



**KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH**

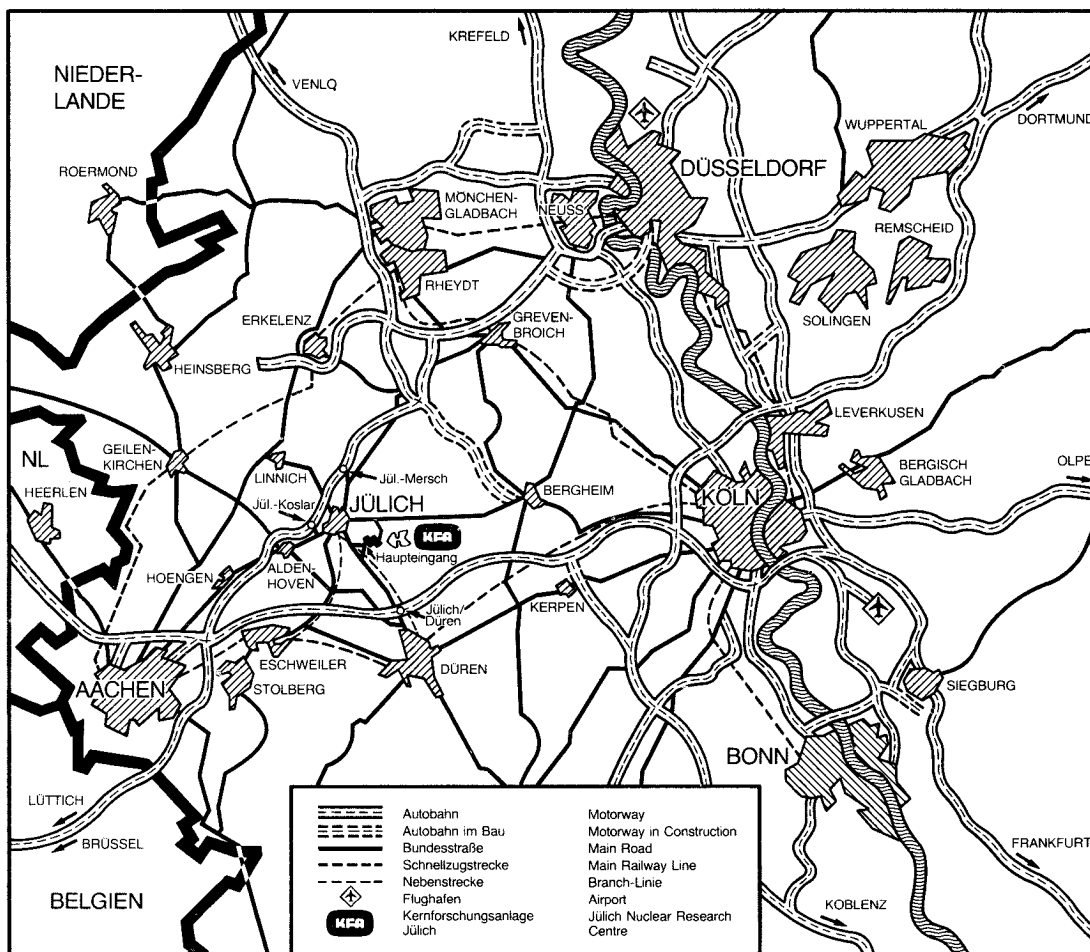
Institut für Festkörperforschung

**UNTERSUCHUNG DES SCHWINGUNGS-  
VERHALTENS BESTRAHLUNGSINDUZierter  
ZWISCHENGITTERATOME IN AL MIT HILFE  
DER INELASTISCHEN, DIFFUSEN  
NEUTRONENSTREUUNG**

von

Rüdiger Urban

Jül-2134  
Mai 1987  
ISSN 0366-0885



Als Manuskript gedruckt

**Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 2134**  
 Institut für Festkörperforschung Jülich-2134

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH  
 Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)  
 Telefon: 02461/610 · Telex: 833556-0 kf d

**UNTERSUCHUNG DES SCHWINGUNGS-  
VERHALTENS BESTRAHLUNGSINDUZIERTER  
ZWISCHENGITTERATOME IN AL MIT HILFE  
DER INELASTISCHEN, DIFFUSEN  
NEUTRONENSTREUUNG**

von

Rüdiger Urban

D 82 (Diss. T.H. Aachen)

## Abstract

Diffuse inelastic neutron scattering measurements have been performed for the first time to study the dynamics of self interstitial atoms (SIA).

In order to produce a random distribution of individual SIA's the defects were produced by irradiation with 3 MeV electrons. Using a specially developed He-gas cooling circuit which supplies a cooling power of  $\approx 200$  Watt at 10 K large single crystals of Al (28g of Al) with the special shape of a hollow cylinder could be irradiated up to a defect concentration of 480 ppm. The defect concentration could be monitored by in situ measurements of the change of the electrical resistivity at the bulk sample itself. After irradiation the samples were transferred, cold, to the IN3 spectrometer at the high flux reactor at Grenoble.

Const-q-Scans were performed in energy loss at  $Q = (2, q, q)$   $2\pi/a$  with  $q = 0.4, 0.6, 0.8$  over a frequency range from 0 to 2 THz. The measurements were made at 6 K on the sample before annealing and after annealing at 46 K (above stage I) and at  $\approx 300$  K (after complete recovery). The irradiated sample showed a significant increase of the inelastic scattering intensity at transferred energies between 0.7 THz and 2 THz.

By comparison with the results of computer calculations this broad frequency spectrum could be attributed to contributions of different vibration modes of the interstitial atoms. Hence the most significant vibration modes of the self interstitial atom could be identified: the translation-mode  $A_{2u}$  ( $\nu \approx 0.75$  THz) and the libration-mode  $E_g$  ( $\nu \approx 1.35$  THz). In addition the B-modes of the SIA have been identified for the first time at frequencies around 2 THz. The observed frequency spectrum is in agreement with the experimental results for the migration energy ( $\approx 0.1$  eV) and the elastic polarisability of the SIA. The observed ordering of the lowest frequency modes is in contrast to the results of calculations with different potentials for copper, however it is in agreement with calculations using an Al-pseudo-potential and therefore we conclude this ordering to be specific for Al.

## INHALTSVERZEICHNIS

|                                                                        | Seite |
|------------------------------------------------------------------------|-------|
| 1. Einleitung                                                          | 1     |
| 2. Zur Dynamik von Zwischengitteratomen in fcc-Kristallen              | 5     |
| 3. Nachweis der Resonanzmoden mittels inelastischer Neutronenstreuung  | 16    |
| 3.1 Einfluß der Resonanzmoden auf die Phononenlinie                    | 16    |
| 3.2 Diffuse, inelastische Neutronenstreuung am Kristall mit Defekten   | 20    |
| 3.2.1 Berechnung des Wirkungsquerschnitts                              | 21    |
| 3.2.2 Q-Abhängigkeit des Strukturfaktors                               | 23    |
| 4. Experimentelle Technik                                              | 29    |
| 4.1 Probenpräparation                                                  | 30    |
| 4.2 Spezielle Kryotechnik                                              | 32    |
| 4.2.1 Bestrahlungskryostat                                             | 32    |
| 4.2.2 Umsetztechnik                                                    | 36    |
| 4.2.3 Meßkryostat                                                      | 38    |
| 5. Durchführung des Experimentes                                       | 41    |
| 5.1 Elektronenbestrahlung                                              | 41    |
| 5.2 Neutronenstreuung                                                  | 43    |
| 5.2.1 Neutronenspektrometer IN3                                        | 43    |
| 5.2.2 Eichung der Absolutintensität                                    | 46    |
| 5.2.3 Meßbereich und Meßprogramm                                       | 48    |
| 6. Meßergebnisse                                                       | 50    |
| 6.1 Diffuse, inelastische Neutronenstreuung                            | 50    |
| 6.1.1 Defekte nach Bestrahlung                                         | 50    |
| 6.1.2 Erholungsverhalten der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung | 54    |

|       |                                                                                                                                                           |    |
|-------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 6.2   | Erholungsverhalten des elektrischen Restwiderstandes                                                                                                      | 57 |
| 6.3   | Diffuse, elastische Neutronenstreuung                                                                                                                     | 60 |
| 7.    | Diskussion                                                                                                                                                | 65 |
| 7.1   | Defektinduzierte Eigenfrequenzen eines Kristalls mit einem Einzel- bzw. Doppelzwischengitteratom - berechnet über Diagonalisierung der dynamischen Matrix | 67 |
| 7.2   | Strukturfaktoren                                                                                                                                          | 73 |
| 7.3   | Vergleich des gemessenen Wirkungsquerschnitts mit dem eines Modellkristalls mit Einzel- bzw. Doppelzwischengitteratomen                                   | 82 |
| 7.3.1 | Einzeldefektmodell                                                                                                                                        | 83 |
| 7.3.2 | Mehrfachdefektmodell                                                                                                                                      | 87 |
| 7.4   | Diskussion des Vergleichs von gemessenem und berechnetem Wirkungsquerschnitt der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung                                | 90 |
| 8.    | Zusammenfassung und Ausblick                                                                                                                              | 96 |
| 9.    | Literaturverzeichnis                                                                                                                                      | 99 |

## Anhang

## 1. Einleitung

Eigenzwischengitteratome sind von großer Bedeutung für das Verständnis der Eigenschaftsänderungen von Kristallen bei Bestrahlung mit energiereichen Teilchen. Daher besteht seit langem das Ziel, die statische Struktur und das dynamische Verhalten dieser Defekte theoretisch zu beschreiben und diese Modellvorstellung experimentell zu überprüfen. Seit über 10 Jahren ist nun in verschiedenen fcc-Metallen die  $\langle 100 \rangle$ -Hantelstruktur /1/ als stabile Zwischengitteratomkonfiguration nachgewiesen /2,3,4/. Hierbei bilden zwei Atome auf einem doppelt besetzten Gitterplatz die sogenannte  $\langle 100 \rangle$ -Hantel, deren Schwerpunkt sich am ursprünglichen Platz des Gitteratoms befindet (x in Abb. 1.1). Mit dem Einbau des Zwischengitteratoms ist eine starke Kompression der Defektregion verbunden. Diese führt zu einer starken Absenkung der effektiven Rückstellkräfte auf die Hantelatome bei einer Auslenkung dieser Atome senkrecht zur Hantelachse.

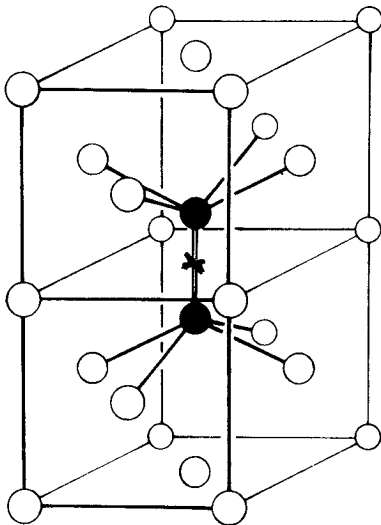


Abb. 1.1: Konfiguration des Zwischen-gitteratoms im fcc-Kristall.

Die kleinen interatomaren Koppelungskonstanten sind verantwortlich für eine Reihe interessanter Eigenschaften des dynamischen Verhaltens der Eigenzwischengitteratome. So treten z.B. niederfrequente Resonanzmoden auf, von denen im Fall der  $\langle 100 \rangle$ -Hantel bisher angenommen wurde, daß die Librationsmode ( $E_g$ -Mode) der Hantel die tiefstliegende sei. Auf Grund ihrer niedrigen Frequenz besitzt die Hantel eine extrem kleine Wanderungsenergie. Ein direktes Maß für die Abnahme der Koppelungskonstanten stellt die starke elastische Polarisierbarkeit der Hantel dar. In Mes-

sungen der geänderten elastischen Konstanten nach Bestrahlung /5,6/ konnten die von Dederichs et al. /7/ für diese Defektstruktur berechneten Polarisierbarkeiten bestätigt werden. Für eine Überprüfung der Theorie und ihre Verbesserung wäre es aber wünschenswert, eindeutige, genauere Kenntnisse über das Schwingungsverhalten und speziell die Frequenzen der Resonanzmoden zu gewinnen.

Gesicherte Ergebnisse liegen nur für die Dynamik von Fremdatom-Al-Atomkomplexen aus Messungen der Temperaturabhängigkeit des Debye-Waller-Faktors mit Hilfe der Mößbauerspektroskopie vor /8/. Da diese an reinen Substanzen nicht möglich ist, wurden hier bisher als indirekte Methode die Messung der Temperaturabhängigkeit der elastischen Konstanten /9/ und Messungen der differentiellen Leitfähigkeit eines supraleitenden Tunnelkontakts /10/ angewandt. Es zeigen sich zwar deutlich die Einflüsse niederfrequenter Resonanzzustände, doch erlauben die Ergebnisse keine eindeutigen Zuordnungen der Frequenzen zu Moden des Einzelzwischengitteratoms. Eine direkte Methode zur Bestimmung der Resonanzfrequenz stellt die inelastische Neutronenstreuung dar, die zwei Nachweismöglichkeiten bietet. Im einen Fall wird die Streuung der Phononen an einer Hantelschwingung ausgenutzt. In der Dispersionskurve der Phononen tritt diese Wechselwirkung als kleine Verschiebung im Bereich der Resonanzfrequenz in Erscheinung und kann gemessen werden. Diese Verschiebung ist proportional der Defektkonzentration. Da nur kleine Konzentrationen in der Probe realisierbar sind, ist auch der Meßeffect äußerst klein, das heißt, diese Experimente stellen hohe Anforderungen an die Energieauflösung und die Stabilität des Neutronenspektrometers. Zwei Gruppen haben diese Methode zu mehreren Messungen an neutronenbestrahlten Al- /11/ und Cu-Kristallen /12/ herangezogen. Die Ergebnisse der Messungen führten zu widersprüchlichen Ergebnissen, die teilweise noch unverstanden sind. Dies kann, wie schon von den Autoren vermutet wurde /11/, an der komplizierten Defektstruktur liegen, wie sie durch Bestrahlung der Proben mit schnellen Neutronen entsteht.

In der vorliegenden Arbeit wurden daher zwei neue Methoden hinsichtlich der Defekterzeugung und der Neutronenstreuung beschrieben.

Für dieses Experiment wurde Aluminium als Probenmaterial ausgewählt, für das die  $\langle 100 \rangle$ -Hantel als Einzelzwischengitteratom-Konfiguration nachgewiesen ist /2/. Zudem hat es, da es monoisotopisch ist, für die Neutronenstreuung den Vorteil, einen sehr kleinen inkohärenten Streuquerschnitt zu besitzen. Zur Erzeugung von Einzelzwischengitteratomen in der Probe wurden 3 MeV Elektronen verwendet, um Schwierigkeiten mit Agglomeraten zu umgehen, die aus den bei Neutronenbestrahlung erzeugten Verlagerungskaskaden entstehen. Die geringe Eindringtiefe der Elektronen hätte an und für sich dünne Proben notwendig gemacht, doch erforderte die Messung der Neutronenstreuung an derselben Probe große, massereiche Kristalle. Die Form eines Hohlzylinders erlaubte, beiden Forderungen gerecht zu werden.

Zum Nachweis der niederfrequenten Resonanzmoden wurde erstmals die diffuse, inelastische Neutronenstreuung an den Hantelatomen und ihrer kohärent mitstreuenden unmittelbaren Umgebung gemessen. Diese Streuung läßt sich verstehen, wenn man sich die Hantel als Einsteinoszillator vorstellt, der dispersionslos schwingt. Da weit von der Phononenlinie entfernt gemessen wird, kann dessen Streubeitrag mit einer relativ groben Energie- und Impuls-Auflösung bei der jeweils angeregten Hantelschwingungsfrequenz erfaßt werden. Da die Intensität dieser diffusen, inelastischen Streuung proportional der Defektkonzentration ist, wird die Meßgenauigkeit bei dieser Nachweismethode nicht von der Energieauflösung bestimmt, sondern von der Höhe des Neutronenflusses und der Größe des Untergrundes.

Im folgenden soll nun zunächst ein kurzer Überblick über die Dynamik von Einzelzwischengitteratomen und Doppelzwischengitteratomen gegeben werden (Kapitel 2). Daran schließt sich eine Diskussion der Möglichkeiten verschiedener Neutronenstreutechniken an und es wird für die hier speziell benutzte Methode der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung die Berechnung des Wirkungsquerschnitts vorgestellt (Kapitel 3). Im Kapitel 4 werden die Probenpräparation besprochen und die spezielle Kryotechnik von Bestrahlungs- und Meßkryostat sowie die Umschleus- und Transporttechnik der heliumkalten Probe erklärt. Kapitel 5 beschreibt die

Durchführung der Elektronenbestrahlung und der Neutronenstreuung. Deren Resultate werden in Kapitel 6 vorgestellt. Die Ergebnisse der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung an der bestrahlten und getemperten Proben werden in 6.1. dargestellt.

Das Erholungsverhalten des elektrischen Restwiderstandes und die Ergebnisse der diffusen, elastischen Neutronenstreuung werden in Kapitel 6.2 und 6.3 vorgestellt. Für die Quantitative Auswertung der Meßergebnisse müssen diese mit den Wirkungsquerschnitten aus verschiedenen Modellrechnungen verglichen werden. Hierzu werden für verschiedene interatomare Potentiale die Schwingungsspektren eines Modellkristalls berechnet, in dessen Zentrum sich ein Zwischengitteratom befindet (Kap. 7.1).

In 7.2 werden die zu den einzelnen Defektschwingungen gehörenden Strukturfaktoren diskutiert. In 7.3 und 7.4 werden die gemessenen Wirkungsquerschnitte mit denen der verschiedenen Defektmodelle verglichen und diskutiert. Kapitel 8 gibt eine Zusammenfassung der Ergebnisse.

## 2. Zur Dynamik von Zwischengitteratomen in fcc-Kristallen

In diesem Kapitel soll ein kurzer Überblick darüber gegeben werden, welche Schwingungseigenschaften die Theorie für das Einzel- und das Doppelzwischengitteratom voraussagt. Das Auftreten von sowohl nieder- als auch hochfrequenten Schwingungsmoden für einen Einzeldefekt wurde erstmals von Lehmann und Scholz /13/ bei Computersimulationen beobachtet. Die hier dargestellten Ergebnisse stammen überwiegend aus Rechnungen von Dederichs et al., die in einem Übersichtsartikel /1/ zusammengefaßt sind. Sie berechneten mit der Greenfunktionsmethode in harmonischer Näherung das Schwingungsspektrum des Einzelzwischengitteratoms. Diese Rechnungen wurden von Schober und Zeller /14/ auf das Doppelzwischengitteratom erweitert. Alle Rechnungen wurden mit Morse- bzw. modifizierten Morse-Potentialen durchgeführt, die an Materialparametern von Cu angepaßt worden sind (s. Kapitel 7).

Das Zustandekommen von sowohl resonanten als auch lokalisierten Moden des Einzelzwischengitteratoms kann man sich in einem einfachen Federmodell veranschaulichen (Abb. 2.1). Auf Grund der starken lokalen Kompression des Gitters - z.B. beträgt der Abstand der beiden Hantelatome nur 85 % des normalen Abstandes nächster Nachbarn - sind die in Abb. 2.1 gezeigten Federn stark vorgespannt.

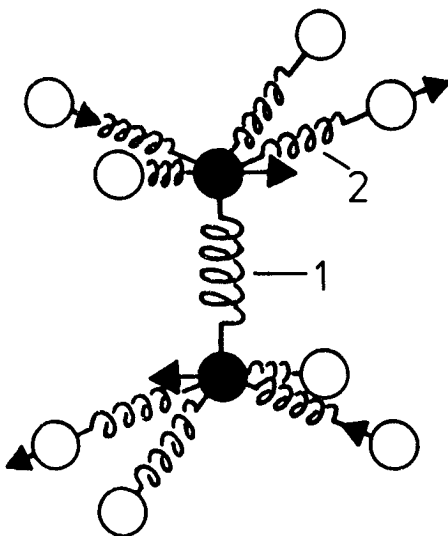


Abb. 2.1: Federmodell der <100>-Hantel.

Bei einer Auslenkung der Hantelatome senkrecht zu ihrer Verbindungsfeder (1) bewirkt die Vorspannung dieser Federn Kraftkomponenten, die die Auslenkung zu vergrößern trachten. Dadurch kann ein Teil der vom umgebenden Gitter ausgeübten Rückstellkräfte auf die Hantelatome kompensiert werden. Entscheidend für das Auftreten von resonanten bzw. lokalisierten Moden ist die Phase, mit der sich die nächsten Nachbarn relativ zu den Hantelatomen bewegen. Schwingen sie in Phase, üben die Federn (2) nur geringe Rückstellkräfte in Richtung der Federachsen aus. Dadurch sind die effektiven Rückstellkräfte so klein, daß die geschilderte Absenkung ausreicht, die Moden zu niedrigen Frequenzen abzusinken. Bewegen sie sich gegenphasig, wirken starke Rückstellkräfte in Richtung der Federn (2). Die effektiven Rückstellkräfte werden so groß, daß die geschilderte Absenkung nur einen prozentual kleineren Teil kompensieren kann, so daß die Schwingungsfrequenz dieser Mode oberhalb des Spektrums des Idealkristalls liegt.

Für alle an Cu angepaßten Potentiale zeigen die Spektren eines  $\langle 100 \rangle$ -Hantelatoms (Abb. 2.2) die gleiche Folge von niederfrequenten Moden im Frequenzbereich zwischen 0.1 und 0.3  $\nu_{\max}$ .

$\nu_{\max}$  ist die maximale Frequenz des ungestörten Gitters.

(Cu:  $\nu_{\max} = 7.3$  THz, Al:  $\nu_{\max} = 9.7$  THz).

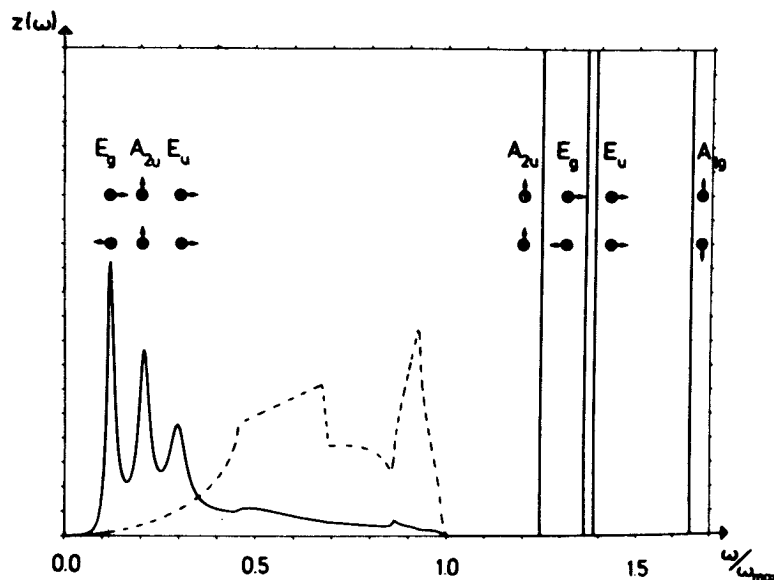


Abb. 2.2: Lokales Schwingungsspektrum eines  $\langle 100 \rangle$ -Hantelatoms /1/.

Die Mode mit der niedrigsten Frequenz ist die Librationsmode,  $E_g$  (Abb. 2.3b), bei der sich die beiden Hantelatome gegenphasig senkrecht zur Hantelachse bewegen. Ihre Frequenz liegt zwischen  $\nu = (0.1-0.17)\nu_{\max}$ . Die nächsthöhere Frequenz mit  $\nu = (0.18-0.25)\nu_{\max}$  gehört zur  $A_{2u}$ -Mode (Abb. 2.3d), der Translationsmode, bei der sich beide Hantelatome parallel zur Hantelachse in Phase bewegen, so daß die verbindende Feder (1) nicht beansprucht wird. Die vorgespannten Federn (2) zu den in Phase schwingenden nächsten Nachbaratomen werden nur senkrecht zur ihrer Achse stark beansprucht, was zu der Absenkung der Rückstellkräfte führt. Die dritte niederfrequente Resonanzmode ist die  $E_u$ -Mode (Abb. 2.3c) mit  $\nu = (0.25-0.32)\nu_{\max}$ . Die beiden Hantelatome schwingen wie in der  $E_g$ -Mode senkrecht zur Hantelachse, hier allerdings gleichphasig, wodurch die rückstellkraftsenkende Vorspannung der Feder (1) zwischen den Hantelatomen nicht zum Tragen kommt und die Frequenz höher als die der Librationsmode liegt. Alle Moden liegen im Bereich der Phononenfrequenzen des ungestörten Kristalls und können an die Gitterschwingungen ankoppeln. Sie werden daher gedämpft und besitzen im lokalen Schwingungsspektrum eine lorentzartige Verbreiterung.

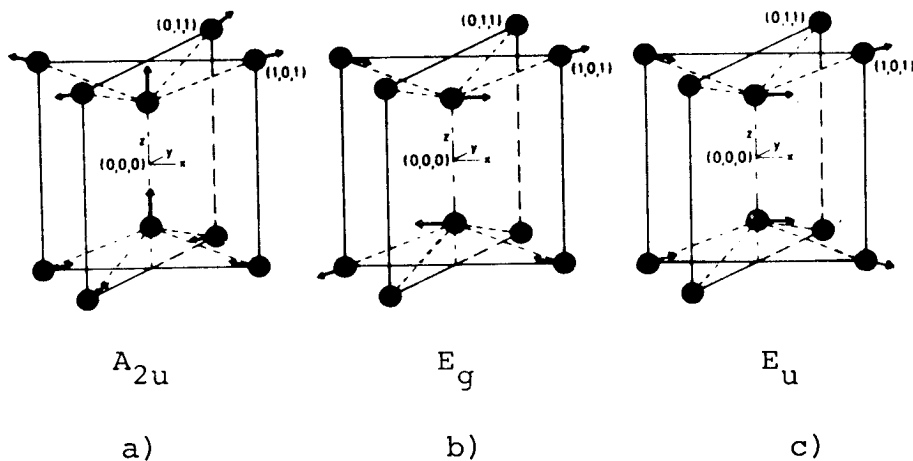


Abb. 2.3: Resonante Moden nach /1/.

Das hochfrequente Pendant zu jeder dieser drei Moden, bei denen Hantel und nächste Nachbarn in Gegenphase schwingen, liegt oberhalb von  $\nu_{\max}$ . Sie können nicht an die Gitterschwingungen koppeln und sind somit lokalisiert. Hinzu kommt eine vierte lokalisierte Schwingung, die  $A_{1g}$ -Mode. Wie in der  $A_{2u}$ -Mode schwingen die Han-

telatome in Richtung der Hantelachse - hier allerdings in Gegenphase, wodurch die starken Rückstellkräfte der vorgespannten Feder zwischen den Hantelatomen zum Tragen kommen. Aus diesem Grund hat diese Schwingung keine niederfrequente Mode und besitzt infolge der noch zusätzlichen, starken Rückstellkräfte durch die gegenphasig schwingenden nächsten Nachbarn die höchste Frequenz des Schwingungsspektrums der Hantelatome.

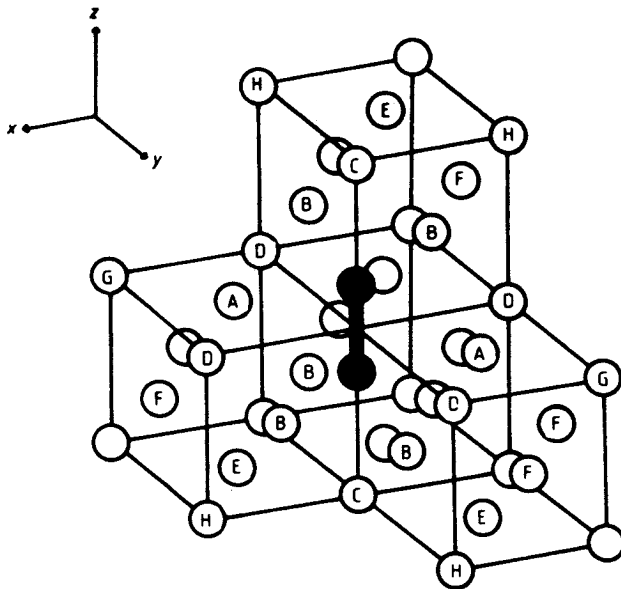


Abb. 2.4:  $\langle 100 \rangle$ -Hantel und Nachbaratome A-F /15/.

