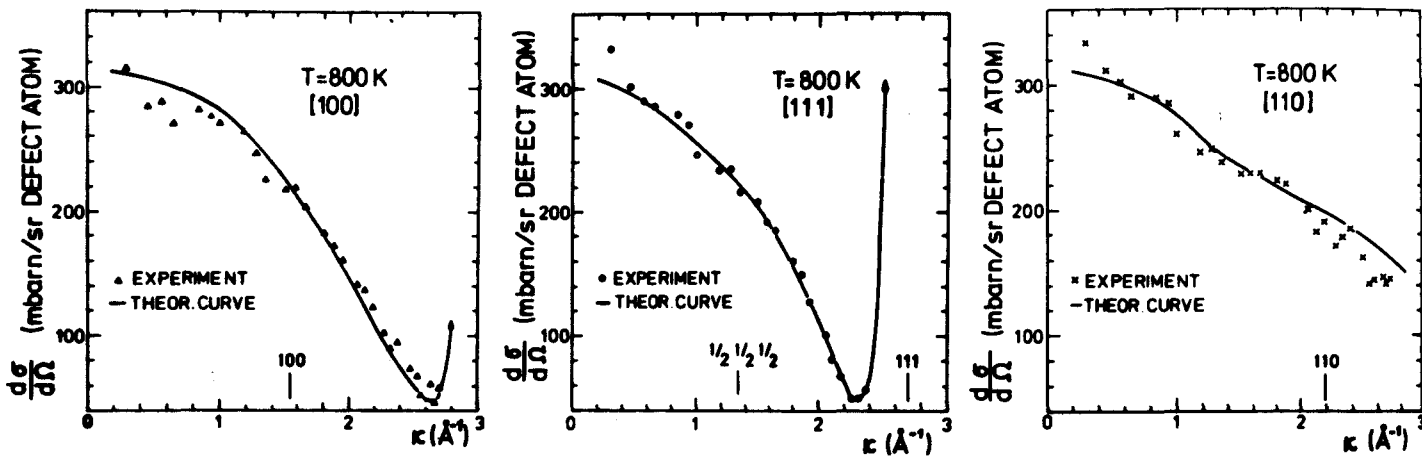


Abb. 7: Diffuse elastische Streuung an $\text{Al}_{0.992}\text{Cu}_{0.008}$ (Bauer und Seitz 1974). Modellrechnung für Kanzaki-Kräfte an nächsten Nachbar-Atomen (kubische Symmetrie).

Trigonale Defekte

1) Dreibein Modell

Schumacher hat für das System PbBi ein Verschiebungsfeld mit trigonaler Symmetrie vorgeschlagen. Er führt diese Drei-Zähligkeit auf die Bindungen der Bi-Atome zurück, die z.B. reines Bi-Metall in einem Gitter mit rhomboedrischer Elementarzelle kristallisieren lassen (Abb. 8). Die Elementarzelle enthält zwei Atome

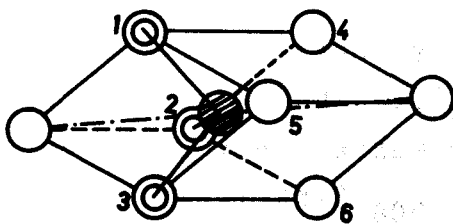


Abb. 8:

Die Einheitszelle des Bi-Gitters.

mit den Punktlagen $(0,0,0)$ und $(1/2-x, 1/2-x, 1/2-x)$, wobei $x = 0.026 = 0.123 \text{ \AA}$ ist (Ewald und Herrmann 1931). D.h., die Nachbarn 1, 2 und 3 liegen etwas näher beim zentralen Atom als die Nachbarn 4, 5 und 6. Schumacher nimmt für PbBi nun an, daß zusätzlich zu den abstoßenden Kräften f_1 an allen 12 nächsten

Nachbarn noch Kräfte f_1' wirken, die an drei in einer (111)-Ebene durch den Ursprung liegenden Pb-Nachbarn angreifen (Abb. 9). In diesem "Dreibein"-Modell bleibt das Bi-Atom selbst unverschoben im Gegensatz zu den "Off-center"-Modellen (s.u.).

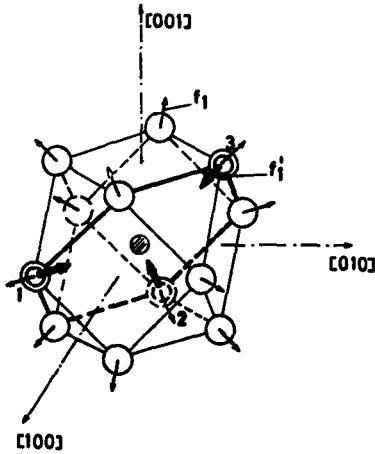


Abb. 9:

Kanzaki-Kräfte nach dem Dreibein-Modell.

Es gibt $J = 8$ verschiedene Dreibein-Lagen: 4 nicht äquivalente (111)-Ebenen und in jeder Ebene 2 um 60° gedrehte Dreibeine.

Alle Defektkonfigurationen sind gleich wahrscheinlich.

Aus Gründen, die später diskutiert werden, sind bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte für das Dreibein-Modell auch Kräfte (f_2) an den übernächsten Nachbarn gemäß (3.1.5) mitgenommen worden. Für (3.1.3) erhält man damit

$$\frac{1}{c} \cdot \frac{dG}{d\Omega} (\varphi, \tilde{r}_{200}) = [b_{Bi} - b_{Pb} - b_{Pb} \frac{16\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{110}^2(q)} \{ [f_1 + \frac{f_1'}{4}] \sin \varphi \cdot 2\pi + \frac{f_2}{\sqrt{2}} \sin \varphi \cdot 4\pi \}]^2$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{c} \cdot \frac{dG}{d\Omega} (\varphi, \tilde{r}_{111}) &= \frac{3}{4} [b_{Bi} - b_{Pb} - b_{Pb} \frac{12\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{111}^2(q)} \{ f_1 + \frac{f_1'}{3} + \frac{f_2}{\sqrt{2}} \} \sin \varphi \cdot 2\pi]^2 \\ &+ \frac{1}{4} [b_{Bi} - b_{Pb} - b_{Pb} \frac{12\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{111}^2(q)} \{ f_1 + \frac{f_2}{\sqrt{2}} \} \sin \varphi \cdot 2\pi]^2 \end{aligned} \quad (3.1.12)$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{c} \cdot \frac{dG}{d\Omega} (\varphi, \tilde{r}_{220}) &= \frac{1}{2} [b_{Bi} - b_{Pb} - b_{Pb} \frac{16\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{110}^2(q)} \{ (f_1 + \frac{f_1'}{4}) \sin \varphi \cdot 2\pi \\ &+ \frac{1}{2} (f_1 + \frac{f_1'}{2} + \sqrt{2} f_2) \sin \varphi \cdot 4\pi \}]^2 \\ &+ \frac{1}{2} [b_{Pb} \frac{4\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{110}^2(q)} \frac{f_2}{2} \{ \cos \varphi \cdot 2\pi - \cos \varphi \cdot 4\pi \}]^2 \\ &+ \frac{1}{2} [b_{Bi} - b_{Pb} - b_{Pb} \frac{16\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{110}^2(q)} \{ (f_1 + \frac{f_1'}{4}) \sin \varphi \cdot 2\pi \\ &+ \frac{1}{2} (f_1 + \sqrt{2} f_2) \sin \varphi \cdot 4\pi \}]^2. \end{aligned}$$

Aus (3.1.12) folgt, daß (nur) bei $\underline{k} = 1/2 \hat{\underline{c}}_{\text{hk}1} = 1/2 \hat{\underline{c}}_{220}$ ein Beitrag zusätzlich zur Laue-Streuung kommt. Der Faktor $1/2$ vor dem $\cos$ -Term spiegelt die Tatsache wider, daß nur Dreibeine in den $(\bar{1}11)$ und $(1\bar{1}1)$ -Ebenen und nicht auch solche in den $(11\bar{1})$ - und (111) -Ebenen einen Beitrag zu $d\sigma/d\Omega$ (110) liefern.

$$\frac{1}{\epsilon} \frac{d\sigma}{d\Omega} \left(\frac{1}{2} \hat{\underline{c}}_{220} \right) = \left[b_{22} - b_{28} \right]^2 + 16 \left[b_{28} \frac{\sqrt{f_1'}}{a M \omega_L^2 (110)} \right]^2 \quad (3.1.13)$$

Nimmt man nur die Kräfte f_1' mit, dann folgt aus $\text{Sp} \underline{P} = f_1' 3a/\sqrt{2}$ ein Wert für $\frac{1}{2} d\sigma/d\Omega (1/2 \hat{\underline{c}}_{220}) = 330 \text{ mbarn/sterad}$ und Defektatom im Widerspruch zum experimentellen Wert von (23 ± 2) .

Berücksichtigt man dagegen auch die Kräfte f_1 an allen nächsten Nachbarn, dann gilt für die Spur der Kräftedipole

$$\text{Sp} \underline{P} = 6\sqrt{2} a \left(f_1 + \frac{f_1'}{4} \right), \quad (3.1.14)$$

und man hat einen freien Parameter. Die einfachste Anpassung geschieht bei $\underline{k} = 1/2 \hat{\underline{c}}_{220}$, wo nur f_1' auftaucht. Dann ergibt sich $f_1' = \pm(6.0 \pm 0.5) \cdot 10^{-6} \text{ dyn}$. Für den Fall anziehender Zusatzkräfte $f_1' < 0$ folgt für f_1 aus (3.1.14) $f_1 = (7.1 \pm 1.1) \cdot 10^{-6} \text{ dyn}$. Das Ergebnis einer Rechnung mit diesem Parametersatz ist in Abb. 6, S. 26 als durchgezogene Kurve eingezeichnet. Eine Rechnung mit dem anderen Parametersatz ($f_1' > 0$ und $f_1 = (4.1 \pm 1.1) \cdot 10^{-6} \text{ dyn}$) zeigt davon keine Abweichung. Das ist nicht verwunderlich für $\underline{k} = \frac{1}{2} \hat{\underline{c}}_{200}$, da die Kräfteparameter f_1 und f_1' in diesem Wirkungsquerschnitt in der gleichen Kombination auftreten wie in der Spur von $\underline{P}$. Das erklärt auch die Übereinstimmung mit dem kubischen Modell. Der Grund für die Übereinstimmung der Rechnung mit den beiden Dreibein-Parametersätzen in $[111]$ und $[110]$ -Richtung ist aus der Darstellung (3.1.12) nicht unmittelbar ersichtlich, ebenso die Übereinstimmung mit dem kubischen Modell in $[111]$ -Richtung.

Bei (110) erscheint dagegen nun ein Peak, dessen Breite im wesentlichen durch die Breite von $1/\omega_{110}^4(q)$ bei $q = (110)$ bestimmt wird (vgl. Abb. 3, S. 9). Sie ist schmaler als die gemessene Breite, die allerdings nicht auf die aus Intensitätsgründen relativ schlechte Auflösung korrigiert ist (vgl. Fehlerbalken ΔK). Eine Normierung auf gleiche Fläche hätte einen etwa 1.5 mal größeren Kraftparameter zur Folge (s.a. Kapitel VI., S. 89).

Nach wie vor bleiben die Abweichungen in $[110]$ -Richtung bei $\kappa \approx 0.8 \text{ \AA}^{-1}$ und in $[111]$ -Richtung bei 0.9 und $1.3 \text{ \AA}^{-1}$ unerklärt.^x Der steile Abfall deutet auf eine sehr langreichweitige Kopplung hin. Das hieße, im Rahmen dieser Modelle, viele Parameter zu fitten, was aber wegen der großen Fehler der experimentellen Daten (zumal ohne Auflösungskorrektur) nicht angebracht erscheint. Was die Frage nach dem Vorzeichen von f_1' betrifft, so bringt auch die Mitnahme von nicht verschwindenden Kräften an den übernächsten Nachbar-Atomen (3.1.12) noch keine Klärung, wie sich aus Abb. 10 entnehmen läßt. Dort sind die 4 Fälle: $f_1' = \pm 6.0 \cdot 10^{-6} \text{ dyn}$, $f_2 = \pm 1/2 f_1$ mit der Nebenbedingung $SpP = 6\sqrt{2}a(f_1 + 1/4 f_1' + 1/\sqrt{2} f_2)$ mit dem Experiment verglichen.

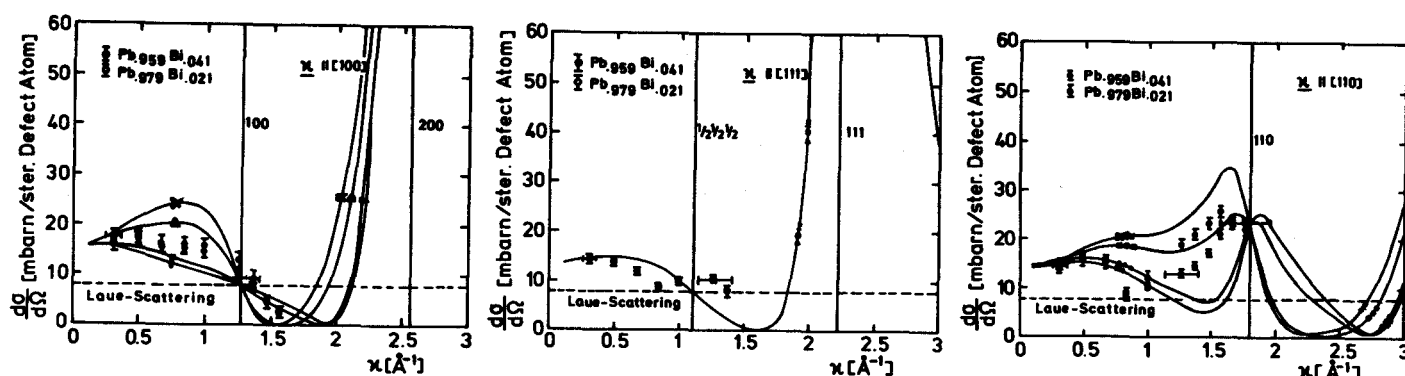


Abb. 10: Der Einfluß von Kanzaki-Kräften an übernächsten Nachbar-Atomen auf das Dreibein-Modell. ($f_1/f_2/f_3$):

×× (11/-6/-5.5); ++ (5.3/-6/2.6); ■■ (6.3/6/-3.2);
▲▲ (3.0/6/1.5). Alle Parameter in 10^{-6} dyn .

In $[100]$ -Richtung bringt die Mitnahme von (zentralsymmetrischen) Kräften an den übernächsten Nachbarn eine Verschlechterung gegenüber dem einfachen Dreibein-Modell. Die charakteristischen

^x Die geringen Abweichungen des Born-v.-Karman-Fits von den gemessenen Frequenzen (Kohneffekt, vgl. Abb. A1) können nicht für diese Diskrepanzen verantwortlich gemacht werden.

Abweichungen sind eine Oberhöhung (Absenkung) vor (100) und eine Verschiebung des Minimums zu kleineren (größeren) κ -Werten für den Fall anziehender (abstoßender) Kräfte an den übernächsten Nachbarn, unabhängig davon, ob die spezifischen Dreibein-Kräfte f_1' anziehend oder abstoßend wirken. Der Wirkungsquerschnitt in $[111]$ -Richtung ist für alle vier Fälle gleich. (In ausquadrierter Form (vgl. 3.1.12) zeigt er nur eine Abhängigkeit von $\text{Sp}\underline{P}$ und $f_1'^2$). In $[110]$ -Richtung verschieben anziehende (abstoßende) Kräfte den (110)-Peak zu kleineren (größeren) κ -Werten und heben (senken) die Kurven bei $\kappa \approx 1.4 \text{ \AA}^{-1}$ an (ab), unabhängig davon, ob die Dreibein-Kräfte f_1' anziehend oder abstoßend wirken. Keiner der vier Fälle bringt eine entscheidende Verbesserung gegenüber dem ursprünglichen Dreibein-Modell.

Wenn man die Zahl der freien Parameter nicht drastisch erhöhen will, bleibt im Rahmen der Einzeldefektnäherung nur die Möglichkeit, andere nicht inversionssymmetrische Kanzaki-Kräfte an den nächsten Nachbarn zu diskutieren. Die Modelle in den folgenden Abschnitten sind unter diesem Gesichtspunkt zu sehen.

2. 111-Off-center-Modell

Dem 111-Off-center-Modell liegt wie dem Dreibein-Modell die Annahme von den drei anziehenden bzw. abstoßenden Bindungen des Bi zugrunde. Ähnlich wie im Bi-Gitter (Abb. 8) sollen nun aber die entsprechenden drei Kanzaki-Kräfte nicht coplanar sein (s. Abb. 11). Angenommen, an den Atomen 1-3 greifen zentral-symmetrische Kräfte vom Betrag f_1' an, dann resultiert eine Kraft senkrecht zur $(\bar{1}\bar{1}1)$ -Ebene $\underline{F}' = \sum_{n=1}^3 \underline{F}_n = f_1' = \sqrt{2} (\bar{1}, \bar{1}, 1)$. Um zu garantieren, daß die Gesamtkraft verschwindet, könnte man entgegengesetzt gleiche Kräfte an den gegenüberliegenden Atomen 4-6 anbringen. Das hätte aber wieder ein inversionssymmetrisches Verschiebungsfeld zur Folge und könnte nicht den Anstieg bei $\kappa = 1/2 \tau_{220}$ erklären. Die Struktur des Bi-Gitters selbst legt nun eine Off-center-Lage des Bi-Atoms auch im Pb-Gitter nahe. Die Verschiebung wird durch die Kraft $\underline{F}'' = f_1'' 1/\sqrt{3} (\bar{1}\bar{1}1) = -\underline{F}'$ bewirkt, d.h., es gilt $f_1'' = -\sqrt{6} f_1'$. Ohne einen zusätzlichen

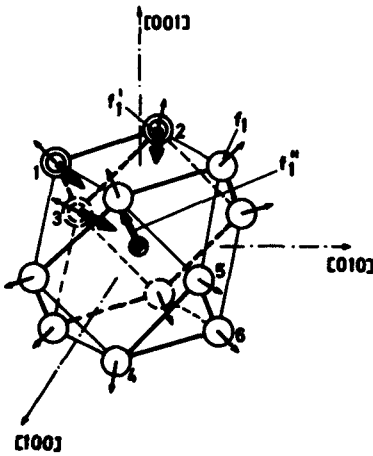


Abb. 11:

Kanzaki-Kräfte nach dem 111-Off-center-Modell.

Parameter einzuführen, könnte man sich die Kompensation einer Off-center-Kraft auch durch gleiche Kräfte an den Atomen 1-6 gewährleisten denken. $\underline{F}' = \sum_{n=1}^6 \underline{F}_n = 2\sqrt{2}f_1'(\bar{1}, \bar{1}, 1)$. Dann folgt $f_1' = 1/2 f_1$, d.h., formal nur eine andere Skalierung der Kräfte.

Die 4 nicht äquivalenten (111)-Ebenen ergeben 4 verschiedene 111-Off-center-Defektkonfigurationen. Unter der Annahme, daß alle Defektorientierungen gleich wahrscheinlich sind, erhält man aus (3.1.3).

$$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\varphi, \underline{e}_{200}) = \left[b_{B_1} - b_{PB} - b_{PB} \frac{4\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{100}^2(q)} \left\{ (4f_1 + f_1') \sin 2\pi\varphi + \sqrt{2}f_2 \sin 4\pi\varphi \right\}^2 \right. \\ \left. + \left[b_{PB} \frac{4\sqrt{2}\pi\varphi f_1'}{aM\omega_{100}^2(q)} (\cos 2\pi\varphi - 1) \right]^2 \right]$$

$$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\varphi, \underline{e}_{111}) = \frac{3}{4} \left[b_{B_1} - b_{PB} - b_{PB} \frac{4\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{111}^2(q)} \left\{ 3f_1 + \frac{3}{\sqrt{2}}f_2 + \frac{1}{2}f_1' \right\} \sin 2\pi\varphi \right]^2 \\ + 2 \left[b_{PB} \frac{2\sqrt{3}\pi\varphi f_1'}{aM\omega_{111}^2(q)} (\cos 2\pi\varphi - 1) \right]^2 \quad (3.1.15)$$

$$+ \frac{1}{4} \left[b_{B_1} - b_{PB} - b_{PB} \frac{12\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{111}^2(q)} \left\{ f_1 + \frac{f_2}{\sqrt{2}} + \frac{f_1'}{2} \right\} \sin 2\pi\varphi \right]^2$$

$$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\varphi, \underline{e}_{220}) = \frac{1}{2} \left[b_{B_1} - b_{PB} - b_{PB} \frac{4\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{110}^2(q)} \left\{ (4f_1 + f_1') \sin 2\pi\varphi \right. \right. \\ \left. \left. + 2(f_1 + \sqrt{2}f_2) \sin 4\pi\varphi \right\} \right]^2 \\ + \frac{1}{2} \left[b_{B_1} - b_{PB} - b_{PB} \frac{4\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{110}^2(q)} \left\{ (4f_1 + f_1') \sin 2\pi\varphi \right. \right. \\ \left. \left. + (2f_1 + 2\sqrt{2}f_2 + f_1') \sin 4\pi\varphi \right\} \right]^2 \\ + \frac{1}{2} \left[b_{PB} \frac{4\sqrt{2}\pi\varphi f_1'}{aM\omega_{110}^2(q)} (\cos 2\pi\varphi - \cos 4\pi\varphi - 2) \right]^2$$

Dabei sind aus Gründen, die später diskutiert werden, auch zentralsymmetrische Kräfte an allen nächsten (f_1) und allen übernächsten Nachbarn (f_2) mitgenommen worden. Betrachtet man zunächst wieder die Punkte $\underline{K} = 1/2 \underline{\tau}_{hk1}$, dann stellt man fest, daß nicht nur bei $1/2 \underline{\tau}_{220}$ ein Zusatzterm zur Laue-Streuung übrig bleibt. Das war zu erwarten, denn die Symmetrie des Verschiebungsfeldes beim Off-center-Modell weicht stärker von der kubischen ab als beim Dreibein-Modell.

$$\begin{aligned} \frac{1}{c} \frac{d\delta}{d\alpha} \left(\frac{1}{2} \underline{\tau}_{200} \right) &= (b_{Bi} - b_{Be})^2 + 32 \left(b_{Be} \frac{\sqrt{5} f_1'}{a M \omega_L^2 (100)} \right)^2 \\ \frac{1}{c} \frac{d\delta}{d\alpha} \left(\frac{1}{2} \underline{\tau}_{111} \right) &= (b_{Bi} - b_{Be})^2 + 24 \left(b_{Be} \frac{\sqrt{5} f_1'}{a M \omega_L^2 (111/2)} \right)^2 \\ \frac{1}{c} \frac{d\delta}{d\alpha} \left(\frac{1}{2} \underline{\tau}_{220} \right) &= (b_{Bi} - b_{Be})^2 + 16 \left(b_{Be} \frac{\sqrt{5} f_1'}{a M \omega_L^2 (110)} \right)^2 \end{aligned} \quad (3.1.16)$$

Nimmt man - der Diskussion beim Dreibein-Modell folgend - nur die Kräfte $\underline{F}'$ und $\underline{F}''$ mit, und bestimmt den Parameter f_1' aus $Sp\underline{P} = f_1' \cdot 3a/\sqrt{2}$, dann ergibt sich für (110) wieder ein zu grosser Wirkungsquerschnitt. Läßt man auch Kräfte an allen nächsten Nachbarn wirken (f_1), dann gilt $Sp\underline{P} = 6\sqrt{2}a(f_1 + 1/4 f_1')$ wie beim Dreibein-Modell. Ebenso paßt man den Parameter f_1' wieder bei (110) an den gemessenen Wirkungsquerschnitt an und erhält $f_1' = \pm(6.0 \pm 0.5) \cdot 10^{-6}$ dyn. Eine Berechnung der Wirkungsquerschnitte nach (3.1.15) mit dem Parametersatz $f_1 = 7.1 \cdot 10^{-6}$ dyn und $f_1' = -6.0 \cdot 10^{-6}$ dyn ist in Abb. 12 eingezeichnet (gestrichelte Linie). Eine Rechnung mit dem anderen Parametersatz $f_1 = 4.1 \cdot 10^{-6}$ dyn und $f_1' = +6 \cdot 10^{-6}$ dyn ergibt wieder die gleichen Kurven. Für die Kanzaki-Kraft an dem Bi-Atom folgt $f_1'' = -\sqrt{6}f_1' = \mp(14.7 \pm 1.2) \cdot 10^{-6}$ dyn. Eine Abschätzung der entsprechenden Verschiebung ergibt ca. $0.07 \text{ \AA}$ im Vergleich zur Verschiebung des Bi-Atoms im Bi-Gitter von $0.123 \text{ \AA}$.

Die Unterschiede zwischen den Rechnungen mit dem Off-center-Modell und dem Dreibein-Modell in den drei Symmetrierichtungen liegen innerhalb der experimentellen Fehler (z.B. das Auffüllen der Täler). Die Abweichungen bei $(100)^x$ und $1/2(111)$ werden

^x Nimmt man für ω_{100} nicht den aus dem Born-v.-Karman-Fit berechneten Wert, sondern den von Furrer und Hälg bei 5K gemessenen (vgl. Abb. A1 und A3a), dann ergibt sich für den Wirkungsquerschnitt bei (100) eine leichte Anhebung auf 9.7 mbarn/sterad und Defektatom).

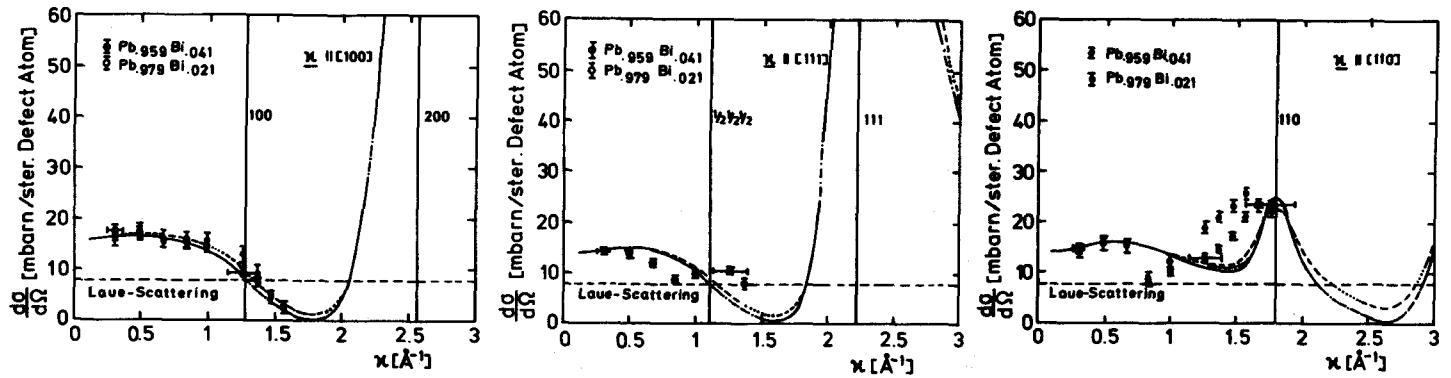


Abb. 12: Experiment PbBi (Schumacher 1969) und Modellrechnungen für Kanzaki-Kräfte an nächsten Nachbar-Atomen mit trigonaler Symmetrie: Dreibein-Modell (—), 111 off-center-Modell (---), FCC-HCP-Modell (-.-) und tetragonaler Symmetrie: 100 off-center-Modell (....).

durch (3.1.16) erklärt. Trotz der größeren Vorfaktoren (4:3:2) für (100):(1/2 1/2 1/2):(110) ist dort kein Peak zu sehen. Das liegt an dem Verhältnis der longitudinalen Frequenzen (vgl. S. 6, Abb. 2). Es gilt $(1/\omega_{100})^4 : (1/\omega_{111/2})^4 : (1/\omega_{110})^4 = 1:0.5:18$. Dennoch ist der (110)-Peak z.B. 9mal höher als der (100)-Peak (immer abzüglich der Laue-Streuung gerechnet). Das heißt also, immer wenn die Inversionssymmetrie des statischen Verzerrungsfeldes verletzt ist, gibt es eine bemerkenswerte Korrelation zwischen der Breite und der Höhe der Peaks in der diffusen Streuung bei $\underline{\kappa} = 1/2 \underline{\tilde{\tau}}_{hkl}$ und den dynamischen Verschiebungen des betreffenden Wirtsgitters. Für Al gelten z.B. folgende Relationen für $1/\omega_L^4$ (1:0.9:71). D.h., nur bei entsprechend tiefer longitudinaler Frequenz kann ein möglicher Verzerrungspeak im diffusen Streubild sichtbar werden (s. auch S. 47 bzgl. (210)).

Die Diskussion der Streuquerschnitte bei Hinzunahme von Kanzaki-Kräften an den übernächsten Nachbar-Atomen verläuft ähnlich derjenigen beim Dreibein-Modell mit dem Ergebnis: keine wesentliche Verbesserung, keine Entscheidung über das Vorzeichen der Off-center-Kraft.

3. FCC-HCP-Modell

Dem FCC-HCP-Modell liegt die Annahme zugrunde, daß sich der Übergang von der α -Phase (fcc) zur ϵ -Phase (hcp) im System Pb-Bi (vgl. Abb. 1) im Verschiebungsfeld der Bi-Atome widerspiegelt. Bei einer Konzentration von 27.3 at.% Bi und einer Temperatur von 18 K ist die Struktur der hcp-Phase charakterisiert durch $a^0 = 3.4724 \text{ \AA}$ und $c/a = 1.6540$. Der Vergleich mit $1/\sqrt{2} a_{\text{Pb}}(18\text{K}) = 3.469 \text{ \AA}$ und $c/a = \sqrt{8/3} = 1.633$ legt folgendes Verschiebungsfeld nahe^x (Abb. 13). Zur besseren Übersicht sind diesmal die 12 nächsten Nachbarn in eine (111)-Ebene projiziert. Unter Beibehaltung

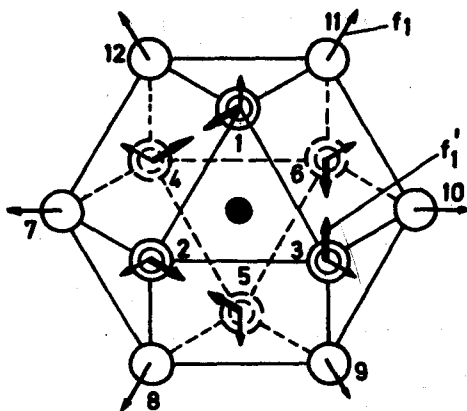


Abb. 13:

Kanzaki-Kräfte nach dem FCC-HCP-Modell.

der (111)-Ebene durch das Bi-Atom könnte man aus dem fcc-Gitter ein hcp-Gitter dadurch erzeugen, daß man die Atome (1-3) in ihrer (111)-Ebene über die Atome (4-6) verschiebt. Ein entsprechendes Kanzaki-Kraftfeld ergibt zwar keine resultierende Kraft, aber auf den Defekt würde ein Drehmoment wirken ($P_{\alpha\beta} \neq P_{\beta\alpha}$). Deshalb müssen zusätzliche Kräfte an den Atomen (4-6) angebracht werden. ($\underline{F}_n = f_1' \cdot \underline{e}_n$, $\underline{e}_n$ Einheitsvektor in Richtung der Verschiebung.) Die vier nicht äquivalenten (111)-Ebenen im fcc-Gitter ergeben wieder 4 verschiedene FCC-HCP-Defektkonfigurationen. Bei Gleichverteilung dieser Kräfte (f_1') zusätzlich zu den

^x Die Frage nach der energetischen (Meta-) Stabilität einer solchen Verzerrung soll hier nicht diskutiert werden (vgl. Kapitel VI, S. 96).

Kanzaki-Kräften an den nächsten (f_1) und übernächsten Nachbar-Atomen (f_2) erhält man folgende Wirkungsquerschnitte in den drei Symmetrierichtungen

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\chi, \tilde{c}_{200}) &= \left[b_{B_1} - b_{PB} - b_{PE} \frac{4\sqrt{2}\pi\chi}{aM\omega_{100}^2(q)} \left\{ (4f_1 - \frac{f_1'}{\sqrt{3}}) \sin 2\pi\chi + \right. \right. \\
 &\quad \left. \left. + \sqrt{2} f_2 \sin 4\pi\chi \right\} \right]^2 \\
 &\quad + \frac{2}{3} \left[b_{PE} \frac{4\pi\chi f_1'}{aM\omega_{100}^2(q)} (\cos 2\pi\chi - 1) \right]^2 \\
 \frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\chi, \tilde{c}_{111}) &= \frac{1}{4} \left[b_{B_1} - b_{PB} - b_{PE} \frac{12\sqrt{2}\pi\chi}{aM\omega_{111}^2(q)} (f_1 + \frac{f_2}{\sqrt{2}}) \sin 2\pi\chi \right]^2 \\
 &\quad + \frac{3}{4} \left[b_{B_1} - b_{PB} - b_{PE} \frac{4\sqrt{2}\pi\chi}{aM\omega_{111}^2(q)} (3f_1 - \frac{f_1'}{\sqrt{3}} + \frac{3f_2}{\sqrt{2}}) \sin 2\pi\chi \right]^2 \\
 &\quad + \frac{2}{3} \left[b_{PE} \frac{2\sqrt{3}\pi\chi f_1'}{aM\omega_{111}^2(q)} (\cos 2\pi\chi - 1) \right]^2 \quad (3.1.17) \\
 \frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\chi, \tilde{c}_{220}) &= \frac{1}{2} \left[b_{B_1} - b_{PB} - b_{PE} \frac{4\sqrt{2}\pi\chi}{aM\omega_{110}^2(q)} \left\{ (4f_1 + \frac{f_1'}{\sqrt{3}}) \sin 2\pi\chi + \right. \right. \\
 &\quad \left. \left. + (2f_1 - \frac{f_1'}{\sqrt{3}} + 2\sqrt{2} f_2) \sin 4\pi\chi \right\} \right]^2 \\
 &\quad + \frac{1}{2} \left[b_{B_1} - b_{PB} - b_{PE} \frac{4\sqrt{2}\pi\chi}{aM\omega_{110}^2(q)} \left\{ (4f_1 - \sqrt{6} f_1') \sin 2\pi\chi + \right. \right. \\
 &\quad \left. \left. + 2(f_1 + \sqrt{2} f_2) \sin 4\pi\chi \right\} \right]^2 \\
 &\quad + \frac{5}{3} \left[b_{PE} \frac{4\sqrt{2}\pi\chi f_1'}{aM\omega_{110}^2(q)} (\cos 2\pi\chi - \cos 4\pi\chi) \right]^2
 \end{aligned}$$

Die starke Abweichung von der kubischen Symmetrie spiegelt sich wie in nicht verschwindenden Beiträgen bei (100), $(1/2 \ 1/2 \ 1/2)$ und (110).

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (100) &= (b_{B_1} - b_{PE})^2 + \frac{32}{3} \left(b_{PE} \frac{\pi f_1'}{aM\omega_L^2(100)} \right)^2 \\
 \frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (111/2) &= (b_{B_1} - b_{PE})^2 + 8 \left(b_{PE} \frac{\pi f_1'}{aM\omega_L^2(111)} \right)^2 \quad (3.1.18) \\
 \frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (110) &= (b_{B_1} - b_{PE})^2 + \frac{160}{3} \left(b_{PE} \frac{\pi f_1'}{aM\omega_L^2(110)} \right)^2
 \end{aligned}$$

Eine Anpassung an den experimentellen Wert bei (110) ergibt $f_1' = \pm(3.28 \pm 0.26) \cdot 10^{-6}$ dyn. Für die Spur der Kräftedipole gilt

$$S_r \underline{P} = \frac{3a}{\sqrt{2}} \left(4 f_1 - \frac{f_1'}{\sqrt{3}} + 2\sqrt{2} f_2 \right) \quad (3.1.19)$$

Damit (3.1.19) erfüllt werden kann, müssen also wie beim Dreibein- und 111-Off-center-Modell Kräfte an allen 12 nächsten Nachbar-Atomen angebracht werden. Es ergeben sich wieder zwei Parametersätze $f_1 = (5.1 \pm 0.9) \cdot 10^{-6}$ dyn, $f_1' = -(3.3 \pm 0.26) \cdot 10^{-6}$ dyn bzw. $f_1 = (6.1 \pm 0.9) \cdot 10^{-6}$ dyn, $f_1' = +(3.3 \pm 0.26) \cdot 10^{-6}$ dyn. Zum Vergleich ist das Resultat einer solchen Rechnung ebenfalls in Abb. 12 (S.35) eingezeichnet (strichpunktierte Linie).

In [100] und [111]-Richtung zeigt sich kein Unterschied zum Dreibein-Modell. Die beim 111-Off-center-Modell gerade noch beobachteten Beiträge bei (100) und $(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2})$ zusätzlich zur Laue-Streuung sind hier um einen Faktor 12 geringer und verschwinden in der Strichstärke. Unwesentlich verglichen mit den experimentellen Fehlern sind die Abweichungen in der Nähe des (110)-Peaks. Die Hinzunahme von Kanzaki-Kräften an den übernächsten Nachbar-Atomen bringt ähnlich wie bei den früheren Modellen keine (wesentliche) Verbesserung der Übereinstimmung mit dem Experiment.

Tetragonaler Defekt

100-Off-center-Modell

Als letztes Modell eines nicht inversionssymmetrischen Verzerungsfeldes wird das 100-Off-center-Modell mit tetragonaler Symmetrie diskutiert. Hierbei nehmen wir an, daß das Bi aufgrund des kleinen Ionenradius ($R_c^{Bi} = 0.74 \text{ \AA}$, $R_c^{Pb} = 0.84 \text{ \AA}$, Animalu und Heine(1965)) statt in 111-Richtung auch in 100-Richtung ausgelenkt sein. (Ein "kleineres" Fremdatom in einem fcc-Gitter kann rein geometrisch gesehen bis zum "Berühren" der Wirtsgitteratome in [100]-Richtung weiter ausgelenkt werden als in [111]-Richtung.

Mit anderen Worten, in $[100]$ -Richtung wirken z.B. schwächere rücktreibende Kräfte).

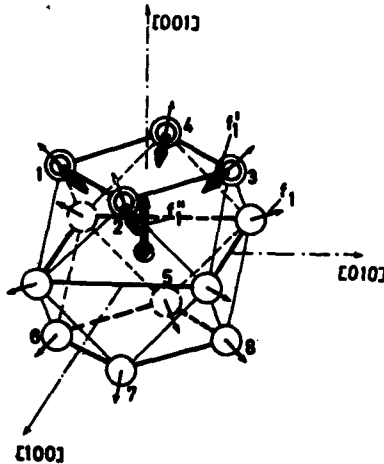


Abb. 14:

Kanzaki-Kräfte nach dem 100-Off-center-Modell.

In Abb. 14 sind die Kanzaki-Kräfte des 100-Off-center-Modells schematisch dargestellt. Man kompensiert diesmal die Off-center-Kraft (f_1'') durch entsprechende Zentralkräfte (f_1') an den Atomen (1-4), d.h., $f_1'' = -2\sqrt{2} f_1'$. Man könnte sie wie beim 111-Off-center-Modell auch durch Zentralkräfte f_1''' an den 8 Nachbar-Atomen kompensieren, die nicht in der (100)-Ebene des Bi-Atoms liegen. Das bringt aber für f_1''' nur einen Faktor $1/2$ gegenüber f_1' .

Sind alle 3 nicht äquivalenten 100-Off-center-Defektkonfigurationen gleich verteilt und nimmt man wieder zentralsymmetrische Kanzaki-Kräfte an allen nächsten (f_1) und übernächsten Nachbar-Atomen (f_2) mit, dann erhält man für die gemittelten Wirkungsquerschnitte

$$\begin{aligned} \frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\psi, \underline{e}_{200}) &= \frac{1}{3} \left[b_{Bi} - b_{Pe} - b_{Pe} \frac{4\sqrt{2}\pi\psi}{aM\omega_{100}^2(q)} \left\{ (4f_1 + \frac{f_1'}{2}) \sin 2\pi\psi + \sqrt{2} f_2 \sin 4\pi\psi \right\} \right]^2 \\ &+ \frac{8}{3} \left[b_{Bi} \frac{4\pi\psi f_1'}{aM\omega_{100}^2(q)} (\cos 2\pi\psi - 1) \right]^2 \quad (3.1.20) \\ &+ \frac{2}{3} \left[b_{Bi} - b_{Pe} - b_{Pe} \frac{4\sqrt{2}\pi\psi}{aM\omega_{100}^2(q)} \left\{ (4f_1 + f_1') \sin 2\pi\psi + \sqrt{2} f_2 \sin 4\pi\psi \right\} \right]^2 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} (\psi, \underline{e}_{111}) &= \left[b_{Bi} - b_{Pe} - b_{Pe} \frac{4\sqrt{2}\pi\psi}{aM\omega_{111}^2(q)} \left\{ 3f_1 + f_1' + \frac{3f_2}{\sqrt{2}} \right\} \sin 2\pi\psi \right]^2 \\ &+ \frac{8}{3} \left[b_{Pe} \frac{2\sqrt{3}\pi\psi f_1'}{aM\omega_{111}^2(q)} (\cos 2\pi\psi - 1) \right]^2 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{1}{c} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} (\varphi, \hat{r}_{220}) = & \frac{2}{3} \left[b_{B_i} - b_{PE} - b_{PE} \frac{4\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{110}^2(\varphi)} \left\{ (4f_1 + f_1') \sin 2\pi\varphi + \right. \right. \\
& \left. \left. + (2f_1 + f_1' + 2\sqrt{2}f_2) \sin 4\pi\varphi \right\} \right]^2 \\
& + \frac{1}{3} \left[b_{B_i} - b_{PE} - b_{PE} \frac{4\sqrt{2}\pi\varphi}{aM\omega_{110}^2(\varphi)} \left\{ (4f_1 + 2f_1') \sin 2\pi\varphi + \right. \right. \\
& \left. \left. + 2(f_1 + \sqrt{2}f_2) \sin 4\pi\varphi \right\} \right]^2 \\
& + \frac{2}{3} \left[b_{PE} \frac{4\sqrt{2}\pi\varphi f_1'}{aM\omega_{110}^2(\varphi)} (\cos 2\pi\varphi + \cos 4\pi\varphi - 2) \right]^2
\end{aligned}$$

Zum Vergleich seien die Ergebnisse bei (100), (1/2 1/2 1/2) und (110) wieder besonders herausgestellt

$$\begin{aligned}
\frac{1}{c} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} (100) &= (b_{PE} - b_{B_i})^2 + \frac{128}{3} \left(b_{PE} \frac{\pi f_1'}{aM\omega_{100}^2} \right)^2 \\
\frac{1}{c} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} (111/2) &= (b_{PE} - b_{B_i})^2 + 32 \left(b_{PE} \frac{\pi f_1'}{aM\omega_{111/2}^2} \right)^2 \\
\frac{1}{c} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} (110) &= (b_{PE} - b_{B_i})^2 + \frac{64}{3} \left(b_{PE} \frac{\pi f_1'}{aM\omega_{110}^2} \right)^2
\end{aligned} \quad (3.1.21)$$

Für die Spur der Kräftedipole gilt

$$S_P \underline{P} = \frac{3a}{\sqrt{2}} \left(4f_1 + \frac{4}{3}f_1' + 2\sqrt{2}f_2 \right) \quad (3.1.22)$$

Die Anpassung an den experimentellen Wert bei (110) und die Berücksichtigung von (3.1.22) ergibt folgende zwei äquivalente Parametersätze $f_1' = (+)(5.20 \pm 0.4) \cdot 10^{-6}$ dyn, $f_1^{(+)} = (7.3 \pm 1.1) \cdot 10^{-6}$ dyn, $f_1^{(+)} = (3.9 \pm 1.1) \cdot 10^{-6}$ dyn für $f_2 = 0$. Für f_1'' folgt daraus $f_1'' = -2\sqrt{2}f_1' = (-)(14.7 \pm 1.2) \cdot 10^{-6}$ dyn. Das bedeutet die gleiche Verschiebung von ca. 0.07 Å wie im 111-Off-center-Modell.

Das Ergebnis einer solchen Modellrechnung ist zum Vergleich ebenfalls in Abb. 12 eingezeichnet (punktierte Kurve). Es zeigt sich kein Unterschied zum 111-Off-center-Modell in den drei Sym-

metrierichtungen (auch nicht wenn in beiden Fällen Kanzaki-Kräfte (f_2) auch an übernächsten Nachbarn mitgenommen werden).

Zusammenfassend kann zu den in diesem Abschnitt diskutierten Modellen mit nicht inversionssymmetrischem Verzerrungsfeld folgendes gesagt werden:

Die vier Modelle unterscheiden sich in der unmittelbaren Umgebung des Bi-Atoms grundlegend, dennoch beschreiben sie die gemessenen Wirkungsquerschnitte in Symmetrierichtungen etwa gleich gut bzw. schlecht (Abb. 12, S.35). Ihre gemeinsamen Aussagen sind 1. bei dem Intensitätsanstieg bei (110) handelt es sich um einen Peak mit der Breite $\leq 0.3 \text{ \AA}^{-1}$, 2. die Streuverteilungen zeigen Minima bei $k = 1.8 \text{ \AA}^{-1}$ für $k \parallel [100]$, bei $k = 1.6 \text{ \AA}^{-1}$ für $k \parallel [111]$ und bei $k = 2.7 \text{ \AA}^{-1}$ für $k \parallel [110]$. 3. Die Streuung um den (111)-Reflex ist asymmetrisch. (letzteres gilt auch für einen kubischen Defekt).

Die unterschiedlichen Aussagen der Modelle betreffen 1. die Breite des (110)-Peaks, 2. die Beiträge zusätzlich zur Laue-Streuung bei (100) und $(1/2 \ 1/2 \ 1/2)$ und 3. das "Auffüllen" der Minima.

In der Tabelle 2 werden noch einmal die charakteristischen Parameter der vier Modelle zusammengestellt. Die Kräftedipole sind in der diagonalisierten Form vom Typ

$$\underline{P} = \begin{pmatrix} A & 0 & 0 \\ 0 & B & 0 \\ 0 & 0 & B \end{pmatrix}$$

d.h., $A-B$ ist ein Maß für die Abweichung von der kubischen Symmetrie. $(A-B)^2$ ist die charakteristische Größe, die beim Umorientieren der Defektkonfigurationen in einem uniaxialen Spannungsfeld gemessen wird. Ein solches Experiment könnte zwischen einigen Modellen unterscheiden (aber auch nicht über das Vorzeichen der speziellen Zusatzkräfte f_1 entscheiden). Die hier gewonnenen Werte für $A-B$ erscheinen nicht unvernünftig, wenn man sie mit der Aktivierungsenergie für die Selbstdiffusion von Pb $Q_{Pb} = 1.21 \text{ eV}$ und für die Diffusion von Bi in Pb $Q_{Bi} = 0.80 \text{ eV}$ vergleicht (Nowick 1951).

Modell	f_1	f_1'	f_1''	A - B
	$[10^{-6} \text{ dyn}]$			$[\text{eV}]$
Dreibein	7.1 ± 1.1	-6.0 ± 0.5		$+0.20 \pm 0.02$
	4.1 ± 1.1	$+6.0 \pm 0.5$		-0.20 ± 0.02
111-Off-center	7.1 ± 1.1	-6.0 ± 0.5	$+14.7 \pm 1.2$	-0.20 ± 0.02
	4.1 ± 1.1	$+6.0 \pm 0.5$	-14.7 ± 1.2	$+0.20 \pm 0.02$
FCC-HCP	5.1 ± 0.9	-3.3 ± 0.3		-0.06 ± 0.005
	6.1 ± 0.9	$+3.3 \pm 0.3$		$+0.06 \pm 0.005$
100-Off-center	7.3 ± 1.1	-5.2 ± 0.4	$+14.7 \pm 1.2$	-0.11 ± 0.01
	3.9 ± 1.1	$+5.2 \pm 0.4$	-14.7 ± 1.2	$+0.11 \pm 0.01$

Tabelle 2: Zusammenstellung der Parameter der vier Kanzaki-Kraft-Modelle.

Modellrechnungen 2

Die diffuse Streuung wird aus Intensitätsgründen mit einem Viel-detektorsystem nachgewiesen (vgl. Abb.23, S.54). Die Meßpunkte einer Messung liegen auf einem Ewald-Kreis. Durch Drehung der Probe in konstanten Winkelschritten bei festgehaltenen Detektoren wird dann eine Ebene im reziproken Gitter mit Meßpunkten überdeckt. Es handelt sich also in der Regel um interpolierte Meßwerte, die mit den Modellrechnungen in den Symmetrierichtungen verglichen werden. Will man dagegen die experimentellen Werte direkt mit dem Modell vergleichen, müssen die Wirkungsquerschnitte auch in Nicht-Symmetrierichtungen berechnet werden.

Dazu ist es nötig, die Dynamische Matrix (2.3.1) für jedes q zu berechnen. Ein entsprechendes Programm stand (1969) noch nicht zur Verfügung. Es wurde im Zusammenhang mit dieser Arbeit entwickelt (vgl. SSS) und auch für die Modellrechnungen für die verdünnten Al-Legierungen verwendet (vgl. BSJ). Das Programm berechnet die Dynamische aus den Kopplungsparametermatrizen.

$\frac{2}{a} \cdot R_n$	$n, \alpha\beta$	Ng+Brockhouse 1967 Sym. Richtg. 100 K	Gilat 1965 Sym. Richtg. 100 K	Cowley 1974 Sym.-+Nicht- Sym. Richtg. 80 K	Furrer 1969 Sym. Richtg. 5 K	Furrer 1969 Sym. Richtg. 80 K
110	1xx	3933 $\pm$ 65	3970	4324.3	4195 $\pm$ 125	4229 $\pm$ 87
	1zz	-1280 $\pm$ 133	-1110	-2488.1	1787 $\pm$ 268	-1962 $\pm$ 208
	1xy	4929 $\pm$ 98	4990	4673.0	5325 $\pm$ 140	5191 $\pm$ 110
200	2xx	1617 $\pm$ 92	1540	1408.3	1552 $\pm$ 409	1172 $\pm$ 315
	2yy	309 $\pm$ 60	387	71.9	600 $\pm$ 212	566 $\pm$ 162
211	3xx	-266 $\pm$ 90	-126	276.4	75 $\pm$ 168	131 $\pm$ 130
	3yy	41 $\pm$ 46	13	-299.6	-471 $\pm$ 83	-417 $\pm$ 60
	3yz	349 $\pm$ 52	5	-43.4	366 $\pm$ 70	346 $\pm$ 55
	3xz	-58 $\pm$ 27	-77	72.2	-22 $\pm$ 60	44 $\pm$ 48
220	4xz	757 $\pm$ 31	736	741.4	952 $\pm$ 132	805 $\pm$ 102
	4zz	105 $\pm$ 51	127	244.6	560 $\pm$ 224	567 $\pm$ 172
	4xy	376 $\pm$ 124	616	411.7	498 $\pm$ 200	377 $\pm$ 150
310	5xx	-288 $\pm$ 75	-362	-513.6		
	5yy	-341 $\pm$ 41	-450	-142.4		
	5zz	-347 $\pm$ 54	-482	301.1		
	5xy	20 $\pm$ 41	63	-192.0		
222	6xx	34 $\pm$ 26	2	42.3		
	6yz	-177 $\pm$ 70	4	435.9		
321	7xx	-59 $\pm$ 42	-11	260.4		
	7yy	133 $\pm$ 44	108	-200.2		
	7zz	30 $\pm$ 21	33	7.8		
	7yz	33 $\pm$ 14	75	-8.2		
	7xz	50 $\pm$ 20	-62	-197.3		
	7xy	100 $\pm$ 14	17	80.5		
400	8xx	679 $\pm$ 77	620	-88.1		
	8yy	185 $\pm$ 51	467	90.0		

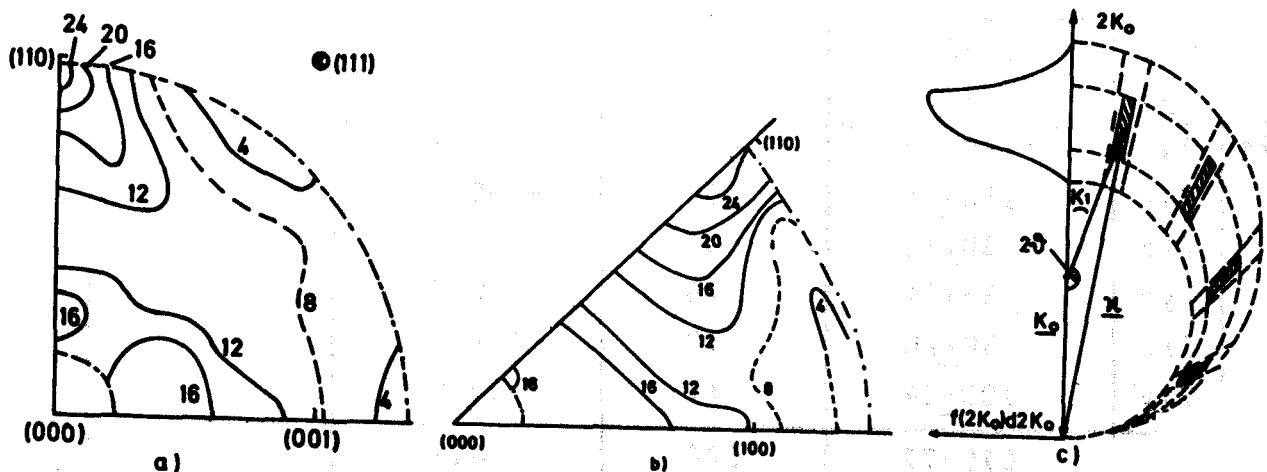
Tabelle 3: Kopplungsparameter für Blei

$$\underline{\underline{\Phi}}(R_n) = \begin{pmatrix} n_{xx} & n_{xy} & n_{xz} \\ n_{xy} & n_{yy} & n_{yz} \\ n_{xz} & n_{yz} & n_{zz} \end{pmatrix} \quad \text{in dyn/cm}$$

$$\underline{\phi}(\underline{q}) = \sum_{\underline{n}} \underline{\phi}(\underline{R}_n) e^{i \underline{q} \cdot \underline{R}_n} \quad (3.2.1)$$

Die Elemente der Kopplungsparametermatrizen sind durch Anpassung an die gemessenen Phononfrequenzen gewonnen worden. In der Tabelle 3 sind 5 derartige Born-v.-Karman-Fits zusammengestellt. Der Vergleich der Werte untereinander zeigt starke Schwankungen. Das spiegelt sich jedoch nicht so drastisch in der Wiedergabe der zugrunde gelegten Frequenzen wider (vgl. Abb. A1-A5, S. 98). Wie im Abschnitt III.1 wird auch hier der Born-v.-Karman-Fit von Ng und Brockhouse (1967) zugrunde gelegt (vgl. auch S. 49).

In Abb. 15 a und b sind die experimentellen Ergebnisse von Schumacher mit dem $\text{Pb}_{0.959}\text{Bi}_{0.041}$ und dem $\text{Pb}_{0.979}\text{Bi}_{0.021}$ -Einkristall in Form von Höhenliniendiagrammen dargestellt. In den Höhenlinien-Abbildungen bei SSS wurden die Ereignisse pro 30 Minuten (ca. 1000) als Einheiten für die gemessenen Wirkungsquerschnitte verwendet. Entsprechend den Angaben bei SSS wurde hier die - eigentlich interessierende - kohärente diffuse elastische Streuung (ohne inkohärente Streuung) in Einheiten $E =$.



Höhenliniendiagramme der gemessenen diffusen elastischen Streuung an PbBi Einheiten in mbarn/ster. Defekt-Atom Schumacher 1969

Abb. 15:

- a) (110) Ebene mit $\text{Pb}_{0.59}\text{Bi}_{0.41}$
- b) (001) Ebene mit $\text{Pb}_{0.79}\text{Bi}_{0.21}$
- c) Auflösungselemente für
 $2 = 55^\circ, 90^\circ, 125^\circ, 160^\circ$.

[mbarn/sterad·Defekt-Atom] dargestellt. Dabei wurden für die "kleinen" Wirkungsquerschnitte (4-40) [E] ein Abstand von 4 [E] $\approx 1/2$ ·Laue-Streuung zwischen den einzelnen Höhenlinien gewählt, für die "größeren" Wirkungsquerschnitte (40-240) [E] (s.u.) ein Abstand von 40 [E]. Man sieht deutlich die Modulation der Laue-Streuung (punktierte Kurve) durch die Verzerrungsstreuung und insbesondere den Anstieg des Wirkungsquerschnitts in der Nähe von (110) sowohl in der $(\bar{1}10)$ -Ebene (Abb. 15a) als auch in der (001)-Ebene (Abb. 15b).

In Abb. c sind horizontale Auflösungselemente für verschiedene mittlere Streuwinkel 2ψ eingezeichnet. Die schraffierten Flächen geben die Halbwertsbreite des Spektrums $f(2K_0)$ und der Streuwinkelverteilung an. Die gestrichelt umrandeten Flächen sind durch die größte vorkommende Abweichung vom mittleren Streuvektor und Streuwinkel gegeben. Das Ergebnis der Modellrechnung mit kubischem Verzerrungsfeld in einem wie im Fall der Symmetrierichtungen weiter ausgedehnten K -Bereich ist in Abb. 16a und b wiedergegeben (vgl. SSS). Alle Abbildungen von gerechneten Höhenlinien in dieser Arbeit sind Kopien von Aufnahmen mit dem CALCOMP-Filmploster des Zentralinstituts für Angewandte Mathematik (ZAM) in der KFA.

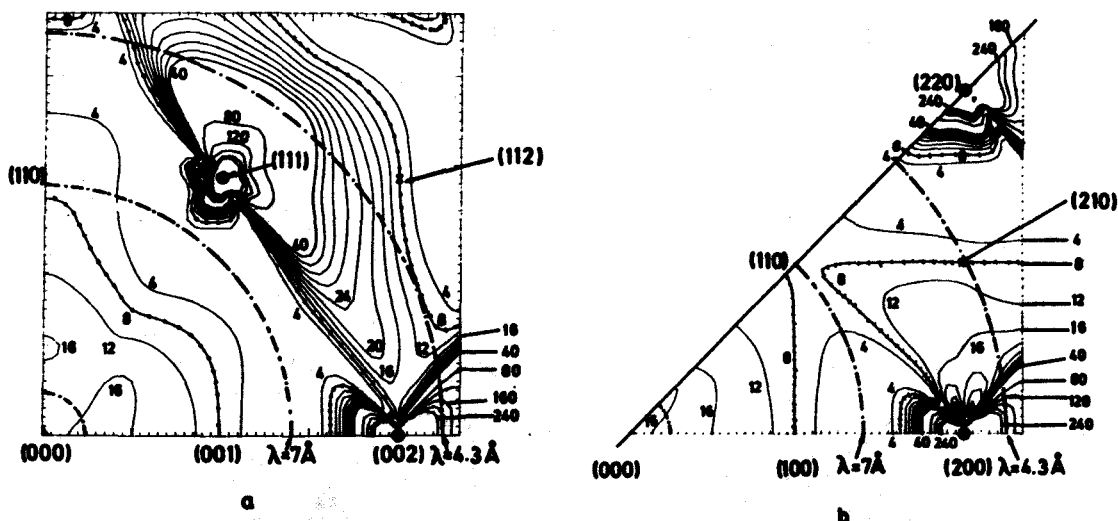


Abb. 16: Höhenliniendiagramme der gerechneten diffusen elastischen Streuung für das System PbBi, Einheiten in [mbarn/sterad Defekt-Atom], kubisches Verzerrungsmodell, a) $(\bar{1}10)$ -Ebene, b) (001)-Ebene.

Der Meßbereich von Schumacher ($\lambda = 7 \text{ \AA}$) und der durch die Messung mit $\lambda = 4.3 \text{ \AA}$ erweiterte Bereich sind durch strichpunktierte Linien eingegrenzt. Der Schnitt durch die konstante Laue-Streuung ist wieder punktiert gezeichnet.

Der Vergleich mit dem Experiment zeigt, daß die gute Übereinstimmung in $[001]$ -Richtung schon wenig außerhalb dieser Symmetrierichtung in der Umgebung von (001) nicht mehr gegeben ist. Dennoch stimmen die Streubilder bis auf die Umgebung von (110) qualitativ überraschend gut überein, wenn man an die Einfachheit des Modells denkt.

In den folgenden Abb. 17a und b sind die Ergebnisse der Rechnung mit dem Dreibein-Modell dargestellt (vgl. SSS). Mit der Ausnahme der Umgebung des (110) -Punktes ist innerhalb des Meßbereiches für $\lambda = 7 \text{ \AA}$ kein merklicher Unterschied zur Rechnung mit dem kubischen Verzerrungsfeld (Abb. 16) zu beobachten. Daß die Breite des experimentellen "Peaks" bei (110) nicht mit der Breite des gerechneten Peaks übereinstimmt, ist schon bei der Diskussion der Rechnungen in Symmetrierichtungen angemerkt worden. Darüber hinaus zeigt sich nun, daß das Intensitätsprofil der experimentellen Daten - ein langsamer Intensitätsabfall in Richtung $[001]$ - durch die nahezu rotationssymmetrische Intensitätsverteilung beim Dreibein-Modell ebenfalls nicht richtig wiedergegeben wird. Diese Diskrepanz kann nur z.T. auf die fehlende Auflösungskorrektur geschoben werden (vgl. Abb. 15c, S. 44).

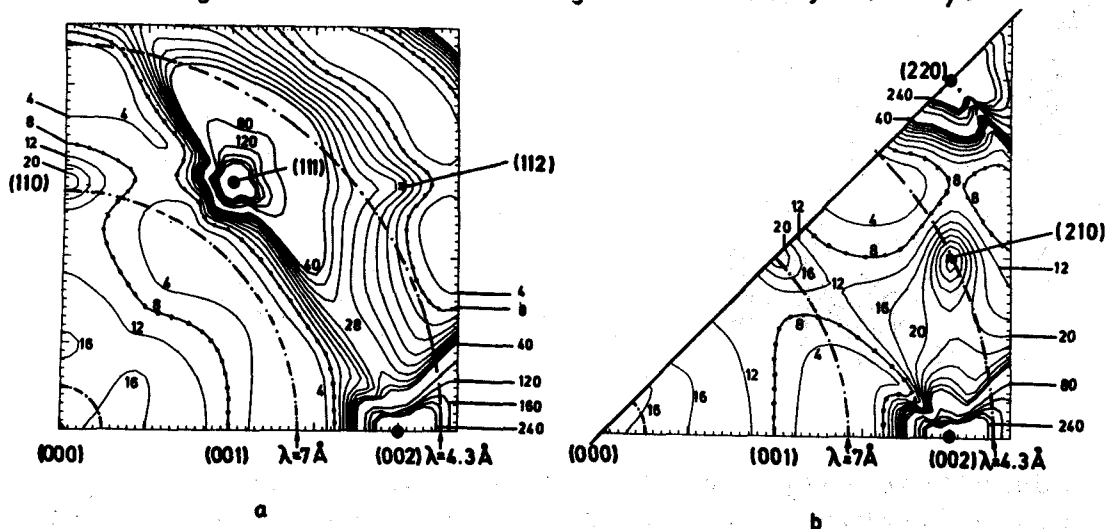


Abb. 17: Höhenliniendiagramme der gerechneten diffusen elastischen Streuung für das System PbBi, Einheiten in $[\text{mbarn/sterad Defekt-Atom}]$. Trigonale Verzerrung, Dreibein-Modell, a) $(\bar{1}10)$ -Ebene, b) (001) -Ebene.