Yamamoto et al. /15/ haben für das modifizierte Morse-Potential die lokalen Schwingungsspektren nicht nur des ungestörten Kristalls und eines Hantelatoms berechnet, sondern auch die der Nachbarn der Hantel (Abb. 2.5). Die Nachbaratome sind in Abb. 2.4 mit zunehmendem Abstand von dem Hantelschwerpunkt mit den Buchstaben A bis F gekennzeichnet. Für den Idealkristall und die Hantel ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Dederichs für dieses Potential. Vergleicht man die Spektren der Nachbaratome mit dem des ungestörten Kristalls, fällt auf, daß im Frequenzbereich der Resonanzmoden der Hantel nur die 4 nächsten Nachbaratome (B) eines Hantelatoms eine deutlich erhöhte Zustandsdichte aufweisen. Das heißt, die Resonanzmoden der Hantel strahlen nicht weit ins Gitter aus, sie werden schwach gedämpft und sind

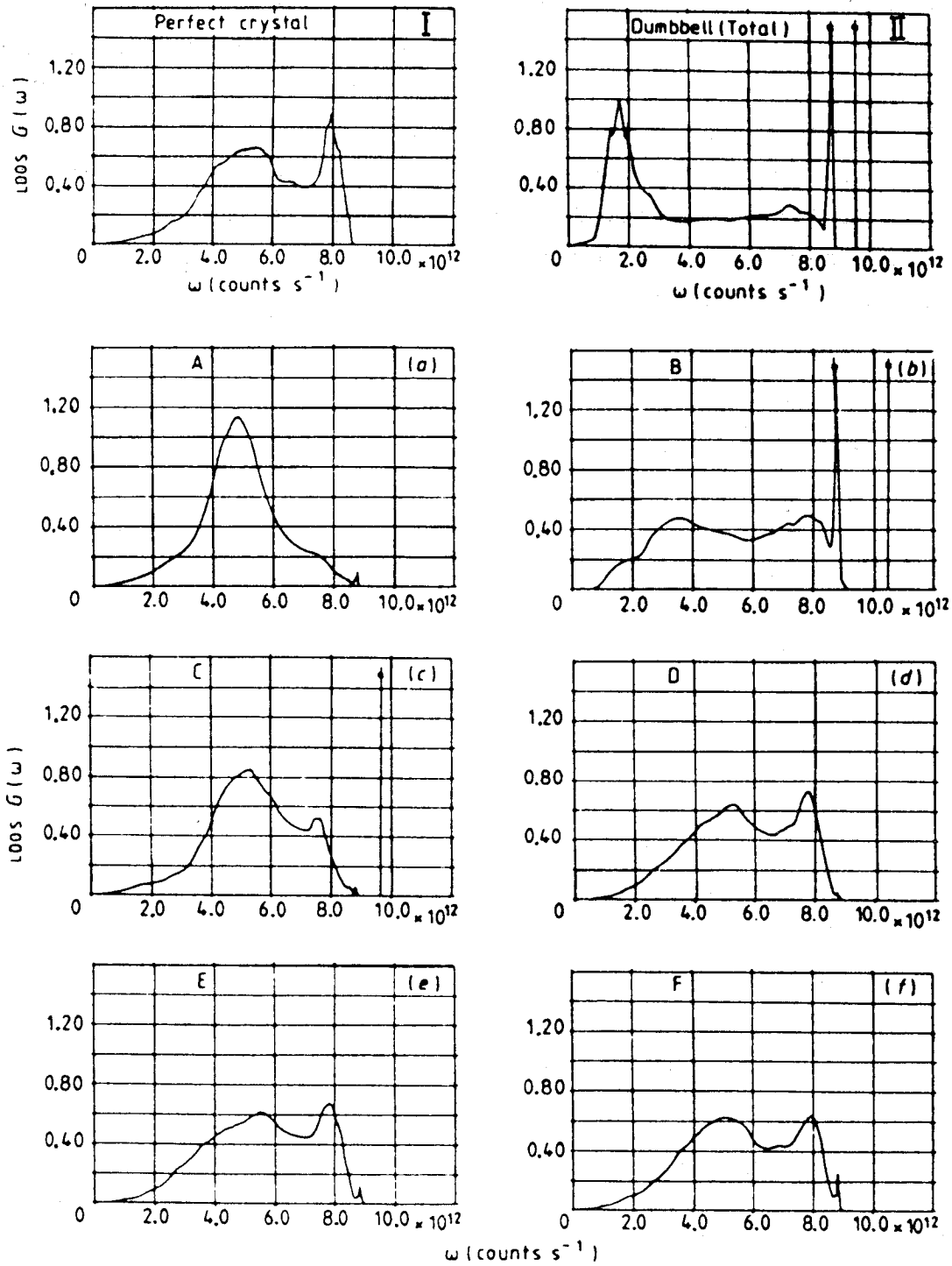


Abb. 2.5: Lokale Zustandsdichten

I: eines Atoms im ungestörten Kristall.

II: eines  $\langle 100 \rangle$ -Hantelatoms (gemittelt über die 3 Lagen).

a-f: der in Abb. 2.4 mit A-F bezeichneten Nachbaratome.

quasi lokalisiert. Oberhalb dieses Bereichs der Resonanzfrequenz der Hantel treten in den Spektren der Atome A bis C weitere Resonanzschwingungen auf, an denen die Hantelatome nicht beteiligt sind. Der Symmetrie nach sind dies B-Moden des Einzelzwischen-gitteratoms. Die Nachbaratome schwingen symmetrisch um die Hantel mit dem Schwerpunkt der Hantel als Symmetriezentrum (z.B. Abb. 2.6). Im weiteren möchte ich diese Art Moden als "Nächste-Nachbar-Moden" bezeichnen. Dadurch ist eine Verwechslung mit den B-Moden des Doppelzwischen-gitteratoms, bei denen sich nämlich die Hantelatome auch mitbewegen, ausgeschlossen.

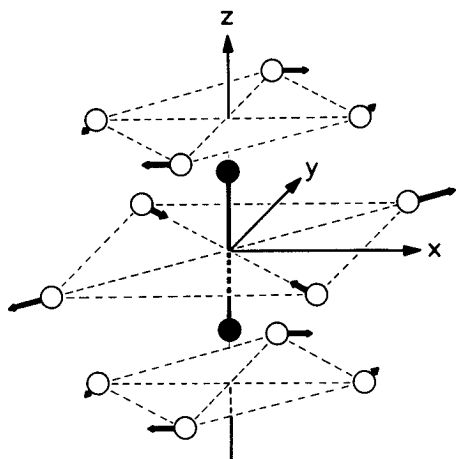


Abb. 2.6: Beispiel einer Nächst-Nachbar-Mode der  $\langle 100 \rangle$ -Hantel.

Die niederfrequenten Resonanzmoden führen dazu, daß die Konfiguration der Hantel schon bei sehr tiefen Temperaturen (in Al bei  $\sim 35$  K) Platzwechsel durchführen kann. Messungen der elastischen Nachwirkung [16] haben gezeigt, daß diese Wanderung der Hantel mit einer Umorientierung verbunden ist. Aus diesen Beobachtungen wurde folgende Modellvorstellung abgeleitet:

Die Hantel macht einen Drehsprung (Abb. 2.7c), der aus einer Überlagerung der Librations- und der Translationsmode resultiert. Für diesen Sprung ist der Abstand zum Sattelpunkt, den das Hantelatom überwinden muß, kleiner als für den reinen Rotations- (Abb. 2.7a) bzw. Translationssprung (Abb. 2.7b). Auf Grund der niedrigen Frequenz können diese Moden schon bei sehr tiefen Temperaturen so stark angeregt werden, daß schon kleine Schwankungen in der Amplitude der Hantelschwingung zu einer Überwindung des kleinen Abstandes zum Sattelpunkt genügen.

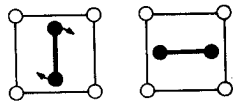
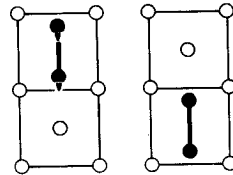
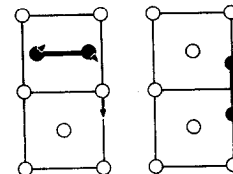


Abb. 2.7 /18/:

a) Drehung



b) Translation



c) Drehsprung

Daher ist die Wanderungsenergie der Hantel mit z.B.  $E^m \approx 0.11$  eV in Al /17/ sehr viel kleiner als typische Wanderungsenergien für interstitielle Fremdatome (z.B. N,O,C) von ca. 1 eV. Darüberhinaus führt die starke Kompression der Defektregion zu einer starken elastischen Polarisierbarkeit eines Kristalls mit Einzelzwischengitteratomen. Die Hantel ist, wie oben erläutert, instabil gegen eine Auslenkung der Hantelatome senkrecht zu ihrer Verbindungsachse, wodurch die effektiven Rückstellkräfte stark herabgesetzt werden. Im Falle der Schwingung führt dies zu einer sehr niedrigen Frequenz; im Falle einer von außen an den Kristall angelegten  $\langle 100 \rangle$ -Scherung (Abb. 2.8a) führt dies zu einer sehr viel stärkeren Antwort der Hantel als der Atome des ungestörten Kristalls. Computersimulationen /7/ haben gezeigt, daß

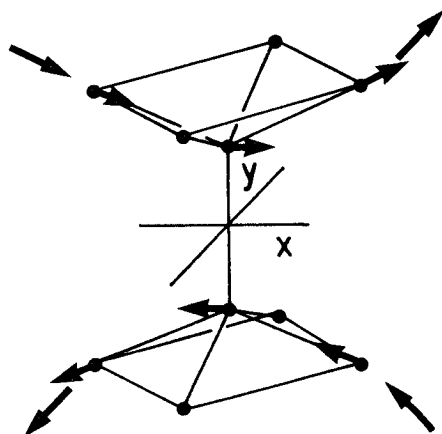


Abb. 2.8a: Koppelung der  $E_g$ -Mode an  $\langle 100 \rangle$ -Scherung /7/.

der Drehwinkel der Hantel dem 20-fachen des makroskopischen Scherwinkels entspricht. Der Kristall ist also sehr weich gegen eine  $\langle 100 \rangle$ -Scherung, das heißt, die elastische Konstante  $c_{44}$  ist stark abgesenkt. Das durch die  $\langle 100 \rangle$ -Scherung induzierte Verschiebungsfeld der Atome der Defektregion entspricht dem Eigenvektor der  $E_g$ -Mode (vergl. Abb. 2.3b und 2.8a). Man sagt, die  $E_g$ -Mode koppelt an die  $\langle 100 \rangle$ -Scherung. Diese Koppelung ist eine Folge der tetragonalen Symmetrie der  $\langle 100 \rangle$ -Hantel. In diesem Sinne koppelt eine  $B_{1g}$ -Mode an eine  $\langle 110 \rangle$ -Scherung, wie in Abb. 2.8b dargestellt. Diese Scherung führt nicht zu einer Verschiebung der Hantelatome, daher kann nur eine Nächste-Nachbar-mode ankoppeln. Die stark zur Absenkung der effektiven Rückstellkräfte beitragende Vorspannung der Feder zwischen den Hantelatomen kommt nicht zum Tragen. Daraus folgt die höhere Frequenz der  $B_{1g}$ -Mode gegenüber der  $E_g$ -Mode und die kleinere Änderung des Schermoduls  $c' = \frac{1}{2} (c_{11} - c_{12})$  gegenüber  $c_{44}$ .

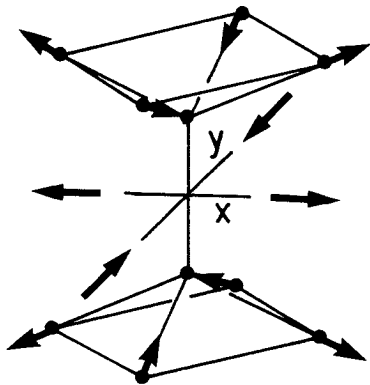


Abb. 2.8b: Koppelung der  $B_{1g}$ -Mode an die  $\langle 110 \rangle$ -Scherung /7/.

Wenn Einzelzwischengitteratome in Stufe  $I_{D/E}$  beweglich werden, können sich Doppelzwischengitteratome bilden. Deren stabile Konfiguration besteht nach Rechnungen von Johnson /19/ und Schober und Zeller /14/ im fcc-Gitter aus zwei  $\langle 100 \rangle$ -Hanteln auf nächsten Nachbarplätzen (Abb. 2.9). Interessant ist, daß abhängig vom Potential eine Verkippung der beiden Hanteln in der von ihnen gebildeten Ebene auftritt, die verbunden ist mit einer möglichen Instabilität der Resonanzmode mit der niedrigsten Frequenz dieser Defektstruktur ( $B_{2g}$ ). In Rechnungen des lokalen Schwingungsspektrums des Doppelzwischengitteratoms (Abb. 2.10) liegt diese

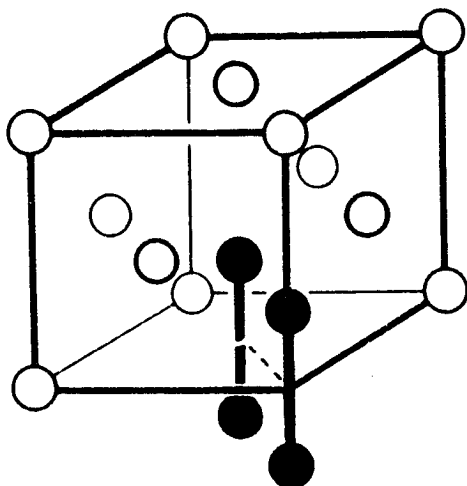


Abb. 2.9: Doppelhantel.

Mode sehr tief zwischen  $\nu = (0-0.8) \nu_{\max} / 14/$  bzw.  $\nu \approx 0.11 \nu_{\max} / 20/$ . Wie in Abb. 2.11a angedeutet, kann man sich diese Mode als Überlagerung der  $E_g$ - und  $A_{2u}$ -Mode des Einzelzwischengitteratoms vorstellen. Die nächsten, höheren Moden  $A_u$  und  $B_{3g}$  (Abb. 2.11b,c) sind im wesentlichen  $E_g$ -Moden der beiden Hanteln senkrecht zur der von ihnen aufgespannten Ebene, wobei die Hanteln gegen- bzw. gleichphasig schwingen. Auf Grund der niedrigeren Symmetrie sind alle Entartungen aufgehoben.

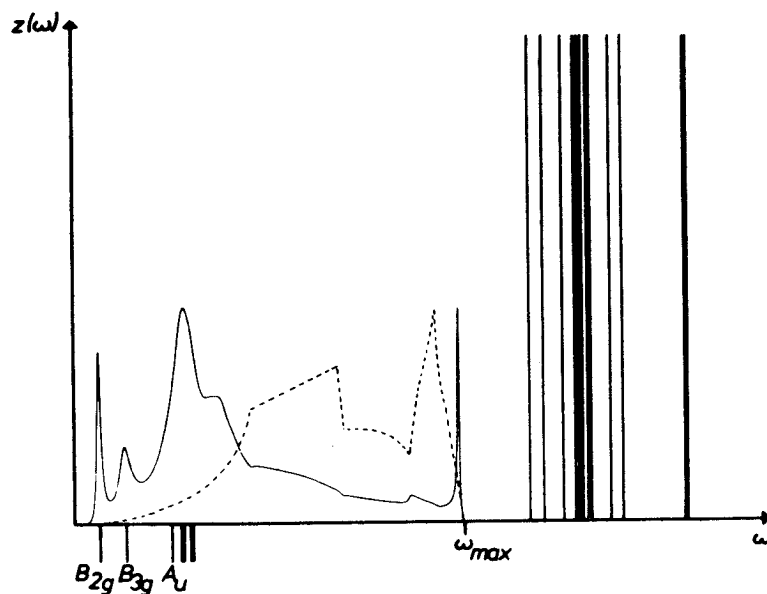


Abb. 2.10: Lokales Schwingungsspektrum eines Doppelhantelatoms /14/.

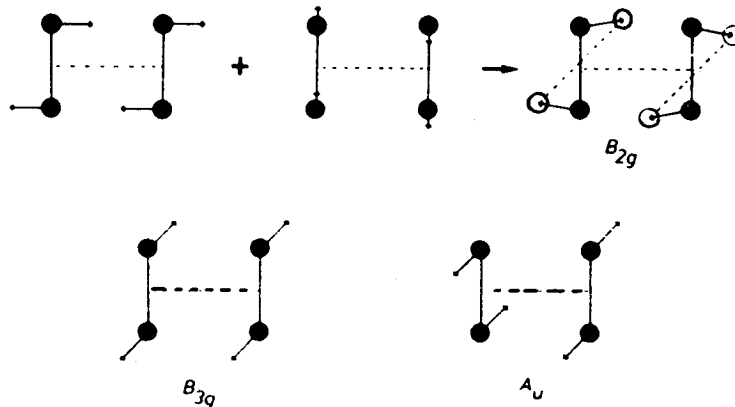


Abb. 2.11: Bewegung der Doppelhantelatome im Falle der  $B_{2g}^-$ ,  $B_{3g}^-$  und  $A_u$ -Resonanzmode.

Da die niedrigste Mode des Doppelzwischengitteratoms unter der des Einzelzwischengitteratoms liegt, erwartet man eine stärkere Polarisierbarkeit eines bestrahlten Kristalls, nachdem die Einzel- zu Doppelzwischengitteratomen agglomeriert sind, wie es experimentell auch beobachtet wird /16/.

Allerdings sollte die niederfrequente  $B_{2g}$ -Mode nicht zu einer niedrigeren Wanderungstemperatur des Doppelzwischengitteratoms führen, als für das Einzelzwischengitteratom beobachtet wird. Die Wanderung des stark gebundenen Doppelzwischengitteratoms ( $\Delta E^m \approx 1$  eV) erfolgt nämlich durch 2 aufeinanderfolgende Drehsprünge der einen Hantel zu einem anderen nächsten Nachbarplatz der zweiten Hantel /14/. Da dieser Drehsprung aus der Schwingungsebene der  $B_{2g}$ -Mode herausgeht, müssen weitere, höherfrequente Moden daran beteiligt sein, so daß die Wanderungsenergie etwas über der des Einzelzwischengitteratoms liegt /21/.

Alle Rechnungen wurden mit an Cu angepaßten Potentialen durchgeführt, doch hat bisher die Übertragung der Resultate der Rechnungen mit Cu-Potentialen auf Al zumindest qualitativ zu richtigen Aussagen geführt. Wie in Cu wurde die statische Struktur des Einzelzwischengitteratoms als  $\langle 100 \rangle$ -Hantel nachgewiesen, und auch für die oben genannte statische Struktur der Doppelhantel gibt es in Al starke Anhaltspunkte /22/. Mit Hilfe der

diffusen Röntgenstreuung konnte die Stufe  $II_1$  mit der Wanderung der Doppelzwischengitteratome in Al identifiziert werden /21/. Die Messungen der großen diaelastischen Polarisierbarkeit eines bestrahlten Al-Kristalls weisen auf die niederfrequenten Resonanzmoden des Einzelzwischengitteratoms hin /5/, und die Zunahme der Polarisierbarkeit in Al beim Ausheilen der Einzelzwischen-gitteratome in Stufe  $I_D$  kann mit der weicheren  $B_{2g}$ -Mode des Doppelzwischengitteratoms erklärt werden.

### 3. Nachweis der Resonanzmoden mittels inelastischer Neutronenstreuung

Es gibt zwei Möglichkeiten, Resonanzmoden mit Hilfe der inelastischen Neutronenstreuung nachzuweisen.

- Eine Methode ist, die Störung der Phononenlinie zu messen, die durch die Streuung der Phononen an einer Hantelmode verursacht wird. Dies ist bisher von zwei Gruppen untersucht worden, deren Ergebnisse im folgenden Abschnitt 3.1 dargestellt werden sollen.
- Die andere Möglichkeit besteht darin, die Neutronenstreuung an den Defekten selbst zu messen, was in der vorliegenden Arbeit genutzt wurde. Auf die Theorie dazu soll in 3.2 eingegangen werden.

#### 3.1 Einfluß der Resonanzmoden auf die Phononenlinie

Da die Frequenzen der Resonanzmoden innerhalb des Gitterfrequenzspektrums liegen, können sie im Gegensatz zu den hochfrequenten lokalisierten Moden an Gitterschwingungen ankoppeln. Die Streuung der Phononen an den mit  $\nu_{\text{res}}$  schwingenden Hanteln führt zu charakteristischen Änderungen der Dispersionskurve nahe der Resonanzfrequenz. Je nach Größe der Dämpfung  $\gamma$  der Resonanz und der Defektkonzentration können zwei verschiedene Effekte auftreten. Ist die Konzentration der Defekte groß und die Resonanz stark räumlich lokalisiert, tritt eine Hybridisierung der Phononenlinie ein. Im vorliegenden Fall kleiner Konzentrationen und schwacher Lokalisierung wird die Phononenlinie des ungestörten Kristalls, wie in Abb. 3.1a gezeigt, unterhalb von  $\nu = \nu_{\text{res}}$  zu kleineren und oberhalb zu größeren Frequenzen hin verschoben. Die Verschiebung  $\Delta\nu$  ist proportional zur Konzentration  $c$  der Defekte im Kristall, was bei den kleinen, experimentell erreichbaren Werten von  $c \approx 500$  ppm eine sehr hohe Energieauflösung des Spektrometers erfordert.

Bisherige Nachweisversuche der Resonanzmode mit Hilfe der inelastischen Neutronenstreuung an bestrahlten Cu und Al Kristallen hatten zum Ziel, diese Verschiebung  $\Delta v$  nahe dem theoretisch berechneten  $q_{\text{res}}$  zu messen. Dazu werden am 3-Achsen-Spektrometer "constant-q-scans" (Abb. 3.1b) gemacht, d.h. Schnitte parallel zur  $v$ -Achse durch die Dispersionskurve bei verschiedenen  $q$ . Aus dem Vergleich dieser Scans für bestrahlten und ausgeheilten Kristall erhält man  $\Delta v$ , das für den Scan  $q = q_{\text{res}}$  verschwinden sollte und  $v_{\text{res}}$  liefert. Die Änderung der Anfangssteigung der Dispersionskurve entspricht der Änderung der elastischen Konstanten.

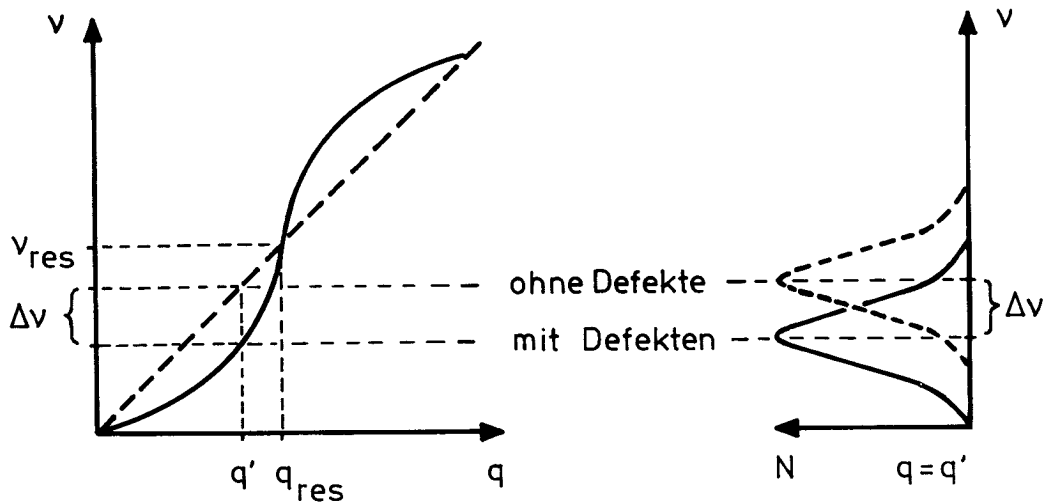


Abb. 3.1a: Störung der Phononendispersionskurve durch Resonanzmode mit  $v_{\text{res}}$ .

Abb. 3.1b:  $\Delta v$  aus den zwei constant- $q'$ -scans für Kristall mit und ohne Defekte.

Die Untersuchungen an Cu wurden in Oak Ridge (ORNL) von Nicklow et al. /12/ durchgeführt. Die Probe wurde mit 60 % thermischen und 40 % schnellen Neutronen bis zu einer Frenkeldefektkonzentration von 120 ppm bestrahlt. Die constant- $q$ -scans durch den transversalen Phononenzweig in einem Bereich  $(0, 0, 0.04)\frac{2\pi}{a} < q < (0, 0, 0.2)\frac{2\pi}{a}$  zeigten unerwarteterweise das Auftreten zweier eng benachbarter Peaks. Die Energieauflösung betrug bei diesen Messungen 0.03 THz. Für den niederfrequenten Peak wurden in Abb. 3.2 die Frequenzverschiebungen über  $q$  aufgetragen, wie sie sich zwischen dem bei 4 K bestrahlten und dem anschließend bei 72 K getemperten Kristall ergaben. Es kann daraus ein  $q_{\text{res}} = (0, 0, 0.1)\frac{2\pi}{a}$  bestimmt werden mit einer zugehörigen Resonanz-

frequenz der Hantel von  $\nu_{\text{res}} = 0.8$  THz. Dies steht in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Ergebnissen. Allerdings wird die Interpretation dadurch erschwert, daß die Beiträge des zweiten Peaks, der bei höheren Frequenzen liegt und auch nach Tempern der Probe bei 72 K nicht ausheilt, korregiert werden müssen. Seine Bedeutung konnte nicht endgültig geklärt werden, doch äußern die Autoren die Vermutung /11/, er könnte auf die Bestrahlung mit schnellen Neutronen zurückzuführen sein. Dabei entstehen nicht nur Einzelzwischengitteratome sondern ein ganzes Spektrum von Mehrfachdefekten.

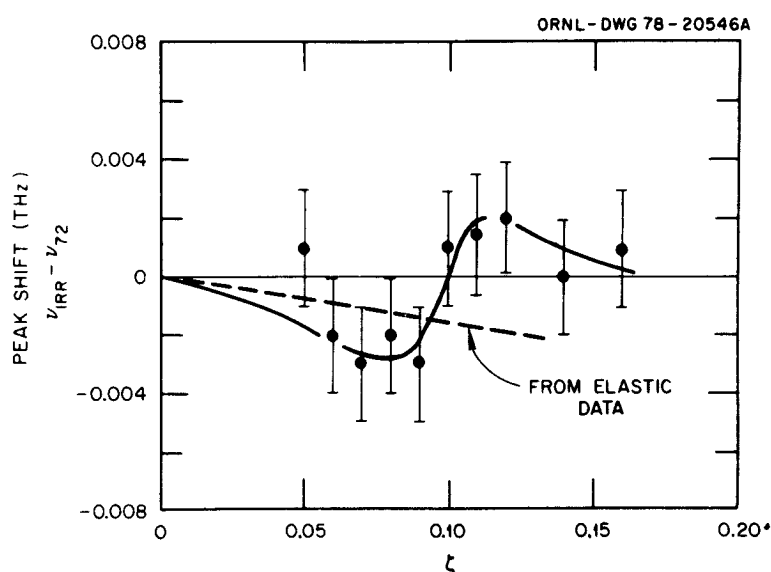


Abb. 3.2: Verschiebung der Phononenlinie von bestrahltem Kupfer /12/.

Die Untersuchungen an Al wurden von Böning et al. /11/ durchgeführt. In zwei Experimenten wurden Proben bis zu einer Konzentration von 810 bzw. 510 ppm Frenkeldefekte mit schnellen Neutronen bestrahlt. Die constant-q-scans wurden mit einer Energieauflösung von 0.02 - 0.11 THz ebenfalls an transversalen Phononen in  $\langle 001 \rangle$ -Richtung gemessen. In Abb. 3.3 sind die Verschiebungen der Phononenlinie zwischen dem bestrahlten Kristall ( $c = 510$  ppm) und dem bei Raumtemperatur vollständig ausgeheilten aufgetragen. (Die Verschiebungen wurden auf die ungestörte Phononenlinie normiert).

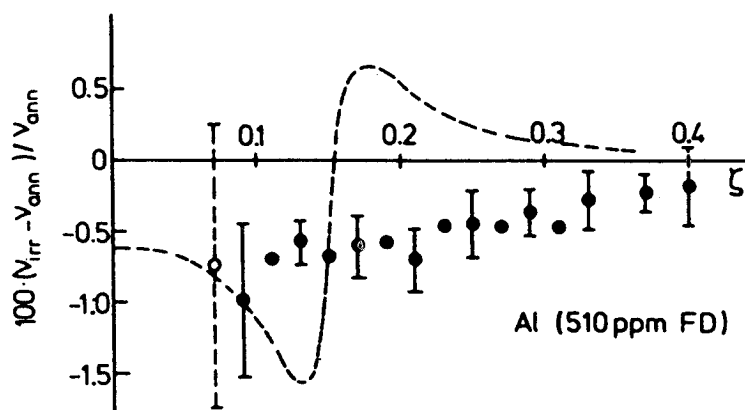


Abb. 3.3: Verschiebung der Phononenlinie von bestrahltem Aluminium nach [11].

Im Gegensatz zum Experiment an Cu wurde eine einfache Absenkung der Phononenlinie beobachtet, die linear mit der Defektkonzentration ging. Die Autoren äußern die Vermutung, das Ausbleiben der resonanzartigen Störung der Phononenlinie könnte auf das Auftreten mehrerer Resonanzen in dem untersuchten Frequenzbereich zurückzuführen sein, deren Überlagerung zu der beobachteten einfachen Absenkung führen würde. Diese Resonanzen könnten zu unterschiedlichen Defekttypen gehören, wie sie nach der Bestrahlung mit schnellen Neutronen vorliegen.

Beide Experimente zeigen somit zwar einen Einfluß der bestrahlungsinduzierten Defekte auf die Dispersionskurve, der auf die Streuung der Phononen an den Hantelschwingungen zurückgeführt werden muß. In der quantitativen Auswertung ergeben sich allerdings Schwierigkeiten, die eine eindeutige Bestätigung der Theorie zur Dynamik von Einzel- und Doppelzwischengitteratomen in Al und Cu noch nicht erlauben. Beide Autoren sahen eine mögliche Erklärung für ihre nicht mit der Theorie vereinbarten Beobachtung in der Defekterzeugung mit schnellen Neutronen, den von diesen erzeugten hohen lokalen Defektdichten in den Verlagerungskaskaden und der daraus folgenden Gegenwart von Einzel- und Mehrfachdefekten.

### 3.2 Diffuse, inelastische Neutronenstreuung am Kristall mit Defekten

Auf Grund der Schärfe der Resonanz im lokalen Schwingungsspektrum eines Hantelatoms kann diese Mode in nullter Näherung als Einsteinoszillator aufgefaßt werden, der dispersionslos schwingt. Daraus ergibt sich für einen Energieübertrag  $E = h\nu_{\text{res}}$  diffuse Streuintensität bei allen Wellenzahlvektoren  $q$  (Abb. 3.4). Diese ist, da jede Hantel unabhängig streut, proportional der Defektzahl. Geht man über das Bild des Einsteinoszillators hinaus und berücksichtigt das Mitschwingen der Nachbaratome der Hantel, so ergibt sich eine für jede Schwingungsmode charakteristische  $q$ -Abhängigkeit der Streuintensität (Strukturfaktor). Dies bietet die Möglichkeit, Schwingungsmoden nicht nur durch ihre Frequenz zu trennen, sondern auch nach dem unterschiedlichen Verlauf der Streuintensität im  $Q$ -Raum. Hierfür muß zunächst die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung vom Energie- und Impulsübertrag für jede Resonanzmode berechnet werden. Dann werden für jedes gemessene  $q$  die Beiträge aller im gemessenen Frequenzbereich liegenden Moden unter Berücksichtigung der Energieauflösung aufaddiert. Benutzt man die Frequenzlage der Moden als Fitparameter (unter Beibehaltung der berechneten Frequenzfolge) kann aus dem Vergleich mit dem Experiment auf die Frequenzlage der verschiedenen Moden geschlossen werden.

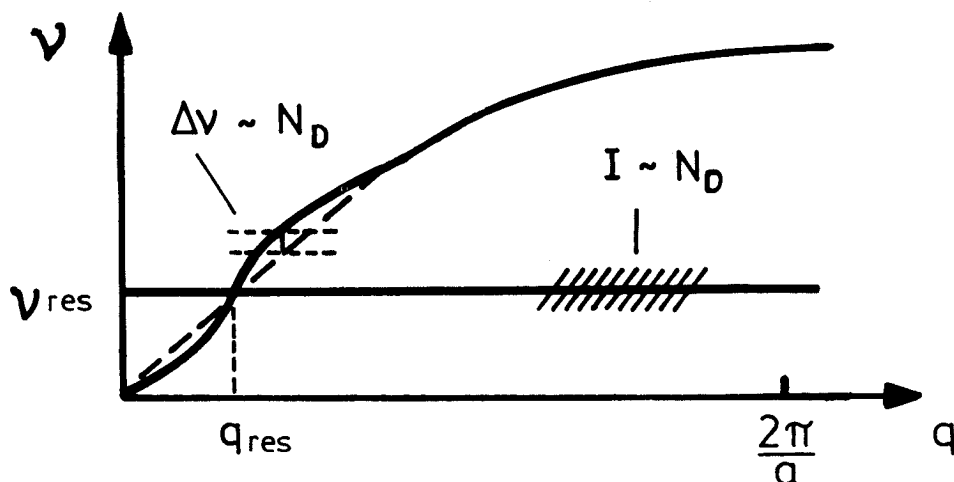


Abb. 3.4: Phononendispersionskurve mit Resonanzmode als Einsteinoszillator mit  $\nu_{\text{res}}$ .

Im folgenden soll zunächst der Wirkungsquerschnitt der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung für die einzelnen Moden separat berechnet werden.

### 3.2.1 Berechnung des Wirkungsquerschnitts

Nach /1/ wird von dem doppelt differentiellen Wirkungsquerschnitt für kohärente, inelastische 1 Phononen Streuung an einem Kristall aus N Atomen ausgegangen. Dafür gilt in Born'scher Näherung und zugrunde legen einer harmonischen Schwingungstheorie

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\gamma}_{1Ph} = \frac{k_f}{k_i} \frac{h}{\pi} \frac{a^2 e^{-2W}}{1 - e^{-\frac{h\nu}{kT}}} \sum_{\substack{m,n \\ i,j}}^N e^{i\mathbf{Q}(\mathbf{R}^m - \mathbf{R}^n)} Q_i < \text{Im } G_{i,j}^{m,n}(\nu) > Q_j \quad (1)$$

Diese Beziehung gilt für Energieverlust des Neutrons, so daß  $h\nu = \frac{\hbar^2}{2m} (k_i^2 - k_f^2) > 0$ , wobei  $\underline{k}_f$  und  $\underline{k}_i$  die Wellenzahlvektoren des aus- bzw. einlaufenden Neutrons sind und  $\hbar \mathbf{Q} = \hbar(\underline{k}_i - \underline{k}_f)$  der Impulsübertrag. Mit  $\underline{R}^m$  und  $\underline{R}^n$  werden die Ruhelagen der Atome m und n bezeichnet. Diese unterscheiden sich von den Atomruhelagen im idealen Kristall  $\underline{R}_0$  durch die statischen Verschiebungen  $\underline{R}_{st}$ , die durch den Einbau der Hantel in den perfekten Kristall erzeugt werden. a ist die kohärente Streulänge der Kristallatome und  $e^{-2W}$  der Debye-Waller Faktor.  $(1 - \exp(-\frac{h\nu}{kT}))^{-1}$  gibt die Besetzungszahl der Schwingung mit der Frequenz  $\nu$  bei der Temperatur T an. Die dynamische Greenfunktion  $G_{i,j}^{m,n}(\nu)$  beschreibt, wie stark sich das Atom m in Richtung i verschiebt, wenn auf das Atom n in Richtung j eine Einheitskraft der Frequenz  $\nu$  wirkt. Sind die Defekte statistisch verteilt und ist die Konzentration klein, kann in einer Einzeldefektnäherung gerechnet werden. Der

Wirkungsquerschnitt für diffuse, inelastische Neutronenstreuung an den Defekten selbst ist dann proportional der Defektzahl und der über die drei <100>-Hantellagen gemittelten Greenfunktion eines Kristalls mit nur einem Defekt. Diese Näherung gilt nur für Messungen weit weg von der Phononenlinie und nur dort soll gemessen werden bei  $\nu \approx \nu_{\text{res}}$  und einem entsprechend großen  $Q$ . Für Frequenzen  $\nu$  nahe der Resonanzfrequenz  $\nu_{\text{res}}$  und für Atome bis zu einem nicht zu großen Abstand vom betrachteten Defekt kann diese Greenfunktion mit Hilfe der Elemente des Eigenvektors  $\underline{v}$  zu dieser Resonanzfrequenz  $\nu_{\text{res}}$  geschrieben werden als (s. Anhang)

$$\langle G_{i,j}^{m,n}(\nu \approx \nu_{\text{res}}) \rangle = \frac{1}{3} \sum_{\eta=1}^2 \sum_{\alpha=1}^3 \frac{v_{\eta,\alpha}^{m,i}(\nu_{\text{res}}) v_{\eta,\alpha}^{n,j}(\nu_{\text{res}})}{M(\nu_{\text{res}}^2 - \nu^2 - i \gamma \nu)} \quad (2)$$

Die Summe über  $\eta$  berücksichtigt mögliche Entartungen ( $E_g$ -,  $E_u$ -Mode), und die Mittelung über  $\alpha$  trägt den drei Raumlagen der Hantel Rechnung.  $\gamma$  ist die Dämpfung der Resonanz.  $M$  ist die Masse eines Gitteratoms. Damit ergibt sich der doppelt differentielle Wirkungsquerschnitt für diffuse, inelastische Neutronenstreuung für Frequenzen  $\nu \approx \nu_{\text{res}}$  und  $Q$ -Werten weit weg von der Phononenlinie zu

$$\left. \frac{d^2 \sigma}{d\Omega d\nu} \right|_{\nu \approx \nu_{\text{res}}} = \frac{N_d}{M} \frac{k_f}{k_i} \frac{h}{\pi} \frac{a^2 e^{-2W}}{1 - e^{-\frac{h\nu}{kT}}} \underbrace{\frac{1}{3} \sum_{\eta=1}^2 \sum_{\alpha=1}^3 \left| \sum_m^{N_{\text{max}}} \underline{Q} \underline{v}_{(\nu_{\text{res}})}^m e^{i \underline{Q} \underline{R}^m} \right|^2}_{S(\nu_{\text{res}}, \underline{Q})} \cdot$$

$$\frac{\gamma \nu}{(\nu_{\text{res}}^2 - \nu^2)^2 + \gamma^2 \nu^2}$$

Die Summe über  $m$  läuft über eine vorzugebende Zahl  $N_{\text{max}}$  von Atomen, die sich aus den beiden Hantelatomen und deren mitschwingenden Nachbaratomen zusammensetzt.

Der Wirkungsquerschnitt läßt sich aufspalten in einen Faktor, in den im wesentlichen nur Konstanten eingehen, den Besetzungsfaktor, der bei der Meßtemperatur von 6 K für alle hier interessierenden

Frequenzen  $\nu > 0.5$  THz ungefähr 1 ist, das schwach frequenzabhängige Verhältnis der Wellenzahlvektoren, den Lorentzfaktor und den vom Impulsübertrag abhängenden, modenspezifischen Strukturfaktor  $S_{(\nu_{\text{res}}, \underline{Q})}$ , der im nächsten Kapitel besprochen wird. Da die experimentelle Energieauflösung wesentlich breiter ist ( $\Delta\nu = 0.36$  THz) als die Resonanzlinien der Moden ( $\Delta\nu \approx 0.1$  THz), wird in  $\nu = \nu_{\text{res}}$  die gesamte Intensität der Lorentzlinie gemessen. Das heißt, der doppelt differentielle Wirkungsquerschnitt kann um  $\nu = \nu_{\text{res}}$  integriert werden. Da die Beiträge der Lorentzlinie für sehr kleine und sehr große Frequenzen stark abnehmen, können die Integrationsgrenzen bis  $\nu = 0$  und  $\nu = \infty$  ausgedehnt werden:

$$\int_0^{\infty} \frac{\nu \gamma}{(\nu_{\text{res}}^2 - \nu^2)^2 + \nu^2 \gamma^2} d\nu = \frac{\pi}{2} \frac{1}{\nu_{\text{res}}}$$

Damit ergibt sich der einfach differentielle Wirkungsquerschnitt einer Mode für Messungen bei ihrer Resonanzfrequenz  $\nu = \nu_{\text{res}}$  zu

$$\left. \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_{\nu=\nu_{\text{res}}} = \frac{k_f}{k_i} \frac{N_d}{M} \frac{h}{2} \frac{a^2 e^{-2W}}{1 - e^{-\frac{h\nu_{\text{res}}}{kT}}} S_{(\nu_{\text{res}}, \underline{Q})} \frac{1}{\nu_{\text{res}}} \quad (4)$$

### 3.2.2 Q-Abhängigkeit des Strukturfaktors

Der Strukturfaktor  $S_{(\nu_{\text{res}}, \underline{Q})}$  bestimmt für jede Resonanzmode den Verlauf des Wirkungsquerschnitts im reziproken Raum.

$$S_{(\nu_{\text{res}}, \underline{Q})} = \frac{1}{3} \sum_{\eta=1}^2 \sum_{\alpha=1}^3 \left| \sum_m^{N_{\text{max}}} \underline{Q} \frac{\nu_{\eta, \alpha}^m}{\nu_{\text{res}}} e^{i \underline{Q} \underline{R}^m} \right|^2 \quad (5)$$

Er besteht aus der Fouriertransformierten des Skalarprodukts des Impulsübertrags  $\underline{Q}$  mit dem Eigenvektor  $\underline{v}_{(v_{res})}$  der Mode. Es wird über die Entartungen summiert und über die drei möglichen Lagen der  $\langle 100 \rangle$ -Hantel gemittelt.

Zur Berechnung des Strukturfaktors einer Mode wird also deren Eigenvektor  $\underline{v}$  benötigt. Dieser kann mit verschiedenen Methoden berechnet werden.

Im ersten Fall geschieht dies in einer statischen Näherung. In einem Modellkristall mit einem der oben genannten zwischenatomaren Potentiale werden die Hantelatome gemäß der jeweiligen Mode ausgelenkt und das umgebende Restgitter kann ins Energieminimum relaxieren. Da die reale Schwingungsamplitude der Atome natürlich temperaturbestimmt ist und die in die Rechnung eingehende Auslenkung der Hantelatome willkürlich angenommen ist, geht in die spätere Rechnung nur das Verhältnis der Verschiebung des Restgitteratoms zur Auslenkung des Hantelatoms ein, die diese Verschiebung hervorgerufen hat. Dieses Verhältnis wird als Relaxationsmode  $\underline{u}^R(v_{res})$  bezeichnet. Im Anhang ist erläutert, wie die statischen Relaxationsmoden  $\underline{u}^R$  mit den Eigenvektoren  $\underline{v}_{(v_{res})}$  zusammenhängen.

Der Nachteil dieser Methode ist, daß sie nur auf niederfrequente Moden angewendet werden kann (statische Näherung). In der zweiten allgemeineren Methode bestehen diese Einschränkungen nicht. Dabei wird für einen Modellkristall die dynamische Matrix diagonalisiert und damit werden sowohl die Eigenfrequenzen als auch deren Eigenvektoren für alle Freiheitsgrade des Kristalls berechnet.

Die hier verwendeten Eigenvektoren und Frequenzen wurden von H. Schober mit Hilfe eines Kristalls aus  $N = 290$  Atomen mit einer  $\langle 100 \rangle$ -Hantel (bzw. Doppelhantel) im Zentrum berechnet. Dieser Kristall war eingebettet in einem größeren Kristall aus 1300 statisch relaxierten Atomen, die wiederum von 2700 auf ihren idealen Gitterplätzen fixierten Atomen umgeben waren. Der Nachteil dieser Methode ist, daß sie sehr hohe Rechnerkapazitäten erfordert und daher nur kleine Mo-

dellkristalle berechnet werden können. Dadurch kann nicht ausgeschlossen werden, daß Randeffekte das Schwingungsverhalten der Atome beeinflussen. Diese Störung kann allerdings minimiert werden, indem nur die Hantelatome und ihre unmittelbaren Nachbaratome in der Fouriersumme zur Berechnung des Strukturfaktors mitgenommen werden. Da die Resonanzmoden ohnehin nicht weit ins Gitter ausstrahlen (s. Kapitel 2) sollte der durch ein zu frühes Abschneiden der Fouriersumme begangene Fehler klein sein.

Beide hier besprochenen Methoden liefern einen sehr ähnlichen Verlauf des Strukturfaktors. In Abb. 3.5 wurde der Strukturfaktor der  $E_g$ -Mode aus 20 Atomen einmal mit Hilfe der statischen Relaxationsmoden  $\underline{u}$  berechnet (a) und einmal über den Eigenvektor  $\underline{v}$  (b).

Da die Eigenvektoren das Schwingungsverhalten jedoch genauer beschreiben sollten und vor allem eine Berechnung des Strukturfaktors auch von höherfrequenten Moden und Nicht-Hantelmoden ermöglichen, wird im weiteren ausschließlich auf diese Methode zurückgegriffen.

Im folgenden sollen nun charakteristische Beispiele für den Verlauf des Strukturfaktors verschiedener Moden auch unter Verwendung der unterschiedlichen Potentiale dargestellt werden. Alle Rechnungen wurden für eine  $(0\bar{1}1)$ -Streuebene durchgeführt.

Der Verlauf des Strukturfaktors für eine Mode hängt nur schwach vom interatomaren Potential des Modellkristalls ab. Dies zeigt ein Vergleich der Abb. 3.5b (einfaches Morse-Potential), 3.5c (modifiziertes Morse-Potential) und 3.5d (Aluminium-Potential).

Neben Gebieten niedriger Intensität bei kleinen  $Q$ -Werten tritt parallel zu einer Geraden vom (200)- über den (111)- zum (022)-Reflex ein Intensitätsrücken mit drei Maxima auf.

Die  $\langle 100 \rangle$ -Richtung zeigt nur sehr niedrige Intensität. Dieser Verlauf des Strukturfaktors wird durch die Symmetrie der  $E_g$ -Mode vorgegeben. Da die Schwingungssymmetrie gerade ist ( $\underline{v}(\underline{R}) = -\underline{v}(-\underline{R})$ ) interferiert die Streuamplitude auf  $\langle 100 \rangle$ -Achsen destruktiv. Die Maxima stammen aus der Interferenz der Streubeiträge der vier nächsten Nachbaratome der Hantel in der Schwingungsebene.

Die Details des Potentials bestimmen lediglich die genaue Lage und exakte Höhe der Maxima. Im Falle des einfachen Morse-Potentials (Abb. 3.5b), das ein zu großes Relaxationsvolumen für das Einzelzwischengitteratom ergibt, liegt z.B. das Maximum bei etwa (1.75, 0.5, 0.5) weiter innen in  $\langle 100 \rangle$ -Richtung als beim modifizierten Morse-Potential (Abb. 3.5c) (1.86, 0.5, 0.5), das an das Relaxationsvolumen angepaßt worden ist und kleinere statische Verschiebungen liefert. Daß die Größe der Verschiebungen die Lage der Maxima beeinflusst, zeigt sich auch daran, daß sich dieses Maximum in Rechnungen ganz ohne Verschiebungen noch weiter außen auf Höhe des (200)-Reflexes befindet (Abb. 3.5e). Die Verschiebung des Maximums führt auch zu einem unterschiedlich steilen Abfall des Maximums in  $\langle 011 \rangle$ -Richtung.

Vergleicht man den Strukturfaktor der  $E_g$ -Mode mit dem der  $E_u$ -Mode (Abb. 3.5f) wird offensichtlich, daß es die Symmetrie der Schwingung ist, die den Verlauf des Strukturfaktors wesentlich bestimmt. Diese Mode besitzt ungerade Symmetrie  $\underline{v}(\underline{R}) = -\underline{v}(-\underline{R})$ . Die  $\langle 100 \rangle$ -Achsen zeigen konstruktive Interferenz mit Maxima an den Braggreflexen. Diese charakteristischen Unterschiede in den Strukturfaktoren jeder Mode bieten die Möglichkeit, die Resonanzen nicht nur auf Grund ihrer Frequenzabhängigkeit, sondern auch durch ihren unterschiedlichen Intensitätsverlauf im Q-Raum zu trennen.

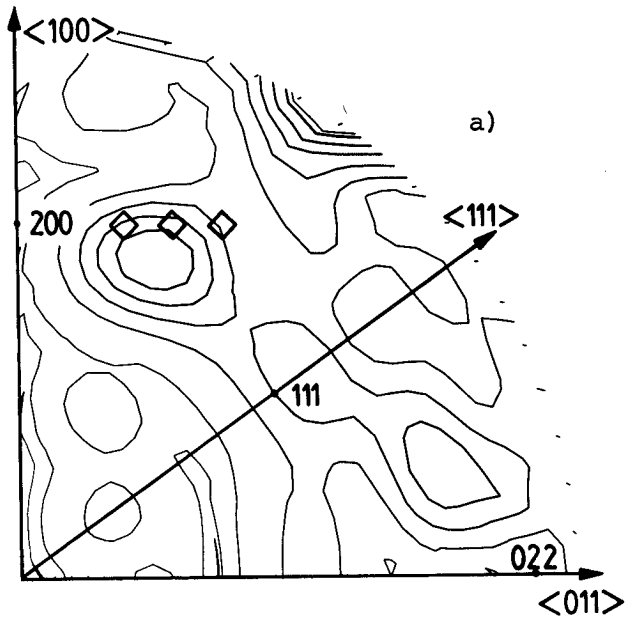


Abb. 3.5: Strukturfaktor der  $E_g$ -Mode berechnet mit

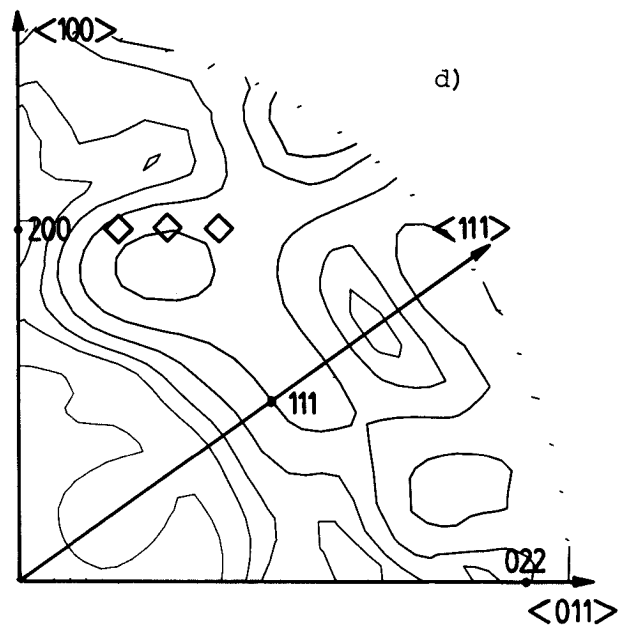
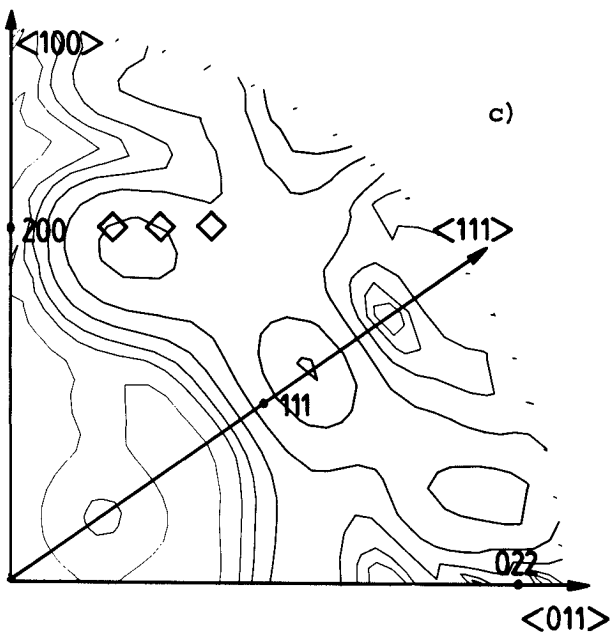
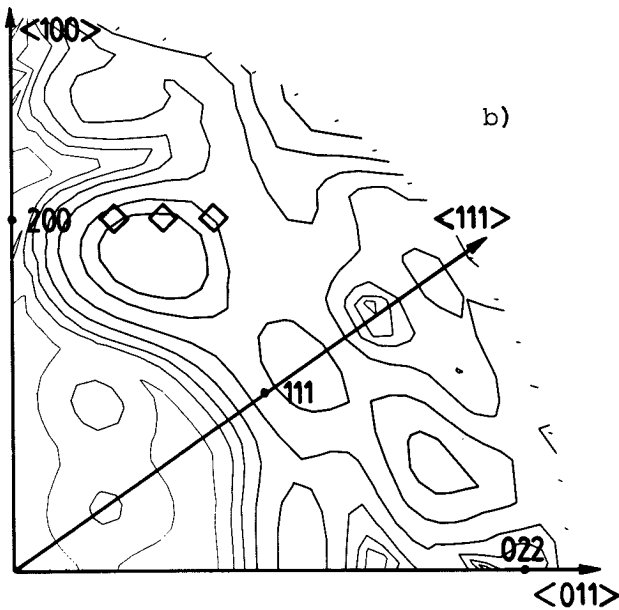
a) Relaxationsmode  
(Morse-Potential)

b) Eigenvektor  
(Morse-Potential)

c) Eigenvektor  
(modifiziertes  
Morse-Potential)

d) Eigenvektor  
(Al-Pseudopotential)

( $N_{\max} = 20$  Atome)



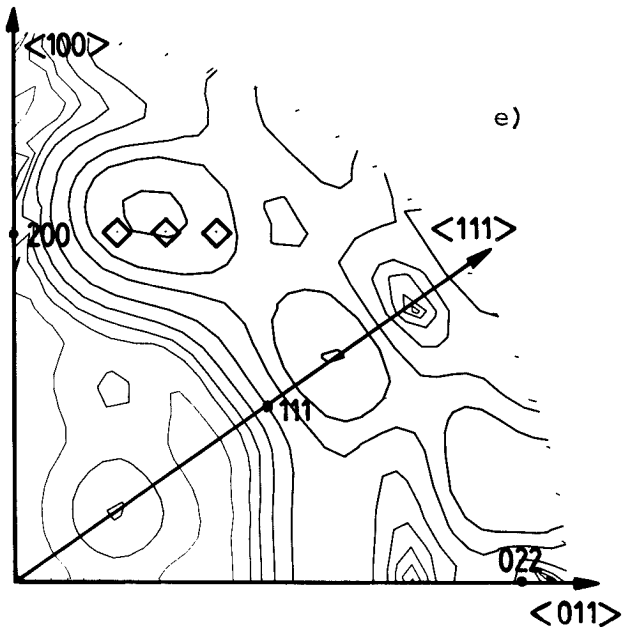


Abb. 3.5e: Strukturfaktor der  $E_g$ -Mode berechnet mit  
Eigenvektor  
(modifiziertes Morse-Potential)  
ohne statische Verschiebungen  $R_{st}$ .

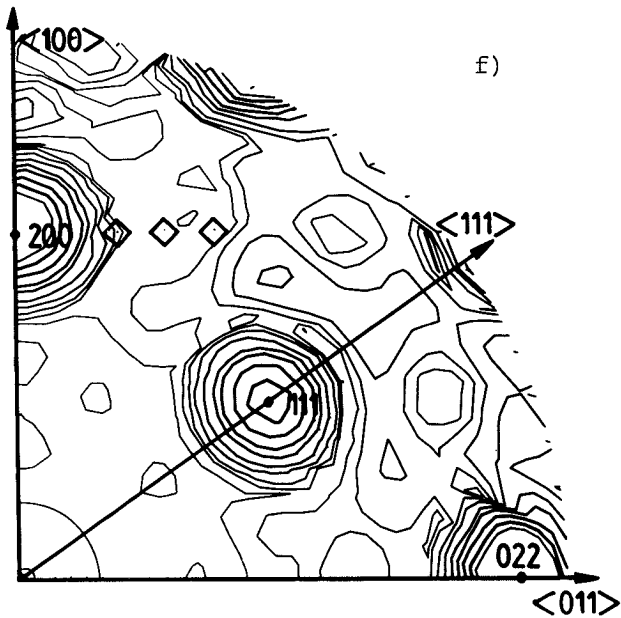


Abb. 3.5f: Strukturfaktor der  $E_u$ -Mode berechnet mit  
Eigenvektor  
(Morse-Potential).

#### 4. Experimentelle Technik

Zwei Gesichtspunkte bestimmen die experimentellen Anforderungen an die Proben.

- i) Die Bestrahlung muß mit hochenergetischen Elektronen erfolgen, um eine möglichst einfache Defektstruktur (Einzelzwingengitteratome) zu erzeugen. Die geringe Eindringtiefe der Elektronen ( $\lambda \approx 0.5$  cm bei 3 MeV  $e^-$  in Al) erfordert dünnwandige Proben.
- ii) Die nachfolgende Neutronenstreuungsmessung an derselben Probe macht jedoch massereiche Kristalle notwendig.