Die Informationen, die durch die Erweiterung des Meßbereiches beim Übergang von $\lambda = 7 \text{ \AA}$ zu $\lambda = 4.3 \text{ \AA}$ gewonnen werden, beziehen sich bei der $(\bar{1}10)$ -Ebene (a) auf die Umgebung der Reflexe τ_{111} und τ_{002} . Die Abweichungen im Höhenlinienbild von dem einfachsten Fall eines isotropen Defektes im isotropen Medium (Huang-Kugeln, Abb. 18, (2.3.13)) haben verschiedene Ursachen. (Hier wird natürlich von dem trivialen Grund abgesehen, daß mehr Stützpunkte für die zweidimensionale lineare Interpolation für die Höhenlinien glattere Kurven ergeben würden). Einerseits sind es Interferenzterme z.B. mit der Laue-Streuamplitude, andererseits ist es die Anelastizität des Blei und die nicht-kubische Symmetrie des Defekts, die die Asymmetrie der Streuung hervorrufen. Beim trigonalen Defekt fällt die Nullfläche senkrecht τ_{111} und τ_{002} durch die reziproken Gitterpunkte weg (Trinkaus 1972).

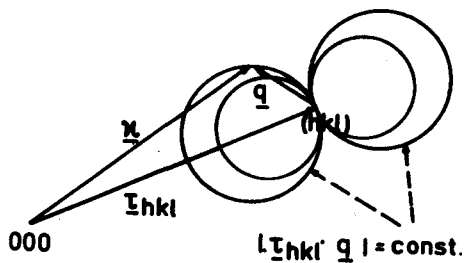


Abb. 18:

Höhenlinien für einen isotropen Defekt in einem isotropen Medium in der Nähe von τ_{hkl} . (Huang-Kugeln)

Charakteristisch für das Streubild in der (001) -Ebene ist neben dem Reflex bei τ_{200} der Peak bei (210) . Er ist etwa doppelt so hoch wie der bei (110) . Wegen $\underline{k} = \frac{2\pi}{a} (2,1,0) = \frac{2\pi}{a} \cdot \{ (2,2,0) - (0,1,0) \}$ bzw. $= \frac{2\pi}{a} \cdot \{ (2,0,0) + (0,1,0) \}$, wird nur der Realteil von $\tilde{F}(\underline{q})$ für $\underline{q} = 2\pi/a \cdot (0,1,0)$ zu berücksichtigen sein.

Im Koordinatensystem (100) , (010) , (001) gilt für $\underline{k} \cdot \tilde{\Phi}^{-1}(\underline{q}) = \frac{2\pi}{aM} (2/\omega_{T100}^2, 1/\omega_{L100}^2, 0)$. Damit ergibt sich bei Gleichverteilung aller Dreibeine für den Wirkungsquerschnitt

$$\frac{1}{c} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} (210) = (b_{B_2} - b_{P_2})^2 + 32 \left(b_{P_2} \frac{\pi f_1'}{aM\omega_{T100}^2} \right)^2 \quad (3.2.2)$$

Mit $\omega_{T100} = \omega_{L110}$ (vgl. Abb. 3) wird bei (210) also ein etwa doppelt so hoher Peak als bei (110) erwartet (vgl. 3.1.13). Er hat eine Breite, die im wesentlichen durch $1/\omega_{T100}^4(q)$ bei $q = \frac{2\pi}{a}$ (1,0,0) bestimmt wird.

Der Vergleich der Höhenliniendiagramme für das Dreibein-Modell mit den Höhenliniendiagrammen für das 111-Off-center-Modell Abb. 19a und b, für das HCP-FCC-Modell Abb. 20a und b und für das 100-Off-center-Modell Abb. 21a und b zeigt im Meßbereich für $\lambda = 7 \text{ \AA}$ volle Obereinstimmung der Modelle untereinander (von den feinen Unterschieden in der Nähe von (100) und $(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2})$ abgesehen, die schon in III.1 diskutiert wurden.

In dem vergrößerten Meßbereich zeigen alle Asymmetrien in der Nähe der Reflexe. In der $(\bar{1}10)$ -Ebene (a) sind sich einerseits Dreibein-Modell und 111-Off-center-Modell (Sattelpunkt etwa zwischen ζ_{111} und ζ_{002} mit 28 [E]) sehr ähnlich, andererseits HCP-FCC-Modell und 100-Off-center-Modell (Nullfläche senkrecht ζ_{002}).

Alle Modelle zeigen den (210)-Peak in der (001)-Ebene (b). Bzgl. des (200)-Reflexes gibt es die gleichen Ähnlichkeiten unter den vier Modellen.

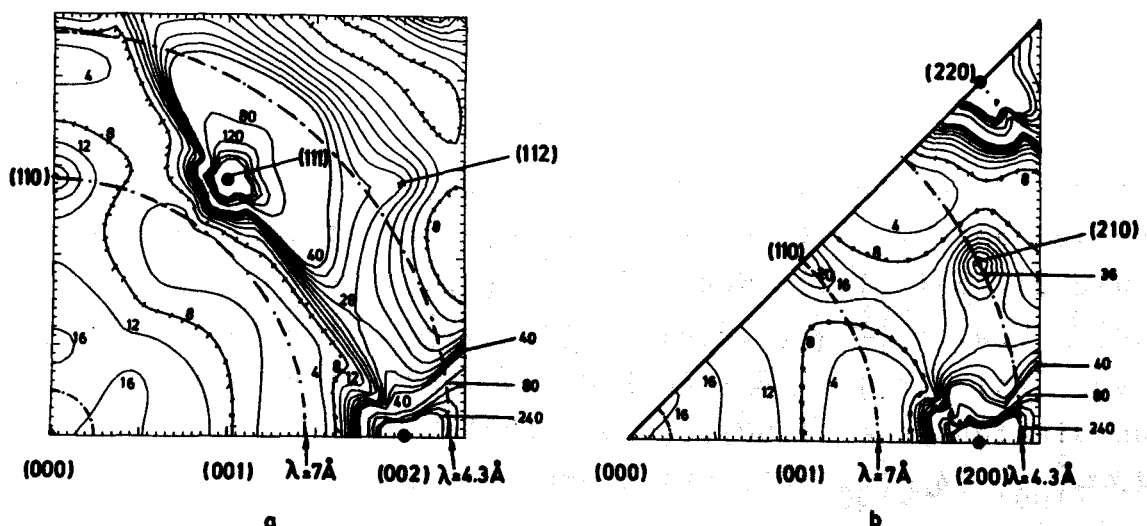


Abb. 19: Höhenliniendiagramme der gerechneten diffusen elastischen Streuung für das System PbBi, Einheiten in [mbarn/sterad Defekt-Atom] trigonale Verzerrung, 111-Off-center-Modell, a) $(\bar{1}10)$ -Ebene, b) (001)-Ebene.

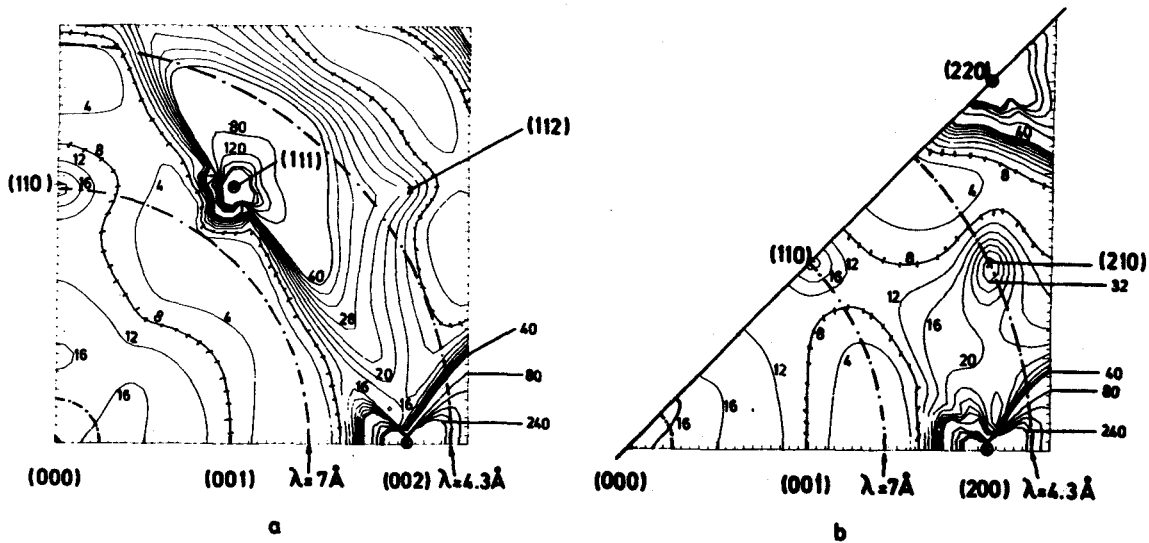


Abb. 20: Höhenliniendiagramme der gerechneten diffusen elastischen Streuung für das System PbBi, Einheiten in [mbarn/sterad·Defekt-Atom], trigonale Verzerrung, HCP-FCC-Modell, a) $(\bar{1}10)$ -Ebene, b) (001) -Ebene.

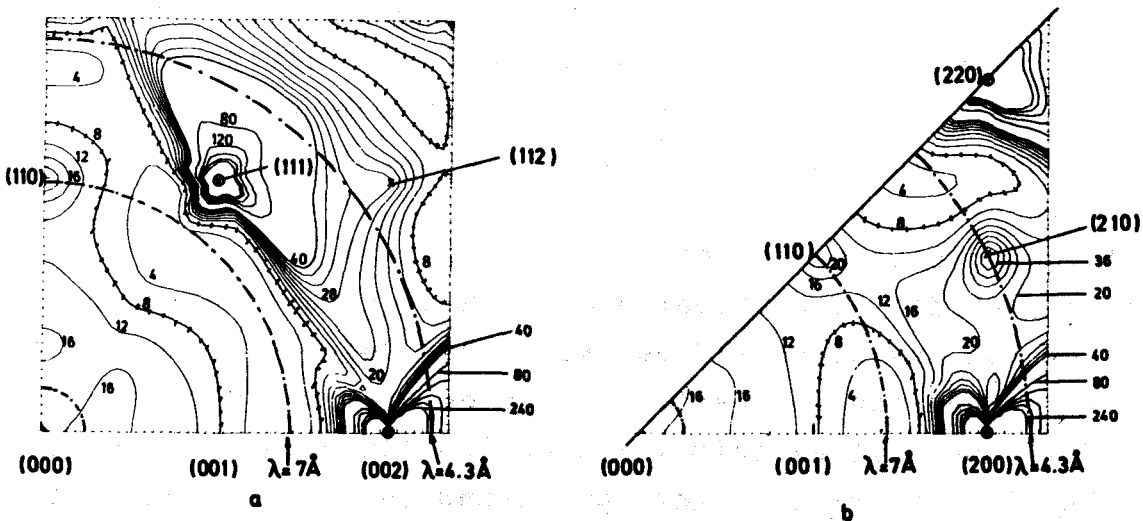


Abb. 21: Höhenliniendiagramme der gerechneten diffusen elastischen Streuung für das System PbBi, Einheiten in [mbarn/sterad Defekt-Atom], tetragonale Verzerrung, 100-Off-center-Modell, a) $(\bar{1}10)$ -Ebene, b) (001) -Ebene.

Bevor die Ergebnisse der Höhenlinienrechnungen zusammengefaßt werden, soll anhand des Dreibein-Modells der Einfluß der verschiedenen Born-v.-Karman-Fits (Tabelle 3) diskutiert werden. Die Abbildungen der entsprechenden Höhenliniendiagramme sind im Anhang zusammengestellt, jeweils in Verbindung mit den Dispersionskurven.

Der Vergleich zeigt qualitative Übereinstimmung mit Ausnahme des Born-v.-Karman-Fits von Cowley. In der $(\bar{1}10)$ -Ebene tritt hier ein extra Peak zwischen (111) und (002) auf (unabhängig davon welches Modell gerechnet wird) und in der (001)-Ebene hat der (210)-"Peak" einen langen Intensitäts-Rücken in Richtung auf (200).

Die quantitativen Abweichungen zwischen den einzelnen Born-v.-Karman-Modellen sind an manchen Punkten von der gleichen Größe wie die Unterschiede zwischen den verschiedenen Verzerrungsmodellen, wenn sie mit ein und demselben Born-v.-Karman-Fit gerechnet werden.

Zusammengefaßt ergibt sich erstens: neben dem charakteristischen (110)-Peak zeigt sich in der (001)-Ebene ein etwa doppelt so hoher (210)-Peak. Zweitens: die Abweichungen von der kubischen Symmetrie zeigen sich außerdem mehr oder weniger deutlich in der Nähe der Reflexe (111) und (002) und auf der Verbindungslinie zwischen (111) und (002)-Reflex. Die Stärke der Abweichung läßt sich mit dem "shape" Faktor (A-B) erklären.^x Da die beiden trigonalen Defektstrukturen des Dreibein- und des 111-Off-center-Modells den gleichen "shape"-Faktor $(A-B) = 0.2$ eV haben, unterscheiden sich die Streubilder praktisch nicht untereinander, wohl aber von dem Streubild der kubischen Defektstruktur. Die relativ kleinen "shape"-Faktoren 0.06 eV beim trigonalen HCP-FCC-Modell und 0.11 eV beim tetragonalen 100-Off-center-Modell spiegeln sich in der geringen Abweichung ihrer Streubilder untereinander und von dem Streubild des kubischen Defekts wider. In der Nähe des (220)-Reflexes in der (001)-Ebene außerhalb des Meßbereichs mit $\lambda = 4.3$ Å unterscheiden sich trigonale und tetragonale Defektstrukturen (Trinkaus 1972).

^x Man vergleiche die Diskussion des "shape"-Faktors für Off-center-Defektlagen (Li^+ in KCl, Jahn-Teller-Defekte) bei Nowick und Berry, 1972, im Zusammenhang mit anelastischen Relaxationsexperimenten.

IV. EXPERIMENTELLER AUFBAU

1.) Proben und Kryostat

Die Messungen wurden an den gleichen zylindrischen Einkristallen durchgeführt, die auch Schumacher verwendet hat. Einige Daten der Proben sind in der folgenden Tabelle 4 zusammengestellt.

at.% Bi	Orientierung	Durchmesser	Länge	H-Konzentration
		mm	mm	at. ppm
(0.02)	110	49.2 $\pm$ 0.1	99	5
2.12 $\pm$ 0.05	100	48.45 $\pm$ 0.05	114	2
4.12 $\pm$ 0.04	110	48.9 $\pm$ 0.1	88	12

Tabelle 4: Daten der untersuchten Proben

Ein zylindrischer Einkristall mit der Stabachse parallel, $[\bar{1}10]$ hat den Vorteil, daß in der horizontalen Meßebene senkrecht zur Stabachse die drei Haupt-Symmetrierichtungen $[100]$, $[111]$ und $[1\bar{1}0]$ liegen. Die Messung der diffusen Streuung in diesen drei Richtungen ergibt zahlreiche Informationen über die Defektstruktur, und Modellrechnungen in Symmetrierichtungen lassen sich leicht durchführen (vgl. III.1). Die Diskussion in III.2 hat aber gezeigt, daß es zur Untersuchung der Struktur von Defekten durchaus nützlich oder sogar notwendig sein kann, z.B. auch eine (001)-Ebene auszumessen. Da die Intensität der diffusen elastischen Streuung an den beiden PbBi-Proben der Intensität der Streuung von nur etwa 0.05 bzw. 0.1 at.% Leerstellen entspricht, sind solch große Kristalle notwendig, die von der Strahlgeometrie und vom Gewicht her (≤ 2.5 kg) unhandlich sind. Der Pb-Kristall wurde von früher 62 mm $\varnothing$ auf etwa den gleichen Durchmesser wie die beiden PbBi-Kristalle funkenenerodiert. So konnte er ohne durch die Probengeometrie bedingte Korrekturen als Vergleichskristall verwendet werden.

Zu den Angaben der Konzentration von H in den Proben ist anzumerken, daß die Blindwerte in der gleichen Größenordnung wie

die Analysenwerte^x sind, so daß Fehler von $\pm 30\%$ nicht ausgeschlossen werden können (s. auch V.1).

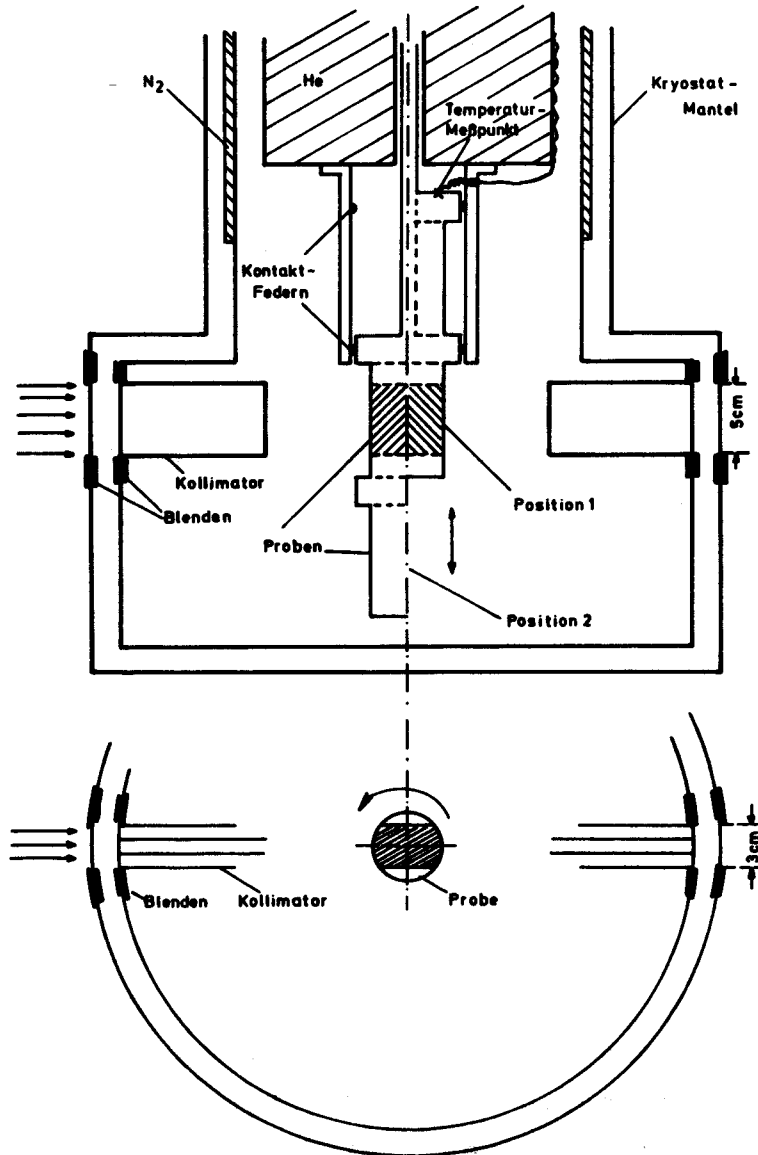


Abb. 22:

Probenposition und Strahlführung im Kryostaten (schematisch).

In Abb. 22 ist schematisch die Probenposition und die Strahlführung im Kryostaten dargestellt. Der Kryostat, (mit dem auch Schumacher gemessen hat), wurde so umgebaut, daß mit Hilfe eines mechanischen Probenwechslers (auf dem Kryostaten) abwechselnd Probe (Pb-Bi) und Vergleichsprobe (Pb) vom Rechner gesteuert in Meßposition gebracht und in Schritten von 1° gedreht werden konnten. Die Proben sind an Cu-Tellern befestigt, die über Federn gekühlt werden.

Auf diese Weise schränkt man die mit dem automatischen Probenwechsler erzielte Beweglichkeit nicht ein im Vergleich z.B. zur Verwendung von dünnen Cu-Drähten zwischen He-Topf und Pb-Proben (Schumacher). Die schwächere Ankopplung an das He-Bad bewirkt lange Abkühlzeiten. Um 10 K zu erreichen, wurden ca 20 h benötigt. Da es aber ein Ziel dieser Arbeit war, die diffuse elastische

^xDie Gasanalysen sind von der Firma Leybold und Heraeus durchgeführt worden.

Streuung - insbesondere den (110)-Punkt auch bei höheren Temperaturen als 6-9 K (Schumacher) zu messen, wurde der Kryostat in der Regel erst mit dem Anfahren des Reaktors kaltgefahren, um während des Abkühlvorganges die Temperaturabhängigkeit der diffusen elastischen Streuung zu studieren.

Die Temperatur wurde während des Meßbetriebes an dem in Abb. 22 gekennzeichneten Punkt gemessen. Der Temperaturgradient in den Proben bei ca. 10 K lag bei $1^{\circ}/10$ cm in Position 1 und $2^{\circ}/10$ cm in Position 2. Die Kollimatoren und Blenden in dem Kryostatenunterteil verhindern (zusammen mit der Kollimation vor den Zählrohren, vgl. Abb. 25a), daß Streuung an den Wänden von N_2 -Schild und Kryostatenmantel in die Zählrohre gelangt.

2.) Spektrometer und Datenerfassung

Die diffuse elastische Neutronenstreuung wurde mit dem Diffraktometer D7 (Just 1974 und BSJ) am Hochflußreaktor (HFR) des Instituts Max von Laue - Paul Langevin (ILL) in Grenoble gemessen (Projekt Nr. 07-03-003). Mit diesem Experiment wurde praktisch der Meßbetrieb bei "D7" aufgenommen.

Abb. 23 zeigt schematisch einen Horizontalschnitt durch das Diffraktometer D7 in Höhe der Streuebene. Die thermischen Neutronen des Reaktors werden zunächst in einer Kalten Quelle (flüssiges H_2+D_2) moderiert (von etwa 300 K auf etwa 30 K im Maximum). Dadurch wird die Flußdichte der Neutronen mit $\lambda = 4.3$ Å (50 K) etwa um einen Faktor 20 erhöht. Diese "kalten" Neutronen gelangen nach Totalreflexion an mit Ni-bedampften Glaswänden in dem Neutronenleiter H15 zu dem Kristallmonochromator aus pyrolytischem Graphit ($2d_{002} = 6.71$ Å, Mosaikbreite FWHM = 0.8°). Die Wellenlängenverteilung für Neutronen mit $\lambda = 4.3$ Å hat eine Halbwertsbreite von $\Delta\lambda/\lambda = 2$ % im Vergleich zu $\Delta\lambda/\lambda = 20$ % bei $\lambda = 7$ Å bei dem mechanischen Geschwindigkeitsselektor, den Schumacher 1969 benutzte. Der Be-Kristall filtert aus dem gestreuten Strahl höhere Ordnungen heraus (vgl. Abb. 27a) und reduziert z.B. den Anteil der nachgewiesenen Neutronen mit $\lambda/2$ von etwa 5 % auf etwa 0.05 %.

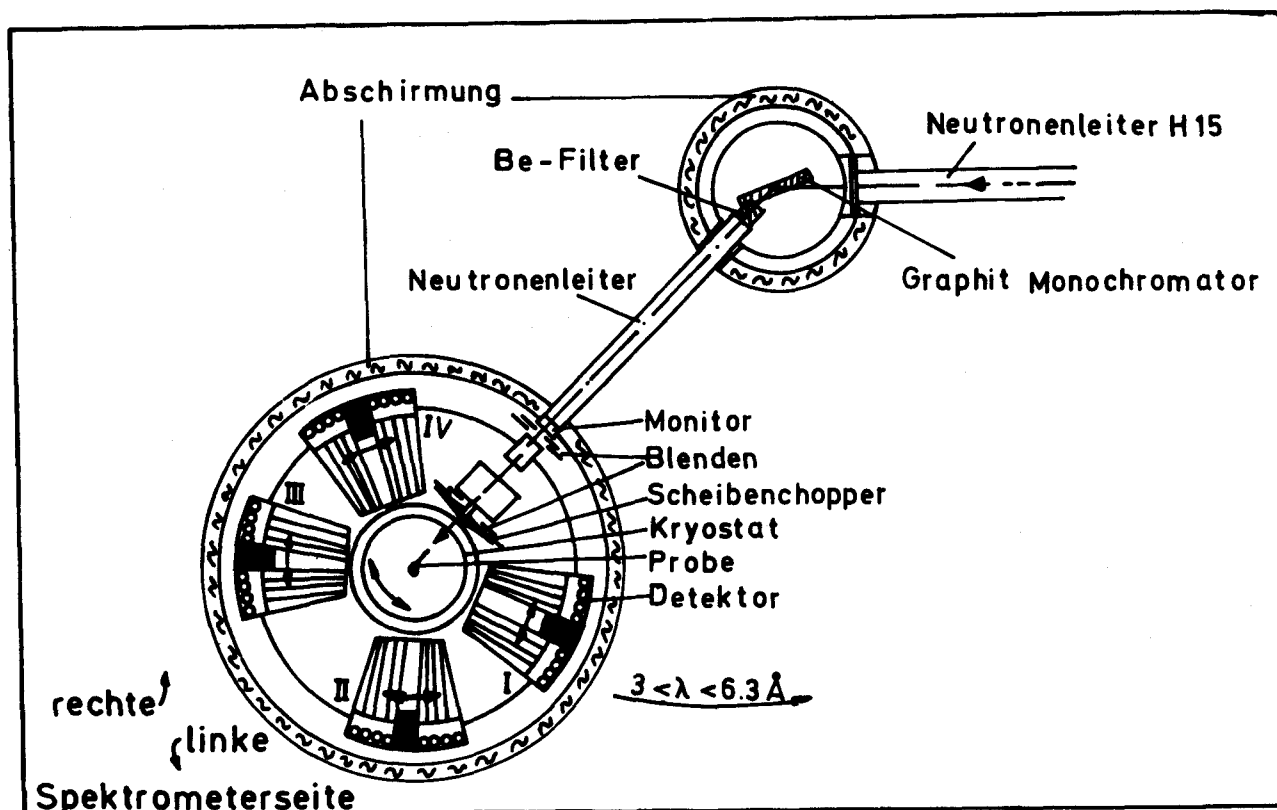


Abb. 23: Horizontalschnitt durch das Spektrometer D7 (schematisch).

Das ist in der Regel ausreichend, um bei Abwesenheit von inelastischer Streuung ohne intensitätsmindernde Energieauflösung elastische Streuung mit λ zu messen. Da aber die Bragg-Streuung um etwa vier bis fünf Größenordnungen intensiver ist als die zu untersuchende diffuse Streuung, ist es für die hier besonders interessierenden Umgebungen von (110), (100), (1/2 1/2 1/2) und (210) dennoch notwendig, die $\lambda/2$ Komponente durch eine Flugzeitanalyse abzutrennen. Die monochromatischen Neutronen gelangen durch einen Neutronenleiter ($l = 2\text{m}$, Querschnitt $5 \times 3\text{ cm}^2$) in das Innere des Spektrometers, das gegen den Hallenuntergrund rund herum mit B_4C -Platten abgeschirmt ist. Mit dem Monitor (Empfindlichkeit $2 \cdot 10^{-5}$) wird die Meßzeit gesteuert. Die durch die Schlitze des Scheibenchoppers gelangten Neutronen treffen im Kryostaten in der Mitte des Spektrometers auf die Probe. In einem Vieldetektorsystem werden die gestreuten Neutronen nachgewiesen. Vier Kolonnen mit je 8 ^3He -Zählrohren sind im Abstand von 130 cm um die Probe herum verfahrbar. Der Nachweis geschieht über die Reaktion $^3\text{He} (n,p) ^3\text{H}$. Weitere Daten der Zählrohre sind: Fülldruck 1500 torr, Durchmesser 5 cm und Länge 10 cm, was für eine punktförmige Probe ein Raumwinkelelement von $\Delta\Omega \approx 3 \cdot 10^{-3}$

sterad im Vergleich zu $\Delta\Omega \approx 23 \cdot 10^{-3}$ sterad bei Schumacher ergibt.

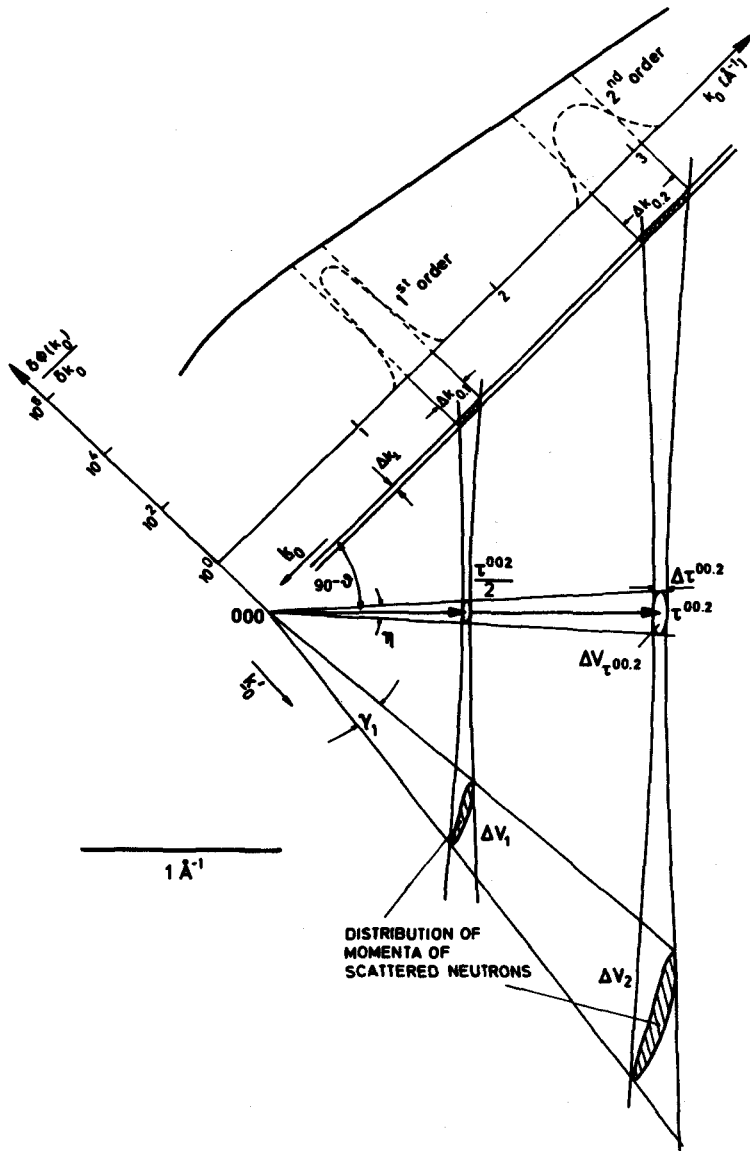


Abb. 24:

Impulsraumdiagramm für die Reflexe eines Graphitmonochromator-Kristalls (halbschematisch).

In Abb. 24 ist halbschematisch das Impulsraumdiagramm für die (002) und (004)-Reflexe des Graphitkristall gezeigt. Die Verteilung der Neutronen als Funktion des Wellenvektors k_0 $\delta\phi(k_0)/\delta k_0$ in dem Neutronenleiter H15 ist in einer logarithmischen Skala angedeutet. Die radiale und tangential Mosaikbreite des Kristalls $\Delta\tau$ und η sind qualitativ berücksichtigt und führen zu den Volumenelementen $\Delta V_{\tau_{hkl}}$ bei den

reziproken Gitterpunkten. Das bedeutet, daß die Bänder $\Delta k_{0,1}$ und $\Delta k_{0,2}$ für die Reflexion in erster und zweiter Ordnung aus dem Primärstrahl herausgenommen werden. χ_1 ist die Winkeldivergenz des unter 2ϑ gestreuten Strahls. ΔV_1 und ΔV_2 geben die Volumenelemente wieder, in die die Neutronen abgelenkt werden.