Einen möglichen Kompromiß, der beiden Anforderungen gerecht wird, stellt die Probenform eines Hohlzylinders dar ( $\varnothing_{\text{außen}} = 2$  cm), der während der Bestrahlung ständig gedreht wird. Bei einer Wanddicke von 0.3 cm werden die Elektronen jedoch vollständig in der Probe gestoppt und die gesamte kinetische Energie als Wärme an das Material abgegeben. Der dadurch notwendige hohe Wärmeübergang (die maximal zulässige Probentemperatur lag bei 20 K) erforderte eine Abkehr von der üblichen Kühlung mit flüssigem He. Es wurde eine spezielle Kühltechnik mit He-Gas von 10 K entwickelt. Dafür wurde die Tieftemperaturbestrahlungsanlage der KFA Jülich durch eine Expansionsturbine erweitert. Dies erlaubt in Verbindung mit dem in 4.2 beschriebenen Kryostaten, derart massereiche Proben zu bestrahlen.

Da die Elektronenbestrahlung in Jülich, die Neutronenstreuungsmessungen jedoch am Hochflußreaktor des ILL in Grenoble in ganz unterschiedlichen Kryostaten durchgeführt wurden, mußte eine spezielle Technik entwickelt werden, die Proben heliumkalt umzuschleusen und zu transportieren (Kapitel 4.2.2). Nach Abschluß der Bestrahlung konnte der Kryostat mit flüssigem Helium geflutet werden. Das Umsetzen der Probe in eine Heliumtransportkanne erfolgte mit Hilfe eines in 4.2.2 beschriebenen, für dieses Experiment entwickelten kleinen Dewars, mit dem auch das Umsetzen in den Meßkryostaten geschah. Der Innenraum dieses Kryostaten (Kapitel 4.2.3) konnte nach dem Einschleusen der Probe auf etwa 1 mbar abgepumpt werden, so daß die Untergrundstreuung

der Neutronen am Helium minimiert, die Probentemperatur über das Austauschgas aber doch bei 6 K gehalten werden konnte.

#### 4.1 Probenpräparation

Für die Neutronenstreuung wird eine einkristalline Probe benötigt, die wegen der oben genannten Bestrahlungs- und Kühlungsprobleme die Form eines Hohlzylinders hat. Die Abmessungen (7 cm Länge, 2 cm Außendurchmesser, 0.3 cm Wanddicke und  $11.1 \text{ cm}^3$  Volumen) richten sich einmal nach Gegebenheiten des Neutronen-Spektrometers (Strahlhöhe (7.5 cm) und maximaler Probendurchmesser bei fokussierender Anordnung des Analysatorkristalls (2 cm)) sowie nach der Eindringtiefe der Elektronen in Aluminium ( $\approx 0.5 \text{ cm}$  bei 3 MeV) /23/. Die Probenachse ist eine  $\langle 110 \rangle$ -Richtung.

Die Zylinder wurden im Institut für Materialentwicklung des IFF nach dem Bridgeman-Verfahren aus 5-9er Ausgangsaluminium mit dem endgültigen Außendurchmesser gezogen. Der Kern des Hohlzylinders wurde mit einer kleinen Vortriebsgeschwindigkeit von rund 0.2 mm/min funkenerosiv aus der Probe herausgeschnitten, wie auch deren weitere Bearbeitung funkenerosiv erfolgte. Die Proben wurden in heißer NaOH um rund 50  $\mu\text{m}$  abgeätzt und anschließend mit Laue-Aufnahmen die Probeninnenfläche untersucht. Sie zeigte scharfe Reflexe. Im  $\gamma$ -Spektrometer wurde eine Breite der Rockingkurve von ungefähr 10' FWHM gemessen. Das Restwiderstandsverhältnis der Proben lag bei 3000.

Um direkt an der bestrahlten Probe die Änderung des elektrischen Restwiderstandes als Maß für die Defektkonzentration messen zu können, wurde der Zylindermantel mehrmals längs über 6 bzw. 1 cm geschlitzt, wie in Abb. 4.1 dargestellt. Dies war notwendig, da wegen der anschließenden Neutronenstreuemessungen kein Draht durch die Probe gezogen werden konnte.

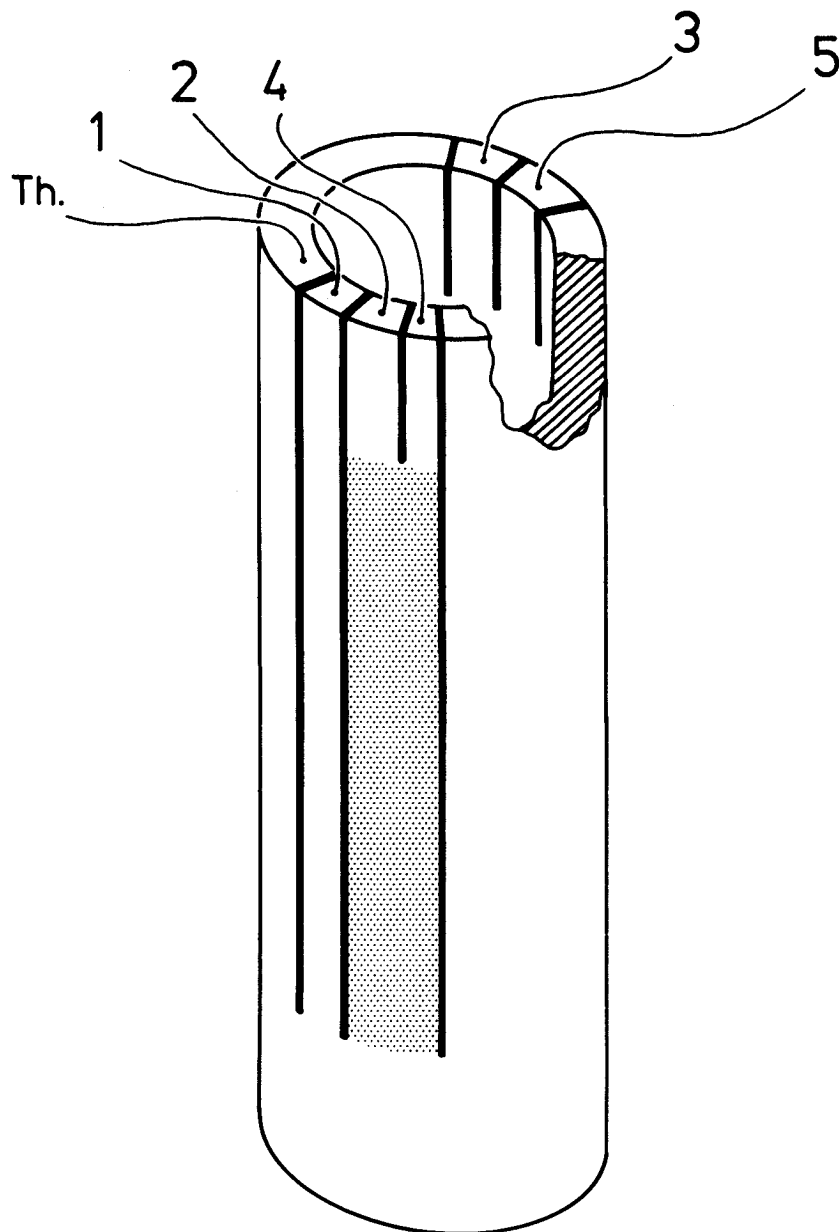


Abb. 4.1: Zylinderförmige Al-Probe mit Kontakt zur Temperaturmessung (Th) und zur elektrischen Restwiderstandsmessung:

Kontakte 4 und 5: I

Kontakte 1 und 3: U über ringförmigen Probenteil

Kontakte 1 und 2: U über stiftförmigen Probenteil.

Mit dieser Schlitzanordnung konnte der elektrische Restwiderstand mit der Vierpunktmethode über zwei unterschiedliche Probenbereiche gemessen werden. Die Restwiderstandsänderung bei Messung über den "Ring" (Kontakte 1 und 3) liefert eine gute Mittelung der Schädigung über den ganzen bestrahlten Probenbereich. Die Messung über den "Stift" (schraffiert in Abb. 4.1, Kontakte 1 und 2) ist wegen des fast einen Faktor 6 größeren Formfaktors sehr viel empfindlicher, erfaßt aber nur einen kleinen Teil der Probe. Die Kontakte wurden mit Leitsilber in Bohrungen eingeklebt. Ebenfalls am oberen Probenrand wurde zur Temperaturkontrolle ein AuFe/CrNi Thermoelement mit Tieftemperaturkleber befestigt (Th in Abb. 4.1).

## 4.2 Spezielle Kryotechnik

### 4.2.1 Bestrahlungskryostat

Abb. 4.2 zeigt eine schematische Darstellung des Bestrahlungskryostaten. Die Hauptteile des Kryostaten sind die Bestrahlungskammer (1), der Probenhalter (2), der Schwenkmechanismus (3) und das Dewar (4).

Die Bestrahlungskammer (1) besteht aus einem Edelstahlrohr (Abb. 4.3), das im Strahlbereich auf eine Wanddicke von 0.1 mm abgedreht worden ist. Der Energieverlust der Elektronen beim Eintritt wird so auf 0.15 MeV reduziert. Das Heliumgas tritt von unten in die Kammer ein und wird in 0.8 mm breiten Spalten außen und innen an der Hohlzylinderwand vorbeigeführt.

Die Probe wird im Rohr konzentrisch von je 4 Nasen des Probenkopfes bzw. des Probenfußes geführt. Am Probenkopf ist die Probe durch zwei Gewindestifte fixiert, die mit Tieftemperaturkleber vergossen sind. Der Probenfuß wird gehalten vom unteren Teil

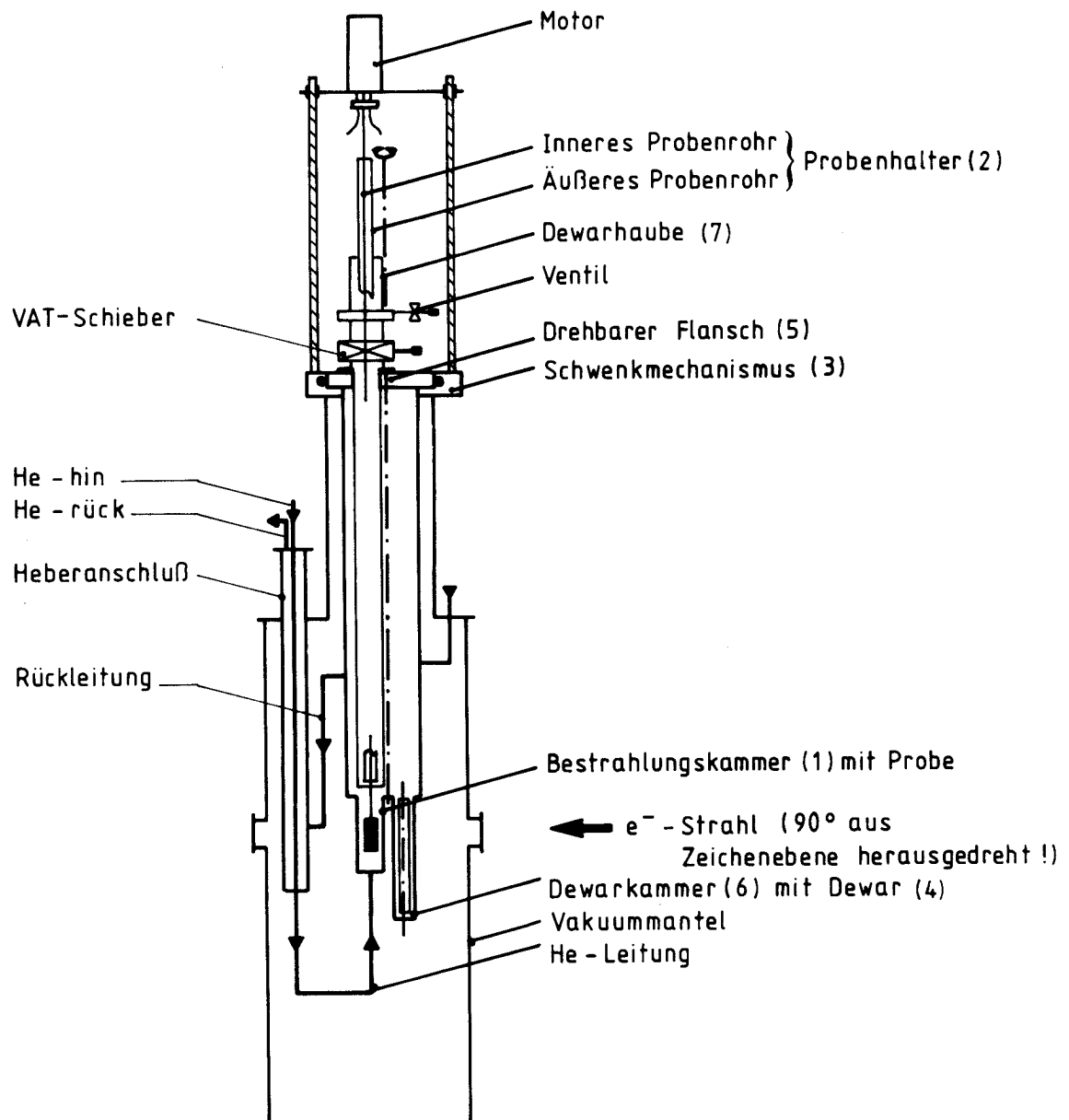


Abb. 4.2: Schematische Darstellung des Bestrahlungskryostaten mit Probe in Bestrahlungsposition.

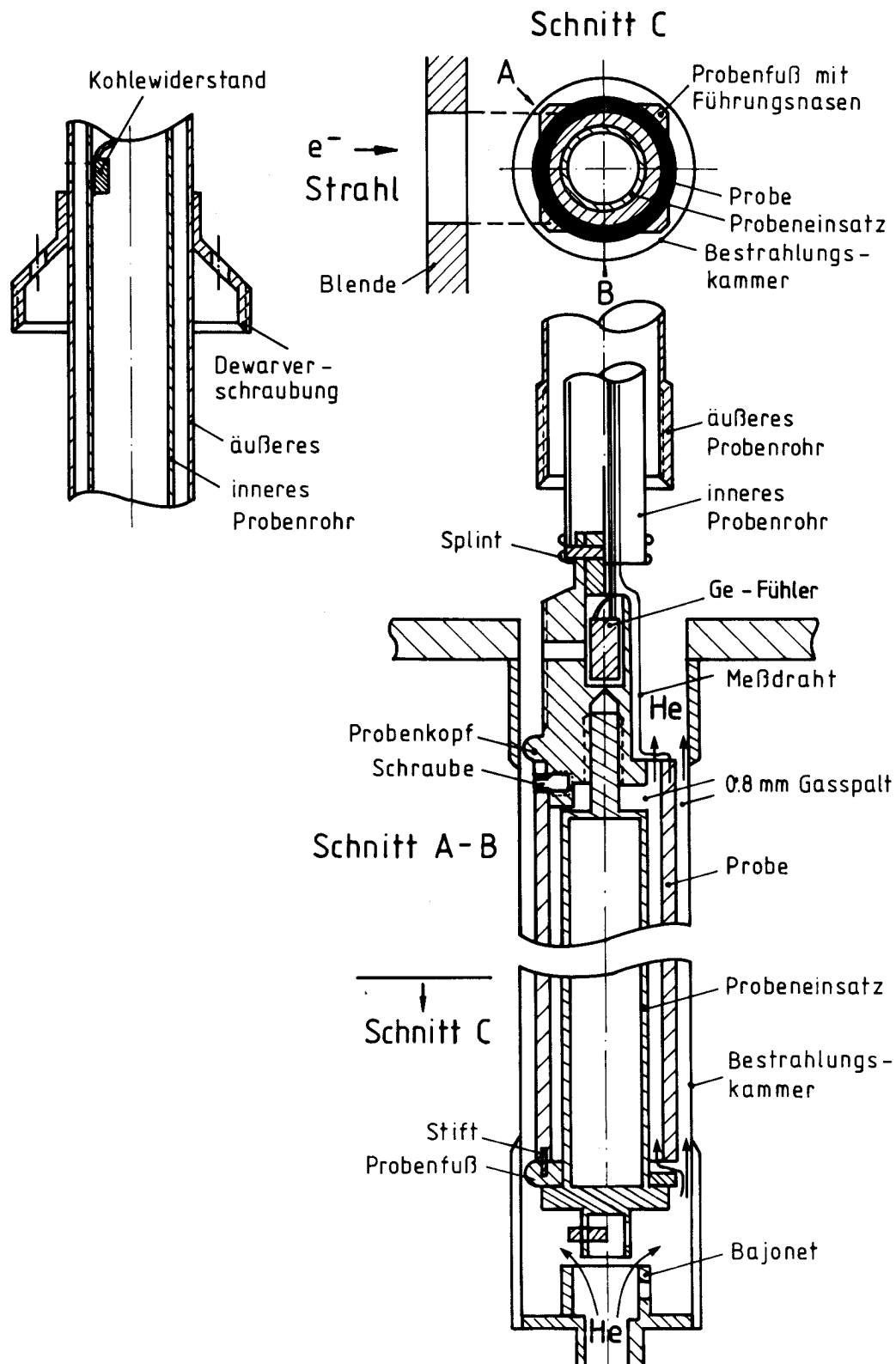


Abb. 4.3: Bestrahlungskammer mit Probenhalter und Probe.

des Probeneinsatzes und durch 2 Stifte gegen Verdrehen gegenüber der Probe gesichert. Der Probeneinsatz - er wird von unten in den Probenhalter eingeschraubt - ist notwendig, um auch im Inneren der Probe das Gas nur in einem schmalen Spalt an der Zylinderwand vorbeizuführen. Mit Hilfe des Bajonetts am Fuße der Bestrahlungskammer kann der Probeneinsatz nach Ende der Bestrahlung aus der Probe herausgeschraubt werden und verbleibt mit dem Probenfuß im Kryostaten. Die Spaltbreiten von 0.8 mm erlauben bei einem Heliummassendurchsatz von 22 g/s eine abzuführende Leistung von  $\approx 170$  Watt ( $\approx 8 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  Strahlstromdichte auf ausgeblendeten  $7 \text{ cm}^2$  Probenoberfläche). Bei einer Gastemperatur von 10 K ergibt sich für ein  $\Delta T$  von 6 K zur Probe ein Wärmeübergang von  $0.4 \text{ Watt}/\text{cm}^2\text{K}$ . Die Gastemperatur im oberen Teil der Bestrahlungskammer wird über einen geeichten Germaniumtemperaturfühler gemessen.

Wie in Abb. 4.2 und 4.3 dargestellt, besteht der Probenhalter (2) aus zwei konzentrischen dünnwandigen Edelstahlrohren. Am inneren ist der Probenkopf über einen Splint mit viel Spiel befestigt, was garantiert, daß die Probe nur von den je vier Nasen an Probenkopf und Probenfuß in der Bestrahlungskammer geführt wird.

Nach Abschluß der Bestrahlung wird der Probenkopf starr mit dem äußeren Probenrohr verschraubt. In dieser Position befindet sich ein im Innenrohr mit Tieftemperaturkleber befestigter Kohlewiderstand genau über der mit dem äußeren Probenrohr verschweißten Dewarverschraubung (Abb. 4.3). Über dieses Gewinde wird das Dewar vor dem Ausschleusen mit dem Probenhalter verbunden. Der Kohlewiderstand ermöglicht es, in der Heliumkanne den Flüssigkeitsstand über dem Dewar zu messen. Die elektrischen Zuführungen für die Restwiderstandsmessung, Germaniumfühler, Thermoelement und Kohlewiderstand verlaufen im Innenrohr, an das auch der Mitnehmer für die Motorachse angreift.

Unmittelbar vor der Probenkammer befindet sich eine wassergekühlte Blende, deren Öffnungsweite dem Probeninnendurchmesser entspricht. Dadurch wird erreicht, daß sich beim Drehen der Probe die äußere Mantelschicht nicht länger im Strahl befindet als die innere.

#### 4.2.2 Umsetztechnik

Vor Beginn der Bestrahlung wurde in die Dewarkammer (6) ein Dewar (4) eingebaut. Dies besteht aus zwei dünnwandigen Edelstahlrohren mit eingeschweißten Böden (Abb. 4.4). Um den Wandzwischenraum des Dewars zu evakuieren, wird eine kleine Bohrung im Boden des äußeren Rohres im Vakuum elektronenstrahlverschweißt. Über einen Gewindingring am oberen Rand des Dewars kann dieses mit dem Probenhalter verschraubt werden. Das Dewar ( $90 \text{ cm}^3$  fl. He) hält über 3 Minuten Flüssig-Heliumtemperatur und bis zu 10 Minuten bleibt die Probe unter 30 K.

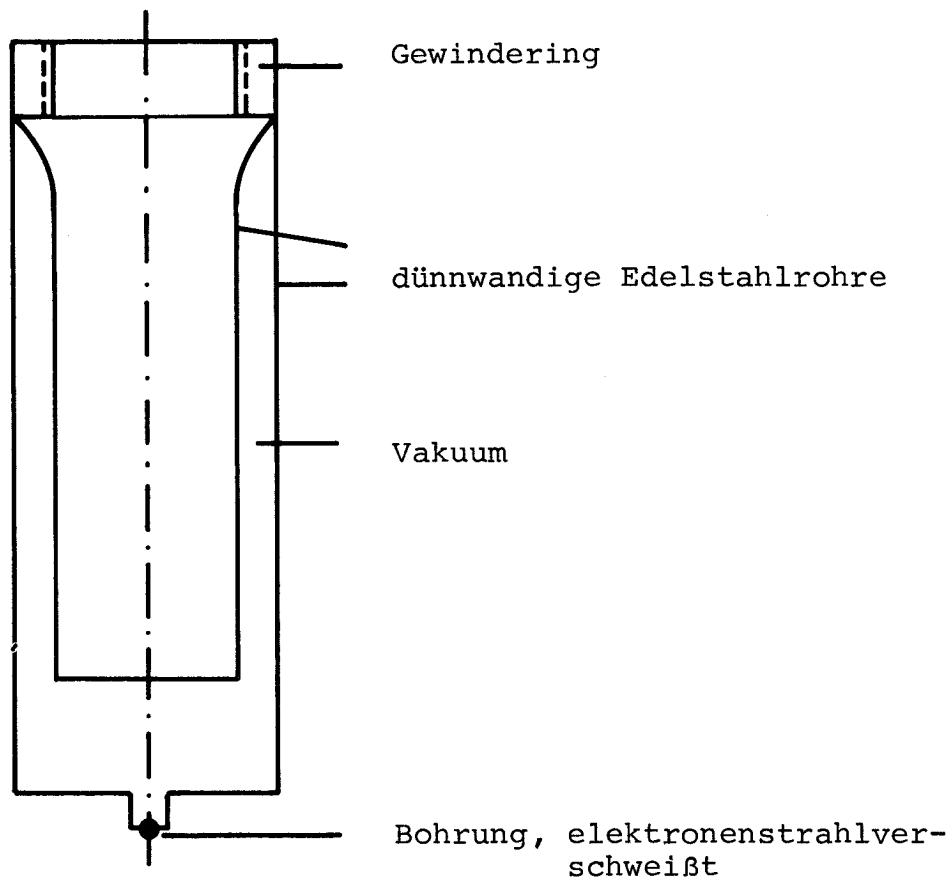


Fig. 4.4: Dewar

Nach Abschluß der Bestrahlung wird die Tieftemperaturanlage von Gas- auf Flüssigbetrieb umgestellt und danach der Kryostat bis zur Höhe der Rückleitung mit flüssigem Helium gefüllt. Der Probeneinsatz wird herausgeschraubt, die Probe aus der Bestrahlungskammer gezogen und mit dem äußeren Probenrohr verschraubt. Der

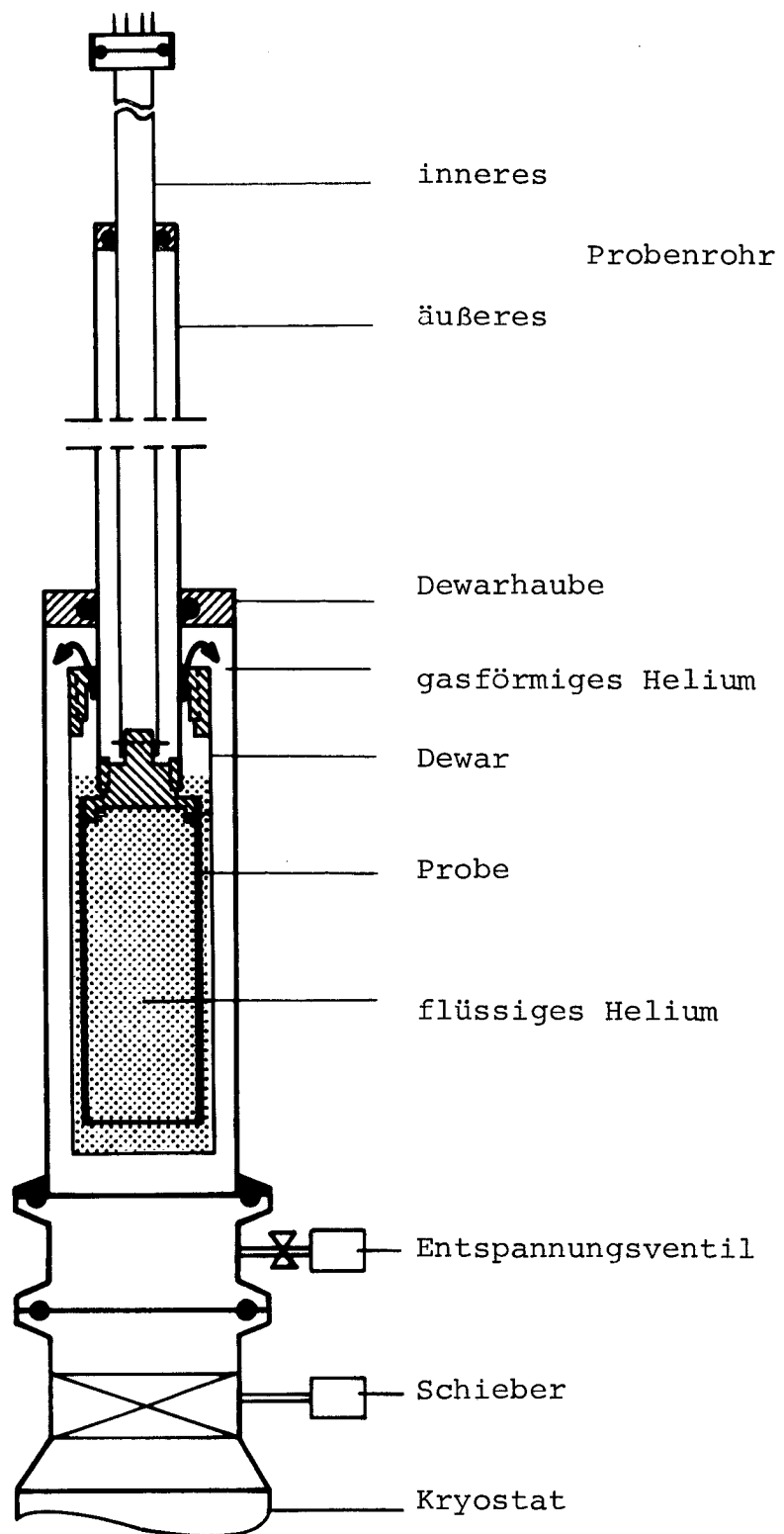


Abb. 4.5: Schematische Darstellung der Ausschleus-situation.

Schwenkmechanismus (3) wird um  $180^{\circ}$  gedreht, so daß sich das Führungsrohr mit dem Probenhalter über der Dewarkammer befindet. Die Probe wird in das Dewar abgesenkt, das anschließend mit dem äußeren Probenrohr verschraubt und in die Dewarhaube hochgezogen wird (Abb. 4.5). Durch Schließen des Schiebers zwischen Kryostat und Dewarhaube wird der Probenhalter vom Verflüssigersystem getrennt. Über das Feinventil zwischen Schieber und Dewarhaube muß der abgeschlossene Gasraum des Probenhalters vom Betriebsdruck des Verflüssigers (1.4 atm) auf Atmosphärendruck entspannt werden. Der Probenhalter kann sodann unterhalb der Dewarhaube vom Kryostaten abgeflanscht, auf eine Heliumtransportkanne umgesetzt und ins flüssige Helium abgesenkt werden. Da der Dewardurchmesser nur geringfügig kleiner als die Kannenöffnung ist, kann in jeder Kanne nur eine Probe gelagert werden. Das während der Umsetzphase aus dem Dewar verdampfende Helium strömt unten aus der Haube und verhindert das Eindringen von Luft, die sich auf der Probe niederschlagen könnte.

Die Probe kann beliebig lange in flüssigem Helium gelagert werden, da mit Hilfe eines speziellen Kannenaufsatzes flüssiges Helium nachgefüllt oder die Probe einfach wie beim Umschleusen in eine volle Kanne umgesetzt werden kann. In einer 100 Liter Heliumkanne erfolgte auch der Transport der bestrahlten Probe nach Grenoble. Um Rückdiffundieren von Luft nach Druckschwankungen zu vermeiden, wurde das verdampfte Helium über mehrere Meter lange Schläuche an die Atmosphäre abgegeben. Während des vierstündigen Hubschraubertransports oder des 16-stündigen LKW-Transportes verdampften lediglich 4 bis 5 Liter Helium. In den Meßkryostaten ist derselbe Schwenkmechanismus wie im Bestrahlungskryostaten eingebaut, so daß das Einschleusen der Probe in sinngemäß umgekehrter Reihenfolge erfolgen konnte.