Im folgenden wird die Winkeldivergenz $\Delta 2\vartheta$ der von der Probe in den Detektor gestreuten Neutronen untersucht. Aufgrund der

Kollimation vor den Detektoren (vgl. Abb. 25a), ergibt sich für die Streuung an einer punktförmigen Probe ($2\vartheta_{\max} = 2.2^\circ$) eine Streuverteilung, wie sie in Abb. 25b für das Zählrohr Nr. 26 in der Kolonne IV gezeigt ist. Man sieht den asymmetrischen Einschnitt durch das "mittlere" Kollimatorblech. Diese "mittleren" Kollimatorbleche, (die in Abb. 23 weggelassen sind) verringern zwar die Sekundärdivergenz, erschweren aber bei großen Proben (schraffierter Bereich in Abb. 25a) Eichmessungen (s. V.1, S. 63).

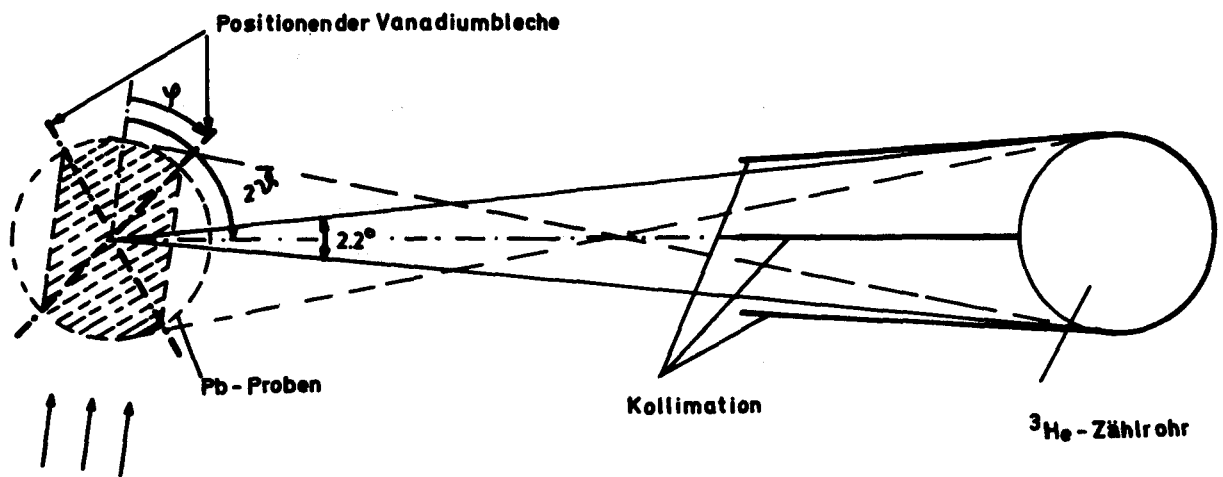


Abb. 25a: Durch Probengeometrie und Detektorkollimation bedingte sekundäre Strahldivergenz $\Delta 2\vartheta$ (schematisch).

In Abb. 26 sind für 4 Streuwinkel $2\vartheta = (30^\circ, 70^\circ, 110^\circ, 150^\circ)$ die Auflösungselemente gezeichnet. Dabei ist für die gestrichelt gezeichneten Auflösungselemente $(\Delta\lambda/\lambda)_{\max} = \pm 2\%$ und $\Delta(2\vartheta)_{\max} = \pm 2^\circ$ verwendet worden.

Einige Gründe, die eine Flugzeitanalyse der gestreuten Neutronen für die Messung der diffusen elastischen Streuung erforderlich machen, sind an früherer Stelle schon genannt worden. Hier seien die wesentlichen Gründe noch einmal zusammengestellt, bevor kurz auf die mit einer Flugzeitanalyse erzielte Energieauflösung eingegangen wird. 1. Bei tiefen Temperaturen ($T \ll T_0$) müssen unelastische Prozesse aufgrund von Phononanregung separiert werden, die mit der Erweiterung des Meßbereichs möglich werden (vgl. Abb. 2, S. 6). 2. Bei höheren Temperaturen müssen zusätzlich

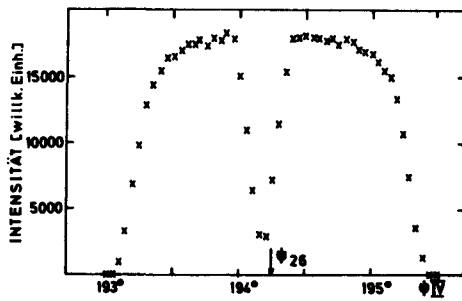


Abb. 25b:

Intensitätsverteilung bei Streuung an einer punktförmigen Probe (Zählrohr Nr. 26, Kolonne IV).

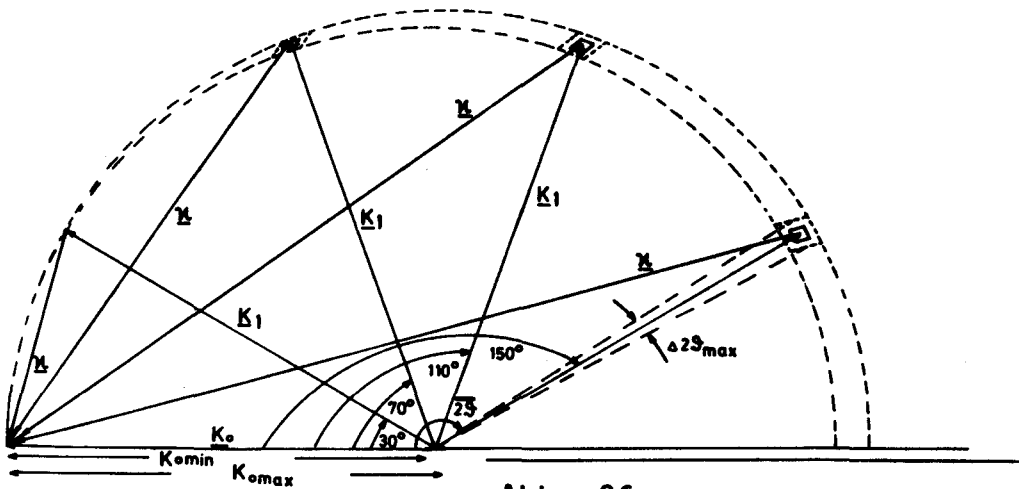


Abb. 26:

Horizontale Auflösungselemente.

die inelastischen Prozesse aufgrund von Phononvernichtung abgetrennt werden (vgl. Abb. 2). 3. Bei Messungen in der Umgebung von $1/2 \tilde{\tau}_{hk1}$ stören die Bragg-Reflex-Beiträge, die trotz Be-Filter mit der $\lambda/2$ Komponente der einfallenden Strahlen angeregt werden. 4. Aufgrund der endlichen Wellenlängenauflösung der einfallenden Neutronen $\Delta\lambda/\lambda = 2\%$ kann das Bragg-Gesetz (mit verminderter Intensität) auch noch in der Umgebung der reziproken Gitterpunkte (bzgl. λ) erfüllt werden. Es ist in erster Linie eine Frage der Energieauflösung, in zweiter Linie eine Frage der Auswertung (s.u.), ob die Peakverschiebung im Flugzeitspektrum ausreicht, um die diffuse elastische Streuung von solchen Prozessen zu trennen und von den immer vorhandenen inelastischen Streuprozessen in der Nähe von $\tilde{\tau}_{hk1}$ (vgl. Abb. 2). Das entscheidet darüber, wie nahe bei $\tilde{\tau}_{hk1}$ gemessen werden kann (Huangstreuung). 5. Die an der Probe Bragg-gestreuten Neutronen rufen an dem N_2 -Schild und dem Kryostatenmantel (Al) Debye-

Scherrer-Ringe hervor. Die Intensität dieser Doppel-Bragg-Streuung kann vergleichbar mit der zu untersuchenden diffusen elastischen Streuung sein (BSJ). Falls diese Streuung nicht durch die Kollimation im Kryostaten (Abb. 22) oder durch die Kollimation vor den Detektoren abgefangen wird, treffen diese Neutronen aufgrund des Wegunterschiedes zu einem späteren Zeitpunkt am Detektor ein als die diffus elastisch gestreuten Neutronen (s.u.).

Mit anderen Worten, um mit besserer Auflösung bzgl. $\Delta\lambda/\lambda$ und in einem größeren K -Bereich zu messen, war eine Flugzeitanalyse unumgänglich. Das bedeutete aber einen weiteren Intensitätsverlust aufgrund des schlechten Verhältnisses zwischen Öffnungs- und Schließzeit des Choppers.

Es wurde mit zwei Einstellungen der Breite des Chopperschlitzes gemessen. In Abb. 27 a (Breite = 30 mm) und 27 b (Breite = 10 mm) sind verschiedene Ausschnitte von Flugzeitspektren gezeigt. Zunächst sei Abb. 27 a beschrieben. Auf der Abszisse ist 1. die Flugzeit der Neutronen vom Chopper bis zum Detektor in m sec und 2. deren Energie in me V angegeben. Neutronen die keine inelastische Streuung erleiden, treffen im Mittel nach 0.92 msec ($\lambda/2$ -Komponente) und nach 1.84 msec (λ -Komponente) auf den Detektor. Auf der Ordinate ist die Anzahl der Impulse aufgetragen, die in den entsprechenden Flugzeitkanal - Kanalbreite 32 sec - fallen (vgl. die Kanal-Nr. am oberen Bildrand^x). Es handelt sich um die inkohärente elastische Streuung bei etwa 100 K an einem Vanadiumblech von 0.5 mm Dicke, das um einen Winkel von $\varphi = 36^\circ$ zum einfallenden Strahl gedreht ist (vgl. Abb. 25a, S.56). Bei der Messung ohne Be-Filter kann man einen kleinen " $\lambda/2$ Beitrag" erkennen. Er wird mit dem Be-Filter im Vergleich zum " λ -Beitrag" völlig unterdrückt. Die Breite der elastischen Linie (225 μ sec) wird im wesentlichen durch die Öffnungszeit des Chopperschlitzes bestimmt. Sie beträgt 184 μ sec bei einer Drehzahl von 118 HZ (Radius der Chopperscheiben 180 mm). Bei gleicher Blendenöffnung vor dem Chopper (vgl. Abb. 23, S.54)

^x Die ersten 8 Kanäle sind elektronisch unterdrückt (delay).

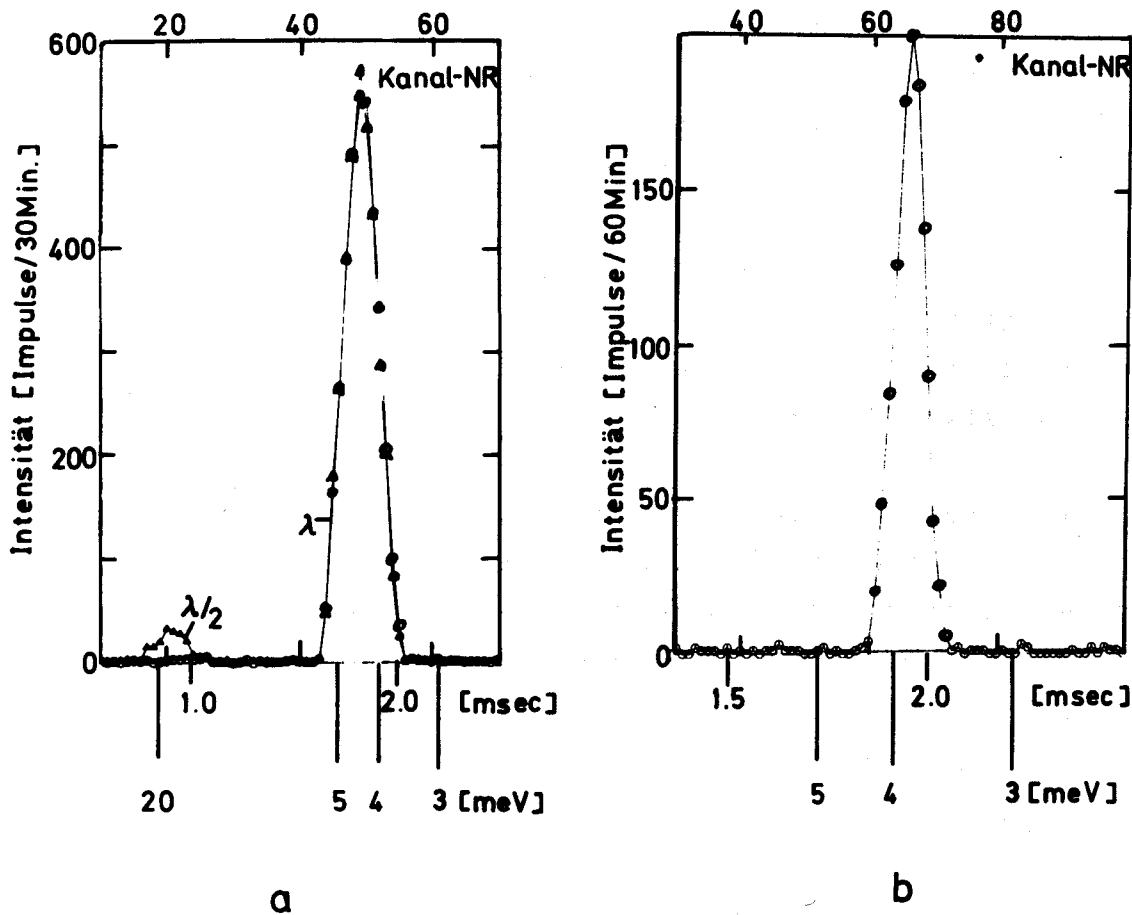


Abb. 27: Ausschnitt aus Flugzeitspektren für V mit verschiedenen Chopperschlitzbreiten $2\psi = 104^\circ$, ZR Nr. 24.
 a) 30 mm, mit (o) und ohne (Δ) Be-Filter,
 b) 10 mm, mit Be-Filter.

ergibt sich damit die Dreiecksgestalt der "elastischen Linie". Für die Energieauflösung ΔE der an der Probe gestreuten Neutronen folgt aus der gemessenen Breite $\Delta E = 1.3 \text{ meV}$, d.h.

$\Delta E/E = 30 \%$. Bei der Integration über die elastische Linie ist darauf zu achten, daß dabei entlang gekrümmter Linien aufsummiert wird. Vgl. Abb2, wo für $2\psi = 30^\circ \Delta E$ eingezeichnet ist.

Abb. 27 b zeigt die elastische Linie als Ausschnitt aus einem Flugzeitspektrum mit Chopperschlitz- und Blendenöffnung von 10 mm Breite (bei gleicher Position des V-Blechtes). Um die elastische Linie etwa gleich gut aufzulösen (wie im Fall a), wurde

mit halber Kanalbreite gemessen. (Man beachte auch die verdoppelte Vorwahlzeit und den reduzierten Maßstab der Ordinaten). Aus der Breite der elastischen Linie berechnet man eine Energieauflösung von $\Delta E = 0.6 \text{ meV}$, d.h. $\Delta E/E = 14 \%$.

Vergleicht man die aufintegrierten elastischen Linien im Fall a und b (auf gleiche Vorwahl normiert), so ergibt sich, daß die Verbesserung in der Energieauflösung durch einen Intensitätsverlust von etwa $1/6$ erkauft wird.

Es hat sich gezeigt, daß die Energieauflösung mit der 30 mm breiten Chopperschlitzöffnung ausreicht, um einen Überblick über die diffuse elastische Streuung an den Pb-Bi-Proben im Zwischen-Reflexgebiet zu gewinnen. Z.B. würde sich ein zweiter Peak aufgrund von Doppel-Bragg-Streuung (s.o.) vom elastischen Peak trennen lassen. Die Kanalverschiebung bei der Kombination

$\tau_{111}^{\text{Pb}} - \tau_{111}^{\text{Al}}$ beträgt $+ 4 \frac{1}{2}$ Kanäle, bei der Kombination $\tau_{200}^{\text{Pb}} - \tau_{111}^{\text{Al}}$ sogar $+ 12$ Kanäle. Für die Untersuchung der reflexnahen Gebiete wurde die bessere Auflösung gewählt.

Eine grobe Abschätzung der Intensitätsverhältnisse zum Vergleich mit dem Experiment von Schumacher sieht folgendermaßen aus. Dank der hohen Flußdichte und der Kalten Quelle beim HFR stand bei einer Reaktorleistung von 40 MW im Neutronenleiter H 15 ein Fluß von etwa $10^8 \text{ Neutronen}/(\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{\AA})$ zur Verfügung. Der Graphitkristall (Reflektivität 90 %) streut davon 2 % monochromatische Neutronen heraus. Das ungekühlte Be-Filter schwächt den Strahl um 40 %. Auf den Chopper treffen demnach etwa $10^6 \text{ n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$. Bei 2 Schlitzen mit 30 mm Öffnung werden davon $1/20$, d.h. $5 \cdot 10^4 \text{ n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ auf einer Fläche von $3 \times 5 = 15 \text{ cm}^2$ an der Probe gestreut.

Beim Experiment von Schumacher standen auf einer Fläche von $2,5 \times 8 = 20 \text{ cm}^2$ ebenfalls $5 \cdot 10^4 \text{ n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ monochromatisch zur Verfügung. Da aber bei dem hier durchgeführten Experiment die Streuung in einem etwa 8 mal kleinerem Raumwinkelelement untersucht

wird, wurde auf der einen Seite die Meßzeit für einen Stützpunkt im reziproken Gitter verfünffacht ($2\frac{1}{2}$ h), um mit etwa vergleichbarer Statistik zu messen. Auf der anderen Seite konnten die Streueignisse bei D 7 in 32 Detektoren statt in 6 bei dem früheren Experiment gesammelt werden, so daß zusammengefaßt vergleichbare Intensitätsverhältnisse vorlagen.

Die Intensität der Streuung an der Probe hat sich gegen Ende des Meßprogramms noch verbessert, als nämlich der Reaktor mit voller Leistung (57 MW) gefahren werden konnte, und ein 4 Schlitz-Scheibenchopper zur Verfügung stand^x.

Zur Datenerfassung und Steuerung des Experimentes ist das Spektrometer D 7 zusammen mit anderen Spektrometern direkt mit dem mittelgroßen elektronischen Rechner Telefunken TR 86 verbunden. Auf diese Weise werden experimentelle Parameter wie z.B. Proben- und Detektorposition, Chopperdrehzahl usw. geregelt bzw. überprüft. Um elektronisches Rauschen in dem Zählsystem niedrig zu halten, werden die in den Detektoren registrierten Ereignisse in Vorverstärkern, die direkt auf den Zählrohren befestigt sind, in niederohmige digitale Signale umgewandelt. Mit jeder Öffnung des Choppers wird eine Folge von periodischen Pulsen getriggert. Trifft ein Neutron-Puls bei einem der Eingangs-Kanäle ein, die den verschiedenen Detektoren zugewiesen sind, dann wird der augenblickliche Inhalt des Zeitkanalzählers in ein 12 bit Register gelesen und mit der Nummer des Eingangskanals kombiniert. Das ergibt die Adresse für den Speicherplatz, dessen Inhalt um 1 erhöht werden soll.

Für die Datenerfassung sind dem Spektrometer D 7 in der TR 86 4 K des Kernspeichers zugewiesen. Auf einem Bildschirm beim Spektrometer kann dieser Inhalt, d.h. 32 Flugzeit-Spektren mit je

x In der Zwischenzeit sind weitere Verbesserungen bei D 7 erfolgt. z.B. haben bessere Justierung des Graphit-Monochromators und Kühlung des Be-Filters einen Faktor 2 in der Intensität gebracht, und der Hallenuntergrund (s. V.1) konnte durch bessere Abschirmung noch gesenkt werden.

128 Kanälen sichtbar gemacht und damit der Fortgang des Experimentes beobachtet werden (vgl. Abb. 28 S.65 und Abb. 41 S.82). Bei Abschluß jeder Messung wird der gesamte Inhalt auf ein Magnetband geschrieben und für jedes Spektrometer mit einem anderen Kopf versehen. Diese Daten wurden z.Z. der Durchführung dieses Experimentes nach 1 - 2 Tagen auf einer Großrechenanlage IBM 360/51 (außerhalb des ILL) nach Spektrometern sortiert und auf Bänder geschrieben, die den einzelnen Spektrometern zugewiesen waren^x. Dann erst konnte - von einer on-line Datenstation im ILL aus - mit der Auswertung der Messungen mit Hilfe von Rechenprogrammen begonnen werden.

Um eine sofortige erste Auswertung durchführen zu können, wird deshalb automatisch ein sogenanntes "Extrakt"-Programm aufgerufen, bevor die Daten einer Messung im Kernspeicher der TR 86 für die nächste Messung gelöscht werden. Dieses Programm summiert für jedes Zählrohr den Inhalt auf, der in ein bestimmtes Zeitfenster fällt, z.B. wird über die halbe Breite der elastischen Linie integriert, wenn auf beiden Seiten der elastischen Linie unelastische Streuung beobachtet wird, die nicht völlig von der elastischen getrennt ist. Diese 32 Zahlen werden auf einer Platte der TR 86 gespeichert. Von dort können sie jederzeit zum Vergleich mit früheren Messungen (Probe-Standard) auf den Bildschirm zurückgeholt und analysiert werden. Sind diese Extrakte (32 statt vorher 4096 Zahlen) auf Platte geschrieben, werden die 4 K gelöscht und wird für eine neue Messung der Probenwechsler angesteuert. Auf sein Signal hin (Probenwechsel oder Drehung beendet) wird die neue Messung gestartet, wenn nicht vorher z.B. eine neue Detektorposition angefahren werden sollte.

Eine Kopie des Bandes mit den Messungen am System PB-Bi ist zur weiteren Auswertung mit nach Jülich genommen worden.

^xInzwischen erfolgt der Band-Transfer halbtätig zu einer ILL eigenen PDP10, und die Auswertung kann von einem Terminal aus durchgeführt werden, das neben dem Spektrometer installiert ist.

V DURCHFÜHRUNG UND AUSWERTUNG DER MESSUNGEN

1.) Untergrund- und Eichmessungen

Das Diffraktometer D 7 befindet sich in der Neutronenleithalle etwa 30 m von der Reaktorhallenwand entfernt. Die Zählrohre von D 7 haben einen Abstand von 3 - 6 m von dem Graphitmonochromator für D 7 und dem mechanischen Geschwindigkeitsselektor für D 11, beide am Neutronenleiter H 15 installiert. Durch Errichtung einer zusätzlichen Wasser- und Paraffinwand zur Moderation von epithermischen Neutronen zwischen dem Neutronenleiter H 15 und dem mit B_4C -Platten gegen thermische Neutronen abgeschirmten Spektrometer (vgl. Abb. 23 S.54) konnte der Hallenuntergrund in den Zählrohren auf 1 - 3 Impulse gesenkt werden. Davon sind etwa 0.5 - 1 Impulse pro Minute durch elektronisches Rauschen und Höhenstrahlung bedingt. Die Untergrund erhöhte sich in den Zählrohren in Vorwärtsrichtung um etwa einen Faktor 2 durch die Streuung an dem (leeren) Kryostaten. Auf das elastische Fenster im Flugzeitspektrum bezogen ($1/2\sigma$) beträgt die Intensität der Streuung an der Pb-Vergleichsprobe ($\sigma_{\text{ink}}^{\text{Pb}} + \sigma_{\text{ink}}^{\text{H}}$) etwa das 10-fache der Streuung am leeren Kryostaten. Vergleichbare Werte lagen bei dem Experiment von Schumacher vor.

Vor und nach jedem Einbau der Pb-Bi/Pb-Proben wurden Eichmessungen mit einem Vanadium-Blech (vgl. Abb. 27 a) oder einem zylindrischen Al-Polykristall (6 N7 mit (50 ± 0.05) mm Durchmesser (gleiche Geometrie wie die Pb-Proben) durchgeführt.

Vanadium eignet sich als Eichstreuer, weil es praktisch nur inkohärent streut. $\sigma_{\text{ink}}^{\text{V}} = (5.05 \pm 0.15)$ barn (Bacon 1962, Shull 1972)^x. Bei einem V-Zylinder mit gleichem Durchmesser wie bei den Pb-Proben müßten mit großen Fehlern behaftete Korrekturen aufgrund von Absorption und Vielfachstreuung angebracht werden. Um mit einem Blech dennoch etwa die gleiche

^x Die von den Herstellern (GFE Nürnberg) angegebenen Verunreinigungen ergeben nur etwa $\sigma_{\text{ink}} \approx 1$ mbarn. Eine Messung der inkohärenten Streuung vor und nach Entgasen (H!) des V-Blech (4 h bei 1600°C und $8 \cdot 10^{-10}$ Torr) ergab keinen Unterschied innerhalb der experimentellen Fehler.

Strahlgeometrie wie bei den Pb-Proben zu erzeugen, wurden je nach dem Querschnitt des einfallenden Strahles - 30 bzw. 10 mm - das V Blech unter $\varphi = \pm (37^\circ \pm 1^\circ)$ bzw. $\varphi = \pm (11^\circ \pm 1^\circ)$ zur Richtung des einfallenden Strahlers gestellt (vgl. Abb. 25 a S. 56). Der Fehler $\Delta\varphi = \pm 1^\circ$ ist von der gleichen Größe wie der Unterschied der Absorptions Korrektur für Reflexions- und Transmissionsmessung. Wenn man diese Korrekturen berücksichtigt, stimmen die Streuintensitäten für die jeweiligen Blechpositionen innerhalb der statistischen Fehler überein.

Für die Zahl der Neutronen, die am Detektor nachgewiesen werden, gilt - abgesehen vom Untergrund -

$$J_1 = J_0 \cdot N_1 \frac{d\sigma}{d\Omega}(K) \cdot D \cdot \Delta\Omega_1 \cdot f_1(\lambda) \cdot W(\lambda) \quad (5.1)$$

mit

J_0 Zahl der Neutronen, die pro Sekunde an der Probe ankommen

N_1 Zahl der Atome pro cm^3

D (bzgl. des Strahlquerschnittes effektive) Probendicke

$\Delta\Omega_1$ Raumwinkel, in dem die aus der Probe gestreuten Neutronen in den Detektor gelangen können.

$f_1(\lambda)$ Schwächungsfaktor aufgrund von Absorption in der Probe und den Kryostatenwänden

$W(\lambda)$ Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors

Für den Vergleich der Intensität der Probenstreuung mit der des Eichstreuers ergibt sich also

$$\frac{J_1(\text{Pb})}{J_1(\text{V, Al})} = \frac{N_1^{\text{Pb}}}{N_1(\text{V, Al})} \cdot \frac{\frac{d\sigma}{d\Omega}^{\text{Pb}}}{\frac{d\sigma}{d\Omega}(\text{V, Al})} \cdot \frac{D^{\text{Pb}}}{D(\text{V, Al})} \cdot \frac{f_1'^{\text{Pb}}}{f_1'(\text{V, Al})} \quad (5.2)$$

Dabei ist $N_1(\text{Pb}) = 3.38 \cdot 10^{22} \text{ Atome/cm}^3$ (10K), $N_1(\text{V}) = 7.08 \cdot 10^{22} \text{ Atome/cm}^3$ und $N_1(\text{Al}) = 6.13 \cdot 10^{22} \text{ Atome/cm}^3$ (100K).

Die effektive Probendicke beträgt z.B. für den 30 mm ($\pm 1\%$) breiten Strahl $D_V = 0.80 \text{ mm} \pm 3.5\%$, $D_{\text{Pb}} = 45.9 \text{ mm} \pm 3\%$,

$D_{\text{Al}} = 46.5 \text{ mm} \pm 3\%$. f_1' ist der Absorptionsfaktor für die

Probe. Für die linearen Absorptionskoeffizienten (effektive Dicke D) gilt bei $\lambda = 4.32 \text{ \AA}$: $\mu_V = 8.0 \text{ (mm}^{-1}\text{)}$, $\mu_{Pb} = 0.21 \text{ (mm}^{-1}\text{)}$ und $\mu_{Al} = 0.32 \text{ (mm}^{-1}\text{)}$ (Bacon 1962).

Die Auswertung von Eichmessungen in einem Abstand von ca. 4 Wochen ergaben mittlere Werte für den inkohärenten Wirkungsquerschnitt der Pb-Probe von $\sigma_{ink} = (3.5 \pm 0.3) \text{ (mbarn)}$ bzw. $\sigma_{ink} = (3.2 \pm 0.3) \text{ (mbarn)}$.

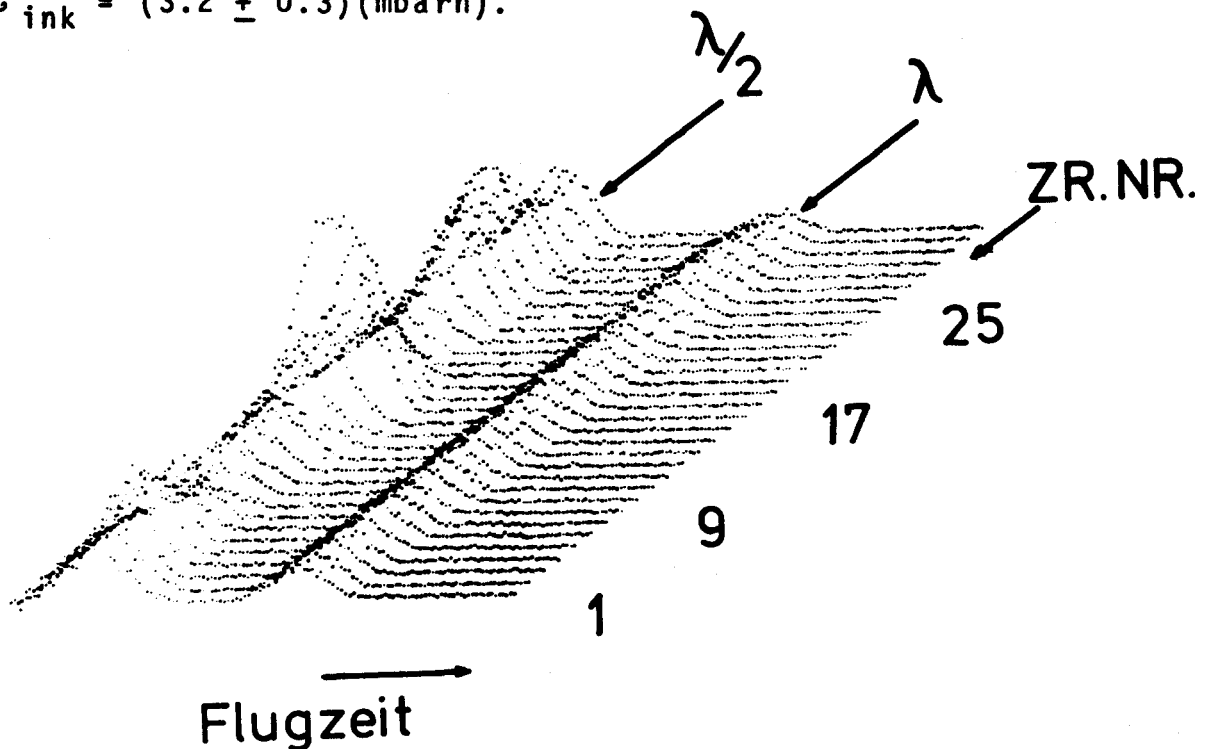


Abb. 28: Flugzeitspektren für Al-"Poly"kristall ($T=100 \text{ K}$, mit Be-Filter).

Die Flugzeitspektren einer Al-Messung sind in Abb. 28 gezeigt (Reproduktion einer "Hard Copy"). Sehr deutlich sieht man trotz Be-Filter die Beiträge von Neutronen mit $\lambda/2$ -Debye-Scherrer-Linien. Auffallend ist dagegen das Fehlen der Al(111) Debye-Scherrer-Linie, die bei ZR.NR 29 noch sichtbar sein müßte. Keiner der großen Mikrokristallite, die nach dem Ätzen sofort sichtbar waren, stand demnach in Bragg-Position. Wird die volle elastische Linie (λ) aufintegriert und die Intensität bzgl. der Nachweiswahrscheinlichkeit der Detektoren korrigiert, dann ergeben zwei Messungen mit $2\psi = 10^\circ$ verschobenen Detektorpositionen die Intensitätsverteilung in Abb. 29.