#### 4.2.3 Meßkryostat

Abb. 4.6 zeigt eine schematische Darstellung des Kryostaten, dessen Hauptbestandteile der Vakuummantel (1), der Stickstoff-

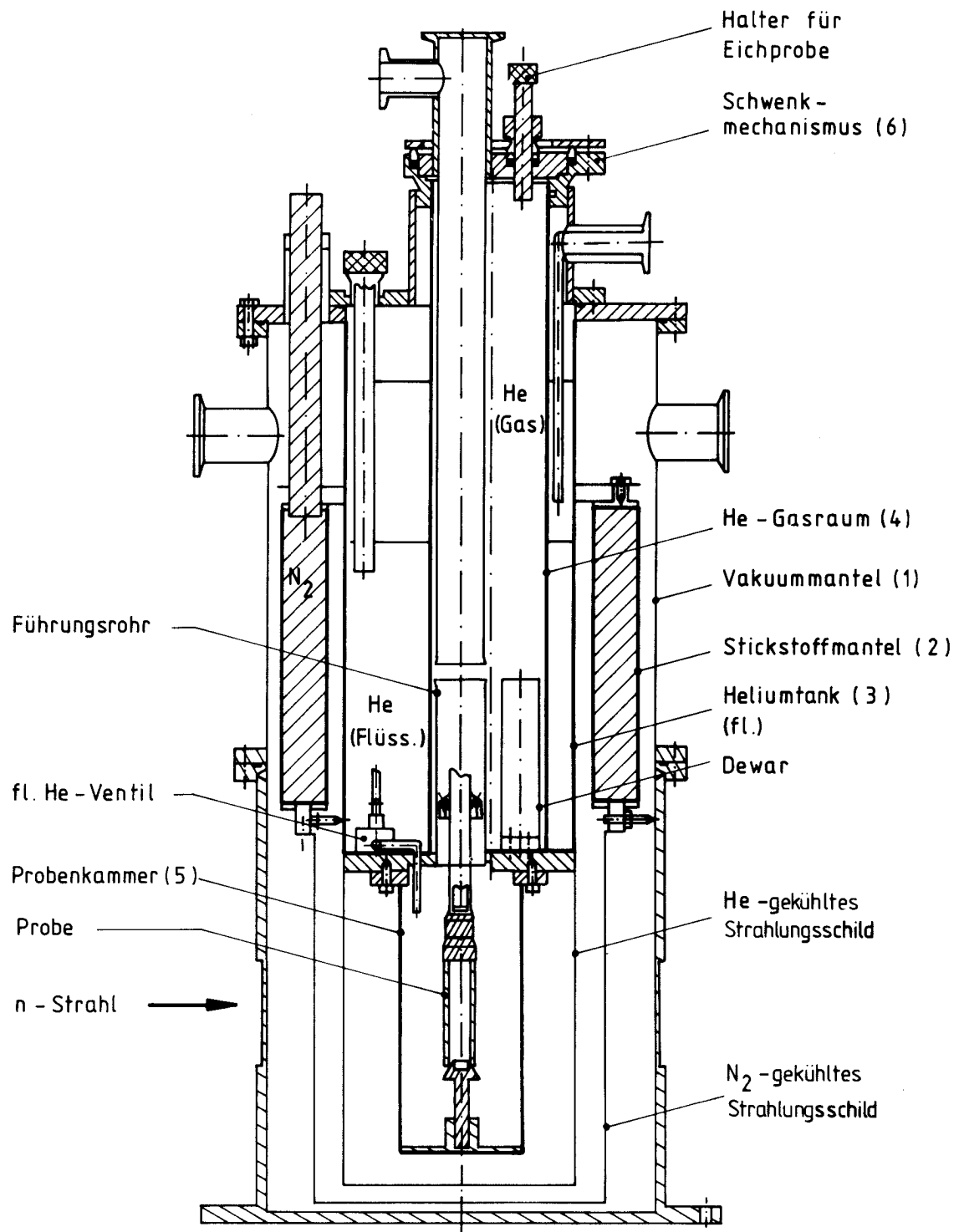


Abb. 4.6: Schematische Darstellung des Meßkryostaten mit Probe in Meßposition.

mantel (2), der Flüssigheliumtank (3) und der Heliumgasraum (4) mit der Probenkammer (5) sowie dem Schwenkmechanismus (6) sind.

Das Kernstück des Kryostaten ist der abpumpbare Heliumgasraum (4), dessen unterer Abschluß die Probenkammer (5) und dessen oberer Abschluß der Schwenkmechanismus (6) bilden. Damit kann der Probenhalter über das Dewar bzw. das Führungsrohr gedreht werden. In diesem Rohr wird der Probenhalter mit Hilfe der Dewarverschraubung (Abb. 4.3) geführt. Die Probe selbst wird durch den Kegel am Fuß der Probenkammer in der Meßposition zentriert. Der Gasraum kann über das Ventil aus dem Flüssig-Heliumtank geflutet werden, so daß eine kalt eingesetzte Probe auch wieder kalt ausgeschleußt werden kann. Zum Einschleusen der Probe ist dies nicht erforderlich, es geschieht im Helium-Gas. Dieses steht über die Wände des Helium-Gasraumes mit dem flüssigen Helium im Tank in Kontakt und befindet sich bis zur Höhe des Flüssigkeitsspiegels auf 4.5 K. Der Flüssigkeitstank ist bis zur maximalen Füllhöhe gegen den Vakuummantel (1) durch einen Stickstoffmantel (2) abgeschirmt. An der zweiten Durchführung im Schwenkmechanismus kann eine Eichprobe im Kryostaten geführt werden, die es ermöglicht, Eichmessungen durchzuführen, ohne die Probe aufzuwärmen.

## 5. Durchführung des Experimentes

### 5.1 Elektronenbestrahlung

Es wurden 2 Messungen am ILL durchgeführt, vor denen jeweils eine Meß- und eine Ersatzprobe nacheinander bestrahlt wurden. Die Bestrahlung erfolgte an der Tieftemperaturbestrahlungsanlage ELIAS des IFF der KFA Jülich /24/. Die Probe wurde während der Bestrahlung mit einer Winkelgeschwindigkeit von einer Umdrehung pro Minute hin- und hergedreht, um eine über den Umfang homogene Schädigung zu gewährleisten. Die Temperaturen von Heliumgas und Probe wurden fortlaufend kontrolliert. Die maximale Probenoberflächentemperatur betrug 16 K. Die Energie der Elektronen betrug 3 MeV, doch trafen sie wegen des Energieverlustes im Fenster der Bestrahlungskammer mit ungefähr 2.85 MeV auf die Probe. Die Strahlstromdichte lag zwischen 7 und 11  $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ . Abb. 5.1 zeigt die Dosiskurven für die jeweils bei den Neutronenstreuexperimenten benutzten Proben (I und II). Die Zunahme des elektrischen Restwiderstandes, wie er für jede Probe am Ring und am Stift (vergl. Abb. 4.1) gemessen wurde, ist gegen die Zahl der Elektronen, die die Probenoberfläche pro  $\text{cm}^2$  getroffen haben, aufgetragen. Probe II wurde während der Bestrahlung von drei Tube-Sparks /24/ getroffen. Diese führen zu einer lokalen Temperaturerhöhung und demzufolge zu einem teilweisen Ausheilen der Defekte in der Probe. Dies zeigt sich in einem plötzlichen Abfall der Schädigungskurve. Erholen weniger als 10 % der Defekte, handelt es sich hauptsächlich um eng benachbarte Frenkel-paare (Stufe  $I_B$ ), deren Verlust keine Auswirkung auf das Experiment hat. Im Falle des ersten Sparks beträgt die Erholung 26 %, so daß hier auch schon Defekte von Stufe  $I_C$  mit ausgeheilt sind. Da davon jedoch nur der Stift - also etwa nur 10 % der Probe - betroffen waren, wurde die Bestrahlung fortgesetzt.

Auffallend ist die unterschiedliche Widerstandszunahme zwischen Stift und Ring an derselben Probe. Bei Probe I liegt der Unterschied bei 30 %, bei Probe II bei 22 %. Der Grund hierfür liegt in der großen Wanddicke der Probe von 3 mm und ihrer besonderen Bestrahlungsgeometrie. Wegen der starken Energieabhängigkeit

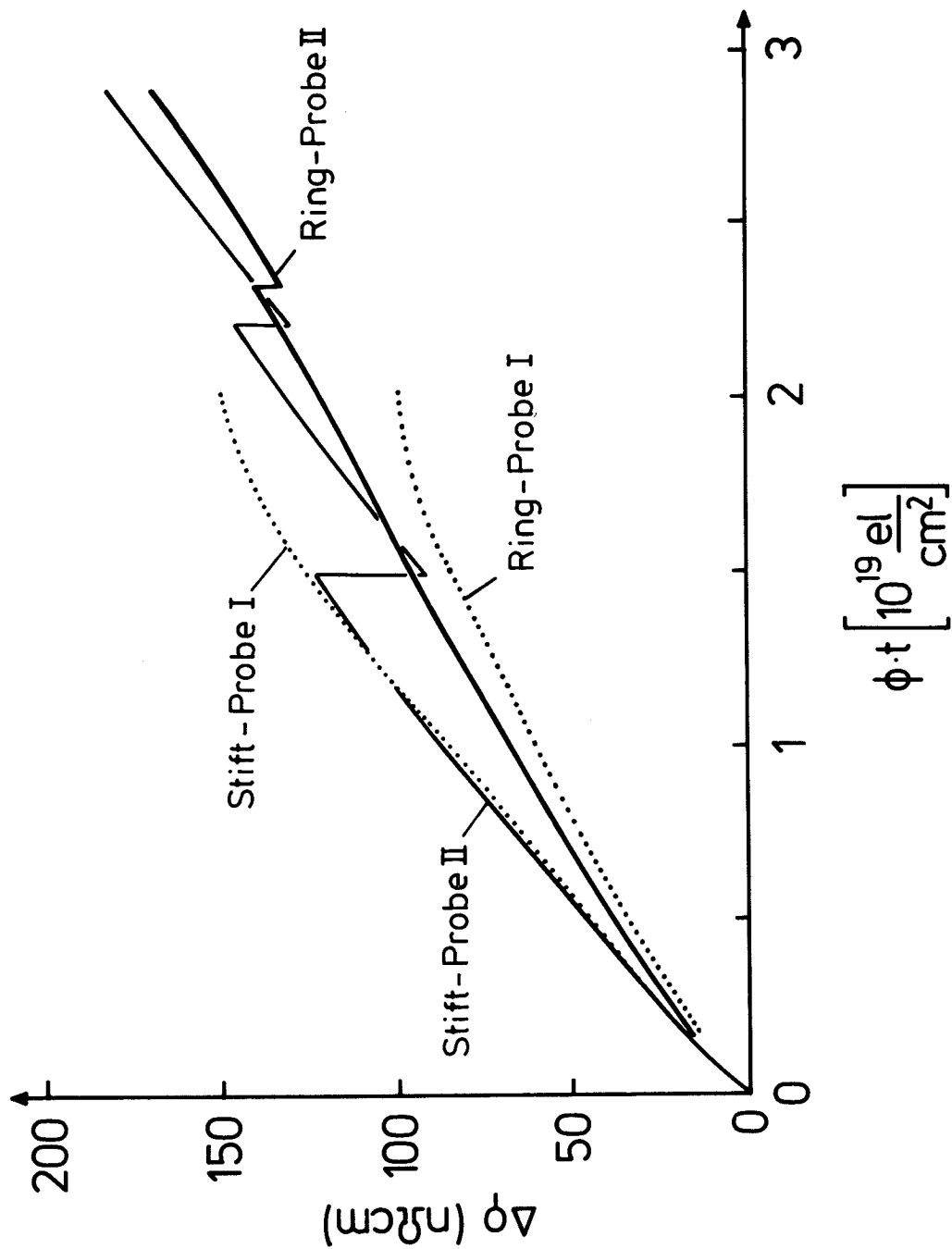


Abb. 5.1: Dosiskurven des elektrischen Restwiderstandes  
 ... Probe I, — Probe II

der Schädigungsrate muß mit einer abnehmenden Defektkonzentration von außen nach innen in der Zylinderwand gerechnet werden, obwohl schon die in Strahlrichtung gesehenen dickeren Randbereiche des Zylinders durch die Blende vor der Probenkammer abgedeckt worden waren. Allein über die 3 mm Wanddicke fällt die Schädigungsrate - wie Testmessungen zeigten - um einen Faktor 1.5 ab. Ein solcher Gradient in der Defektkonzentration entspricht in der elektrischen Widerstandsmessung einer Parallelschaltung ungleicher Widerstände, woraus sich bei einer direkten Umrechnung des Gesamtwiderstandes in Defektkonzentration ein zu kleiner Wert ergibt. Da die Elektronen eine größere mittlere Probendicke als 3 mm durchdringen, wurde für eine einfache Abschätzung der mittleren Defektkonzentration 50 % Schädigungsunterschied zwischen Außen- und Innenseite der Zylinderwand angenommen. Es ergibt sich mit 280 ppm (Probe I) und 480 ppm (Probe II) eine um 13 % größere mittlere Defektkonzentration im Ring als bei einer direkten Umrechnung der Restwiderstandsänderung von 100 nΩcm (Probe I) und 170 nΩcm (Probe II) mittels des Restwiderstands pro Frenkeldefekt  $\rho_F = 4.0 \mu\Omega\text{cm}/\%$  /25/. Die Anfangsschädigungsrate errechnet sich aus der nominellen Strahlstromdichte für den Stift zu  $\Delta\rho/\Delta\phi = 8.3 \cdot 10^{-27} \Omega\text{cm}/\text{elcm}^{-2}$  und für den Ring zu  $\Delta\rho/\Delta\phi = 7.1 \cdot 10^{-27} \Omega\text{cm}/\text{elcm}^{-2}$ . Da der Elektronenstrahl auf der Probenrückseite gestoppt wurde, konnte die Schädigungsrate nicht mittels der am Faradaybecher gemessenen Gesamtladung berechnet werden, sondern nur über die im Strahlrohr vor der Probe gemessenen nominellen Strahlstromdichte. Die höhere Schädigung des Stiftes kommt dadurch zustande, daß die Elektronen, die diesen Teil der Probe erreichen, eine im Mittel höhere Energie besitzen, da sie auf Grund der Schlitze während der Drehung der Probe eine zeitlang weniger Al durchdringen müssen. Die Defektkonzentration der Probe I beträgt also 280 ppm und der Probe II 480 ppm.

## 5.2 Neutronenstreuung

### 5.2.1 Neutronenspektrometer IN3

Wegen des kleinen Wirkungsquerschnitts wurden die Messungen der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung am Hochflußreaktor des Instituts Laue Langevin in Grenoble gemacht. Wie

in Kapitel 3.2.2 besprochen, wäre es günstig gewesen, in einem möglichst großen Q-Bereich den Wirkungsquerschnitt zu messen, wozu sich ein Flugzeitspektrometer anbot. Der Besetzungsfaktor im Wirkungsquerschnitt machte es allerdings notwendig, mit thermischen Neutronen im Energieverlust zu messen, denn er beträgt für eine Schwingungsenergie von 1 THz und bei einer Meßtemperatur von 6 K ungefähr 1. Dagegen ist er im Energieverlust auch für 20 K immer noch kleiner  $10^{-1}$ . Eine höhere Meßtemperatur kommt nicht in Frage, da sonst das Einzelzwischengitteratom anfängt zu wandern und auszuheilen (s. Kapitel 2). Ein Flugzeitspektrometer mit thermischen Neutronen stand jedoch zu dieser Zeit nicht zur Verfügung, so daß auf ein thermisches 3-Achsen-Spektrometer ausgewichen wurde. Es wurde das IN3 gewählt (Abb. 5.2), das trotz des niedrigeren Neutronenflusses gleiche Meßbedingungen bietet wie das IN8. Dies liegt zum einen an der Möglichkeit, sowohl mit vertikal gekrümmtem Monochromator als auch mit horizontal zu krümmendem Analysatorkristall zu messen und zum anderen am Standort des IN3 in der Neutronenleiterhalle, wo ein geringerer Neutronenuntergrund herrscht.

Im folgenden soll der Aufbau des Spektrometers kurz beschrieben werden /26/. Als Monochromator wurde ein Graphitkristall (PG(0,0,2)) verwendet, der die Neutronen aus dem Neutronenleiter auf die Probe fokussiert. Hinter dem Monochromator befand sich ein Monitor, der die Meßzeit über eine vorgegebene Neutronenzahl begrenzte, um zeitliche Schwankungen der Intensität des Primärstrahls zu korrigieren. Tests ergaben, daß ein Kollimator von 30' oder 40' zwischen Monochromator und Probe das Signal zu Untergrundverhältnis nur um 20 % verbesserte, aber das Signal um 40 % reduzierte, so daß keine Kollimatoren verwendet wurden. Da die Messungen am Dreiachsenspektrometer mit konstantem Q gemacht wurden, konnten mit einem Graphitfilter zwischen Probe und Analysator höhere Ordnungen von  $k_f$  unterdrückt und der Analysator (PG(0,0,2)) auf einen festen Krümmungsradius eingestellt werden. Ein Kollimator wurde angesichts des horizontal gekrümmten Analysators hinter der Probe nicht verwendet. Der Detektor war ein mit  $\text{He}_3$  gefülltes Proportionalzählrohr von 10 cm Höhe und 3 cm Durchmesser.

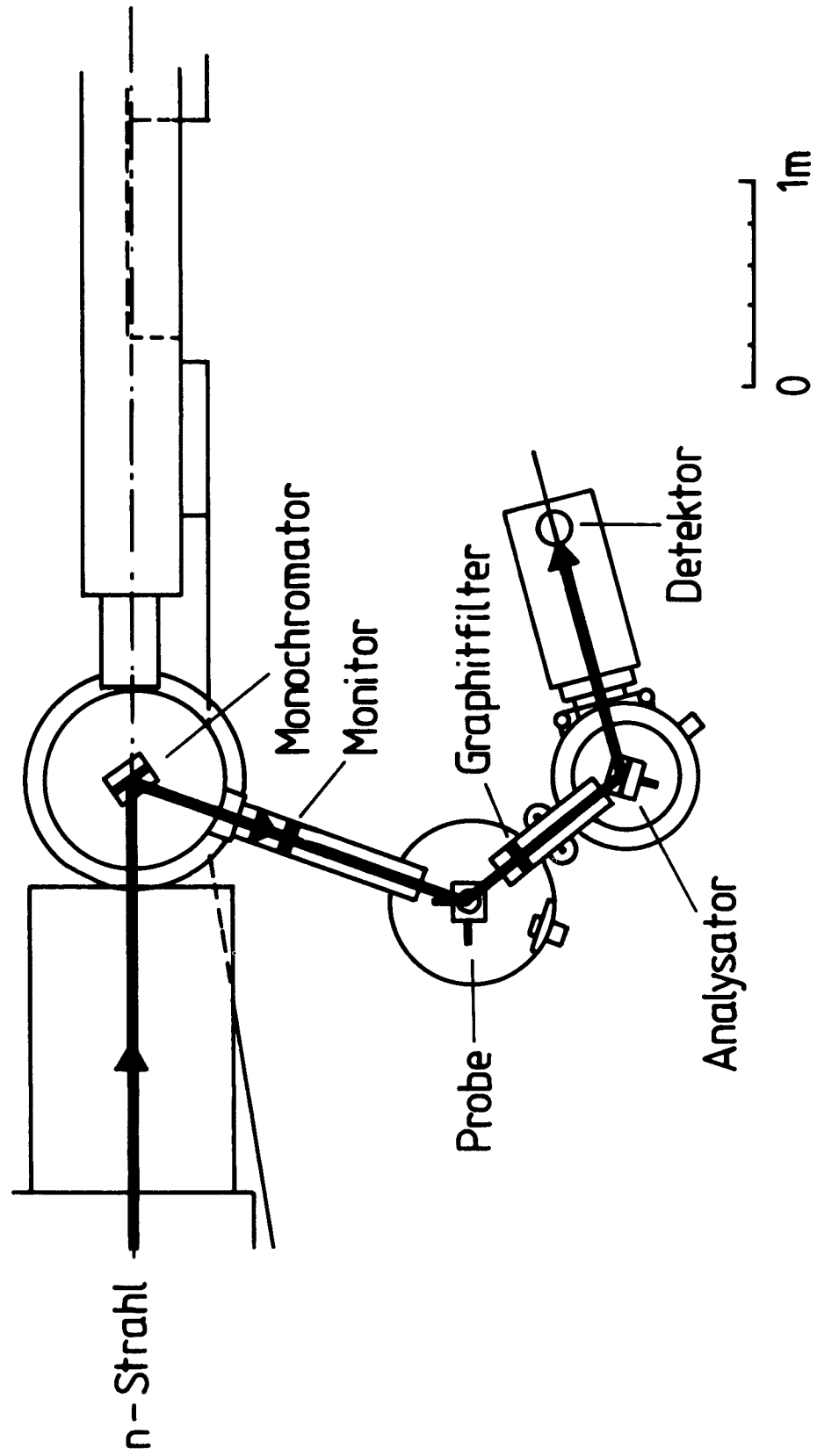


Abb. 5.2: Neutronenspektrometer IN3 /26/.

Eine horizontale Krümmung des Analysators von  $R = 3.1 \text{ m}$  bei einem  $k_f$  von  $2.661 \text{ \AA}^{-1}$  ergab eine Vergrößerung der Divergenz auf  $3^\circ$  in der Streuebene, was zwar eine geringere Q-Auflösung zur Folge hatte, aber eine Verdoppelung des Signal zu Untergrundverhältnisses gegenüber flacher Analysatoreinstellung bewirkte. Die Energieauflösung lag bei  $\delta v = 0.28 \text{ THz}$  bei der ersten Messung, bei  $\delta v = 0.36 \text{ THz}$  bei der zweiten. Die schlechtere Auflösung beim zweiten Experiment bei sonst gleichem Versuchsaufbau kann an der vielleicht veränderten Justierung der einzelnen Graphitkristalle des Analysators liegen.

Nach sorgfältiger Abschirmung des gesamten Neutronenkanals im Spektrometer setzte sich der Untergrund im späteren Meßbereich zu 15 % aus elektronischem Rauschen und Hallenuntergrund zusammen (9 n/h), und der Rest (23 n/h) kam in etwa zur Hälfte aus dem Kryostaten und der Probe.

### 5.2.2 Eichung der Absolutintensität

Um die gemessene Neutronenzählrate in einem Wirkungsquerschnitt umzurechnen, wird eine Vanadiumeichprobe von gleichen äußeren Abmessungen wie die Al-Meßprobe benutzt. Bei gleicher Spektrometeranordnung verhalten sich die Wirkungsquerschnitte von Al- und V-Probe wie die gemessenen Intensitäten. Bei der Umrechnung auf den atomaren Wirkungsquerschnitt pro Wirtsgitteratom muß die unterschiedliche Atomzahl im durchstrahlten Probenvolumen berücksichtigt werden. Bezieht man den Wirkungsquerschnitt der Probe statt auf die Zahl der Gitteratome auf die Defektzahl, muß der Wirkungsquerschnitt auf die Defektkonzentration normiert werden. Man erhält so den differentiellen Wirkungsquerschnitt pro Zwischengitteratom, das mit der Resonanzfrequenz  $\nu_{\text{Resonanz}}$  schwingt.

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}_{\nu_{\text{res}}}^{\text{ZGA}} = \frac{I_{\nu_{\text{res}}}^{\text{Al}}}{I^{\text{V}}} \frac{N^{\text{V}}}{N_{\text{c}}^{\text{Al}}} \frac{d\sigma}{d\Omega}_{\text{inc}}^{\text{V}}$$

Dabei sind  $I^V$  die Zählrate der V-Probe und  $I_{v_{res}}^{Al}$  die Zählrate der Al-Meßprobe für den Energieübertrag  $v = v_{res}$ ,  $N^{Al}$  und  $N^V$  die Zahl der im n-Strahl befindlichen Probenatome,  $\kappa$  der Korrekturfaktor für n-Absorption im Vanadiumzylinder und  $c$  die Defektkonzentration in der Al-Probe. Der letzte Faktor ist der auf den Raumwinkel bezogene, bekannte, inkohärente, elastische Wirkungsquerschnitt eines V-Atomes.

Die Zahlenwerte zur Umrechnung der Zählraten sind in Tabelle I zusammengestellt. I und II beziehen sich auf die zwei verschiedenen Experimente, die zeitlich fast 2 Jahre auseinanderlagen und bei denen verschiedene Meß- aber dieselbe Eichprobe verwendet wurden.  $I_I^V$  und  $I_{II}^V$  sind das Mittel der Peakintensitäten der inkohärenten, elastischen Streuung der Vanadiumprobe für die drei ausgewählten Meßpunkte im reziproken Raum (s. Kapitel 5.2.3). Deren Schwankung von 1 % ist durch die Statistik bestimmt.

|           |                       |          | I          |       |         | II            |          |            |
|-----------|-----------------------|----------|------------|-------|---------|---------------|----------|------------|
| $N^V$     | $\sigma_{inc}^V / 27$ | $\kappa$ | $N_I^{Al}$ | $C_I$ | $I_I^V$ | $N_{II}^{Al}$ | $C_{II}$ | $I_{II}^V$ |
| $10^{23}$ | barn                  |          | $10^{23}$  | ppm   | n/s     | $10^{23}$     | ppm      | n/s        |
| 2.03      | 5.01                  | 0.84     | 4.59       | 300   | 107     | 4.38          | 480      | 168        |

Tabelle I: Eichfaktoren für Messungen I und II.

Das um fast einen Faktor 1.6 größere Meßsignal beim Eichstreuer im 2. Experiment wurde im wesentlichen durch die Verwendung eines höheren Zählrohres mit einer größeren Nachweiswahrscheinlichkeit erreicht.

Um die gemessenen Wirkungsquerschnitte mit den berechneten Strukturfaktoren zu vergleichen, wurden entsprechend Gleichung 4 die in Tabelle II aufgeführten Faktoren benötigt.

Tabelle II: Faktoren zur Berechnung des Wirkungsquerschnitts.

| $k_f/k_i(v)$ | $M_{Al}$ | $a \text{  cm } / 27$ | $e^{-2W}$      | $n$         | $T \text{  K }$ |
|--------------|----------|-----------------------|----------------|-------------|-----------------|
| 0.91-0.8     | 27       | $3.5 \cdot 10^{-13}$  | $\approx 0.97$ | $\approx 1$ | 6               |

### 5.2.3 Meßbereich und Meßprogramm

Wegen der  $1/v$  Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts sollte die Mode mit der tiefstliegenden Frequenz die größte Streuintensität zeigen und am besten nachzuweisen sein. Nach den Rechnungen mit den Morse-Potentialen besitzt die  $E_g$ -Mode die niedrigste Resonanzfrequenz. Dies ist auch von der physikalischen Bedeutung her die interessanteste Resonanzschwingung des Einzelzwinggitteratoms. Um den Wirkungsquerschnitt noch zu optimieren, wurde in einem Bereich des  $Q$ -Raumes gemessen, in dem der Strukturfaktor dieser Mode maximal ist.

Da zu Beginn des Experimentes nur vorläufige Rechnungen für den Strukturfaktor vorlagen /28/ und dessen genauer Verlauf - wie in Kapitel 3.2.2 gesehen - potential- und auch näherungsabhängig ist, werden mehrere Meßpunkte in den Bereich des Maximums des Strukturfaktors gelegt, in der Hoffnung an einen Punkt dem Maximum nahe zu kommen. Die zur Verfügung stehende Strahlzeit erlaubte jedoch nicht mehr als drei const- $q$ -Scans zu messen, so daß die Punkte  $Q = (2, q, q) \frac{2\pi}{a}$  mit  $q = 0.4, 0.6$  und  $0.8$  ausgewählt wurden. Im folgenden werden die Meßpunkte im reziproken Raum lediglich mit ihrem  $q$ -Wert bezeichnet. Die Punkte wurden in eine Hauptsymmetrierichtung  $\langle 011 \rangle$  gelegt, für die der Verlauf der Phononenlinie bekannt ist. Dies ist wichtig, um abschätzen zu können, ob deren Verschiebung oder Verbreiterung infolge der Defekte einen Beitrag zum Meßeffect leisten. Dies war nach den Daten von Böning et al. nicht der Fall /11/.

Alle Messungen erfolgten in Energieverlust des Neutrons. Im 1. Experiment mit einer Defektkonzentration von 280 ppm in der Probe wurde in einem Energiebereich von  $\Delta E = 0$  bis 2 THz gemessen. Im 2. Experiment konnte auf Grund einer längeren Gesamtmeßzeit die diffuse, elastische Streuung mitgemessen werden:  $\Delta E = -0.2$  bis 2 THz. Die obere Grenze von 2 THz wurde vom Spektrometer vorgegeben. Der Bereich des 1. Intensitätsanstieges (0.2 bis 1.2 THz) wurde mit einer besseren Statistik gemessen. Dies wird in den Abbildungen durch eine größere Punktzahl dokumentiert.

Um das Erholungsverhalten der Defekte zu untersuchen, wurde die Probe durch Hochziehen in wärmere Bereiche des Meßkryostaten einem isochronen, thermischen Erholungsprogramm bis zu Raumtemperatur unterworfen (Haltezeit 20 Min.). Der elektrische Restwiderstand bei 6 K wurde nach jedem Temperschritt gemessen. Nach 46 K (es liegen keine Einzelzwischengitteratome mehr in der Probe vor) und nach 300 K (alle bestrahlungsinduzierten Defekte sind ausgeheilt) wurden Neutronenstreuemessungen in den oben genannten Bereichen vorgenommen. Vor Beginn der Messung der diffusen Streuintensität wurde die Justierung der Probe durch Messung der (200) und (022) Reflexe kontrolliert.

## 6. Meßergebnisse

### 6.1 Diffuse, inelastische Neutronenstreuung

#### 6.1.1 Defekte nach Bestrahlung

Als Beispiel für die Meßergebnisse zeigt Abb. 6.1 zwei typische const-q-Scans der Probe mit 480 ppm Frenkeldefekten. Um die absolute Zählrate und das Signal zu Untergrundverhältnis zu zeigen, ist die Zählrate gegen den Energieübertrag der Neutronen aufgetragen, zum einen für Messungen am Kristall nach Bestrahlung, zum anderen für die Untergrundmessungen nach Ausheilen der bestrahlungsinduzierten Defekte bei Raumtemperatur. Man erkennt bis 0.6 THz einen flachen Untergrund, der dann zu kleineren Energieüberträgen hin ansteigt. Bei einer Energieauflösung von  $\delta v = 0.36$  THz sind dies bereits die Ausläufer der elastischen Linie. Von Interesse ist die Differenz der beiden dargestellten Kurven - sie entspricht dem Meßeffect der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung. Allerdings muß bei der Differenzbildung berücksichtigt werden, daß die Ausläufer der elastischen Linie des bestrahlten Kristalls Beiträge der diffusen, elastischen Verzerrungsstreuung enthalten, die durch statische Gitterverzerrungen der Defekte erzeugt wird. Mit der bekannten Auflösungsfunktion der Vanadiumprobe und der gemessenen diffusen, elastischen Verzerrungsstreuung (s. Kapitel 6.3) können diese Beiträge berechnet und korrigiert werden. Die größte Korrektur lag bei der kleinsten auswertbaren Energie von 0.4 THz in der Größenordnung von etwa 10 % des Meßsignals.

Die so erhaltene diffuse, inelastische Streuung der Defekte ist in Abb. 6.2 aufgetragen. Die eingezeichnete Kurve ist eine einfache Interpolation der Meßpunkte. Alle drei Scans zeigen einen ähnlichen Kurvenverlauf. Ein Intensitätsmaximum zwischen 0.7 und 0.8 THz geht über in ein Minimum bei ungefähr 1 THz. Daraus schließt sich zwischen 1.2 und 1.3 THz ein Intensitätsrücken bis 2 THz an. Auffällig am Scan bei  $q = 0.4$  ist der weitere Anstieg der Intensität ab 1.7 THz. Beim  $q = 0.8$ -Scan gab es im

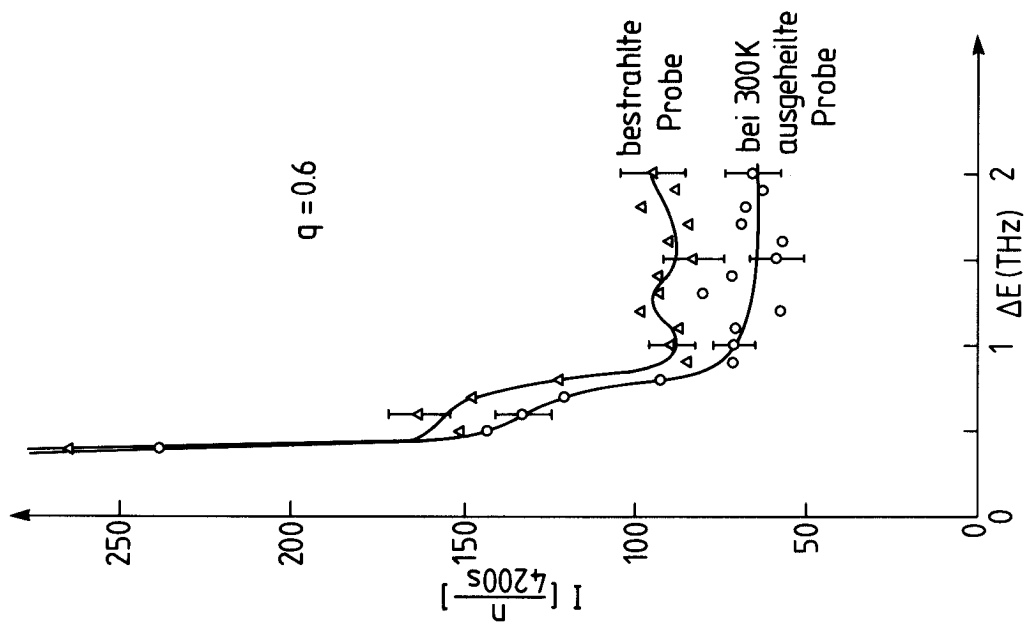


Abb. 6.1b: const-q-Scan bei  $q = 0.6$ .

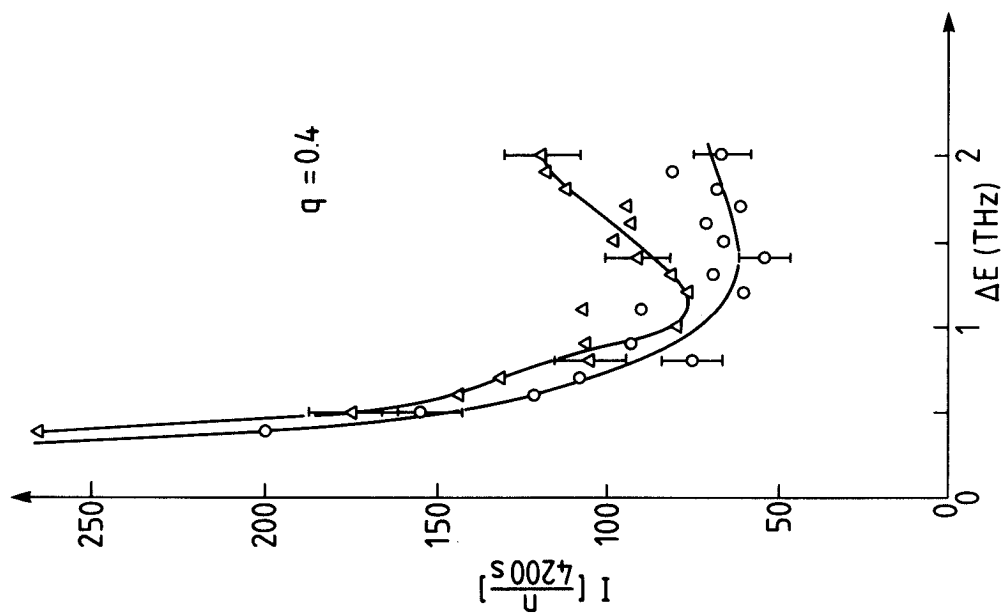


Abb. 6.1a: const-q-Scan bei  $q = 0.4$ .

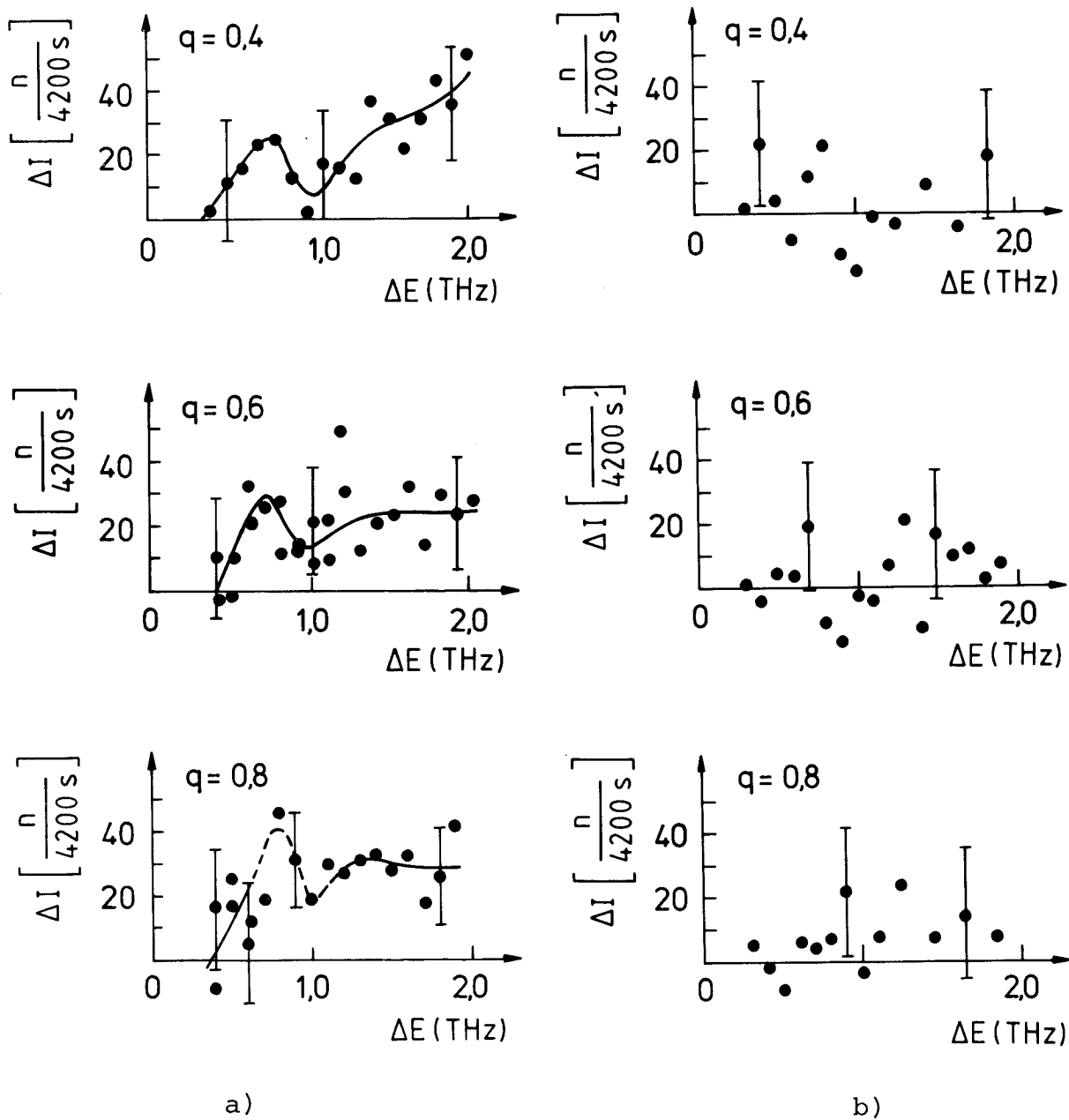


Abb. 6.2: Diffuse, inelastische Neutronenstreuung an der Probe

a) mit 480 ppm

b) mit 280 ppm Frenkeldefekte.

Energiebereich von 0.5 bis 1.0 THz Schwierigkeiten auf Grund des zwischenzeitlich ausgetauschten Winkelcodierers, die bei den anderen Scans nicht auftraten. Wegen der mangelhaften Reproduzierbarkeit der Daten in diesem Bereich wurden die Punkte nicht zur Auswertung herangezogen. Zum Vergleich sind die Ergebnisse der Messung an der Probe mit 280 ppm Frenkeldefekte ebenfalls in Abb. 6.2 dargestellt. Die Meßeffekte sind hier nicht nur auf Grund der geringen Konzentration kleiner, sondern auch durch den geringeren Neutronenfluß in diesem Experiment (s. Kapitel 5.2.2). Trotz des höheren statistischen Fehlers deuten sich in den Scans dieselben Effekte an wie bei der bis zur höheren Dosis bestrahlten Probe. Dies zeigt sich sehr viel deutlicher, wenn die drei Scans einer Probe aufaddiert und die unterschiedlichen Eichungen berücksichtigt werden. Für einen quantitativen Vergleich sind in Abb. 6.3 die unter Verwendung der Eichfaktoren von Tabelle I auf ein Wirtsgitteratom bezogenen Wirkungsquerschnitte der beiden Proben dargestellt. Als Untergrund wurde für diese Kurve eine

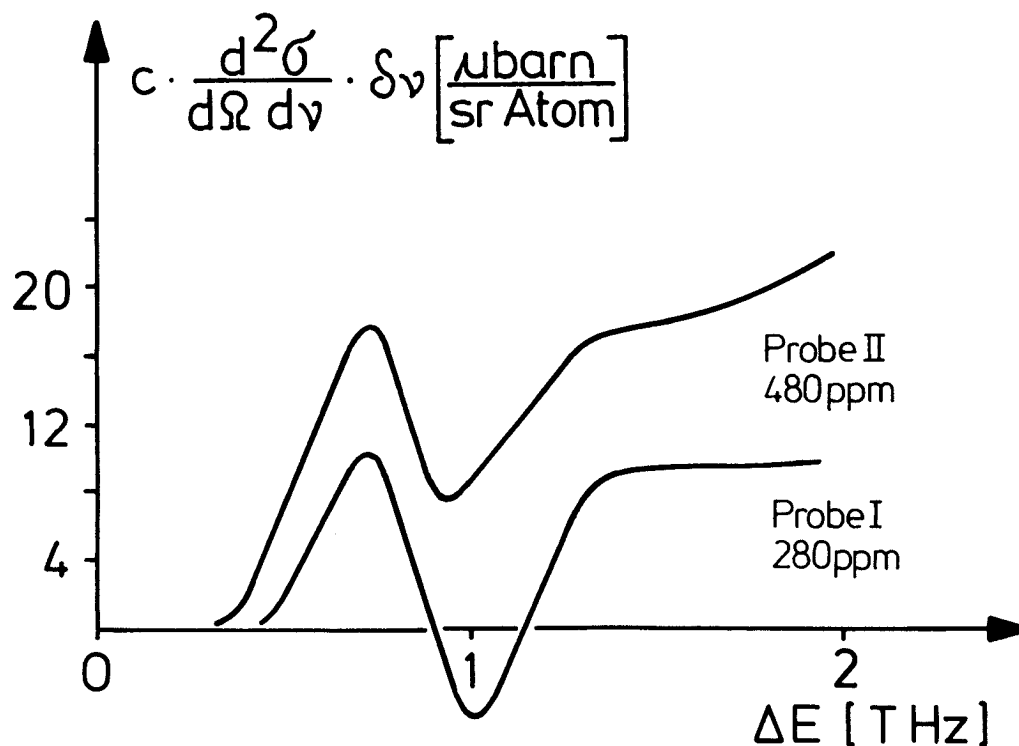


Abb. 6.3: Aufaddierter Wirkungsquerschnitt aller drei q-Scans (auf ein Wirtsgitteratom normiert).

aus allen drei Scans gemittelte Zählrate benutzt. Die Wirkungsquerschnitte steigen innerhalb eines Fehlers von 20 % linear mit der Konzentration über den gesamten Energiebereich an. Die statistische Meßgenauigkeit liegt auf Grund der niedrigen Zählrate bei 60 % für die Probe mit 280 ppm und bei 28 % für die mit 480 ppm Frenkeldefekten.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß die Meßergebnisse der inelastischen, diffusen Streuung auf eine Resonanzmode bei 0.7 - 0.8 THz hindeuten, sowie auf mehrere höherfrequente Moden oberhalb von 1.3 THz. Innerhalb der Meßgenauigkeit erkennt man für niederenergetische Moden keine starke  $q$ -Abhängigkeit des Strukturfaktors an den gemessenen Punkten im  $Q$ -Raum. Bei höheren Energien scheint jedoch eine Abhängigkeit zu bestehen, da dort in dem Scan bei  $q = 0.4$  deutlich größere Wirkungsquerschnitte gemessen werden.

#### 6.1.2 Erholungsverhalten der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung

Nach Tempern bei 46 K konnten alle drei const- $q$ -Scans aus Strahlzeitgründen nur an der Probe mit 480 ppm Frenkeldefektkonzentration gemessen werden. Abb. 6.4 zeigt die Intensitätsdifferenz zwischen dieser Messung und der Untergrundmessung nach Tempern bei Raumtemperatur. Die Zählraten sind in allen drei Scans bei kleinen Energien deutlich kleiner geworden. Zusätzlich sieht man am Scan bei  $q = 0.4$ , daß er sich bei höheren Energien nicht mehr so stark von den beiden anderen Scans unterscheidet. Das heißt, mehrere Moden sind beim Tempern ausgeheilt. Ob diese Moden zu einem oder mehreren Defekttypen gehören, wird im folgenden diskutiert. Das Erholungsverhalten wird deutlicher in der aufaddierten Darstellung (Abb. 6.5) aller drei Scans und dem Vergleich mit der Messung nach Bestrahlung. Bis 1.3 THz zeigt sich ein schwacher Meßeffect, in dem einzelne Peaks nicht mehr aufgelöst werden können. Das Signal ist gegenüber dem Maximum der bestrahlten Probe

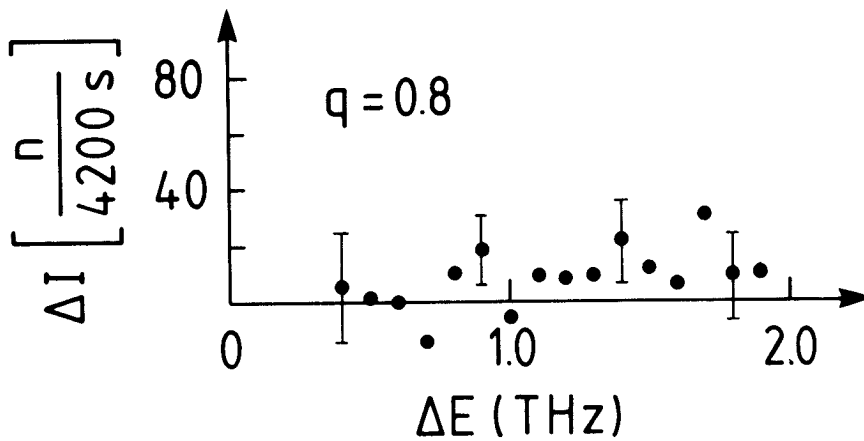
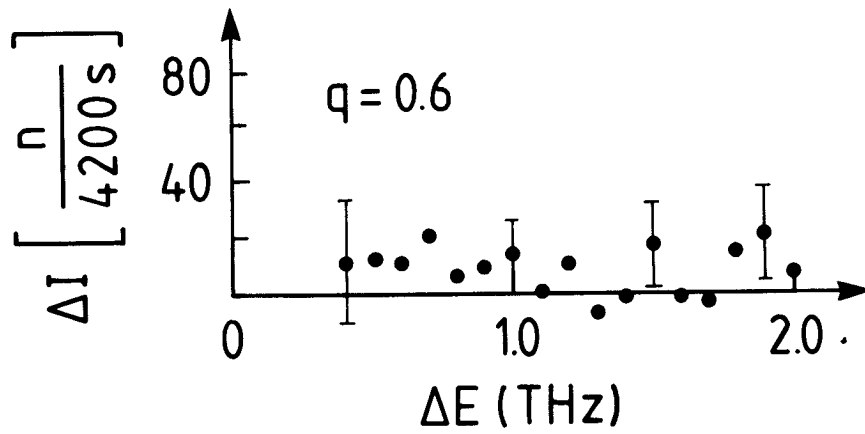
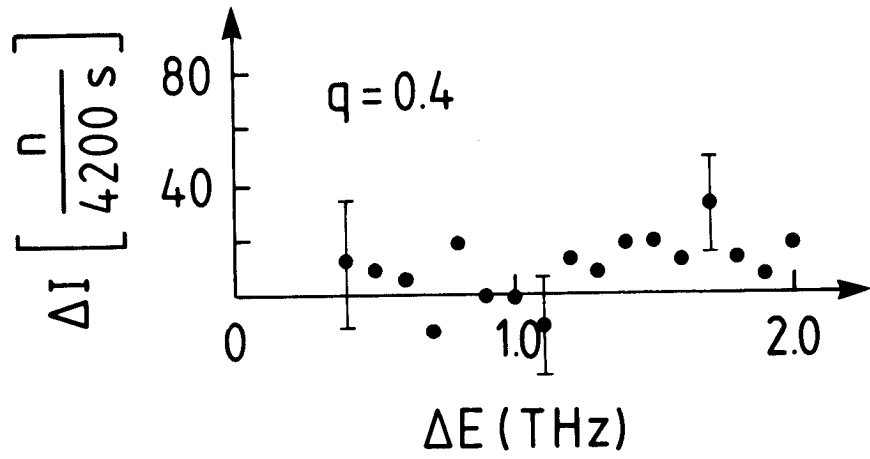


Abb. 6.4: Diffuse, inelastische Neutronenstreuung nach Tempern bei 46 K.

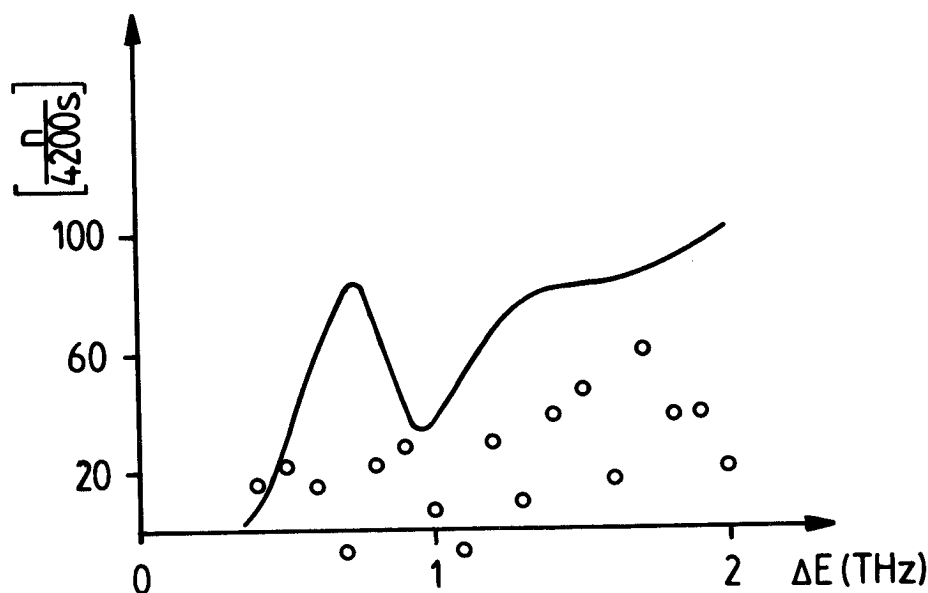


Abb. 6.5: Aufaddierte Darstellung aller 3 Scans

o nach Tempern bei 46 K

- nach Bestrahlung.

bei 0.75 THz um einen Faktor 6 kleiner. Oberhalb von 1.3 THz geht dieser Faktor auf 2 bis 3 zurück. Bei hohen Energien oberhalb von 1.8 THz erkennt man hier deutlich das Abfallen des Wirkungsquerschnitts der getemperten Probe. Bei 2 THz liegt ein Faktor 5 zwischen den beiden Messungen. Das Erholungsverhalten des elektrischen Restwiderstandes zeigt, daß die Defektkonzentration nach Tempern bei 46 K um einen Faktor 2 zurückgegangen ist. Die in der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung beobachtete sehr viel stärkere Intensitätsabnahme über weite Bereiche des Frequenzspektrums macht deutlich, daß die durch Bestrahlung erzeugte Defektstruktur nach Tempern bei 46 K weitgehend ausgeheilt ist. Besonders deutlich wird dies bei der Resonanz mit der niedrigsten Frequenz und bei den Moden um 2 THz. Dazwischen - im Bereich von 1.4 bis 1.8 THz - treten erneut Resonanzmoden auf. Sie gehören zu den Defekten, die das Tempern bei 46 K überlebt haben und nun in der Form einiger Doppelzwingengitteratome und vor allem kleiner Cluster von 3 bis 5 Atomen vorliegen.

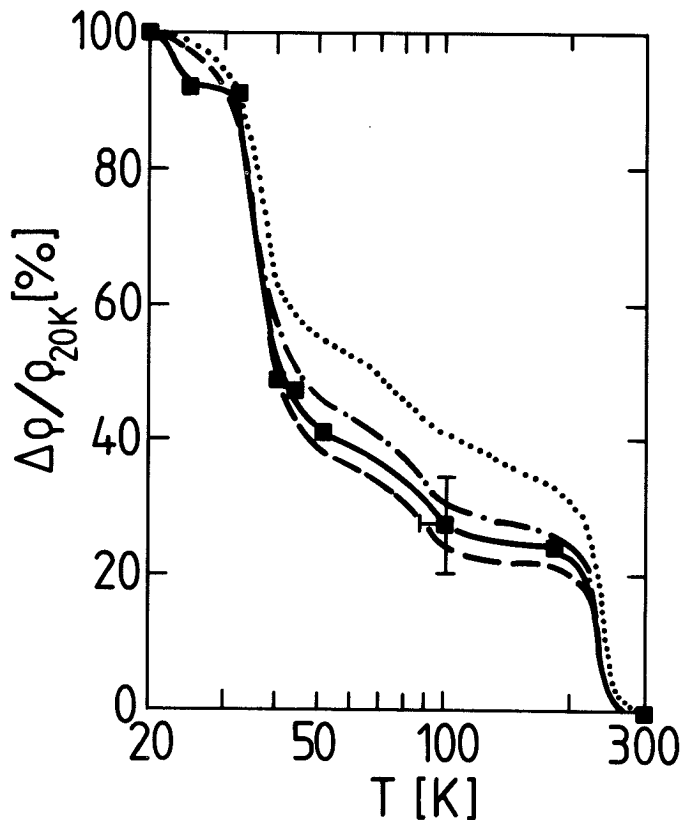
Für die Messung an der Probe mit 280 ppm ergibt sich wegen der sehr viel kleineren statistischen Genauigkeit innerhalb der Fehler ein völliges Erholen der bestrahlungsinduzierten Effekte.

## 6.2 Erholungsverhalten des elektrischen Restwiderstandes

An der bis zu 480 ppm Defektkonzentration bestrahlten Probe wurde ein ausführliches, isochrones Temperprogramm durchgeführt. In Abb. 6.6 ist das Erholungsverhalten des elektrischen Restwiderstandes in der ringförmigen Widerstandssprobe aufgetragen. Der Ring besitzt gegenüber dem Stift zwar einen ungünstigeren Formfaktor, gibt jedoch das Verhalten des größten Teils der Probe wieder. Die Meßfehler sind gegenüber den Messungen während der Bestrahlung größer, da die Proben im Meßkryostaten nur durch He-Gas von etwa 6 K gekühlt wurden und somit die Messungen des elektrischen Widerstands nur bei kleineren Strömen erfolgen konnten. Bei der Temperaturmessung kann nicht ausgeschlossen werden, daß wegen der Messung am oberen Probenrand die Proben-temperatur überschätzt wird. Bei 100 K kann dieser Effekt etwa 10 K ausmachen. Angesichts der Meßfehler der Widerstandsmessung ist diese Verschiebung allerdings nicht relevant. Das Erholungsverhalten der ringförmigen Widerstandssprobe wird in Abb. 6.6 mit repräsentativen, der Literatur entnommenen Erholungskurven von Proben mit 425 /16/ und 500 /29/ (beide Proben zeigen das gleiche Erholungsverhalten) sowie 675 ppm /16/ Frenkeldefektkonzentration verglichen. Um etwaige Einflüsse der erhöhten Bestrahlungstemperatur im vorliegenden Experiment zu berücksichtigen, wurden die Kurven auf  $\Delta\rho$ -Werte bei 20 K normiert. Die Erholungskurve zeigt eine erste Stufe zwischen 20 und 25 K, die mit der Stufe  $I_B$  identifiziert werden kann. Sie ist verbunden mit dem Ausheilen eng benachbarter Frenkelpaare und bestätigt mit ihrem Auftreten, daß im ringförmigen Teil der Probe die Temperatur von 16 K während der Bestrahlung und dem Umsetzen nicht überschritten wurde. Im Stift ist diese Stufe infolge des

Sparks gegen Ende der Bestrahlung stark unterdrückt. Bei 40 K sind in Stufe I<sub>C+D,E</sub> (50 ± 5)% der Defekte ausgeheilt. In der nachfolgenden Stufe II bleiben bei 100 K noch (27 ± 7)% der Defekte übrig, die in Stufe III bei 300 K mit beginnender Leerstellenwanderung ausheilen.