Die Schwankungen von $\pm 2\%$ außerhalb der statistischen Fehler sind auf die unterschiedliche Strahlgeometrie bei der Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit der Detektoren zurückzuführen.

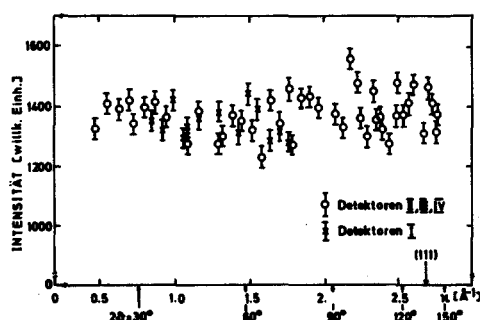


Abb. 29:

Elastische Streuung an Al (mit Korrektur der Nachweiswahrscheinlichkeit der Zählrohre), die Zählrohre $\circ$ befinden sich auf der rechten Seite des Spektrometers, die Zählrohre $\square$ auf der linken Seite.

Eine Auswertung entsprechend (5.2) ergab mit $\sigma_{\text{ink}}^{\text{Al}} = (10.5 \pm 0.5)$ mbarn für die Pb-Probe $\sigma_{\text{ink}}^{\text{Pb+H}} = (4.04 \pm 0.4)$ mbarn. Der Mittelwert aus den drei angegebenen Wirkungsquerschnitten ist $\sigma_{\text{ink}}^{\text{Pb+H}} = (3.55 \pm 0.35)$ mbarn. Berücksichtigt man wie bei SSS eine aus den Werten der Tabelle 4 (S. 51) gemittelte Konzentration von 5 ± 3 ppm H, dann verbleibt für die inkohärente Streuung an Pb etwa $\sigma_{\text{ink}}^{\text{Pb}} = (3.0 \pm 0.4)$ mbarn in Übereinstimmung mit SSS und im Widerspruch zu $\sigma_{\text{ink}}^{\text{Pb}} = (1.3 \pm 0.5)$ mbarn Scherm (1968). Es ist möglich, daß Scherm eine zu große Korrektur bzgl. der Wasserstoff-Streuung angebracht hat.

Die Bestimmung der Wellenlänge aus einem Flugzeitexperiment mit schmalen Chopper-Schlitz ergab $\lambda = (4.29 \pm 0.06)$ Å. Aufgrund der Braggstreuung bei (111) und (200) folgt $\lambda = (4.32 \pm 0.04)$ Å. Beide Werte stimmen innerhalb der Fehler überein. Bei der Auswertung wird $\lambda = 4.32$ Å verwendet, um die richtige Skalierung bzgl. $1/2\tau_{\text{hkl}}$ bzw. τ_{hkl} zu haben.

Mit einer solchen Wellenlänge wird einerseits der Meßbereich von $0.3 \leq k \leq 1.76$ Å⁻¹ zu größeren k erweitert^x. Andererseits bleiben die steilen Abfälle in [110]- und [111]-Richtung bei 0.7 bzw. 0.9 Å⁻¹ (vgl. Abb. 6, S. 26) noch innerhalb des Meßbereiches.

^x Die Wahl von $2\theta_{\text{max}} = 150^\circ$ ist bedingt durch einen möglichst kurzen Abstand zwischen Chopperscheibe und Kryostat (vgl. Abb. 23, S. 54). $0.5 \leq k \leq 2.82$ Å⁻¹

2.) Pb - 4% Bi

2.1 Temperaturprogramm

Um festzustellen, ob es sich bei dem Anstieg der Streuintensität in der Nähe von (110) um einen temperaturabhängigen Effekt handelt, wurde die diffuse elastische Streuung an der $\text{Pb}_{0,959} \text{Bi}_{0,041}$ (kurz Pb - 4% Bi) Probe bei verschiedenen Temperaturen während des Abkühlvorganges gemessen. Abb. 30 zeigt typische Flugzeitspektren in der Nähe von (110) für $T = 115 \text{ K}$ und $T = 34 \text{ K}$. Die experimentellen Parameter für diese Flugzeitspektren (Vorwahl, Chopperfrequenz, Kanalbreite) sind die gleichen wie bei der ausführlich beschriebenen Abb. 27 a. Ein delay von 10 statt 8 Kanälen läßt die elastisch gestreuten Neutronen bei dieser Messung im Mittel bei Kanal 47,5 eintreffen. Man sieht einen starken unelastischen Streubeitrag, dessen Ausläufer bei $T = 115 \text{ K}$ weit in den elastischen Peak hineinreichen. Bei $T = 34 \text{ K}$ sind elastische und unelastische Streubeiträge schon sehr gut getrennt. Der Intensitätsunterschied der unelastischen Streuung zwischen Pb-4% Bi und Pb ist auf deren unterschiedliche Temperatur zurückzuführen.

Aufgrund des kurzfristigen Ausfalls des Temperaturschreibers entstand eine Lücke in der Temperaturmessung. Um sie zu schließen, wurde zunächst aus dem Laufzeitunterschied zwischen elastisch und unelastisch gestreuten Neutronen die Energie des absorbierten (transversalen) Phonons bestimmt $W_{T_2} = 4.5 \text{ meV}$ (2.1.13). Durch Integration über die unelastische Linie ergab sich die Streuintensität, und durch Vergleich mit der thermischen Besetzungszahl des Phonons (2.1.14) konnte die Temperatur berechnet werden. Um die diffuse elastische Streuung anzugeben, wurde nur über die rechte Hälfte der elastischen Linie integriert. Nach Abzug der Pb-Streuung ergab sich z.B. für die Zählrohre 16, 18 und 21 der in Abb. 31 dargestellte Intensitätsverlauf. Zunächst sieht man, daß die diffuse elastische Streuung in der Nähe von (110) ZR-NR. 18 deutlich höher ist als an weiter entfernten Punkten im reziproken Gitter.

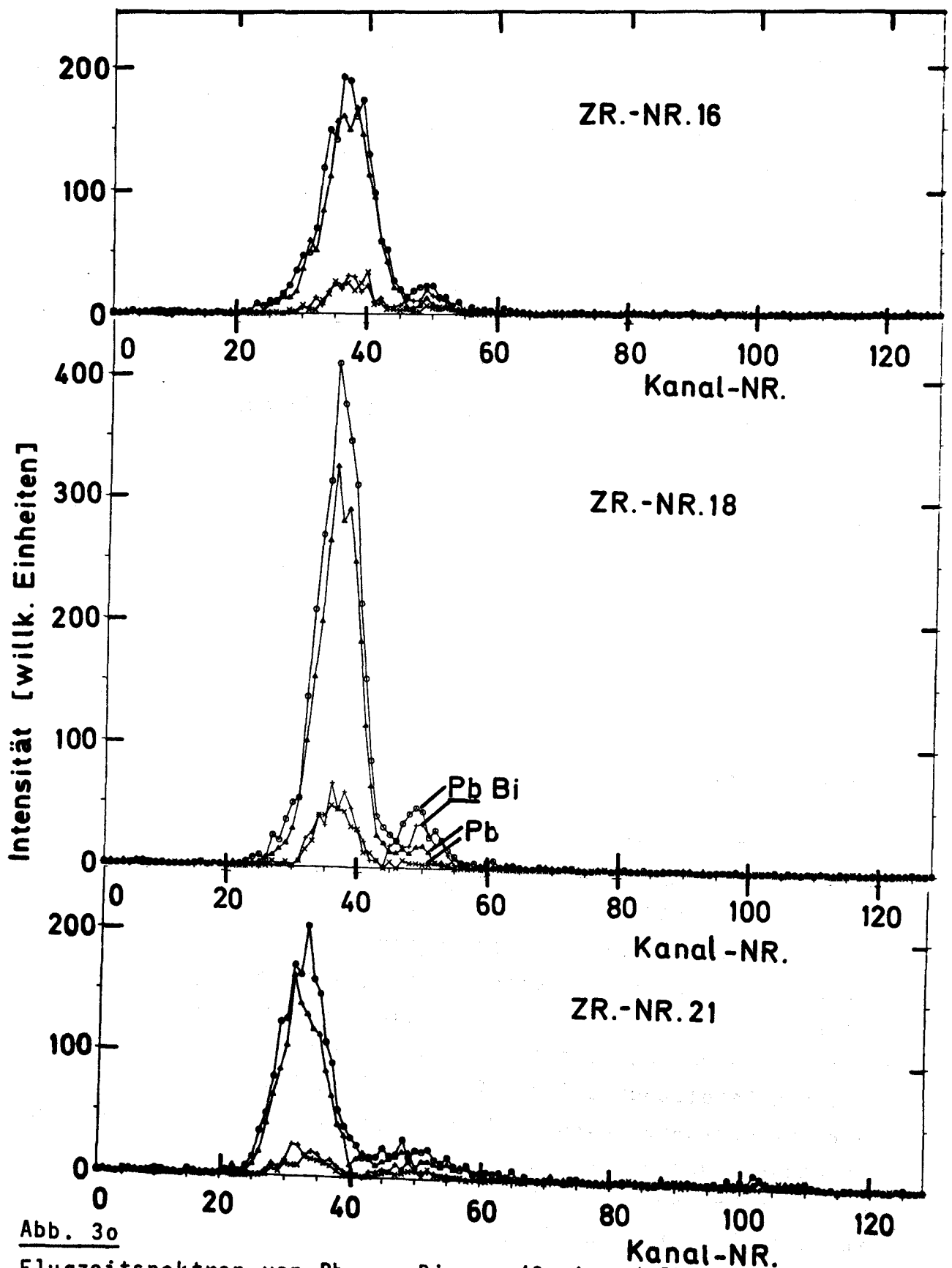


Abb. 30

Flugzeitspektren von $\text{Pb}_{.959} \text{Bi}_{.041} (0,+)$ und $\text{Pb} (\Delta, x)$ bei $T (115,34) [\text{K}]$ in den Zählrohren 16 ($1.4 \text{ \AA}^{-1}$), 18 ($1.72 \text{ \AA}^{-1}$) $\approx (110)$ und 21 ($2.13 \text{ \AA}^{-1}$), Meßzeit ca. 30 Minuten.

ter (ZR-Nr. 16 und 21). Dieser Intensitätsunterschied zeigt innerhalb der statistischen Fehler keine merkliche Temperaturabhängigkeit zwischen $T = 115$ [K] und $T = 34$ [K]. (Der Debye-Waller-Faktor (2.1.12) beträgt für $K = 1.8 \text{ \AA}^{-1}$ bei $T = 115$ [K] $\exp - 2W = 0.97$, bei $T = 30$ [K] $\exp - 2W = 0.99$ und bringt nur eine Korrektur innerhalb der statistischen Fehler).

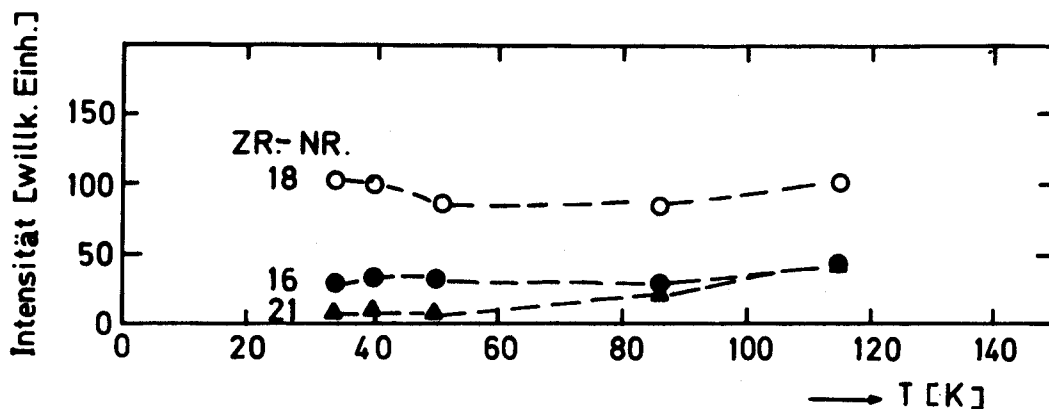


Abb. 31

Temperaturabhängigkeit der Diffusen elastischen Streuung für $\text{Pb}_{0.959}\text{Bi}_{0.041}$ in der Nähe von (110)

2.2 Messung in der $(\bar{1}10)$ - Ebene

Um einen Überblick über die diffuse elastische Streuung in der $(\bar{1}10)$ - Ebene zu erhalten, wurden Flugzeitspektren von Probe und Vergleichsprobe gemessen und zwar bei festen Detektorpositionen und Drehung der Proben von $\Psi = 0^\circ$ - 180° in Schritten von 10° . Spiegelt man die gewonnenen experimentellen Stützpunkte in einen Quadranten, dann ergibt sich das Netzwerk, das in Abb. 32 gezeigt ist. Die Punkte einer Messung (charakterisiert durch den Winkel Ψ) liegen auf einem Ewaldkreis und sind miteinander verbunden. Der Meßbereich mit $\lambda = 7 \text{ \AA}$ ist strichliert eingezeichnet. Zum Vergleich sind zusätzlich die nach dem Dreibein-Modell gerechneten Höhenlinien gezeigt (s.a.S.46).

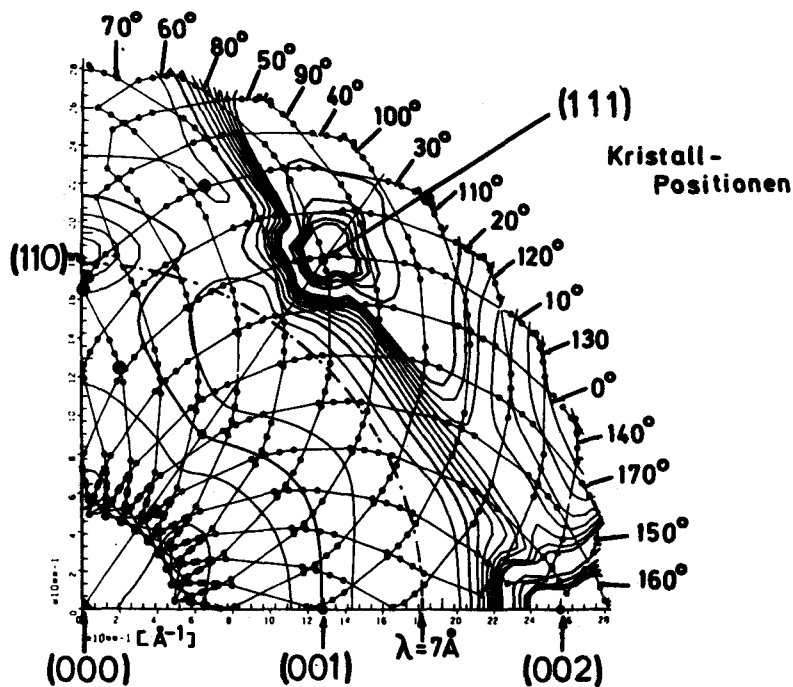


Abb. 32: Lage der Stützpunkte in der (T10)-Ebene und Höhenlinien-diagramm nach dem Dreibein-Modell.

Eine Auswahl von Flugzeitspektren für Pb - 4 % Bi und Pb bringt Abb. 33. Gegenüber den experimentellen Parametern der Flugzeitspektren in Abb. 27 (s. 59) ist nur die Vorwahl vervielfacht worden. Die mit λ elastisch gestreuten Neutronen treffen also im Mittel bei Kanal 49,5 ein. Eine merkliche unelastische Streuung durch Phononanregung tritt erst oberhalb $K = 1.72 \text{ \AA}^{-1}$ auf und übersteigt die inkohärente elastische Streuung an der Pb-Probe bei $K = 2.82 \text{ \AA}^{-1}$ (vgl. Abb. 2, S. 6) um mehr als eine Größenordnung. Dennoch kann sie - ebenso wie die Beiträge in $\lambda/2$ und $\lambda/3$ - gut von der elastischen Streuung separiert werden. Vergleicht man nun die elastische Streuung an der PbBi-Probe mit der für alle K -Werte nahezu konstanten inkohärenten elastischen Streuung an der Pb-Probe, dann stellt man eine starke Variation mit K fest. Die zusätzliche (Verzerrungs-)Streuung ist maximal in der Nähe von (110) und bei $K = 2.82 \text{ \AA}^{-1}$, sie ist minimal bei $K = 2.28 \text{ \AA}^{-1}$ - in qualitativer Übereinstimmung mit dem Höhenlinienbild (Abb. 32).

Beim Auswerten zeigte sich, daß die elastische Streuung der Pb-Vergleichsprobe als Funktion der Probenposition Ψ einen starken Intensitätsanstieg aufweist bei K -Werten in der Nähe von τ_{111} und τ_{002} - abgesehen von den um 4 Größenordnungen höheren Peaks bei τ_{111} und τ_{002} selbst. Die Vermutung, daß es sich um Debye-Scherrer-artige Streuung an polykristallinem Pb handelt, konnte

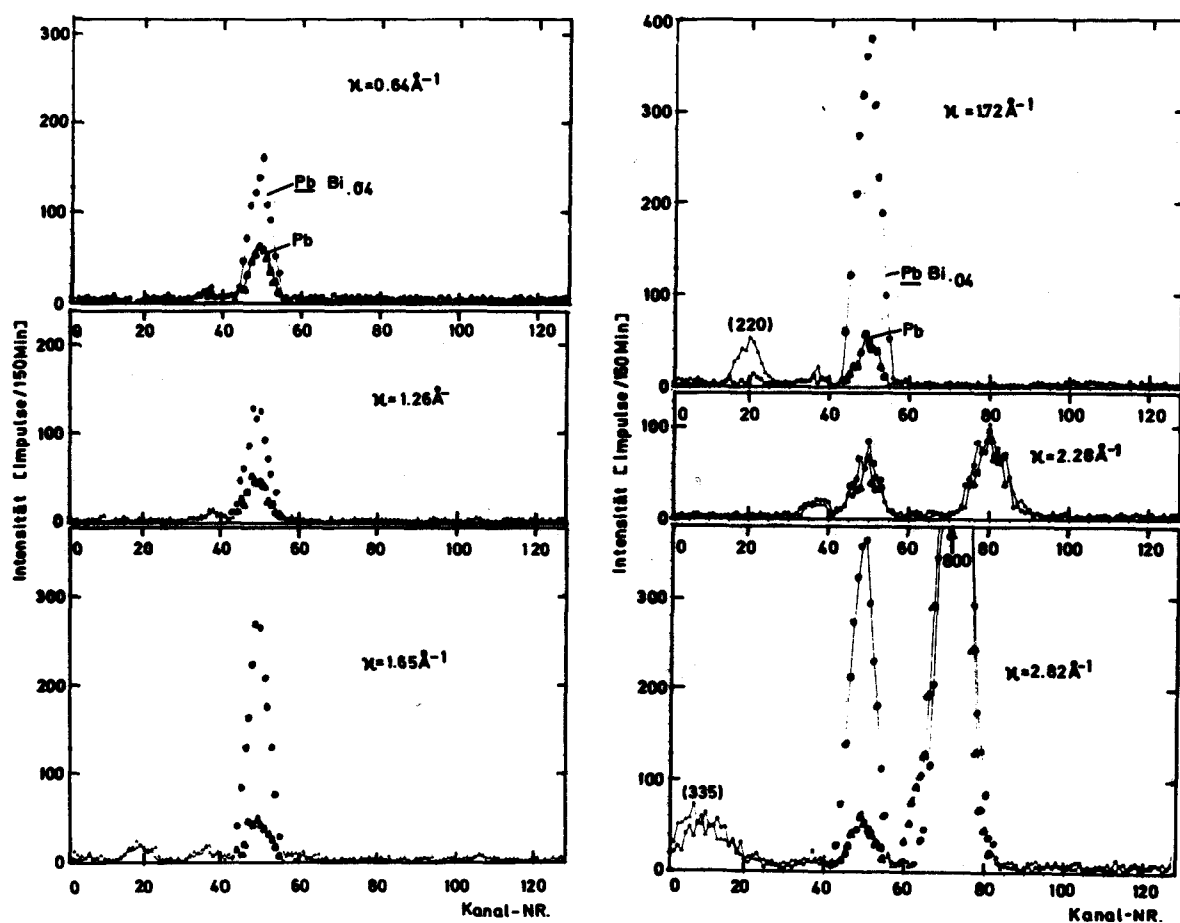


Abb. 33: Flugzeitspektren für die in Abb. 32 ausgewählten Punkte (●) auf einem Ewald Kreis durch den (110)-Peak Pb 4 % Bi (○), Pb (▲).

später nach Makro-Ätzen der Probe bestätigt werden. Zwei schmale polykristalline Streifen senkrecht zur Stabachse wurden sichtbar. Sie laufen nicht um die ganze Probe, so daß z.B. in der Position $2\vartheta = 30^\circ$ bei $\kappa = 2.28 \text{ \AA}^{-1}$ nur die inkohärent elastische Streuung beobachtet wird (vgl. Abb. 33).

In dieser Position befanden sich die Streifen nicht im Strahl (vgl. Abb. 25a, S. 56).

Durch Interpolation mit Hilfe der V- und Al-Eichmessungen wurde der entsprechende inkohärente Untergrund bestimmt.

Bei allen Flugzeitspektren - auch den Leermessungen - wurden Summen über die volle und über die halbe Breite der elastischen Linie gebildet. Gemittelt über ψ ergaben sich daraus für die Pb-Vergleichsmessungen für jeden Detektor zwei Zahlen.

Zur Bestimmung der kohärenten diffusen elastischen Streuung wurden die relativen Differenzen zwischen der Streuung an der Pb-4% Bi-Probe und der Pb-Vergleichsprobe gebildet und die resultierende Intensität entsprechend V1) geeicht. Den Wirkungsquerschnitt pro

Defektatom erhält man daraus durch Division durch die Konzentration.

Außerhalb der Umgebung der Reflexe stimmen die beiden Auswertungen (volle Breite, halbe Breite der elastischen Linie) innerhalb der statistischen Fehler überein. In der Nähe der Reflexe bewegen sich die unelastischen Beiträge im Flugzeitspektrum auf die elastische Linie zu (vgl. Abb. 2, S. 6), so daß dort eine Auswertung nur über die halbe Breite der elastischen Linie sinnvoller erscheint. Im folgenden wurde nur die Auswertung "halbe Breite" verwandt.

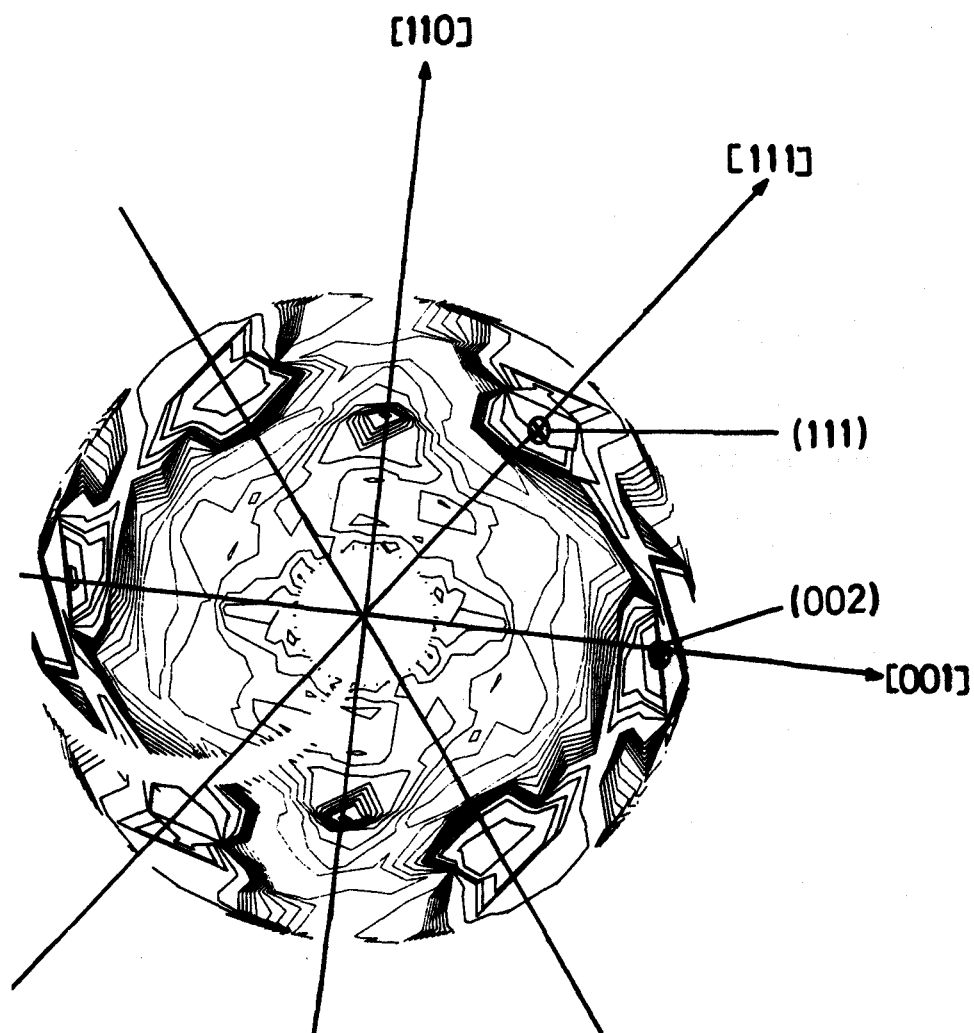


Abb. 34:

Höhenlinienbild der experimentellen diffusen elastischen Streuung an Pb 4% Bi

In Zusammenarbeit mit L. Janicke im Institut für Plasmaphysik der KFA wurde ein Programm entwickelt, das gestattet, Höhenliniendiagramme durch zweidimensionale Interpolation zu zeichnen, auch wenn sich die Stützpunkte nicht auf (äquidistanten) Rechteck Koordinaten befinden. Dieses Programm wurde zunächst auf die mit den 24 Detektoren auf der rechten Seite des Spektrometers gewonnenen Meßdaten angewandt (18 Ewald-Halbkreise). Das Ergebnis ist in Abb. 34 gezeigt, wobei der Anschaulichkeit wegen die Zahl der Ewald-Halbkreise verdoppelt wurde. Die geringe Zahl der Stützpunkte, deren unsymmetrische Lage bzgl. der Symmetrieachsen $[110]$ und $[001]$ und die unterschiedliche Lage der Auflösungselemente bei symmetrisch gelegenen Stützpunkten haben z.B. zur Folge, daß sich keine glatten Kurven ergeben und daß gewisse Symmetriebedingungen für den Verlauf der Höhenlinien verletzt sind.

Deshalb wird eine weitere Auswertung vorgestellt, bei der wieder alle Informationen in einem Quadranten zusammengefaßt wurden. Man trägt den Wert der diffusen elastischen Streuung für konstantes K über dem Winkel φ zwischen der $[110]$ und der $[001]$ -Richtung auf. Das Ergebnis einer solchen Auswertung ist in Abb. 35 für eine Auswahl für K -Werten gezeigt. Die Verdoppelung der Punktzahl bei $K = 0.64 \text{ \AA}^{-1}$ rührt davon her, daß auf beiden Seiten des Spektrometers Zählrohre unter $|\vec{2\theta}| = 26^\circ$ standen. Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung innerhalb $0.1 \text{ [mbarn/sterad]}$. Sehr deutlich sieht man den Anstieg in Richtung $[110]$. Er ist bei $\frac{1}{2} \tau_{220} = 1.81 \text{ \AA}^{-1}$ schon wieder abgeklungen. Das heißt, der gesuchte Peak (Schumacher) liegt nicht genau bei (110) sondern bei $K = (1.75 \pm 0.03) \text{ \AA}^{-1}$ (s.u.). Verfolgt man den Intensitätsverlauf für $K = 1.72 \text{ \AA}^{-1}$ weiter für größere Werte von φ , dann sieht man, daß die diffuse elastische Streuung praktisch auf Null absinkt. Mit anderen Worten, hier kompensieren sich Laue- und Verzerrungsstreuung. Betrachtet man die Intensität in Richtung $[111]$, dann kann man schon aus Abb. 35 die asymmetrische Streuung um den Reflex $\tau_{111} = 2.22 \text{ \AA}^{-1}$ erkennen. Bei $K = 1.83 \text{ \AA}^{-1}$ mißt man Werte von $5 \text{ [mbarn/ster. Defekt Atom]}$, während bei $K = 2.75 \text{ \AA}^{-1}$ die Intensität 10-mal höher ist.

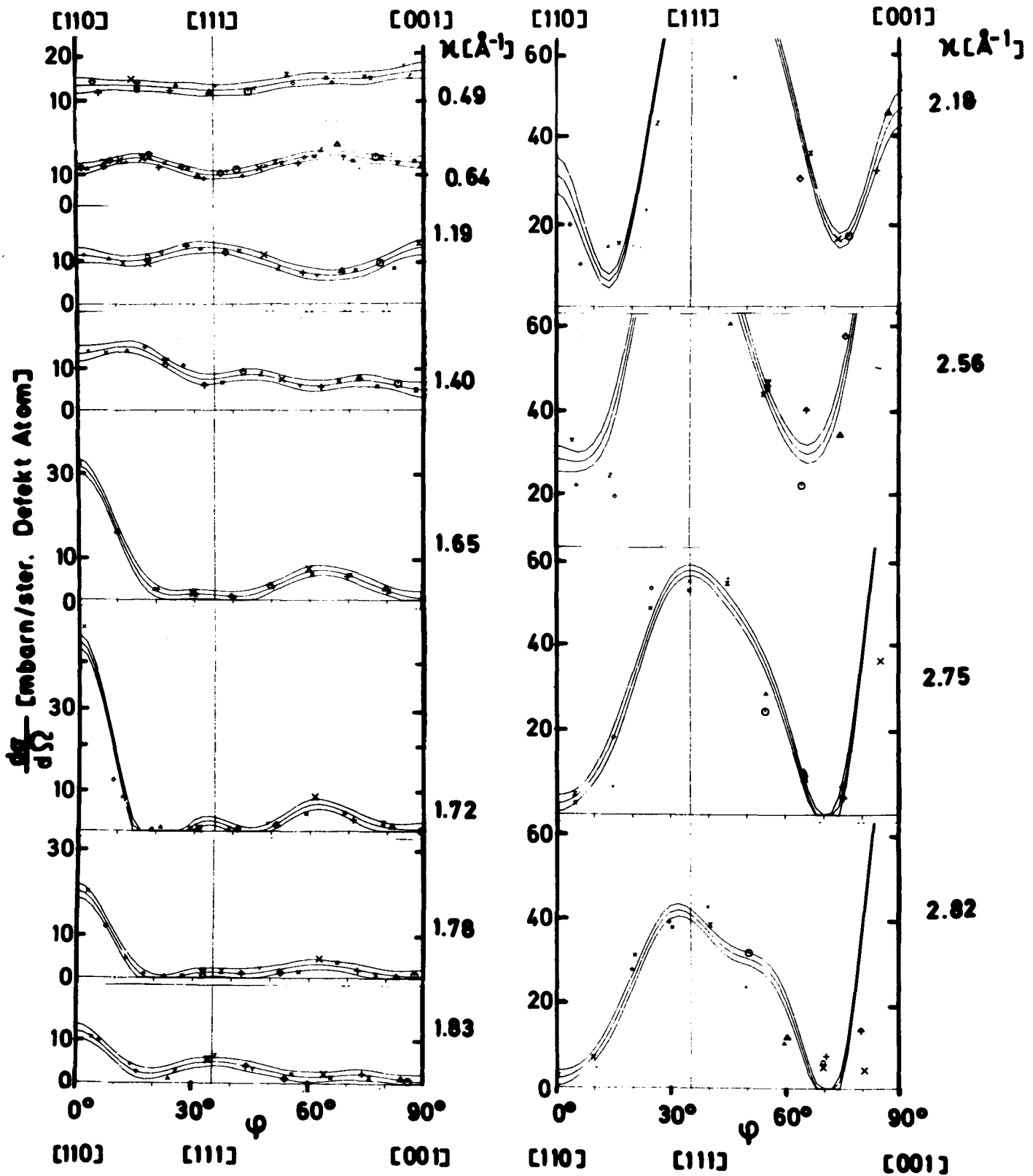


Abb. 35: Elastisch diffuse Streuung an Pb 4% Bi für verschiedene Werte von κ in Abhängigkeit vom Winkel φ zwischen $[110]$ und $[001]$ -Achse. Die eingezeichneten Kurven sind Interpolationen mit kubischen Splines (einschl. Fehlerband).