Die Erholung, wie sie nach der vorliegenden Langzeitbestrahlung bis 480 ppm Frenkeldefektkonzentration beobachtet wird, steht im Rahmen der möglichen Meßgenauigkeit in guter Übereinstimmung mit dem Erholungsverhalten, das Spiric an der 425 ppm, Wagner an der 500 ppm und Ehrhart und Schilling /30/ ebenfalls an einer 500 ppm Probe - hier liegen nur wenige Meßpunkte vor - beobachteten. Aus dieser Übereinstimmung muß geschlossen werden,



Erholungsverhalten des elektrischen Restwiderstandes der ringförmigen Widerstandsprobe

- 480 ppm (vorliegende Arbeit)
- - - 425 ppm /16/ und 500 ppm /29/
- · - · 675 ppm /16/
- · · · · 15 ppm (nach Neutronenbestrahlung) /31/

daß in diesen Proben sowohl die gleiche Defektverteilung als auch die gleiche Defektstruktur vorliegt. Als dominierenden Defekttyp in dieser Struktur haben Ehrhart und Schilling /30/ mit Hilfe von Huangstreuexperimenten in Verbindung mit Gitterparametermessungen an der 500 ppm Probe das Einzelzwischen-gitteratom nachweisen können.

Als Beispiel dafür, wie sich ein von dieser Struktur abweichendes Defektmuster im Erholungsverhalten des elektrischen Restwiderstandes niederschlägt, ist in Abb. 6.6 auch die Erholungskurve einer mit Neutronen bestrahlten Probe aufgetragen /31/, in der neben Einzeldefekten auch Mehrfachdefekte und kleine Cluster vorliegen. Trotz der nur kleinen Defektkonzentration von 15 ppm verläuft diese Erholungskurve deutlich oberhalb der Kurven, die an mit Elektronen bestrahlten Proben gemessen wurden.

Da aus Zeitgründen nur eine Messung der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung nach Tempern oberhalb von Stufe I möglich war, sollte sichergestellt werden, daß nach diesem Anlassen alle Einzelzwischen-gitteratome ausgeheilt waren. Deswegen wurde erst nach Anlassen bis zum Ende der Stufe II<sub>1</sub> gemessen. Dann sind aber nicht nur alle Einzel- sondern auch die Doppelzwischen-gitteratome ausgeheilt bzw. agglomeriert. Daher liefert diese Messung der Neutronenstreuung nur noch Aussagen über größere Cluster.

### 6.3 Diffuse, elastische Neutronenstreuung

Die in 6.1.1 besprochene Korrektur der inelastischen, diffusen Neutronenstreuung auf die Ausläufer der elastisch, diffusen Verzerrungsstreuung der Defekte machte es notwendig, an den drei Meßpunkten im reziproken Raum die elastische Streuung mitzumessen. Sie soll verglichen werden mit den Rechnungen und Ergebnissen von H.-G. Haubold /22/, der in elektronenbestrahltem Al mit Hilfe der diffusen Röntgenstreuung im Zwischenreflexgebiet die statische Struktur des Einzelzwischengitteratoms untersucht hat.

Abb. 6.7 zeigt die bei der Probe mit 480 ppm Defektkonzentration gemessene diffuse, elastische Streuung bei  $q = 0.6$  für die Probe nach Bestrahlung ( $I_{irr}$ ) und nach Tempern bei 46 K ( $I_{46K}$ ) bzw. 300 K ( $I_{300K}$ ), wenn alle bestrahlungsinduzierten Defekte ausgeheilt sind. Die Messung bei 300 K dient als Untergrundmessung. Die elastische, diffuse Defektstreuung, wie man sie nach Abzug des Untergrundes erhält, ist in Tabelle III aufgetragen ( $\Delta I_{4K}^{el}$ ) zusammen mit der Defektstreuung, wie sie nach Tempern bei 46 K vorliegt ( $\Delta I_{46K}^{el}$ ). Daneben ist das Verhältnis  $\Delta I_{46K}^{el}/\Delta I_{4K}^{el}$  der Erholung der elastischen, diffusen Streuung angegeben. Mit 50 % stimmt diese überein mit der Erholung des elektrischen Restwiderstandes. Das heißt, der Wirkungsquerschnitt pro Zwischengitteratom unterscheidet sich bei diesen drei  $q$ -Werten für die nach Bestrahlung und nach Tempern vorliegende Defektstruktur nicht.

Tabelle III:

| $q$ | $\Delta I_{4K}^{el} [n/4200 s]$ | $\Delta I_{46K}^{el} [n/4200s]$ | $\Delta I_{46K}^{el}/\Delta I_{4K}^{el}$ | $\frac{d\sigma}{d\Omega} [at.u.]$ |
|-----|---------------------------------|---------------------------------|------------------------------------------|-----------------------------------|
| 0.4 | $2855 \pm 143$                  | 1398                            | 49 %                                     | $10.7 \pm 2.1$                    |
| 0.6 | $2412 \pm 121$                  | 1202                            | 50 %                                     | $9.0 \pm 1.8$                     |
| 0.8 | $2593 \pm 130$                  | 1230                            | 48 %                                     | $9.7 \pm 1.9$                     |

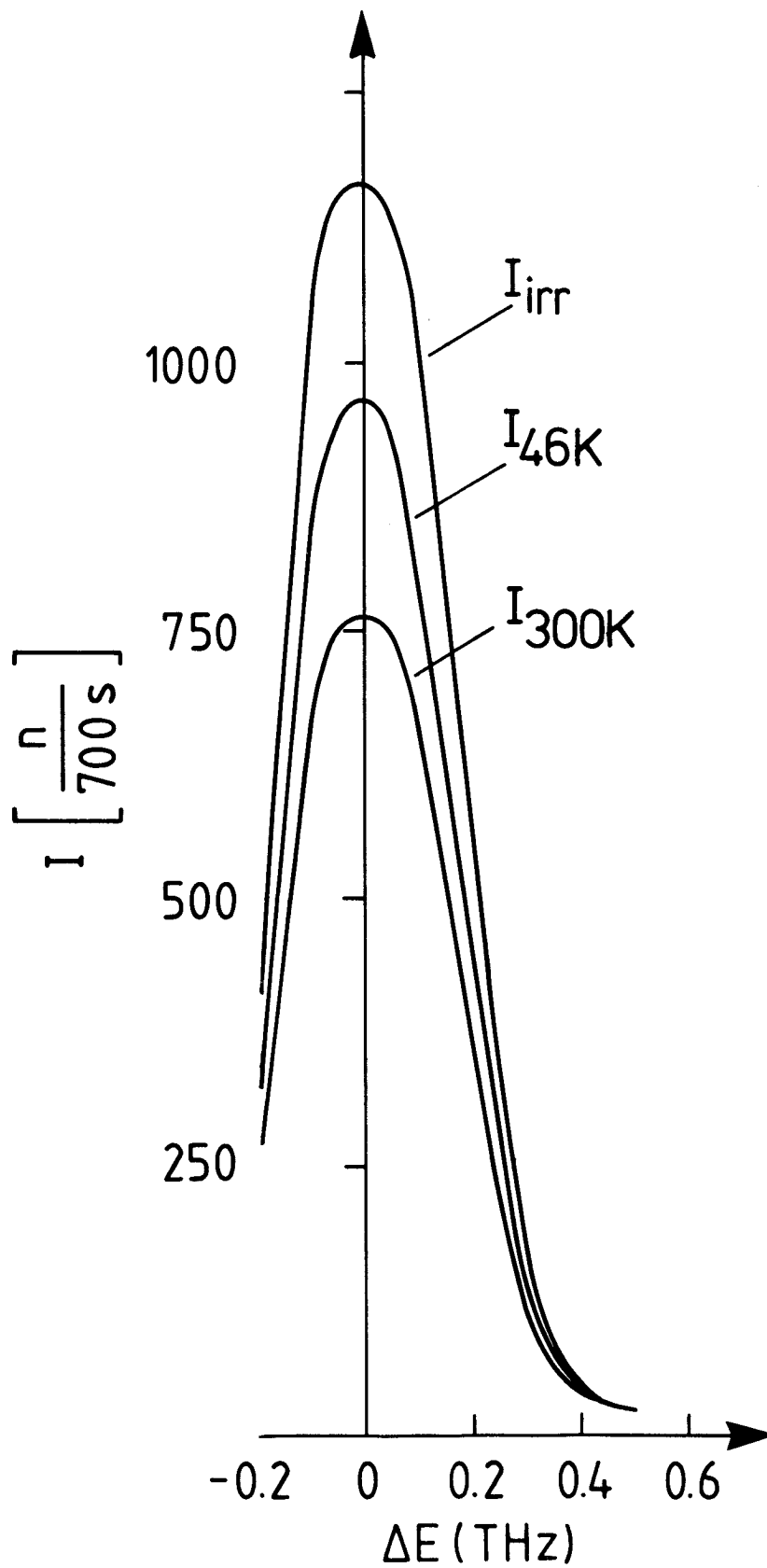


Abb. 6.7: Diffuse, elastische Streuung bei  $q = 0.6$ .  
nach Bestrahlung:  $I_{irr}$   
Tempern bei 46 K:  $I_{46K}$     Tempern bei 300 K:  $I_{300K}$ .

Auf Grund des guten Signal zu Untergrundverhältnisses von  $\approx 50 \%$  ergibt sich trotz der geringen Zählrate von 5000 n/4200s ein statistischer Fehler des Meßeffektes von nur 5-8 %. Hierin zeigt sich der Vorteil der diffusen Neutronenstreuung gegenüber der diffusen Röntgenstreuung, bei der das Signal zu Untergrundverhältnis wegen der thermisch-diffusen und Comptonstreuung im hier betrachteten Bereich des reziproken Raumes unter 1 % liegt.

Zum Gesamtfehler des absoluten Wirkungsquerschnitts kommen zusätzlich noch die Fehler in der Bestimmung der Defektkonzentration und der Eichung. Damit ergibt sich in diesem Experiment ein Gesamtfehler von ungefähr 15 %.

In Abb. 6.8 ist der gemessene Wirkungsquerschnitt (+) aufgetragen über der  $\langle 2, q, q \rangle$ -Achse des reziproken Raumes zusammen mit den experimentellen Werten (■) von Haubold. Ein direkter Vergleich der Neutronen- und Röntgenmessung ist für dieselben  $q$ -Werte nicht möglich, da Haubold auf den im Einsatz (Abb. 6.8) gezeigten Ewaldkreisen gemessen hat. Die in Abb. 6.8 eingetragenen Werte der Röntgenmessung sind Extrapolationen auf die Schnittpunkte der Ewaldkreise mit der  $\langle 2, q, q \rangle$ -Achse. Auf Grund der Fehler in der Extrapolation erwarten wir Fehler, die mindestens ebenso groß sind wie bei den Neutronendaten.

Für die diffuse, elastische Neutronenstreuung ergibt sich der Wirkungsquerschnitt für statistisch verteilte Punktdefekte, d.h. für kleine Konzentrationen  $c$ , für die eine Einzeldefektnäherung gilt, zu /22/:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = c e^{-2M} \left| f_D - f + f \left( \sum e^{i \underline{Q} (\underline{R}_O + \underline{R}_{st})} - \sum e^{i \underline{Q} \underline{R}_O} \right) \right|^2$$

Die diffuse, elastische Streuung setzt sich zusammen aus der Streuung am Defekt selbst (Laue-Streuung  $f_D - f$ ) und der Verzerrungsstreuung, die dadurch zustande kommt, daß in der Nähe des Defektes die Wirtsgitteratome von ihrem Platz im defektfreien Kristall  $\underline{R}_O$  um den Vektor  $\underline{R}_{st}$  verschoben sind. Haubold hat diese Verschiebungen mit einem einfachen Kraftmodell berechnet, in dem die beiden Hantelatome Zentralkräfte nur auf ihre nächsten Nachbarn ausüben. Die Parameter der Rechnung

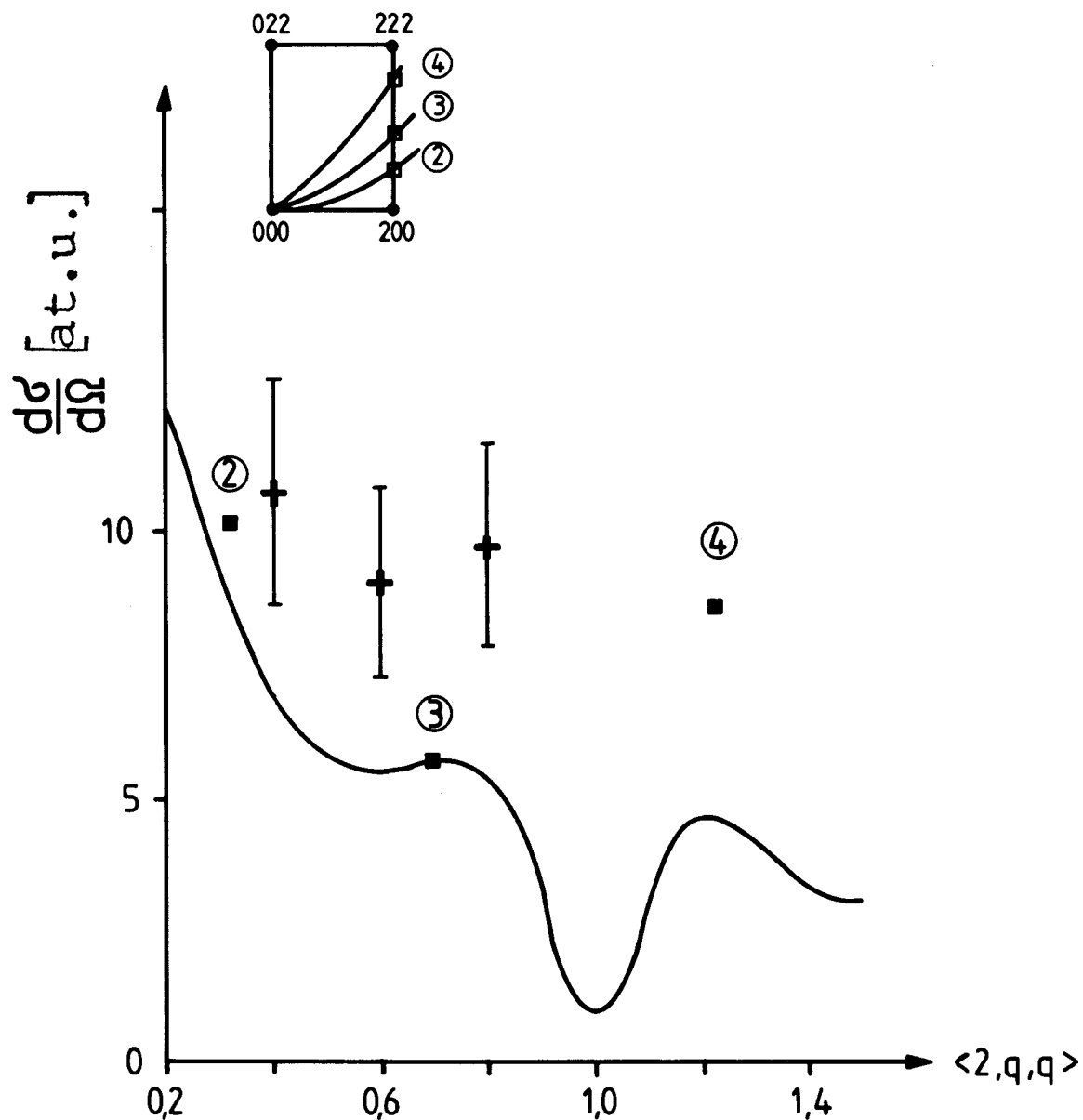


Abb. 6.8: Messung der diffusen, elastischen Streuung

- + n-Messung
- Röntgenmessung
- Rechnung nach /22/.

(Hantelabstand und Zentralkraft zu den nächsten Nachbarn) wurden dem besten Fit der Röntgenmessung entnommen.

Bei einem Vergleich der experimentellen Daten müssen die besonders großen Meßunsicherheiten der Röntgenstreuung in diesem Meßbereich bei großem  $Q$  berücksichtigt werden. Innerhalb der Fehler der beiden Messungen können die Ergebnisse daher als ungefähr

gleich angesehen werden. Gegenüber der Modellrechnung von Haulbold zeigt sich jedoch ein um einen Faktor 1.5 bis 1.6 erhöhtes Meßsignal in der Neutronenstreuung. Allein mit experimentellen Fehlern kann dieser Unterschied nicht erklärt werden. Das Vorliegen eines hohen Prozentsatzes von Doppelzwischengitteratomen in der Probe scheidet als Erklärung ebenfalls aus, da in dem Meßbereich der Wirkungsquerschnitt des Doppelzwischengitteratoms im Mittel um 30 % kleiner als der von zwei Einzelzwischengitteratomen ist. Eine mögliche Erklärung für den beobachteten Unterschied zwischen Messung und Rechnung besteht darin, daß das Modell an die mit kleineren Meßunsicherheiten behafteten Röntgenstreudaten bei kleinen Q-Werten gefittet wurde, die die Meßdaten in diesem Bereich gut beschreiben. Zur Beschreibung der Daten bei großen Q, bei denen hier gemessen wurde, müßte das Modell vermutlich durch Kräfte auch zu entfernteren Nachbarn erweitert werden, wie die analoge Untersuchung von Peisl et al. /32/ an N in Nb nahegelegt. Auf Grund der wenigen Meßpunkte der Neutronenstreuung erscheint allerdings ein Fit mit einem erweiterten Kraftmodell nicht sinnvoll.

## 7. Diskussion

Im Gegensatz zu der einfachsten Modellvorstellung, daß die inelastische Streuung im wesentlichen durch die Mode mit der tiefsten Energie (z.B.  $E_g$ -Mode der Hantel) bestimmt wird, zeigten die im vorhergehenden Kapitel vorgestellten Messungen ein Spektrum verschiedener Schwingungsfrequenzen. Zum Verständnis dieser Streukurve ist es deshalb nötig, das ganze Schwingungsspektrum der Defekte zu berücksichtigen. Im folgenden werden daher zuerst die für verschiedene, mögliche Modellannahmen berechneten Eigenfrequenzen eines Kristalls mit einem Einzel- bzw. einem Doppelzwischengitteratom vorgestellt. Diese Berechnungen wurden mit drei verschiedenen Potentialen durchgeführt:

- einem Morse-Potential von Cotterill und Doyama /33/, das an Leerstellenbildungsenergie, Kompressionsmodul und Gitterkonstante von Cu gefittet war (Abb. 7.1a). (In der Darstellung des Potentials ist mit  $R_{NN}$  der Abstand nächster Nachbaratome im Kristall und mit  $R_{HH}$  der berechnete Abstand der Hantelatome gekennzeichnet).
- einem modifizierten Morse-Potential, das zusätzlich an das Relaxationsvolumen des Einzelzwischengitteratoms angepaßt wurde /33/ (Abb. 7.1a).
- einem an Al angepaßten Pseudopotential von Dagens, Rasolt und Taylor /34/ (Abb. 7.1b). Die Stabilität des Modellkristalls wird bei dieser Rechnung durch einen dem Elektronendruck entsprechenden äußeren Druck auf den Modellkristall gewährleistet.

Mit den beiden Morse-Potentialen und einem Born-Mayer Potential wurden auch die in Kapitel 2 vorgestellten Ergebnisse berechnet. Die aus den Cu-Potentialen berechneten Eigenfrequenzen müssen auf Al übertragen werden, damit sie mit den experimentellen Ergebnissen verglichen werden können. Als Umrechnungsfaktor wurde das Verhältnis der experimentell bestimmten Maximalfrequenzen des ungestörten Al- und Cu-Kristalls benutzt. Bei  $\nu_{\max}^{\text{Al}} = 9.7 \text{ THz}$  und  $\nu_{\max}^{\text{Cu}} = 7.3 \text{ THz}$  /35/ beträgt dieses Verhältnis 1.33. Daß dieses Vorgehen physikalisch sinnvoll ist, zeigt die folgende qualitative Über-

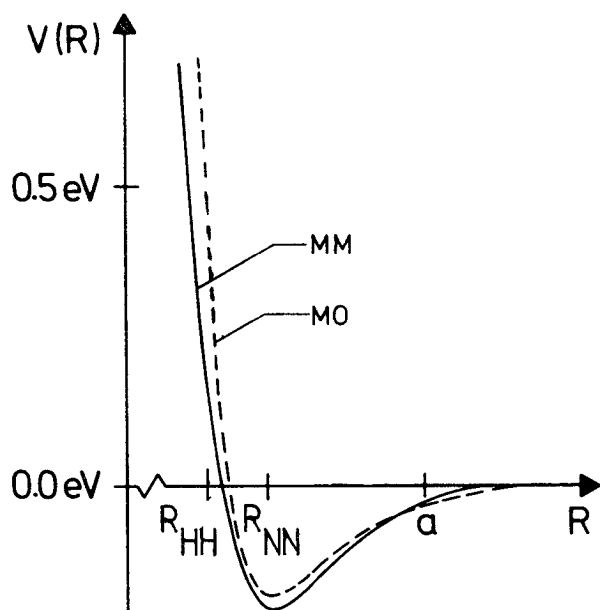


Abb. 7.1a: MO  $\hat{=}$  einfaches Morse-Potential  
MM  $\hat{=}$  modifiziertes Morse-Potential /33/

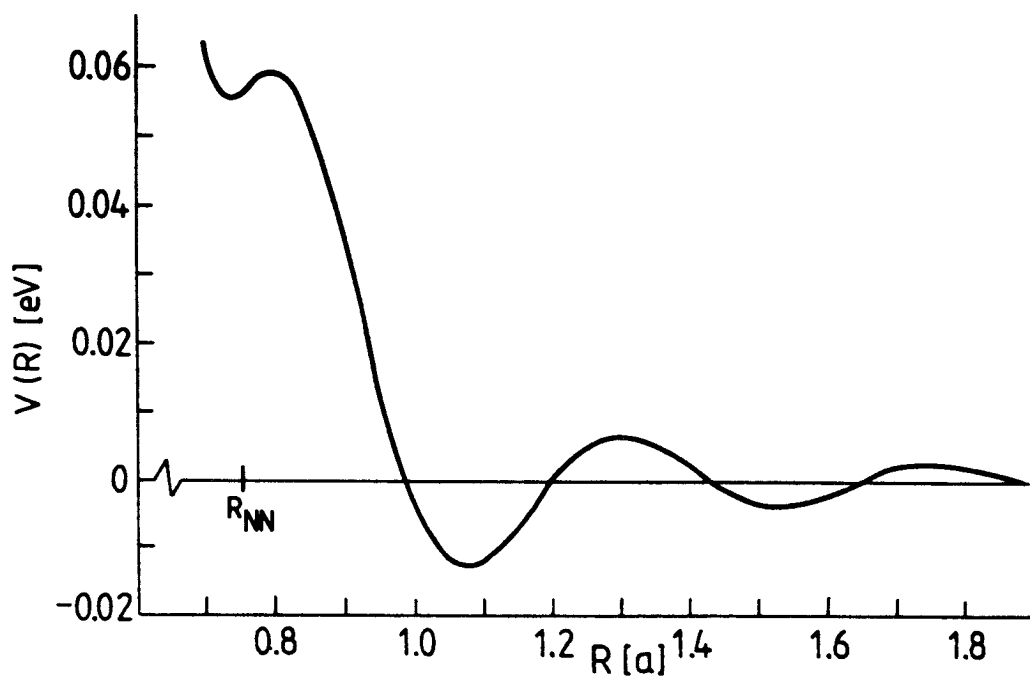


Abb. 7.1b: Al-Pseudopotential /34/

legung. Die Frequenz ist über die Beziehung  $\omega = \sqrt{f/M}$  mit der Masse des Gitteratoms und einer interatomaren Kraftkonstante verknüpft. Als Umrechnungsverhältnis käme daher auch die Wurzel aus dem Masseverhältnis in Frage, das für Al und Cu 1.54 beträgt. Zusätzlich muß man noch berücksichtigen, daß Al weicher als Cu ist, also die kleineren interatomaren Kraftkonstanten besitzt. Dies führt zu einem kleineren Umrechnungsfaktor, wie es in dem Verhältnis der Maximalfrequenzen zum Ausdruck kommt. Da für dieses Schwingungsverhalten des Zwischengitteratoms gerade die starken Rückstellkräfte für kleine zwischenatomare Abstände zum Tragen kommen, sollte der Potentialverlauf bei größeren Abständen und damit die vornehmlich dort auftretenden Unterschiede der verschiedenen Potentialansätze nicht von so grosser Bedeutung sein.

Sind die Eigenfrequenzen bekannt, werden nach Gleichung 5 für jeden gemessenen Impulsübertrag  $Q$  die Strukturfaktoren und mit Hilfe von Gleichung 4 die auf ein Wirtsgitteratom bezogenen Wirkungsquerschnitte für alle Schwingungsmoden berechnet. Unter Berücksichtigung der experimentellen Energieauflösung werden die Beiträge aller Moden aufaddiert. Die so berechneten Wirkungsquerschnitte werden mit den gemessenen verglichen und ausführlich diskutiert.

### 7.1 Defektinduzierte Eigenfrequenzen eines Kristalls mit einem Einzel- bzw. Doppelzwischengitteratom - berechnet über Diagonalisierung der dynamischen Matrix

Für die drei oben beschriebenen Potentiale hat H.R. Schober für den Modellkristall aus 290 Atomen mit einem Einzel- bzw. Doppelzwischengitteratom (nur Morse-Potential) im Zentrum die 870 Eigenfrequenzen und die zugehörigen Eigenvektoren berechnet. Da mit der in Kapitel 3.2.2 vorgestellten Berechnungsmethode sämtliche Moden eines Modellkristalls berechnet werden, enthält das Frequenzspektrum neben den Defektmoden - Hantelschwingung und

Nächste-Nachbarschwingung - auch Gitterschwingungen. Zum Meßeffekt tragen aber ausschließlich defektinduzierte Moden bei, so daß die Gittermoden absepariert werden müssen. Eine a priori-Zuordnung der Frequenzen zu Defekt- oder Gittermoden ist größtenteils nicht möglich, sondern muß nach einem Auswahlkriterium entschieden werden. Hierfür eignet sich der Eigenvektoranteil  $k$  einer Mode  $\alpha$ .

$$\sum_{n=1}^N \sum_{i=1}^J (v_{\alpha i}^n)^2 = k_{(N)}$$

$v_{\alpha i}^n$  ist das Element des Eigenvektors zur Mode  $\alpha$ , das angibt, wie stark Atom  $n$  in Richtung  $i$  schwingt. Die erste Summe läuft über  $N$  Atome des Modellkristalls - Hantelatome und Umgebungsatome - die zweite über die drei Raumkoordinaten dieser Atome. Da der Eigenvektor auf 1 normiert ist, gilt für die Summation über alle Atome des Modellkristalls ( $N = 290$ ), daß  $k = 1$  wird.  $k$  beschreibt also den Prozentsatz vom Eigenvektor, den der Defekt und eine Anzahl von Atomen seiner Umgebung zum gesamten Eigenvektor dieser Mode beitragen. Für eine Resonanzmode der Hantel z.B. entfällt der Hauptbeitrag zu dieser Summe auf die Hantel und ihre ersten zwei Nachbarschalen (Atome A und B in Abb. 2.4). Am Beispiel der  $E_g$ -Mode

| N | 14 (A+B) | 20 (A-D) | 44 (A-F) |
|---|----------|----------|----------|
| k | 0.79     | 0.80     | 0.86     |

wird deutlich, daß die Mode sehr stark räumlich auf den Defekt und seine nächsten Nachbarn beschränkt ist. Dies gilt ebenfalls für die anderen Hantelmoden sowohl des Einzel- als auch des Doppelzwischengitteratoms. Im folgenden wird zur Unterscheidung der verschiedenen Moden der Eigenvektoranteil berechnet. Im Falle des Einzelzwischengitteratoms erfolgt diese Rechnung für einen Kristall mit 44 Atomen und im Falle des Doppelzwischengitteratoms

mit 54 Atomen. Für das Einzelzwischengitteratom haben die stark lokalisierten Hantelmoden einen  $k$ -Wert zwischen 0.6 und 0.95, die Nächste-Nachbarmoden sind mit  $k$ -Werten zwischen 0.5 und 0.7 nicht mehr so stark lokalisiert. Im Falle des Doppelzwischengitteratoms liegen die  $k$ -Werte der Hantelmoden ebenfalls zwischen 0.6 und 0.95, die der Nächste-Nachbarmoden bei etwa 0.7. Treten Moden mit einem  $k$  unter 0.4 bis 0.5 auf, werden diese als Gitterschwingungen angesehen. Dies ist konsistent mit der Beobachtung, daß für einen Modellkristall ohne Defekt für die genannten Atomzahlen  $k$  für alle Moden dieses Kristalls stets kleiner ist als die oben genannten Grenzwerte. Mit diesem Kriterium ergeben sich die in Abb. 7.2 und 7.3 angegebenen Frequenzzuordnungen.