Die eingezeichneten Kurven geben eine Interpolation der experimentellen Punkte mit Hilfe von kubischen Splinefunktionen wieder mit der Randbedingung horizontaler Tangente bei $[110]$ und $[001]^x$. Das Fehlerband der Standardabweichung ist mit eingezeichnet. Bei dem vorliegenden Fit wurden 13 Knoten verwandt (äquidistant). Das diesen Fits mit Splinefunktionen zugrunde liegende Prinzip, die Meßpunkte mit Kurven minimaler Krümmung anzupassen, erfordert in der Nähe starker Strukturen z.B. (110) , (111) , (002) dichter liegende Knoten. Eine solche Programmversion existiert leider noch nicht.

Mit Hilfe dieser (ersten) Anwendung der Splinefunktionen können an äquidistanten Punkten ($\Delta y = 4^\circ$) experimentelle Werte interpoliert werden. Eine zweite Anwendung der Splineinterpolation mit ebenfalls 13 Knoten nun für konstantes y und variables K führt zu geglätteten experimentellen Werten in einem engmaschigen Netz des Quadranten. Das Ergebnis ist in Abb. 36 gezeigt zusammen mit der Messung von Schumacher (Abb. 15 a, S. 44). Die Einheiten der Höhenlinien sind $mbar/ster.$ und Defekt-Atom. Es sind nur Höhenlinien bis zu 40 Einheiten eingezeichnet wegen der Unsicherheit in der Auswertung in der Nähe der Reflexe. Eine Abschätzung der Fehler in den Intensitäten ergibt für 10, 20 und 40 Einheiten Fehler von ± 2 , ± 3 und ± 5 Einheiten.

Im gemeinsamen Meßbereich der beiden Experimente - links durch die strichpunktierte Linie angedeutet - gibt es eine überraschend gute Obereinstimmung, bedenkt man die beiden unterschiedlichen Meßverfahren mit und ohne Flugzeitauflösung. Das spricht für die richtige Einschätzung der Untergrundverhältnis bei dem Experiment von Schumacher.

Abweichungen machen sich dank der besseren Auflösung des vorliegenden Experimentes dort bemerkbar, wo schon Schumacher stärkere

^x Entsprechende Programme wurden von der Gruppe: Numerische Methoden und Datenverarbeitung des Instituts für Festkörperforschung der KFA entwickelt.

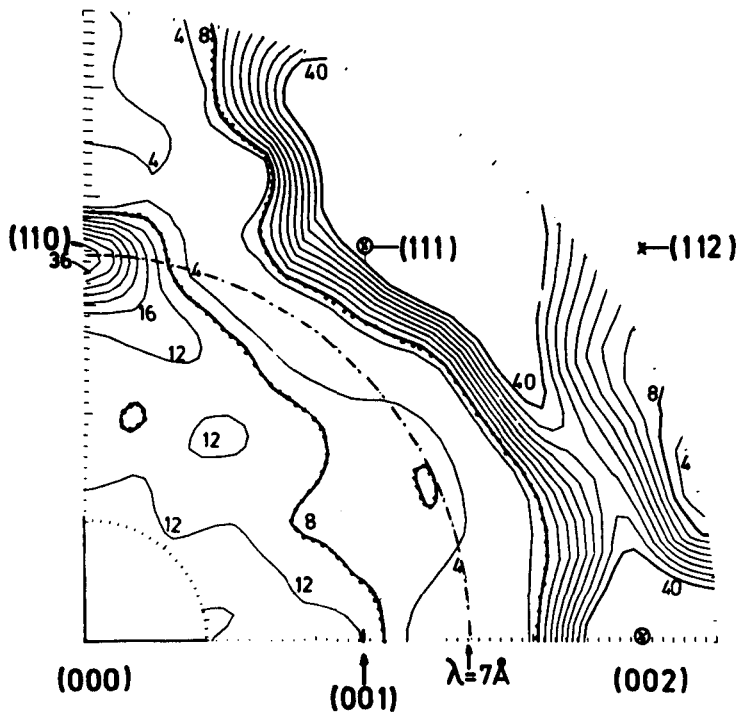
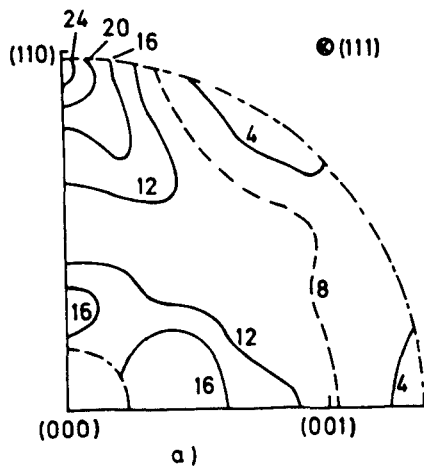


Abb. 36:

Höhenlinienbild der experimentellen diffusen elastischen Streuung an Pb 4% Bi nach zweimaliger Glättung durch kubische Splines,

a) zeigt noch einmal das Ergebnis der Messung von Schumacher (vgl. Abb. 15 a)



Strukturen bzw. Andeutungen von Strukturen beobachten konnte, so z.B. bei dem (110)- und $(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2})$ -Punkt. Darüberhinaus gibt das vorliegende Experiment nun auch Auskunft über die Verzerrungsstreuung in einem weiter ausgedehnten κ -Bereich. Die gemessene Intensitätsverteilung zeigt zunächst ein breites Tal, das sich quer durch das

Bild zieht und durch den Schnitt durch die Laue-Streuung (punktierte Kurve) markiert wird. Es folgen die steilen Anstiege zu den Reflexen (111) und (002). Hier soll noch kurz auf den Sattelpunkt (≈ 32 Einheiten) zwischen den Reflexen hingewiesen werden, auf den später zurückgekommen wird.

2.3 Die (110)- Umgebung

Die Umgebung des Schumacher-Peaks bei (110) ist mit einem eigenen Meßprogramm besonders untersucht worden. Das Ergebnis der Auswertung (ohne Spline-Glättung) ist in Abb. 37 als Höhenlinienbild der diffusen elastischen Streuung dargestellt (gleiche Einheiten wie in Abb. 36). Der Peak ist also noch wesentlich höher und schmaler als es in Abb. 36 zum Ausdruck kommt. Seine Breite in radialer Richtung (parallel zu $\underline{k}$) ist etwas schmaler als in azimuthaler Richtung. Zur Orientierung ist das horizontale Auflösungselement (schraffiert) für den (110)-Punkt gezeigt (vgl. Abb. 26, S. 57). Die Berücksichtigung einer Divergenz des Primärstrahles von $\pm 1^\circ$ ergibt den äußeren Rand des gezeigten Auflösungselementes.

2.4 Die (111)- und (002)-Umgebung

Mit besserer Energieauflösung (Chopperschlitzbreite 10 nm) ist in gesonderten Meßprogrammen versucht worden, die diffuse elastische Streuung in der Umgebung der reziproken Gittervektoren zu bestimmen. Selbst bei einer Summation nur über die halbe Breite der elastischen Linie (vgl. Abb. 27 b S. 59), werden noch unelastische (vgl. Abb. 2, S. 6) und Bragg-Beiträge miteingefasst. Leider war es nicht möglich, routinemäßig durch Anpassung von Gaußkurven an die einzelnen Streubeiträge in einem Fitprogramm den elastischen Anteil zu separieren, wie es zum Beispiel für die wenigen Flugzeitspektren an der polykristallinen $\text{Al Mn}_{0.003}$ Probe erfolgreich praktiziert wurde (Bauer und Seitz 1972)

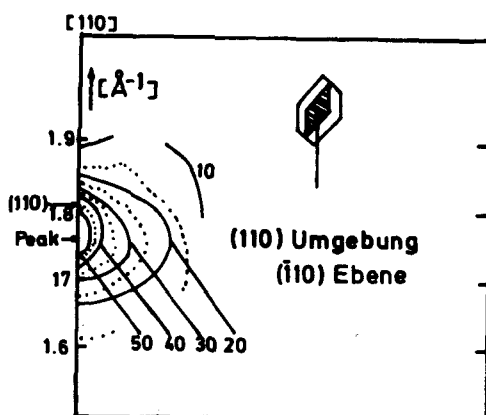


Abb. 37: Höhenliniendiagramm der diffusen elastischen Streuung an Pb 4% Bi in der Umgebung von (110) Intensitäten in Einheiten von $\text{mbarn/sterad-Defekt-Atom}$. Die punktierten Linien geben Intensitäten von 15, 25, 35 und 45 Einheiten wieder.

3.) Pb-2% Bi

3.1 Temperaturprogramm

Wie bei der Pb-4% Bi-Probe sind auch bei der $\text{Pb}_{0.979}\text{Bi}_{0.021}$ (kurz Pb-2% Bi-) Probe während des Abkühlens laufend Flugzeitspektren aufgenommen worden. Es zeigte sich ebenfalls keine Temperaturabhängigkeit z.B. bzgl. der Differenz der Intensitäten in Zählrohr-Nr. 18 und 16 unterhalb etwa 100 K. Die Intensitäten (immer rechte Hälfte der elastischen Linie) steigen in allen Zählrohren bei höheren Temperaturen etwas an. Ein deutlicher Intensitätsunterschied zwischen Zählrohr-Nr. 18 und 16 ist aber noch bei etwa 250 K zu beobachten (höchste Meßtemperatur). Der leichte Anstieg der Intensitäten könnte durch die Ausläufer der unelastischen Streuung bedingt sein.

3.2 Messung in der (001)-Ebene

Nach dem gleichen Verfahren wie in V 2.2 beschrieben wurde die diffuse elastische Streuung an dem Pb-2% Bi Kristall in der (001)-Ebene gemessen. Um das Netz der Meßpunkte etwas (dichter und) gleichmäßiger über den gesamten Meßbereich zu legen, wurden mit jedem Detektor zwei Positionen angefahren^x.

Eine Darstellung der Meßpunkte - nun in einen Oktanten der (001)-Ebene reduziert - ist in Abb. 38 gezeigt. Zur Orientierung sind wieder die Höhenlinien der Dreibein-Modellrechnung mit eingezeichnet.

^x Der Platz, den die He-Kanne innerhalb des Spektrometers zwischen Zählrohrblock I und Chopper (vgl. Abb. 23 S. 54) beanspruchte, ließ für die linke Seite des Spektrometers nur Streuwinkel bis zu etwa $2\vartheta = 75^\circ$ ($\kappa = 1.77 \text{ \AA}^{-1}$) zu. Mit dem Umbau der Abschirmung bei D 7 (s. Fußnote S. 61) ist es nun auch möglich, eine He-Kanne auf die geschlossene Abschirmung zu stellen.

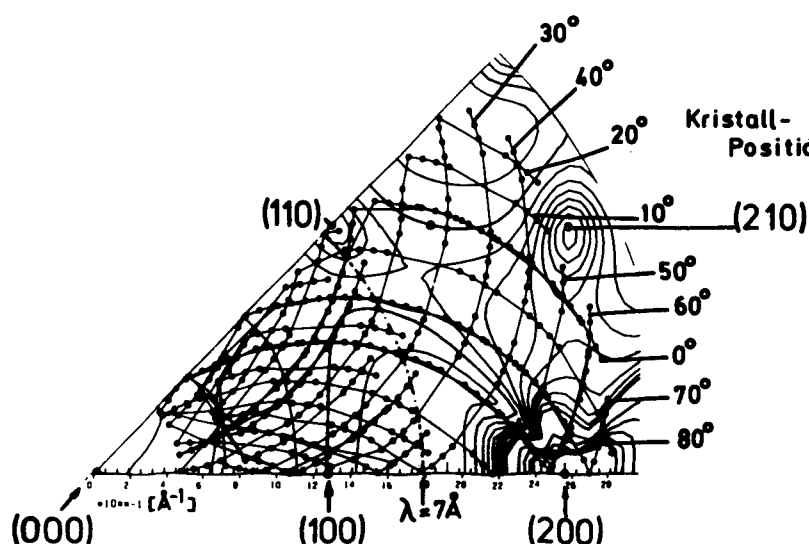


Abb. 38:

Lage der Stützpunkte
in der (001)-Ebene und
Höhenliniendiagramm nach
dem Dreibein-Modell.

Die Messungen erfolgten bei Temperaturen zwischen 40 und 20 K. Der Einfluß der unelastischen Streuung aufgrund von Phononabsorption (vgl. Abb. 30, S. 68 und Abb. 42, S. 84) wird vernachlässigbar, wenn nur über die halbe Breite der elastischen Linie integriert wird. Zieht man von der Intensität der elastischen Streuung an der Pb-2 % Bi-Probe diejenige der Pb-Probe ab, so geht die verbleibende diffuse elastische Streuung im Unterschied zur Pb-4 % Bi-Probe bei keinem Streuvektor auf Null herunter. Deshalb ist bei der folgenden Auswertung angenommen worden, daß die Pb-2 % Bi-Probe etwa 15 ppm Wasserstoff enthält und damit eine gesamte inkohärente Streuung von (4.2 ± 0.5) mbarn aufweist statt etwa 3.5 wie die Pb-4 % Bi- und die Pb-Proben. Das steht allerdings im Widerspruch zu den (unsicheren) Gasanalyse-Daten (vgl. Tabelle 4, S. 51).

Trägt man die diffuse elastische Streuung für konstantes κ über dem Winkel φ zwischen der $[110]$ - und der $[100]$ -Richtung auf, dann erhält man für eine Auswahl von κ -Werten die Intensitätsverteilung der Abb. 39. Verfolgt man die Intensitätsverteilung entsprechend der $[110]$ -Richtung, so beobachtet man vor dem Peak bei $\kappa = 1.77 \text{ \AA}^{-1} \lesssim \tau_{220}$ einen unerwarteten Peak bei $\kappa = 1.385 \text{ \AA}^{-1}$ von etwa gleicher Höhe und gleicher radialer Breite. Im Unterschied zum (110)-Peak, der auch azimuthal sehr schmal ist, zeigt der neue Peak eine breite Struktur als Funktion von φ . Deshalb wird

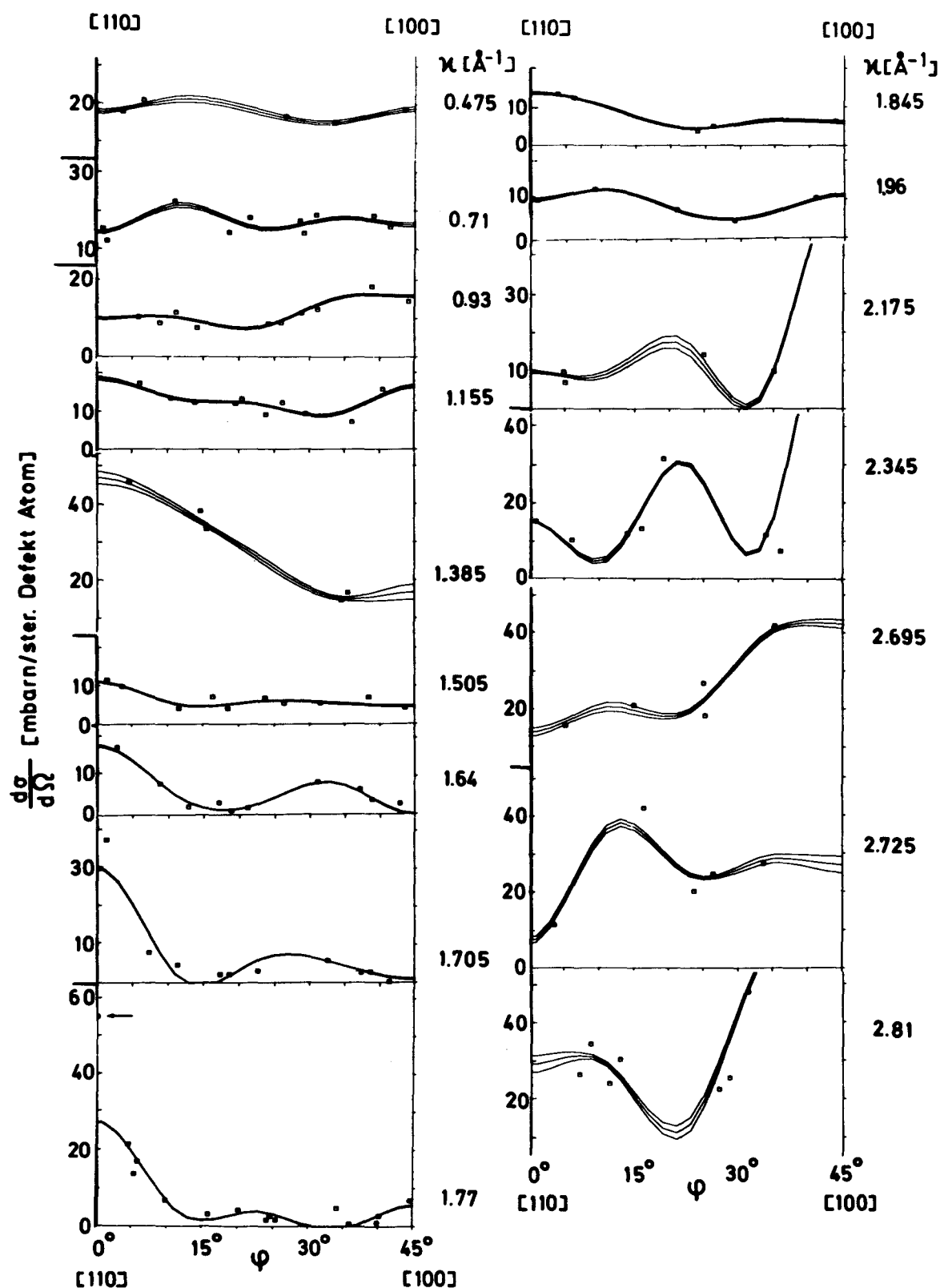


Abb.: 39 Elastisch diffuse Streuung an Pb 2% Bi für verschiedene Werte von κ in Abhängigkeit vom Winkel φ zwischen $[110]$ und $[100]$ Achse (vgl. Abb. 38). Die eingezeichneten Kurven sind Interpolationen mit kubischen Splines.

dieser Peak bei der (1.) Spline-Interpolation (bzgl. φ) mit 9 Knoten voll erfaßt, der (110)-Peak dagegen nicht. Der (110)-Punkt wird später noch einmal separat diskutiert. Das Ergebnis der (2.) Spline-Interpolation (bzgl. κ) ist in Abb. 40 wiedergegeben, zusammen mit der Messung von Schumacher. Die Intensitäten der diffusen elastischen Streuung sind wie bei den früheren Höhenliniendiagrammen in Einheiten von mbarn/ster. Defekt-Atom angegeben.

Nimmt man zunächst die Umgebung des (110)-Peaks und des neuen Peaks von der Betrachtung aus, dann zeigt der Vergleich der beiden Höhenliniendiagramme im gemeinsamen Meßbereich sowohl die Absolutintensität als auch, was den Verlauf angeht, gute Übereinstimmung.

Untersucht man nun die Umgebung des Peaks, so fällt die unterschiedliche Struktur der beiden Peaks, wie sie schon anhand von Abb. 39 beschrieben wurde, durch die Darstellung der Intensitäten in einem Höhenliniendiagramm besonders deutlich auf. Um

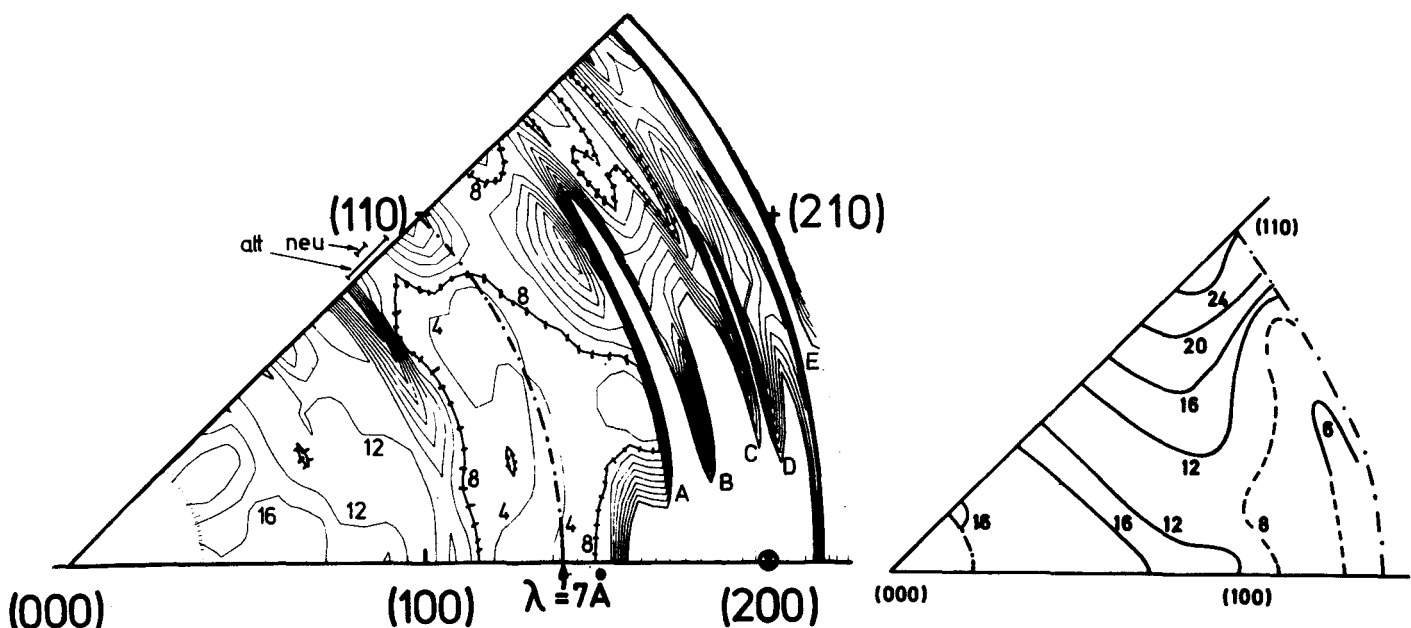


Abb. 40: Höhenlinienbild der experimentellen diffusen elastischen Streuung an Pb 2 %Bi nach zweimaliger Glättung durch kubische Splines.

a) zeigt noch einmal das Ergebnis der Messung von Schumacher (Abb. 15b).

die Ergebnisse der beiden Messungen auch in der Nähe der Peaks vergleichen zu können, müßte man den mit der besseren Auflösung gemessenen Intensitätsverlauf mit der schlechteren Auflösung des früheren Experimentes falten. Als Beispiel ist die Auflösung $\Delta\kappa$ für $\kappa \parallel [110]$ für beide Experimente an einem Punkt zwischen den Peaks angegeben. Eine Faltung mit solcher Auflösung ergibt in etwa den von Schumacher angegebenen Verlauf der Höhenlinien. Die Tatsache, daß die Peaks in beiden Experimenten ($\lambda = 7 \text{ \AA}$ und $\lambda = 4.3 \text{ \AA}$) etwa beim gleichen Streuvektor beobachtet werden, deutet auf einen Einfach-Streuprozess im Pb 2% Bi-Kristall hin.

Die Richtung $[110]$ und die Umgebungen von (200) und (210) werden noch einmal besonders untersucht.

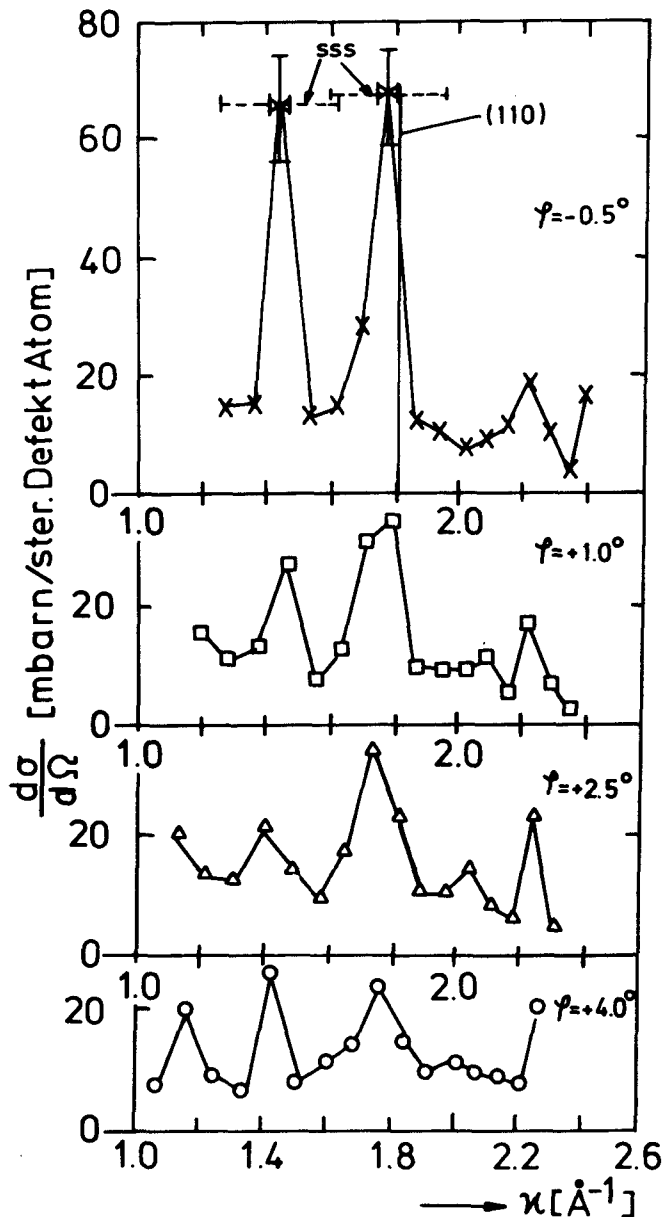


Abb.: 41

Elastisch diffuse Streuung an Pb-2% Bi ϑ -Z ϑ -Trieb für κ in Richtung $[110]$, γ gibt die Abweichung von der $[110]$ -Richtung an.

3.3 Die (110)-Umgebung

Die Umgebung des Schumacher-Peaks bei (110) ist wieder mit einem eigenen Meßprogramm im Detail untersucht worden. Dazu gehören Messungen, bei denen auf der linken Seite des Spektrometers Zählrohre bei geeigneten Streuwinkeln positioniert und die Probe in Schritten von 2° gedreht wurde. Die Ergebnisse stimmen mit den in Abb. 39 gezeigten überein. Gleichzeitig wurde auf der rechten Seite des Spektrometers die Kolonnen III und IV in Schritten von $\Delta 2\vartheta = 4^\circ$ gedreht (ϑ - 2ϑ Trieb). Auf diese Weise konnten die Peaks bei (110) und (210) auch in radialer Richtung ausgemessen werden. Das Ergebnis der Messung in $[110]$ -Richtung ist in Abb. 41 wiedergegeben. Die Richtungen der Streuvektoren bezogen auf die $[110]$ -Richtung sind $\varphi = -0,5^\circ, 1,0^\circ, 2,5^\circ$ und $4,0^\circ$. Die Streukurven bestätigen erstens den - wie beim Pb-4% Bi-Kristall verschobenen - Schumacher-Peak, zweitens den schon im Abschnitt 3.2) beschriebenen Extra-Peak bei etwa $K = 1,4 \text{ \AA}$, der bei der Pb-4% Bi-Probe nicht beobachtet wurde. Mit den gestrichelt gezeichneten Fehlerbalken für ΔK in den Spitzen der beiden Peaks wird noch einmal Bezug genommen auf die Auflösung beim früheren Experiment.

3.4 Die (200)-Umgebung

Wiederum mit der besseren Energieauflösung wurde die Umgebung des (200)-Reflexes untersucht. Bei der Auswertung zeigten sich die gleichen Schwierigkeiten, wie sie im Abschnitt 2.4 geschildert wurden. Zusätzlich treten hier metallurgische Schwierigkeiten auf. Denn anscheinend werden (wie beim Pb-Kristall) auch beim Pb-2% Bi-Kristall Debye-Scherrer-artige Linien beobachtet. Jedenfalls zeigen sich lange schmale Intensitätsrück-
 ken bei $K = \tau_{111} = 2,22 \text{ \AA}^{-1}$ und bei $K = \tau_{200} = 2,50 \text{ \AA}^{-1}$. Sie zeigen sich in Abb. 40 (S. 81) als lange schmale weiße Streifen und sind dort mit A und C bezeichnet. Diese polykristallinen Bereiche müssen sich aber im Innern der Probe befinden, jedenfalls konnte durch Makro-Ätzen (wie bei dem Pb-Vergleichskristall) nichts Außergewöhnliches festgestellt werden.

Die Intensitätsrücken bei B und D sind dagegen wieder der diffusen Verzerrungsstreuung zuzuschreiben.

3.5 Die (210)-Umgebung

Aufgrund des Meßbereiches mit $\kappa_{\max} = 2.82 \text{ \AA}^{-1}$ sollte es möglich sein, wenigstens den Anstieg zu dem von allen Modellen, (die auch den (110)-Peak ergeben) vorausgesagten (210)-Peak ($\kappa = 2.86 \text{ \AA}^{-1}$) zu sehen (vgl. z.B. Abb. 38). Mangels Stützpunkten (und wegen der zu starken Strukturen) wird dieser Bereich (E) in Abb. 40 nicht aufgelöst. Zur Untersuchung der (210)-Umgebung wurde deshalb einerseits wie im Abschnitt 3.3 beschrieben radial in Richtung $[210]$ gemessen ($T = 12 \text{ K}$). In einem früheren Meßprogramm wurde andererseits tangential vor (210) gemessen, d.h. größtmögliche feste Streuwinkel und Drehen der Probe in Schritten von 1° . Aus dieser zuletzt beschriebenen Serie von Messungen sind in Abb. 42 wieder sämtliche 32 Flugzeitspektren gezeigt. Die Streuvektoren lie-

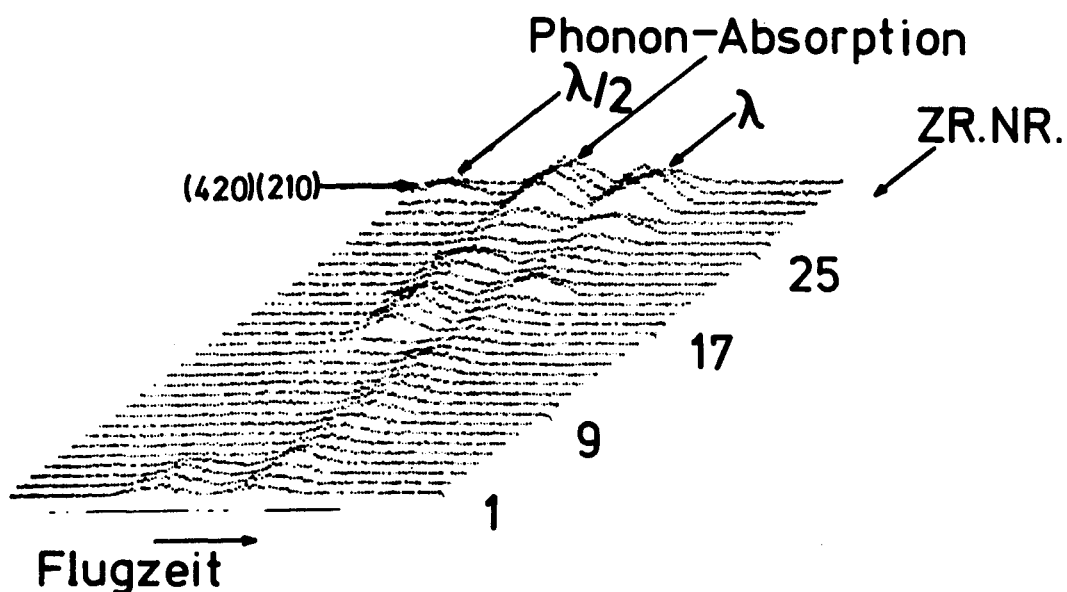


Abb.: 42 Flugzeitspektren für Pb-2% Bi $T = 18 \text{ K}$, zur Untersuchung des (210)-Punktes

gen auf einem Ewald-Kreis mit $\psi = 13^\circ$ (vgl. Abb. 38). Man erkennt deutlich Anstieg und Abfall (!) der elastischen Streuung (mit λ) in den Zählrohren 29-32. Das Ergebnis der Auswertung dieser Messungen ist in Abb. 43 in Form eines Höhenliniendiagramms dargestellt.

Das Streubild zeigt tatsächlich einen sehr hohen Peak (75 ± 8) mbarn /ster. Defekt Atom. Er ist etwas verschoben und in $[210]$ -Richtung schmaler als in einer Richtung senkrecht zu $\underline{k}$. Zur Orientierung ist wieder das horizontale Auflösungselement für einen Punkt in der Nähe von (210) eingezeichnet.

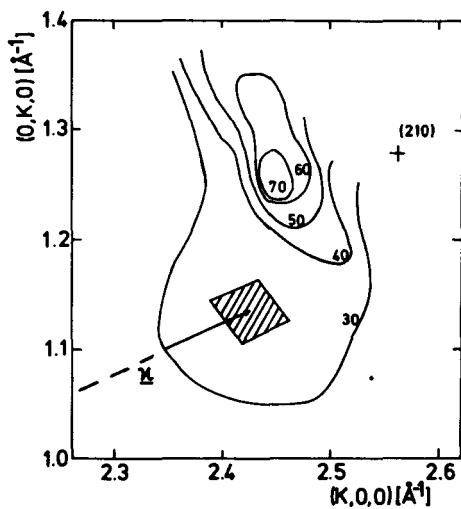


Abb. 43:

Elastisch diffuse Streuung an Pb-2% Bi in der Umgebung von (210) in der (001)-Ebene.

VI DISKUSSION DER ERGEBNISSE

1. Vergleich mit dem Experiment von Schumacher (1969)

Ein solcher Vergleich in dem gemeinsamen Meßbereich $K \leq 1.76 \text{ \AA}^{-1}$ ist schon in den Abschnitten V_2 und V_3 durchgeführt worden. Hier sollen noch einmal die wesentlichen Punkte zusammengestellt werden. Dazu sei auch auf die Abb. 36, S.76 und Abb. 40, S.81 zurückverwiesen.

Berücksichtigt man die schlechtere Auflösung der früheren Messungen, dann stimmen die Ergebnisse, sowohl was den Absolutwert als auch den Verlauf der diffusen elastischen Streuung angeht, in der $(\bar{1}10)$ - und (001) - Ebene im wesentlichen überein. Das bezieht sich insbesondere auf die Wirkungsquerschnitte bei kleinen K , die Umgebung von $(1/2 \ 1/2 \ 1/2)$ (bei Pb-4% Bi), den Intensitätsabfall für $K \parallel [110]$ bei etwa $0,7 \text{ \AA}^{-1}$ ^x und den auffallenden Intensitätsanstieg in der Nähe von (110) . Bemerkenswert bei dieser Übereinstimmung ist einerseits die unterschiedliche Wellenlänge (früher $\lambda = 7 \text{ \AA}$ jetzt $\lambda = 4,3 \text{ \AA}$) und andererseits, daß beim früheren Experiment ohne Energieauflösung gemessen wurde. Das spricht dafür, daß danach insbesondere bzgl. der Behandlung des Untergrundes genügend Vorsicht gewaltet hat.

2. Neue Meßergebnisse

Die Ergebnisse der Messungen mit den beiden Pb-Bi Einkristallen können aufgrund ihrer unterschiedlichen Orientierungen nur in den beiden Symmetrierichtungen $[100]$ und $[110]$ miteinander verglichen werden. In $[100]$ -Richtung zeigen sie den gleichen Verlauf, ein Minimum im Wirkungsquerschnitt bei $K = 1,7 \text{ \AA}^{-1}$ danach ein rasches Anwachsen der diffusen Streuung vor dem (200) - Reflex. In $[110]$ -Richtung ergeben die Messungen an beiden Kristallen einen etwa gleich hohen und gleich schmalen Peak bei

^x Dieser Punkt tritt in Abb. 45, S. 91 etwas deutlicher hervor als in dem Höhenliniendiagramm.

$\kappa = (1.75 \pm 0.02) \text{ \AA}^{-1}$, d.h. er ist bzgl. $\frac{1}{2}\tau_{220} = 1.81 \text{ \AA}^{-1}$ außerhalb der Fehler leicht verschoben. (vgl. Abb. 41, S. 82 mit Abb. 45). Beim Pb-2% Bi Kristall zeichnet sich aber deutlich ein zweiter Peak bei $\kappa = 1.4 \text{ \AA}^{-1}$ ab, der früher nicht ernst genommen wurde. Beim Pb-4% Bi Kristall ist keine Andeutung von solch einem Peak zu sehen.

Man kann nun zwei Möglichkeiten diskutieren.

- 1.) Pb zeigt in einer Legierung mit 2at % Bi eine andere Fehlorderungsstruktur als mit 4at % Bi.
- 2.) Der Pb-2% Bi Kristall enthält einen Mikrokristallit fremder Struktur.

Um die Größe eines solchen Kristallits abzuschätzen, errechnet man die gesamte Streuung in diesen Extra-Peak (vgl. Abb. 36, S. 76 zur Bestimmung der horizontalen Ausdehnung des Peaks), d.h.

$\frac{1}{c} \frac{d\sigma}{d\Omega} \cdot c \cdot \Delta \kappa_x \cdot \Delta \kappa_y \cdot \Delta \kappa_z \approx 0.01 \text{ mbarn / (sterad} \cdot \text{\AA}^3)$. Der Vergleich mit der integralen Reflektivität eines Pb Kristalls $b_{\text{Pb}}^2 \cdot V_{\text{Bz}} = 7413 \text{ mbarn / (sterad} \cdot \text{\AA}^3)$ ($V_{\text{Bz}} = 1$. Brillouinzone von Pb) bezogen auf das durchstrahlte Volumen der Pb-Proben $V = 3 \cdot 5 \cdot 4.6 = 69 \text{ cm}^3$ ergibt für den Kristallit ein Volumen von etwa 0.1 mm^3 . Das zeigt einerseits noch einmal die Empfindlichkeit der hier verwendeten Untersuchungsmethode. Andererseits sei auch an den Ärger mit den Debey-Scherrer Linien (beim Pb-2% Bi und Pb Kristall) erinnert. Beim Pb Kristall kann das Volumen mit polykristalliner Struktur aufgrund der Streifen auf der Oberfläche zu $V \approx 5 \text{ cm}^3$ abgeschätzt werden. Nach diesen Abschätzungen kann die 2. Möglichkeit (Mikrokristallit) nicht ausgeschlossen werden.

Gegen die 1. Möglichkeit (verschiedene Fehlorderungsstrukturen) für Pb-2% Bi und Pb-4% Bi) sprechen die kleinen Konzentrationen im Vergleich zum relativ

^x Das Auflösungselement $\Delta \kappa_z$ ergibt sich aus der Länge der Detektoren (10 cm) und dem Abstand zur Probe (130 cm) bezogen auf $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda} = 1.45 \text{ \AA}^{-1}$ zu $\Delta \kappa_z \approx 0.11 \text{ \AA}^{-1}$

großen Homogenitätsbereich der fcc - α - Phase (≤ 18 at% Bi vgl. Abb. 1, S. 2). Außerdem ist der gemessene Wirkungsquerschnitt der elastisch diffusen Streuung von dem Extra-Peak abgesehen linear von der Konzentration abhängig, was bei kleinen Werten von aufgrund der mit Röntgenbeugung gemessenen linearen Änderung des Gitterparameters mit der Konzentration auch zu erwarten war. Deshalb beschränkt sich die Diskussion der Meßergebnisse, die mit dem Pb-2% Bi Kristall zusätzlich zu denen mit dem Pb-4% Bi gewonnen wurden, im folgenden auf den (210) Peak.

3. Diskussion im Rahmen der Einzeldefekt-Näherung

Geht man von der Annahme einer statistischen Verteilung der Defekte bzgl. Platz (substitutionell) und Verzerrungskonfiguration aus, dann ist das naheliegendste Verzerrungsmodell eines, bei dem die kubische Punktsymmetrie des Defektplatzes erhalten bleibt. Deshalb sei zum Vergleich mit dem Experiment (Pb-4% Bi) (Abb. 44 a) das Ergebnis der Modellrechnung für eine Verzerrung mit kubischer Symmetrie und Kanzaki-Kräften nur an nächsten Nachbarn noch einmal in Abb. 44 b wiedergegeben. Sieht man zunächst von der Umgebung des (110) Punktes ab, so zeigen sich auffallende Ähnlichkeiten in beiden Streubildern: 1. der flache Abfall der Streuintensität (vom Ursprung des reziproken Gitters herkommend) in allen Richtungen (der (110)Ebene). 2. das breite tiefe Tal quer durch das ganze Bild. 3. der steile Anstieg der Intensität vor den Reflexen (Huangstreuung) bzw. dem langgestreckten Intensitätsrücken auf der Verbindungslinie zwischen (111) und (002). 4. der etwas flachere Abfall hinter diesem Intensitätsrücken. Kleinere Abweichungen entlang [111] und [110] bei $k \approx 0.7 \text{ \AA}^{-1}$ sind von früher her schon bekannt (vgl. auch Abb. 45) und deuten auf eine langreichweitige Kopplung zwischen den Bi- und den Pb-Atomen hin. Hinzu kommen die merklichen Unterschiede im Streumuster in der weiteren Umgebung von (002).

Die Tatsache, daß darüberhinaus bei (110) und (210) zwei zusätzliche Peaks gemessen werden (vgl. Abb. 37, S. 77 und Abb. 43, S. 85), stellt entweder die (Inversions-) Symmetrie des Verzer-

rungsfeldes oder die statistische Verteilung der Defekte wieder in Frage.

Bei Nahordnung folgt aus $\tilde{c}(\underline{q}) = \tilde{c}(\underline{q} + \underline{\tau})$ (vgl. 2.2.14) die Äquivalenz des (001) und (110) Punktes. Da aber bei (001) kein Peak gemessen wird, muß Nahordnung ausgeschlossen werden. Die Ausbildung einer Pb-Bi Mischphase mit hexagonaler Struktur wird erst bei Konzentrationen größer 15 at.% Bi beobachtet (mit einem kleinsten reziproken Gittervektor, der größer ist als $\tau_{220}/2$). Es gibt keine weiteren Anzeichen für eine andere Struktur oder Ordnung bzgl. der Plätze. Es ist unwahrscheinlich, daß eine fremde Struktur in den beiden völlig verschiedenen Kristallen bei (110) zu gleich großen Peaks führt. Deshalb wird im folgenden wieder angenommen, daß die Defekte statistisch auf den Pb-Gitterplätzen verteilt sind, und die Peaks bei (110) und (210) durch eine nicht inversionssymmetrische Verzerrung hervorgerufen werden. In dem Kapitel III sind vier derartige Modelle diskutiert worden. Allen gemeinsam ist ein Peak (genau) bei (110) und (genau) bei (210), schon hier sei darauf hingewiesen, daß keines der Modelle die gemessene Peaklage richtig beschreibt. In den drei Symmetrierichtungen unterscheiden sie sich nur innerhalb der experimentellen Fehler, deshalb wird hier stellvertretend für die anderen Modelle nur das Dreibein-Modell (s. Abb. 9, S. 29) diskutiert. Der freie Parameter für die drei koplanaren Zusatzkräfte f_1^i (zu den Kräften an allen 12 nächsten Nachbarn, Parameter f_1) wird wieder durch Anpassung an den experimentellen Wirkungsquerschnitt bei (110) bestimmt (3.1.13)^x. Unter Berücksichtigung von $Sp\underline{p} = \text{konst.}$ (3.1.14) ergibt sich der Parametersatz $f_1 = 7.6 \cdot 10^{-6}$ dyn und $f_1^i = -9.1 \cdot 10^{-6}$ dyn. Das Ergebnis dieser Modellrechnung ist in Abb. 45 (gestrichelte Kurve) zusammen mit den experimentellen Wirkungsquerschnitten dargestellt, die mit dem Pb-4 % Bi-Kristall gemessen wurden.

^x Das ergibt einen etwa 1.5 * höheren Wert für f_1^i und A-B, vgl. Tabelle 2, S. 42.

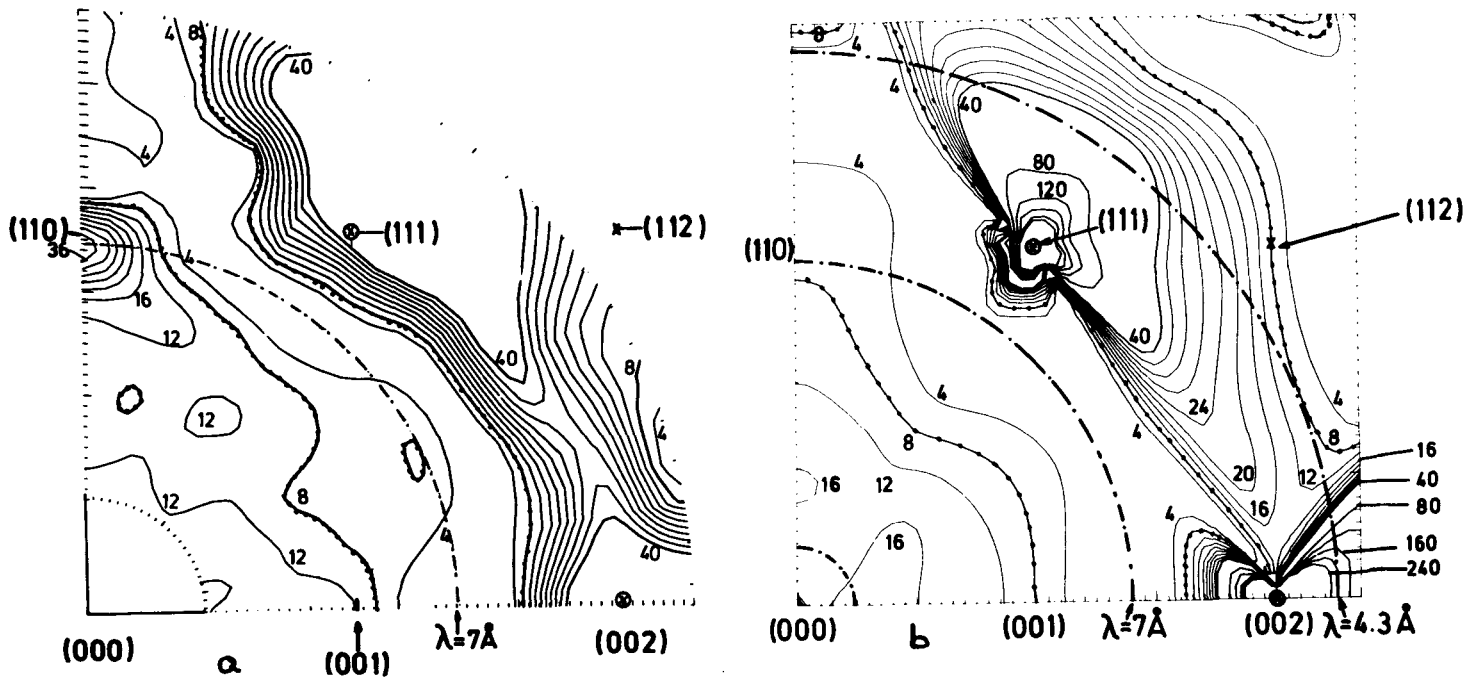


Abb.: 44 Höhenliniendiagramm der diffusen elastischen Streuung an Pb Bi in der $(\bar{1}10)$ Ebene. Wirkungsquerschnitte in Einheiten von $\text{mbarn/sterad} \cdot \text{Defekt Atom}$

- a Messung mit einem Pb-4% Bi Kristall (s. Abb. 36, S. 76)
 b Modellrechnung für eine Verzerrung mit kubischer Symmetrie (s. Abb. 15 a, S. 44)

Die gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie in $[100]$ -Richtung, die schon früher im gesamten Meßbereich $\kappa \leq 1.5 \text{ \AA}^{-1}$ bestand, (vgl. z.B. Abb. 6, S. 26 und Abb. 12, S. 35), gilt auch für das Minimum bei $\kappa = 1.75 \text{ \AA}^{-1}$ und dem steilen Anstieg vor dem (200) -Reflex. In $[111]$ -Richtung werden nach wie vor die Oszillationen bei $(111)/2$ nicht erfaßt. Dagegen wird das Minimum bei $\kappa \approx 1.7 \text{ \AA}^{-1}$ und der asymmetrische Abfall hinter dem (111) -Reflex qualitativ richtig wiedergegeben. In $[110]$ -Richtung gibt es zwei kritische Bereiche: 1. der schon mehrfach erwähnte Abfall bei $\kappa \approx 0.7 \text{ \AA}^{-1}$, der ähnlich wie die Oszillationen bei $(111)/2$ mit Kräften nur an nächsten Nachbarn nicht erfaßt wird. 2. die Umgebung des Peaks, wobei die Breite des gerechneten Peaks etwa 3 mal breiter als die gemessene ist. Das anschließende Minimum bei $\kappa \approx 2.5 \text{ \AA}^{-1}$ wird innerhalb der experimentellen Fehler wieder richtig wiedergegeben.

Für die Diskussion der Symmetrie des Verzerrungsfeldes muß folgendes festgestellt werden. Überall da, wo die Kurven das Experiment gut oder befriedigend wiedergeben, (z.B. die Minima und die

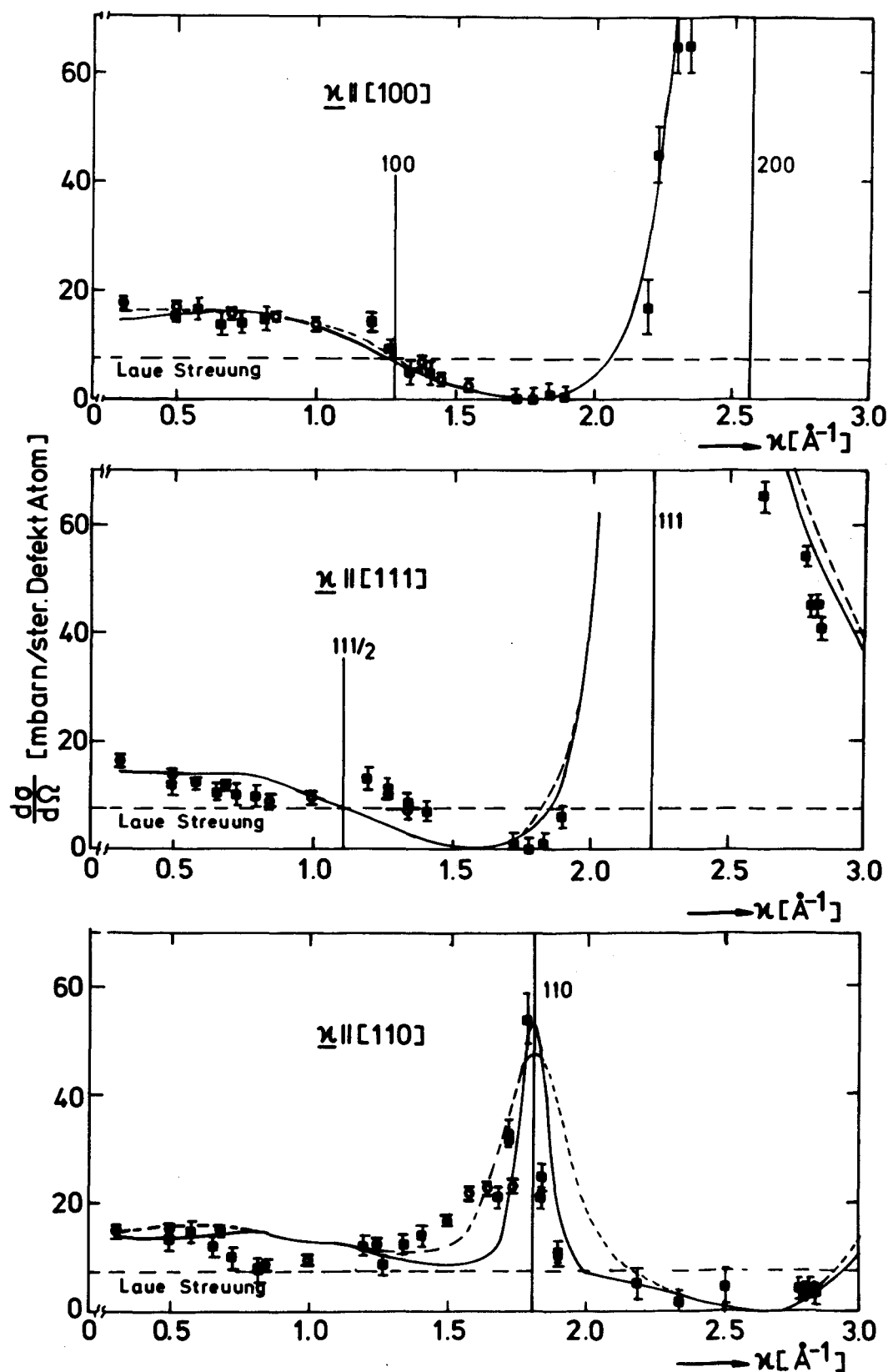


Abb. 45: Diffuse elastische Streuung an Pb 4 % Bi in den Symmetrierichtungen [100], [111] und [110] $\square$ Schumacher, $\blacksquare$ dieses Experiment.
 Nach dem Dreibein-Modell berechnete Kurven
 a) in Einzeldefektnäherung (gestrichelte Linie)
 b) mit Orientierungs-Korrelation (durchgezogene Linie).

Flanken bei den Reflexen), unterscheiden sich die Modelle ohne Inversionssymmetrie nur innerhalb der experimentellen Fehler von dem Modell mit kubischer Symmetrie. Gemeinsam zeigen die Modelle ohne Inversionssymmetrie einen zu breiten (110)-Peak, bedingt durch die Breite von $(1/w_L(q)_{110})^4$ ^x. Das gleiche gilt für den (210)-Peak, dessen Breite im wesentlichen durch die Breite von $1/w_T^4(q)_{100}$ gegeben ist. Versucht man dennoch, eine Entscheidung zwischen den 4 Modellen zu treffen, so ist man auf den Vergleich der Höhenliniendiagramme angewiesen. Es soll an dieser Stelle noch einmal auf die Unsicherheiten bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte in Nicht-Symmetrierichtungen hingewiesen werden (vgl. III.2). Denn ausgerechnet zwischen dem (111)- und dem (002)- Reflex, wo sich zwei Gruppen von Modellen z.B. mit dem B.-v.K.-Fit von Ng und Brockhouse (1967) charakteristisch voneinander unterscheiden, zeigt die Rechnung mit dem B.-v.K.-Fit von Cowley (1974) einen Peak (unabhängig von der Symmetrie des Verzerrungsfeldes)(vgl. die Abb. A1-5 im Anhang).

Bevor man das Höhenliniendiagramm des Experimentes in der Umgebung der Reflexe zur Entscheidung heranzieht, ist daran zu erinnern, daß dort nur ein qualitativer Vergleich möglich ist. Der experimentell beobachtete Sattelpunkt zwischen (111) und (002) (Abb. 44 a) findet sich auch bei dem Dreibein-Modell (Abb. 17 a, S. 46) und dem 111-Off-Center-Modell (Abb. 19 a, S. 48), nicht dagegen bei dem HCP-FCC-Modell (Abb. 20 a, S. 49) und dem 100-Off-Center-Modell (Abb. 21a, S. 49). Bzgl. des absoluten Wertes des Sattelpunktes ist auf die Abhängigkeit von den Parametern der Kanzaki-Kräfte hinzuweisen. Bei einer Wahl von $f_1 = -f'_1 = + 7.5 \cdot 10^{-6}$ dyn ist die Fläche unter dem (110)- Peak etwa die gleiche wie die unter dem gemessenen Peak. Das hat beim 111-Off-Center-Modell zur Folge, daß der Wert des Sattelpunktes auf etwa 30 Einheiten ansteigt, die seitliche Einschnürung links oberhalb des (002)- Reflexes aber bestehen bleibt.

^x Es sei hier auf die ausführliche Diskussion über den Zusammenhang zwischen statischer und dynamischer Verschiebung auf S.35 hingewiesen.

Beim Dreibein-Modell steigt der Wert des Sattelpunktes auf 36 Einheiten an, und die nicht so ausgeprägte Einschnürung wird weiter abgeschwächt. Man vergleiche dazu z.B. den Verlauf des Schnittes durch die Laue-Streuung - die punktierte Intensitätslinie.

Unter den genannten Vorbehalten kann man aus den gemessenen Höhenlinien bzgl. Sattelpunkt und Einschnürung eine nähere Verwandtschaft mit dem Dreibein-Modell folgern.

4. Orientierungskorrelation

Eine einfache Abschätzung des Bereiches im Realraum, der zur Streuung in den schmalen Peak bei (110) beiträgt - gemessene Halbwertsbreite $\Delta\kappa = 0.12 \text{ \AA}^{-1}$, ergibt einen Durchmesser von mindestens $50 \text{ \AA}$. Eine Kugel mit dem gleichen Durchmesser enthält bei der Pb-4% Bi-Probe bei homogener Verteilung etwa 80 Bi Atome. Geht man von der Annahme aus, daß die Bi Atome in einem solchen Kluster auf den Pb-Plätzen statistisch verteilt sind, dann könnte nur noch - wie von W. Schmatz vorgeschlagen - eine geeignete Korrelation zwischen den Orientierungen der einzelnen Defekte zu einer konstruktiven Überlagerung der entsprechenden Streuamplituden führen.

Eine Formel für den differentiellen Wirkungsquerschnitt der diffusen elastischen Streuung pro Defekt-Atom, die solche Korrelationen berücksichtigt, ist in Gleichung (2.214) gegeben. Im Rahmen der Gitterstatik lautet sie für das System Pb-Bi

$$\frac{1}{c} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega}(\underline{\kappa}) = N \left| \sum_{j=1}^Z \tilde{c}^j(\underline{q}) [\epsilon_{\underline{a}} - \epsilon_{\text{Pb}} + i \epsilon_{\text{Pb}} \underline{\kappa} \cdot \underline{\Phi}^{-1}(\underline{q}) \cdot \underline{\tilde{F}}^j(\underline{q})] \right|^2$$

Der Unterschied zur Einzeldefektnäherung (vg. (3.1.1)) ist formal einfach die Faltung des Verschiebungsfeldes mit den Konzentrationsfluktuationen (hier auf die Orientierungen der Defekte eingeschränkt).

Im folgenden wird beschrieben, wie man ausgehend von den 8 verschiedenen Konfigurationen des Dreibein-Modells zu der gewünschten konstruktiven Überlagerung der Verzerrungsbeiträge bei (110)

gelangen kann (vgl. Abb. 9, S. 29). Dreht man das Dreibein in seiner (111)-Ebene um 60° , so ändert die Fourier Transformierte $\tilde{F}^j(110)$ genau ihr Vorzeichen. Das muß durch einen entsprechenden Wechsel des Vorzeichens bei $\tilde{C}^j(110)$ kompensiert werden, sonst gibt es keine konstruktive Überlagerung. Geht man nun von einer (110)-Ebene (im Realraum) zur nächsten, so springt die Phase in $\tilde{C}^j(110)$ um π und bewirkt den erwünschten Vorzeichenwechsel.

Es wurde schon früher erwähnt, daß von den 8 möglichen Dreibein Konfigurationen nur 4 einen Peak bei (110) bewirken. Von den 6 nicht äquivalenten (110) Ebenen (im Realraum) sind es wiederum nur 2, die bei (110) zur Verschärfung des Peaks führen. Da alle Dreibeine gleich wahrscheinlich sind und keine (110)-Ebene (im Realraum) ausgezeichnet ist, muß über alle Möglichkeiten gemittelt werden, (wenn nicht Einschränkungen z.B. aufgrund von energetischen Betrachtungen zu berücksichtigen sind, s. 5 d).

Um die Rechenzeit zu verkürzen, ist der Wirkungsquerschnitt der diffusen elastischen Streuung für das soeben beschriebene Modell einer Orientierungs-Korrelation nur in den drei Symmetrierichtungen berechnet worden. Einige Ergebnisse solcher Rechnungen sind in der Tabelle 5 zusammengestellt. In allen Fällen ist das gleiche Kräftepaar f_1, f_1' zugrundegelegt, mit dem die gestrichelte Kurve in Abb. 45 berechnet wurde.

Anzahl der Schalen	Atome	Kugelradius	Maximum	Halbwertsbreite
		R	$\frac{\text{mbarn}}{\text{ster. Def. Atom}}$	R^{-1}
8	141	9,8	100	0,22
21	459	14,8	288	0,185
40	1061	19,7	590	0,15
72	2123	24,6	1150	0,125

Tabelle 5: Ergebnisse der Dreibein-Orientierungs-Korrelation

Man sieht deutlich, wie der Peak mit zunehmendem Kugelradius anwächst und schmaler wird. Zum Vergleich mit dem Experiment in Abb. 45 ist folgende Rechnung durchgeführt worden. Es wurde über $15 \cdot 8 \cdot 6$ Kugeln vom Radius $24.6 \text{ \AA}$ gemittelt. Bei einer so großen Anzahl von Kugeln bleiben die Schwankungen der berechneten Wirkungsquerschnitte (wahrscheinlich aufgrund von Oberflächeneffekten), die bei kleinen Werten von κ ($\kappa < 0.7 \text{ \AA}^{-1}$) auftraten, innerhalb der experimentellen Fehler. Der gewählte Kugelradius führt etwa zur gleichen Peakbreite wie das Experiment. Um wieder mit dem Maximum der gemessenen Peakhöhe übereinzustimmen (vgl. Tabelle 5), mußten die Dreibein-Zusatzkräfte f_1 drastisch reduziert werden. Das Kräftepaar für die durchgezogene Kurve in Abb. 45 lautet $f_1 = 5.7 \cdot 10^{-6} \text{ dyn}$, $f_1' = -1.8 \cdot 10^{-6} \text{ dyn}$.

Eine Verschärfung des Peaks bei (210) wird durch ein qualitativ gleiches Orientierungs-Korrelationsmodell erreicht. Die Rechnungen sind hier nicht durchgeführt worden.

5. Vorschläge für weitere Messungen und Rechnungen

Im vorhergehenden Abschnitt ist ein relativ ungewöhnliches Modell zur Beschreibung von scharfen Peaks in der diffusen elastischen Streuung vorgeschlagen worden. In diesem Abschnitt wird diskutiert, welche Möglichkeiten sich außer der Messung der diffusen elastischen Neutronenstreuung noch bieten, dieses Modell der Orientierungskorrelation zu überprüfen, bzw. zwischen den einzelnen Verzerrungsmodellen (s. III 1) zu unterscheiden.

- a) Die Änderung der elastischen Moduli $\delta E/E$ aufgrund von innerer Reibung z.B. bei uniaxialem Druck ist dem Quadrat des "shape"-Faktors A-B direkt proportional (vgl. Tabelle 2, S.42). Leider sind erste Messungen $\delta E/E$ [111] an Pb-Bi mit 1 und 5 at% Bi unterbrochen worden. Die vorläufige Auswertung zeigt einen starken Anstieg der Inneren Reibung bei tiefen Temperaturen. Das legt die Vermutung einer niedrigen Aktivierung für Relaxation, aufgrund der Anwesenheit der Bi-Atome in Pb, nahe.

Im Rahmen der hier diskutierten Verzerrungsmodelle würde man diese niedrige Aktivierungsenergie der Energie zur Umorientierung der Defektkonfigurationen zuschreiben. Mit Relaxationsmessungen dieser Art in z.B. $[111]$ - u. $[100]$ -Richtung könnte außer der Größe des shape-Faktors auch die Symmetrie des Defektplatzes z.B. trigonal oder tetragonal überprüft werden.

- b) Das elektrische Quadrupolmoment des Wismut Atoms (Spin $9/2$) wechselwirkt mit dem elektrischen Feldgradienten am Ort des Wismut Atoms. In kubischer Umgebung (Pb-Bi , α -Phase) verschwindet der elektrische Feldgradient, d.h. die Messung einer Quadrupolaufspaltung wäre eine Bestätigung der nicht-kubischen Symmetrie des Verzerrungsfeldes ^x.
- c) Durch die Strukturanalyse einer $\text{Pb}_{0.72} \text{Bi}_{0.28}$ Legierung mit Neutronenstreuung könnte man die Anordnung der Bi-Atome in der hcp-Phase (vgl. Abb. 2, S. 6) im Zusammenhang mit den Verzerrungsmodellen und Wechselwirkungsenergien (Pb-Pb , Pb-Bi und Bi-Bi) studieren.
- d) Berechnet man die elastische Wechselwirkungsenergie zwischen den Defekten aufgrund ihrer Verzerrungsfelder als Funktion des Abstandes und der Orientierung der Defekte, dann können für die einzelnen Verzerrungsmodelle energetisch günstige Konfigurationen (für einen Kluster) bestimmt werden.

^x Ein solches Experiment wird von Lütgemeier und Mitarbeitern (IFF-KFA) geplant.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. W. Schmatz, Direktor des Institutes für Neutronenstreuung III im Institut für Festkörperforschung der Kernforschungsanlage Jülich, für die Anregung zu dieser Arbeit und die zahlreichen stimulierenden und klärenden Diskussionen.

Das Institut Max von Laue - Paul Langevin in Grenoble hat dadurch, daß die Messungen mit dem Diffraktometer D 7 am Hochflußreaktor durchgeführt werden konnten, wesentlich zu dieser Arbeit beigetragen. Besonders herzlich möchte ich mich in diesem Zusammenhang bei Herrn Dr. W. Just für seine freundliche Aufnahme in Grenoble und seiner Mitarbeit bei den Messungen bedanken.

Für die Hilfe bei der Vorbereitung des Experimentes möchte ich Herrn A. Broch, für die Hilfe bei der Auswertung der Messungen Herrn F. Müller danken. Herrn K. Stange und Herrn Fisseler danke ich für die sorgfältige Ausführung der Abbildungen, Frau Klein und Fräulein L. Schübler für die gewissenhafte Bearbeitung des Manuskriptes.

Außerdem möchte ich herzlich Herrn G. Bauer danken für alle Diskussionen, aus denen ich insbesondere Anregungen für die Durchführung der Messungen entnommen habe. Für viele Diskussionen über theoretische Fragen möchte ich Herrn Prof. Dr. A. Baratoff, Herrn Dr. Eisenriegler und insbesondere Herrn Dr. H. Trinkaus danken. Wichtig für die Auswertung der gemessenen Daten und die Durchführung der Modellrechnungen war die Benutzung der IBM-Großrechanlage des Institutes für Angewandte Mathematik der KFA. Den Mitarbeitern dieses Institutes und der Gruppe Numerische Methoden und Datenverarbeitung des IFF möchte ich für zahlreiche Hilfestellungen danken.

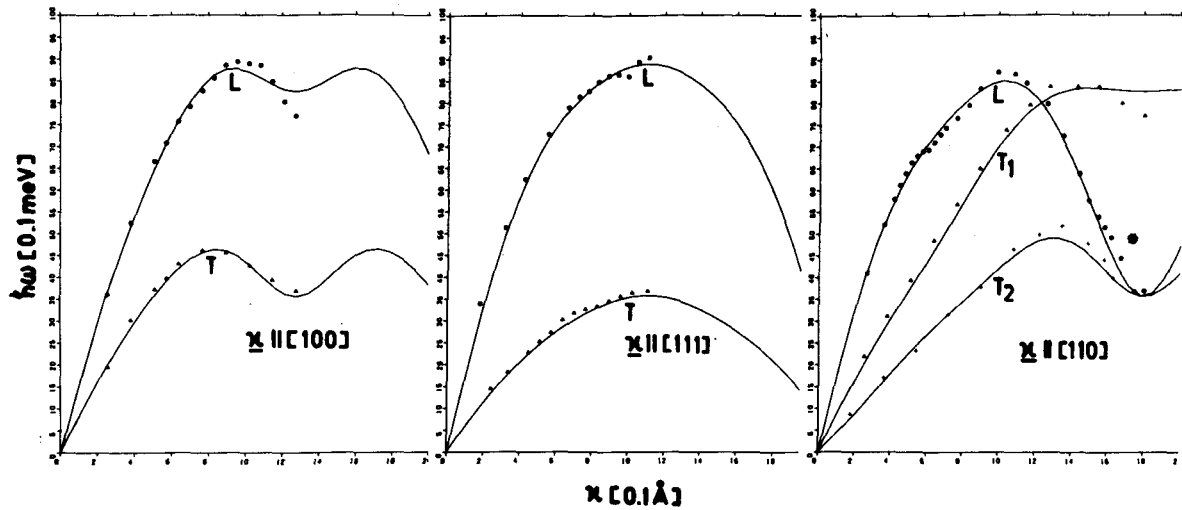


Abb. A1: c) Phonondispersionskurven von Blei bei $T = 100$ K gemessen von Brockhouse et al. 1962.
Born-von-Karman-Fit von Ng und Brockhouse 1967.

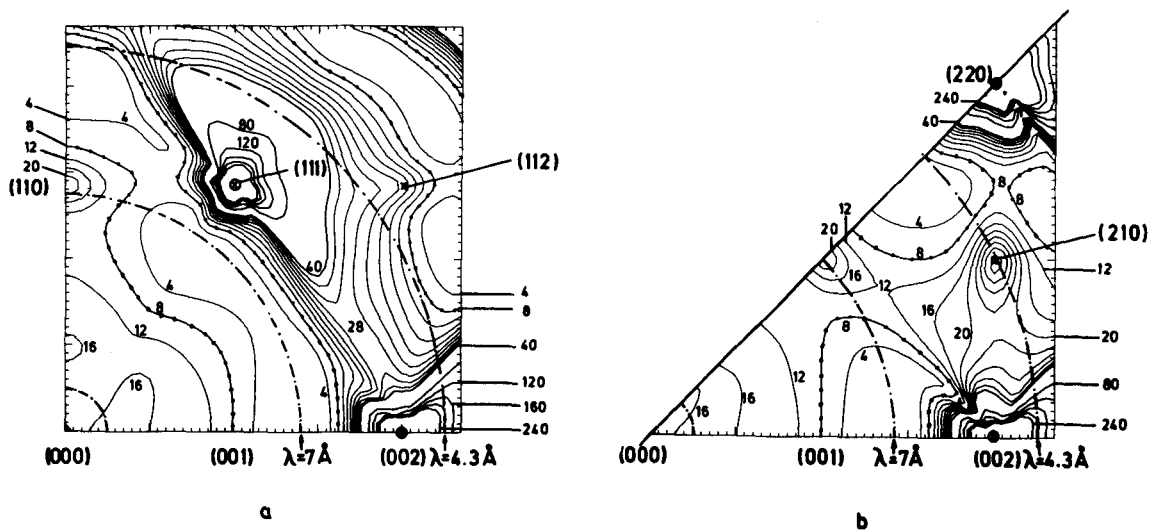


Abb. A1: Mit dem Born-von-Karman-Fit von Nb und Brockhouse 1967 gerechnete Höhenliniendiagramme der diffusen elastischen Streuung für das System Pb-Bi, Einheiten in mbarn/sterad Defekt-Atom, Dreibein-Modell a) (110)-Ebene, b) (001)-Ebene.

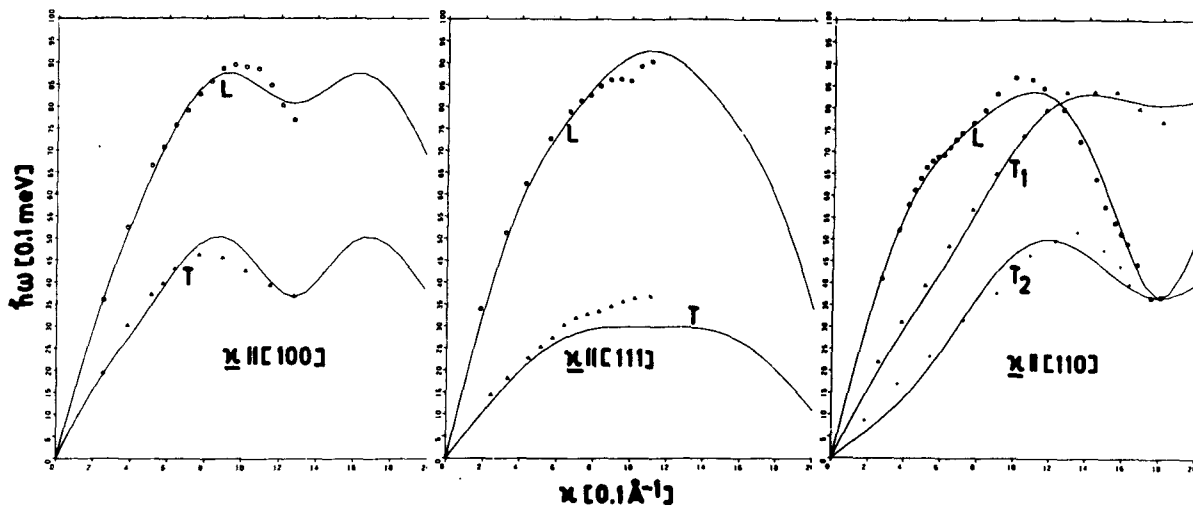


Abb. A2: c) Phonondispersionskurven von Blei bei $T = 100$ K gemessen von Brockhouse et al. 1962. Born-von-Karman-Fit von Gilat 1965.

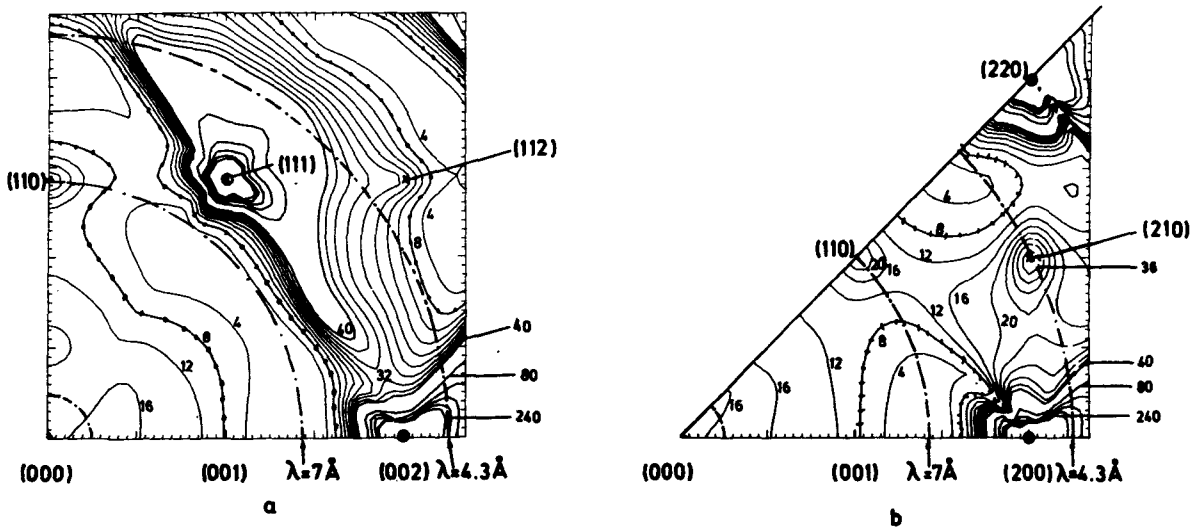


Abb. A2: Mit dem Born-von-Karman-Fit von Gilat 1965 gerechnete Höhenliniendiagramme der diffusen elastischen Streuung für das System Pb-Bi, Einheiten in mbarn/sterad Defekt-Atom, Dreibein-Modell a) $(\bar{1}10)$ -Ebene, b) (001) -Ebene.

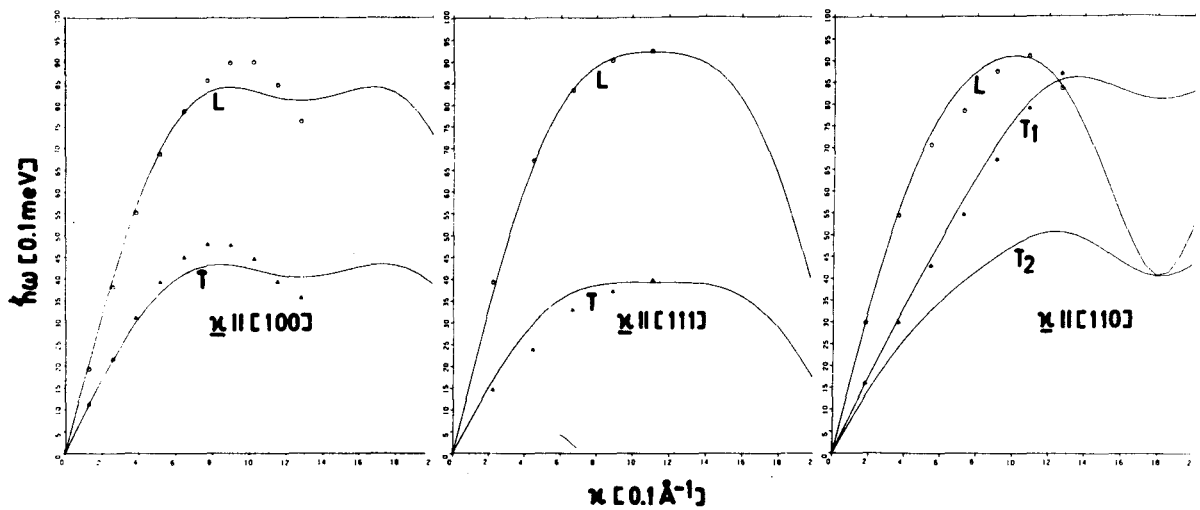


Abb. A3: c) Phonondispersionskurven von Blei bei $T = 5$ K gemessen von Furrer und Hälg 1970.
Born-von-Karman-Fit von Furrer 1969.

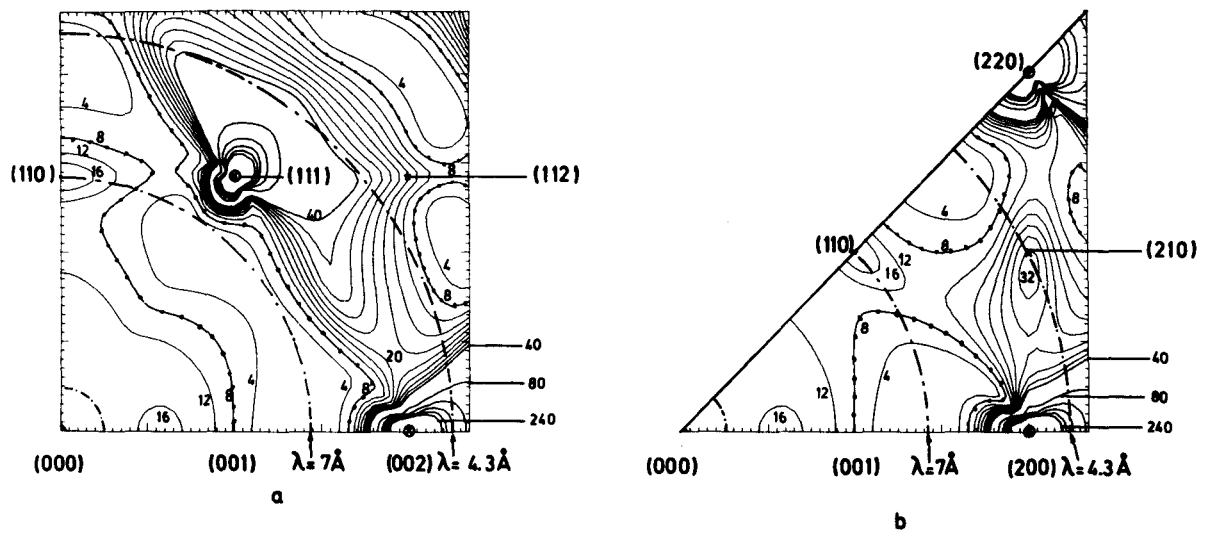


Abb. A3: Mit dem Born-von-Karman-Fit von Furrer 1969 gerechnete Höhenliniendiagramme der diffusen elastischen Streuung für das System Pb-Bi, Einheiten in mbar/sterad Defekt-Atom, Dreibein-Modell a) (110)-Ebene, b) (001)-Ebene.

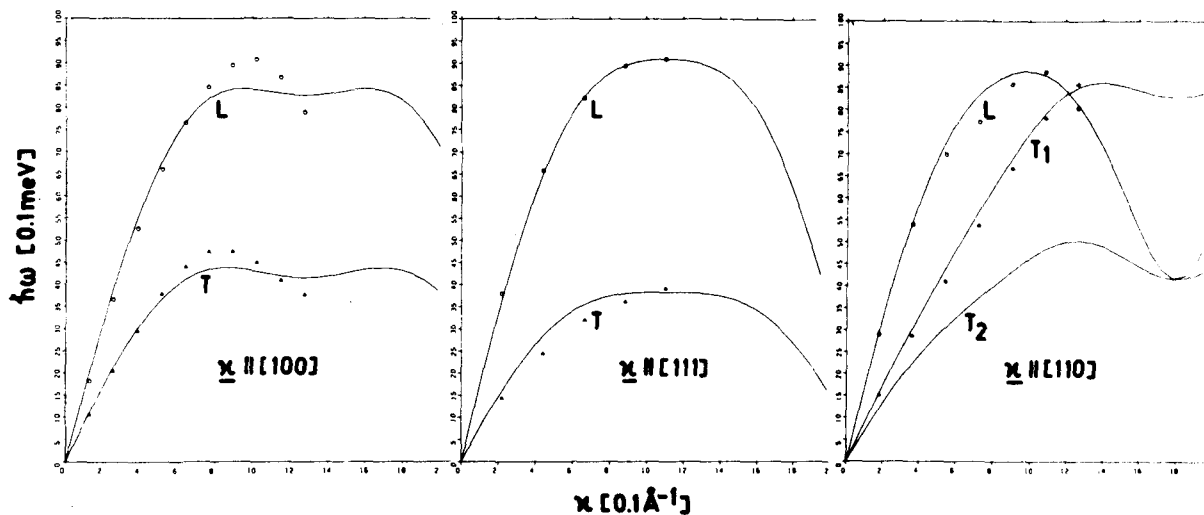


Abb. A4: c) Phonondispersionskurven von Blei bei $T = 80$ K gemessen von Furrer und Halg 1970. Born-von-Karman-Fit von Furrer 1969.

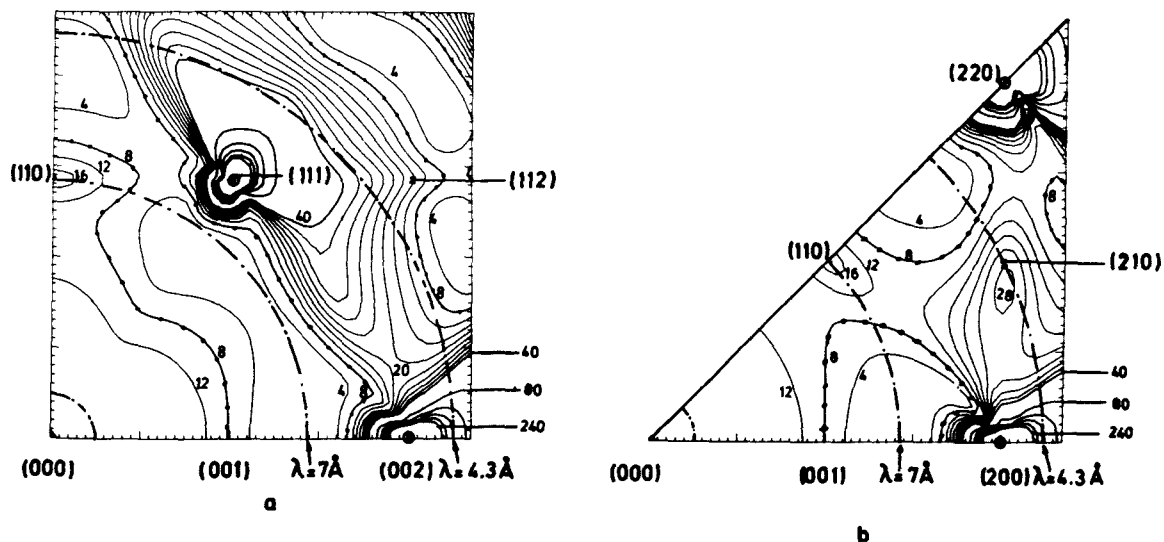


Abb. A4: Mit dem Born-von-Karman-Fit von Furrer 1969 gerechnete Hohenliniendiagramme der diffusen elastischen Streuung fur das System Pb-Bi, Einheiten in mbarn/sterad Defekt-Atom, Dreibein-Modell a) $(\bar{1}10)$ -Ebene, b) (001) -Ebene.

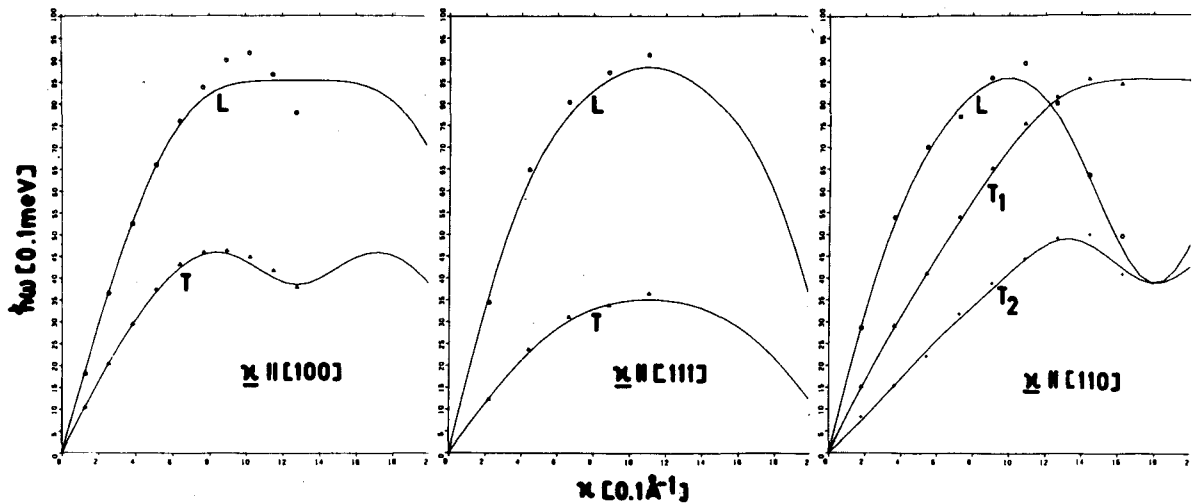


Abb. A5: c) Phonondispersionskurven von Blei bei $T = 80$ K gemessen von Stedman et al. 1967.
Born-von-Karman-Fit von Cowley 1974.

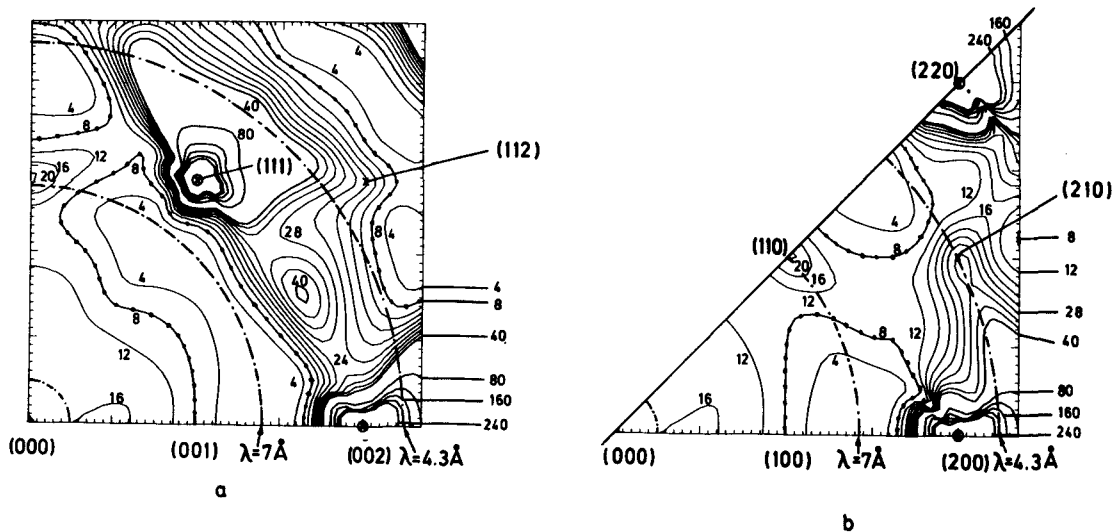


Abb. A5: Mit dem Born-von-Karman-Fit von Cowley 1974 gerechnete Höhenliniendiagramme der diffusen elastischen Streuung für das System Pb-Bi, Einheiten in $\text{mbarn/sterad Defekt-Atom}$, Dreibein-Modell a) (110) -Ebene, b) (001) -Ebene.

Literaturhinweise

- Animalu, A.O.E. and Heine, V. (1965). Phil. Mag. 12, 549.
- Baratoff, A. and Seitz, E. (1975). Wird veröffentlicht.
- Bacon, G.E. (1962). Neutron Diffraction. Oxford: Clarendon Press.
- Bauer, G. and Seitz, E. (1972). Solid State Comm. 11, 179.
- Bauer, G., Seitz, E. and Just, E. (1974). Beitrag zum Int. Discussion Meeting "Studies of Lattice Distortions and Local Atomic Arrangements by X-Ray, Neutron and Electron Diffraction, KFA-Jülich. (1975). Zur Veröffentlichung in J. of Appl. Cryst. abgeschickt.
- Bauer, G. and Seitz, E. (1974). Beitrag zur Jülich-Konferenz 1974 (s.o.). (1975) wird veröffentlicht.
- Bauer, G. (1975) Dissertation Universität Bochum.
- Benedek, R. and Baratoff, A. (1971). J. Phys. Chem. Solids 32, 1015. (1973). Solid State Comm. 13, 385.
- Bertoni, C.M. Bortolani, V. Calandra, C. and Nizzoli, F. (1974). J. Phys. F.: Metal Phys. 4, 19.
- Bletry, J. (1970). J. Phys. Chem. Solids 31, 1263.
- Brockhouse, B.N., Arase, T., Cagliotti, G., Rao, K.R. and Woods, A.D.B. (1962), Phys. Rev. 128, 1099.
- Cowley, E.R. (1974). Solid State Comm. 14, 587.
- Dederichs, P.H. and Leibfried G. (1969). Phys. Rev. 188, 1175.
- Dederichs, P.H. (1973). J. Phys. F.: Metal Phys. 3, 471.
- Erhart, P. and Schilling, W. (1973). Phys. Rev. B 8, 2604.
- Eisenriegler, E. (1971). Crystal Lattice Defects 2, 181.
- Eshelbey, J.A. (1956). In Solid State Physics, Academic Press, New York, Vol. 3 p. 79.
- Ewald, P.P. and Herrmann, G. (1931). Strukturbericht I (Ergebn. z.Z. für Krist.) Akadem. Verlagsanstalt, Leipzig.
- Flocken, J.L. and Hardy, J.R. (1969), Phys. Rev. B 1 177. 1054.
- Furrer, A. (1969) Dissertation ETH Zürich.
- Furrer, A. and Hälg, W. (1970). Phys. stat. Sol. 42, 821.
- Gilat, G. (1965). Solid State Comm. 3, 10.
- Harrison, W.A. (1966). Pseudopotentials in the Theory of Metals, Benjamin, New York.
- Hayasi, M. (1939). Nippon Kink. Gakk. 3, 123.
- Haubold, H.-G. (1974) Dissertation Technische Hochschule Aachen.

- Heine, V. and Weaire, D. (1971). In Solid State Physics, Academic Press, New York, Vol. 24, p. 249.
- v. Hofe, H. and Hanemann, H. (1940) Z. für Metallkunde 32, 112.
- Huang, K. (1947). Proc. Roy. Soc. A 190, 102.
- Just, W. (1974) in Neutron Beam Facilities, Inst. Laue-Langevin, Grenoble.
- Kanzaki, H. (1957). Phys. Chem. Solids 2, 24, 107.
- Klug, H.P. (1946), J. Amer. Chem. Soc. 68, 1493.
- Kohn, W. (1959), Phys. Rev. Lett. 2, 393.
- Krivoglaz, M.A. (1969). Theory of X-Ray and Thermal Neutron Scattering. Oxford: Clarendon Press.
- Marshall, W. and Lovesey, S.W. (1971). Theory of Thermal Neutron Scattering. Oxford: Clarendon Press.
- Matsubara, T.J. (1952). J. Phys. Soc. Japan 7, 270.
- Miller, J.W. (1970). Phys. Rev. B 6, 1624.
- Ng, S.C. and Brockhouse, B.N. (1967), Solid State Comm. 5, 79.
- Nowick, A.S. (1951). J. appl. Phys. 22, 1182.
- Nowick, A.S. and Berry, B.S. (1972). Anelastic Relaxation in Crystalline Solids. Academic Press, New York.
- Prece, C.M. and King, H.W. (1969), Scripta Met. 3, 859.
- Predel, B. und Schwermann, W. (1967). Z.f. Metallkunde 68, 553.
- Resing, H.A. and Nachtrieb, N.H. (1961). J. Phys. Chem. Solids 21, 40.
- Sagues, A.A. (1974). Private Mitteilung.
- Scherm, R. (1968), Nukleonik 12, 4.
- Schmatz, W. (1970). In "Vacancies and Interstitials in Metals" (A. Seeger et. al., eds.), p. 589, North-Holland Publ., Amsterdam.
- Schmatz, W. (1973). In Treatise on Materials Science and Technology 2, Edited by H. Herman. pp. 105, New York: Academic Press.
- Schumacher, H. (1969). Dissertation, Technische Hochschule Aachen
- Schumacher, H. Schmatz, W. and Seitz, E. (1973). Phys. Stat. Sol (a) 20, 109.
- Seeger, A. Mann, E. and v. Jan. R. (1962). J. Phys, Chem. Solids 23, 639.
- Seith, E. and Keil, A. (1933), Z. Physik. Chem. B 22 350.
- Simson, R. (1964). Diplomarbeit Technische Hochschule München.

- Shull, C.G. (1972). Table of Coherent Neutron Scattering Amplitudes (compiled February 1972, Dept. of Physics, MIT).
- Stedmann, R. Almqvist, L. and Nilsson, G. (1967) Phys. Rev. 162, 549.
- Stokes, A.R. and Wilson, A.J.L. (1941). Proc, Phys. Soc. (London), 53, 658.
- Tewordt, L. (1958). Phys. Rev. 109, 61.
- Trinkaus, H. (1972). phys. stat. sol. (b) 51, 307,
(1973). Z. Naturforschung 28 a, 980.
- Tyzack, C. and Raynor, G.V. (1954). Acta Cryst. 7, 505.
- Waldorf, D.L. and Alers, G.A. (1962) J. of appl. Phys. 33, 3266.