Abb. 7.2 zeigt bis 3 THz die Frequenzlage der verschiedenen, berechneten Defektschwingungen für die Einzelzwischengitteratome. In a) wurde mit einem einfachen Morse-Potential gerechnet, in b) mit einem modifizierten, in c) mit dem Pseudopotential. Die tiefsten Schwingungsfrequenzen gehören zu den drei Hantelmoden  $E_g$ ,  $A_{2u}$  und  $E_u$ . Die Lage der ersten zwei Moden stimmt im Falle des einfachen Morse-Potentials mit 1.2 bzw. 1.7 THz gut mit Rechnungen des lokalen Schwingungsspektrums eines Hantelatoms überein, wie sie von Dederichs et al. / 1 / mit Hilfe der Green'schen Funktionsmethode für dieses Potential durchgeführt wurden (Abb. 2.2, s. Kap. 2). Im Vergleich dazu liegt die  $E_u$ -Mode mit 1.95 THz bei tieferen Frequenzen. Im Falle des modifizierten Morse-Potentials ist das ganze Spektrum zu höheren Frequenzen hin verschoben ( $\nu_{E_g} = 2.0$  THz) und die  $A_{2u}$ - und  $E_u$ -Hantelmoden sind vertauscht. Die  $E_g$  Rechnungen von Dederichs für dieses Potential ergeben eine ähnliche Verschiebung ( $\nu_{E_g} = 1.9$  THz) und die Frequenzen liegen in der Reihenfolge des  $E_g$  einfachen Morse-Potentials.

Ein Vergleich der Ergebnisse der Morse-Potentiale zeigt, daß die  $E_g$ -Mode in beiden Fällen die tiefstliegende Resonanzmode ist. Die Schwingungen, wie sie sich aus dem modifizierten Morse-Potential ergeben, sind zu höheren Frequenzen hin verschoben. Die höhere Frequenzlage des modifizierten Morse-Potentials hängt mit der zusätzlichen Anpassung dieses Potentials an das Relaxationsvolumen zusammen, das mit dem einfachen Morse-Potential überschätzt wird. Dieses kleinere Relaxationsvolumen ist auch mit klei-

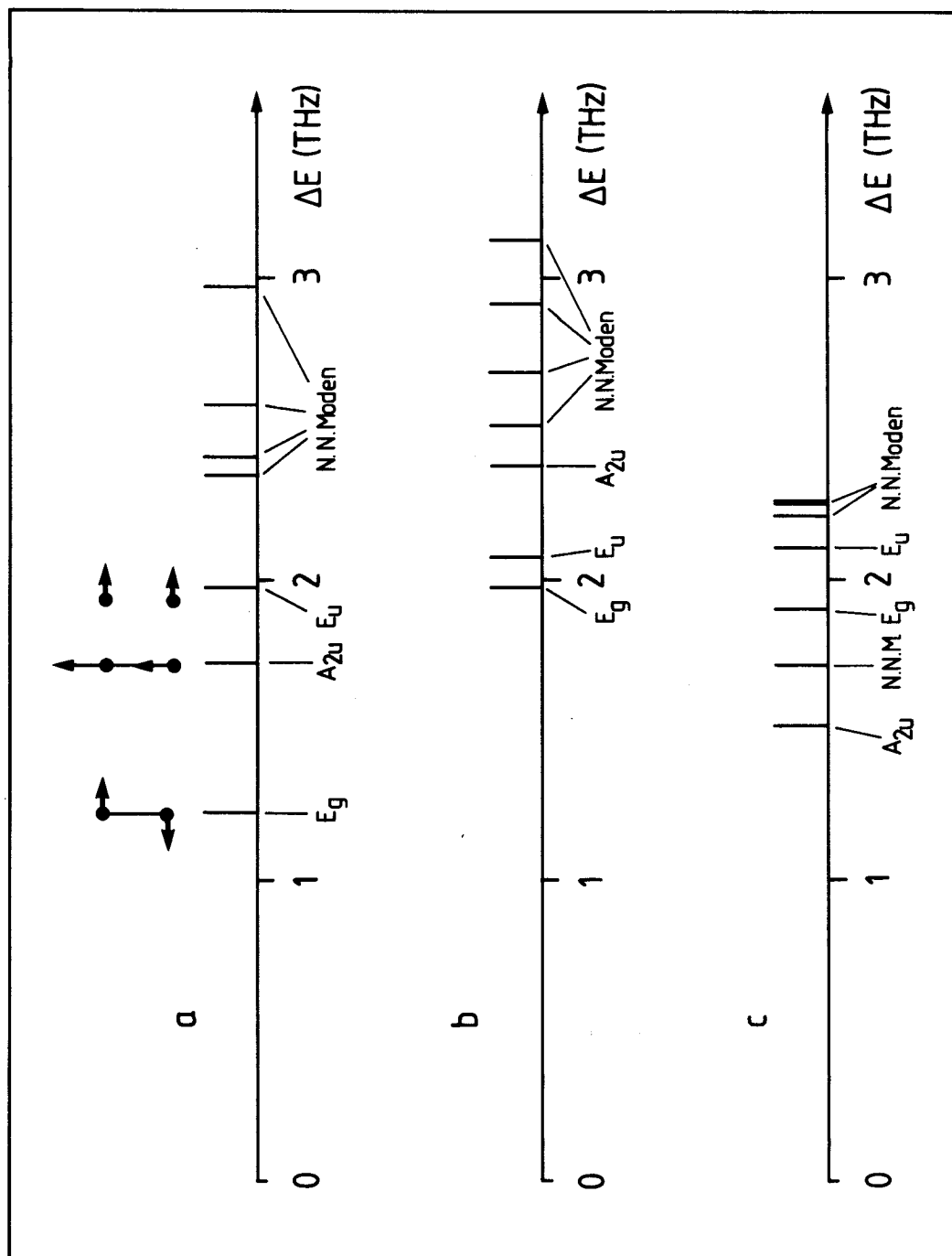


Abb. 7.2: Ausschnitt der defektinduzierten Eigenfrequenzen eines Kristalls mit Einzelzwischengitteratom berechnet mit: a) einfachem Morse-Potential; b) modifiziertem Morse-Potential; c) Al-Pseudopotential.

neren statischen Verschiebungen verbunden. Dadurch werden - im einfachen Federmodell - die Federn weniger stark vorgespannt, was zur Folge hat, daß die Querkräfte kleiner werden, die bei Auslenkung z.B. der Hantel senkrecht zur verbindenden Feder die Auslenkung zu vergrößern trachten. Das heißt, die kleineren Querkräfte führen zu einer geringeren Absenkung der Rückstellkräfte, woraus unmittelbar eine höhere Resonanzfrequenz folgt.

An der Frequenzfolge, wie sie sich aus dem Al-Pseudopotential ergibt, fällt auf, daß unterhalb der  $E_g$ -Mode eine andere Hantelmode, die  $A_{2u}$ -Mode, liegt. Dies steht im Gegensatz zu allen bisherigen Rechnungen mit Cu-Morse-Potentialen. Wegen der Oszillationen des Pseudopotentials ist das für die Rechnung notwendige Abschneiden des Potentials kritisch. Das Frequenzspektrum reagiert auf unterschiedliche Abschneidebedingungen empfindlicher als die Eigenvektoren. Die  $A_{2u}$ -Mode wird in ihrer Lage verschoben, bleibt in allen Fällen jedoch unter der Frequenz der  $E_g$ -Mode. Die unterste Nächste-Nachbarmode kann jedoch, je nach Wahl der Abschneidebedingung, auch bei Frequenzen oberhalb von  $E_g$  liegen.

Abb. 7.3 zeigt die Frequenzlagen der berechneten defektinduzierten Schwingungen eines Kristalls mit einem Doppelzwischengitteratom: a) Morse-Potential, b) modifiziertes Morse-Potential. Im Frequenzbereich bis 3 THz liegen deutlich mehr Moden als im Falle des Einzelzwischengitteratoms. Diese erhöhte Zustandsdichte oberhalb von 2 THz ( $\approx 0.2 \nu_{\max}$ ) zeigt auch das lokale Schwingungsspektrum eines Doppelhantelatoms, wie es mit Hilfe der Green'schen Funktion berechnet wurde /14/ (Abb. 2.10, Kapitel 2). Im Auftreten dieser zahlreichen Moden spiegelt sich die niedrige Symmetrie der Doppelhantel wider, die zu einer Aufhebung aller Entartungen führt.

Die Moden des modifizierten Morse-Potentials liegen wiederum höher als die des einfachen Morse-Potentials. Besonders die Frequenz der  $B_{2g}$ -Mode ist mit  $\nu_{B_{2g}} \approx 1.25$  THz um mehr als einen Faktor 2.5 erhöht. Im Falle des modifizierten Morse-Potentials sind die

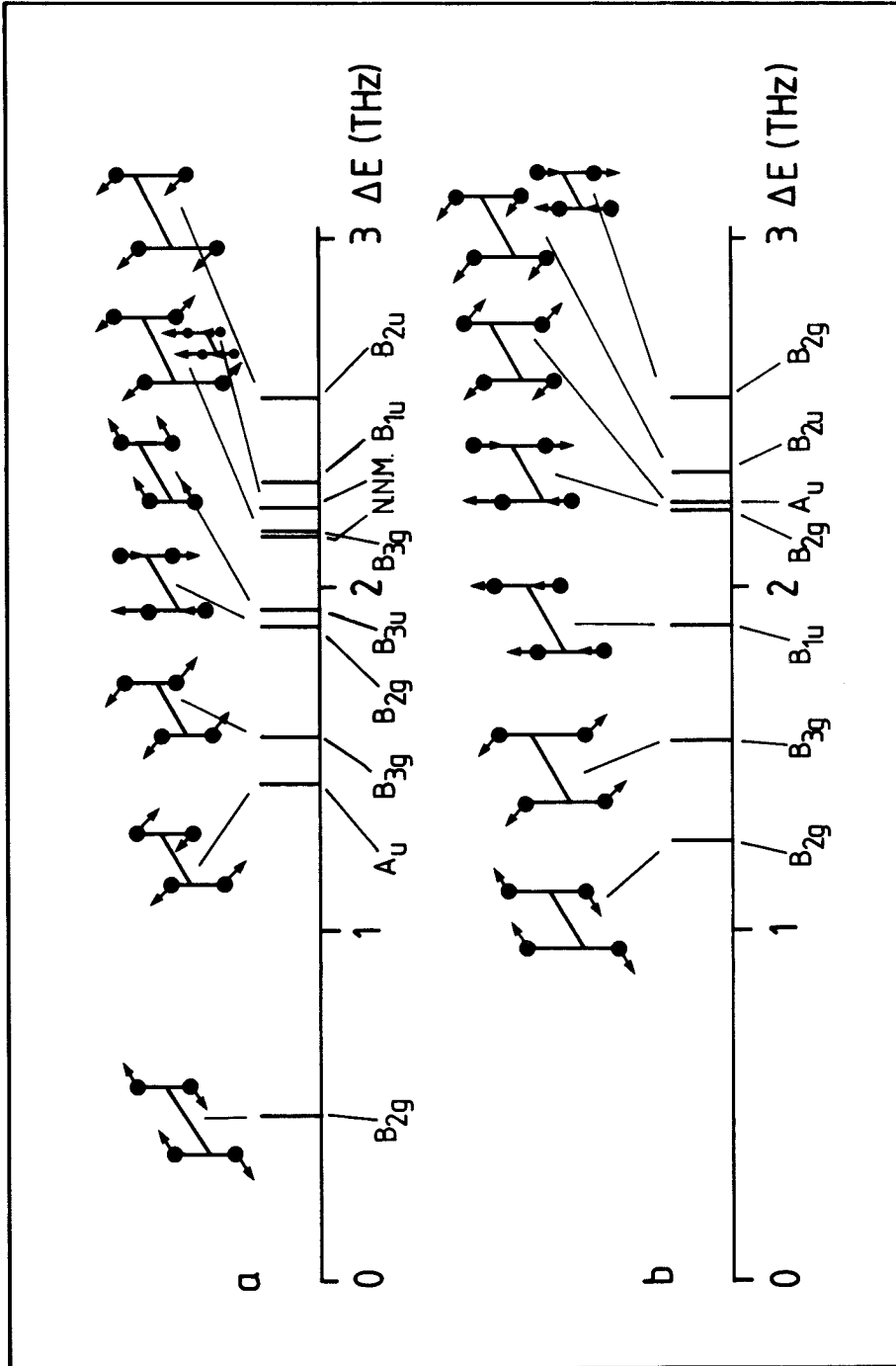


Abb. 7.3: Ausschnitt der defektinduzierten Eigenfrequenzen eines Kristalls mit Doppelzwischengitteratom berechnet mit: a) einfachem Morse-Potential; b) modifiziertem Morse-Potential.

Hanteln in der von ihnen gebildeten Ebene etwas verkippt. Unabhängig vom Potential und der Berechnungsmethode ist jedoch die  $B_{2g}$ -Mode die niedrigste Schwingung des Frequenzspektrums eines Doppelzwischengitteratoms. Die höheren Moden zeigen eine unterschiedliche Reihenfolge. Dies gilt auch für die Berechnung der Frequenzfolge mit Hilfe des Aluminiumpotentials.

Vergleicht man die Rechnung für beide Defekttypen innerhalb desselben Potentials, fällt auf, daß die  $B_{2g}$ -Mode des Doppelzwischengitteratoms jeweils unterhalb der  $E_g$ -Mode des Einzelzwischengitteratoms liegt.

## 7.2 Strukturfaktoren

Wie in Kapitel 3.2.1 gezeigt, kann aus dem Eigenvektor  $\underline{v}_{(v)}$  einer Mode der Strukturfaktor der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung für diese Schwingungsmode berechnet werden. Im folgenden soll die  $q$ -Abhängigkeit typischer Strukturfaktoren diskutiert werden.

Bevor die physikalischen Gesichtspunkte besprochen werden, soll zunächst der Einfluß der Näherung behandelt werden, die bei der Herleitung des Wirkungsquerschnitts der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung gemacht wurde. Die Streuformel (3) (Kapitel 3.2.1) beschreibt nur die kohärente Streuung der Neutronen am Defekt und den mitschwingenden Nachbaratomen. Der Übergang der Bewegung weiter außen liegender Atome in die ungestörte Gitterschwingung wird nicht erfaßt. Alle errechneten Eigenvektoren enthalten jedoch bei größeren Abständen vom Defekt auch merkliche Anteile von Gitterschwingungen. Das heißt, die Fouriersumme im Strukturfaktor des Wirkungsquerschnitts (Gl. 5) darf nicht über alle Atome des Modellkristalls laufen, sondern muß vorher beim Übergang der Defektschwingung in ungestörte Gitterschwingungen abgebrochen werden. Wie weit eine Defektschwingung ins Gitter hin-

ausreicht, kann wiederum aus dem Anteil  $k$  am Eigenvektor dieser Mode geschlossen werden, den eine bestimmte Anzahl von Atomen um den Defekt zum Eigenvektor beiträgt.

Wie im vorhergehenden Kapitel besprochen, entfallen für die  $E_g$ -Mode 79 Prozent des Eigenvektors allein auf die Hantel und ihre ersten 12 Nachbaratome. Die nächsten 20 Prozent sind schon auf 42 Atome der nächsten sechs Schalen verteilt. Diese Resonanzschwingung ist somit stark auf die unmittelbare Defekturngebung beschränkt, in guter Übereinstimmung mit den in Kapitel 2 dargestellten Ergebnissen von Yamamoto. Er erhielt für diesen Frequenzbereich nur in den lokalen Zustandsdichten der Atome der 2. Schale um den Defekt (B in Abb. 2.4 - "Ring" oberhalb und unterhalb der Hantel) eine deutlich höhere Dichte als für das ideale Gitter; die Atome weiter außen zeigen die normalen Gitterschwingungen des ungestörten Kristalls.

Wie im vorhergehenden Kapitel gesehen, zeigen die Nächste-Nachbarmoden ein ähnliches Verhalten. Zwar reichen sie per definitionem schon weiter ins Gitter, aber nach 6-8 Schalen (F-H in Abb. 2.4) gehen sie in Gitterschwingungen über, was ebenfalls den Zustandsdichten dieser Atome zu entnehmen ist.

Es ist somit physikalisch sinnvoll, in der Fouriersumme je nach Mode nur wenige Atomschalen zu berücksichtigen und den Eigenvektor dann auf 1 zu normieren. Eine gewisse Unsicherheit in der Berechnung des Strukturfaktors verbleibt jedoch in der Wahl der Zahl der Schalen, nach denen die Fouriersumme am günstigsten abgebrochen wird. Doch sind die Unterschiede im Strukturfaktor im allgemeinen klein, wie das in Abb. 7.4 gezeigte Beispiel für die  $E_g$ -Mode zeigt. In Abb. 7.4a wurde über die Hantel und ihre 1. und 2. Nachbarschale summiert (A und B in Abb. 2.4, 14 Atome). In Abb. 7.4b läuft die Summe über 20 Atome bis zur 4. Nachbarschale (A-D) und in Abb. 7.4c über 44 Atome bis zur 5. Nachbarschale (A-F). Das Maximum behält stets seine Lage bei etwa  $(1.75, 0.5, 0.5)$ , nur die Flanke bei großen  $q$ -Werten verschiebt sich etwas.

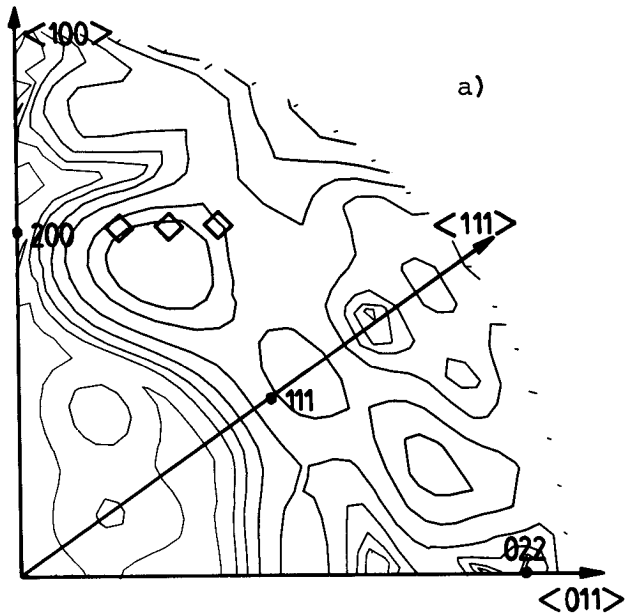
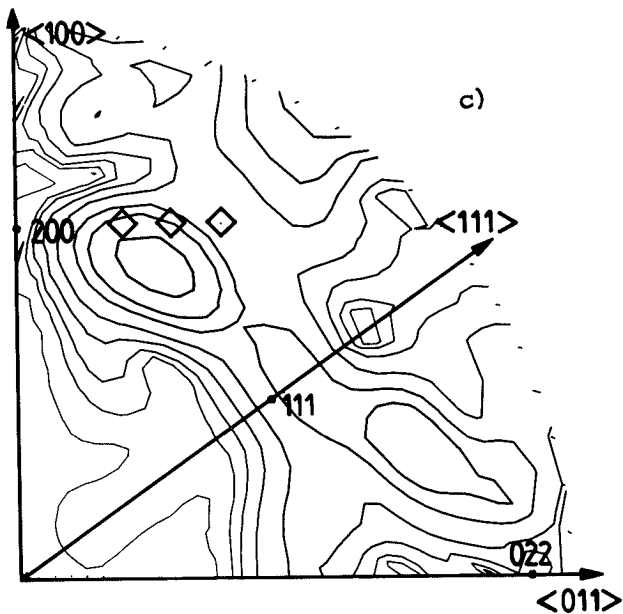
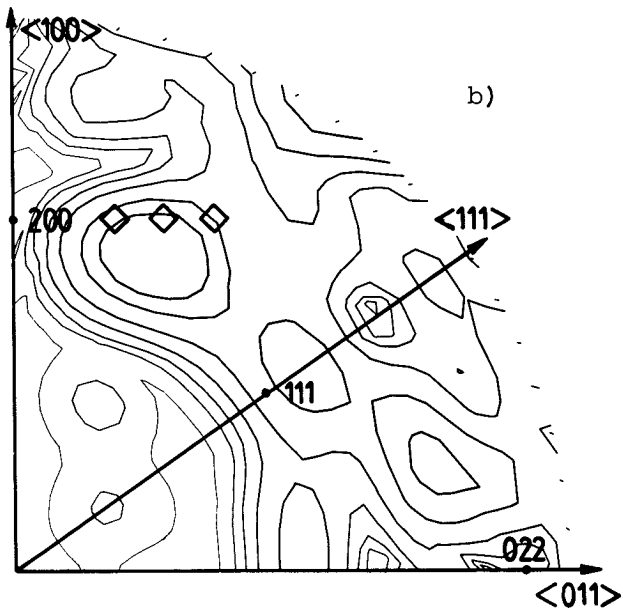


Abb. 7.4: Strukturfaktor der  $E_g$ -Mode  
Fouriersumme (Gl. 5)  
einschließlich Han-  
telatome und

- a) 14 Atome (A-B)  $k = 0.79$
- b) 20 Atome (A-D)  $k = 0.80$
- c) 44 Atome (A-E)  $k = 0.86$

(s. Abb. 2.4).



Bei Berechnung des Strukturfaktors der verschiedenen Moden muß also abgewogen werden zwischen einem möglichst großen Eigenvektoranteil und einer Summation über möglichst wenige Nachbarschalen des Defektes. Sowohl beim Morse- als auch beim Al-Potential sind die  $E_g$ - und die  $A_{2u}$ -Mode des Einzelzwischengitteratoms stark lokalisiert. Innerhalb von 20 Atomen liegen schon 80 % des Eigenvektors, so daß die Summe hier abgebrochen wurde. Die  $E_u$ -Moden des Einzelzwischengitteratoms haben schon einen etwas stärker phononischen Anteil. Für das Al-Potential liegen innerhalb von 20 Atomen immerhin noch 72 %, wogegen für das Morse-Potential die Summation über 44 Atome erstreckt wurde, um 66 % des Eigenvektors zu erfassen. Im Falle der Nächste-Nachbarmoden wurde entweder über 44 oder 56 Atome summiert, d.h. bis zur 6. oder 8. Schale, um über 55 % des Eigenvektors zu berücksichtigen.

Für das Doppelzwischengitteratom ergibt sich ein ähnliches Bild. Die beiden tiefsten Moden  $B_{2g}$  und  $A_u$  im Falle des Morse-Potentials sind stark lokalisiert, mit 22 Atomen werden 80 % des Eigenvektors erfaßt. Bei den höheren Hantelmoden werden nur bei Summation über 54 Atome 65-70 % Eigenvektoranteil wie bei dem Einzelzwischengitteratom erreicht. Dies gilt auch für die Nächste-Nachbarmoden.

Wie in Kapitel 3.2.2 diskutiert, wird die charakteristische Topologie des Strukturfaktors einer Mode weitgehend von der Symmetrie der Schwingung bestimmt und ist fast unabhängig von Details des Potentials. Daher können die Strukturfaktoren der verschiedenen Moden vom Einzel- und Doppelzwischengitteratom nach gemeinsamen Merkmalen eingeordnet werden. Dies erlaubt eine Aussage darüber zu machen, wie stark eine bestimmte Mode an den Meßpunkten im Q-Raum zur Streuung beiträgt. Auf Grund der Mittelung über alle möglichen Raumlagen der Hantel und, im Falle der Doppelhantel, zusätzlich über deren beiden möglichen Ebenen besitzen alle Strukturfaktoren kubische Symmetrie. Das modifizierte Morse-Potential ergibt als Struktur des Doppelzwischengitteratoms eine gekippte Doppelhantel. Diese besitzt eine geringere Symmetrie als die ungekippte, so daß über noch mehr Lagen gemittelt werden muß.

Die Strukturfaktoren der Vielzahl von Moden der beiden Defekttypen können in vier verschiedene Typen zusammengefaßt werden. Dabei ist allerdings zu beachten, daß das Schwingungsmuster der Nachbaratome für ein und dieselbe Mode stark vom Potential abhängen kann. Daher kann eine Mode abhängig vom Potential erheblich unterschiedliche Strukturfaktoren zeigen.

#### Typ $E_g$ :

Hierunter fällt die  $E_g$ -Mode als der charakteristische Vertreter (Abb. 7.5). Die Atome schwingen senkrecht zur Hantelachse  $\langle 100 \rangle$  mit gerader Symmetrie ( $\underline{v}(\underline{R}) = -\underline{v}(-\underline{R})$ ). Diese Symmetrie führt zu destruktiver Interferenz auf der  $\langle 100 \rangle$ -Achse. Konstruktive Interferenz der Streuung an den vier Nachbaratomen oberhalb und unterhalb der beiden Hantelatome (Atome B in Abb. 2.4) erzeugt die Maxima bei  $Q \approx (1.75, 0.5, 0.5) \frac{2\pi}{a}$  und  $Q \approx (0.5, 1.7, 1.7) \frac{2\pi}{a}$ . Zu diesem Typ gehören auch die  $B_{2g}$ -,  $A_u$ - und  $B_{3g}$ -Moden des Doppelzwischengitteratoms.

Die  $B_{2g}$ -Mode des Doppelzwischengitteratoms tritt zweimal im Frequenzspektrum auf (siehe Abb. 7.3). Dies kommt daher, daß diese Mode als Überlagerung von  $E_g$ - und  $A_{2u}$ -Mode zu verstehen ist und je nach dem größeren Gewicht einer Schwingung, der  $E_g$ - oder  $A_{2u}$ -Charakter der  $B_{2g}$ -Mode hervortritt. Im Falle der  $B_{2g}$ -Mode mit  $E_g$ -Charakter sind die Maxima am (200)-Reflex gegenüber der  $E_g$ -Mode zu kleinerem  $q$  hin verschoben. Dies ist eine Folge der ausgedehnten Defektregion. Der Ring von oberen und unteren nächsten Nachbaratomen der Doppelhantel, die diese konstruktive Interferenz erzeugen, wird von weiter auseinandergelegenen Atomen gebildet. Aber auch die  $B_{2g}$ -Mode mit  $A_{2u}$ -Charakter fällt unter den  $E_g$ -Typ. Der Grund dafür ist die gerade Symmetrie der Mode, die zur destruktiven Interferenz auf der  $\langle 100 \rangle$ -Achse führt - im Gegensatz zum Strukturfaktor der  $A_{2u}$ -Mode des Einzelzwischengitteratoms (Abb. 7.7a). Das relativ breite Maximum des Strukturfaktors dieser  $B_{2g}$ -Mode bei  $Q \approx (2, 0.5, 0.5) \frac{2\pi}{a}$  zeigt jedoch den Einfluß der  $A_{2u}$ -Moden-artigen Schwingung jeweils einer Hantel.

Im Falle der  $B_{3g}$ - und der  $A_u$ -Mode bewegen sich die Hantelatome senkrecht zur Ebene der Doppelhantel wie quasi zwei parallele,

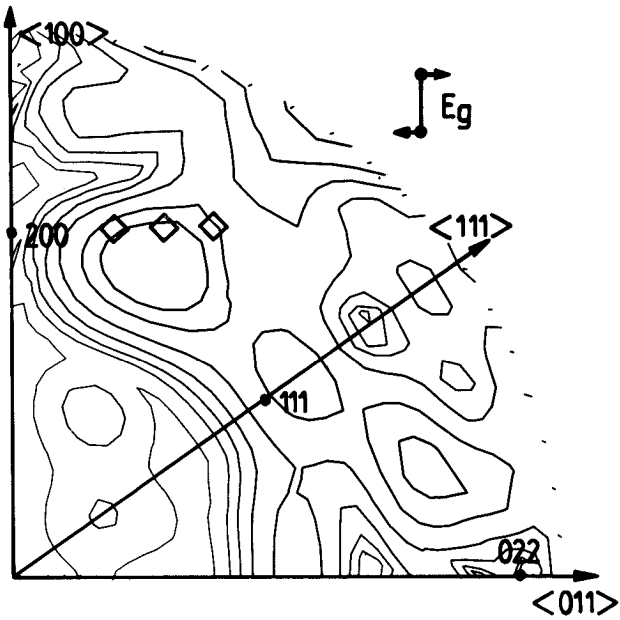
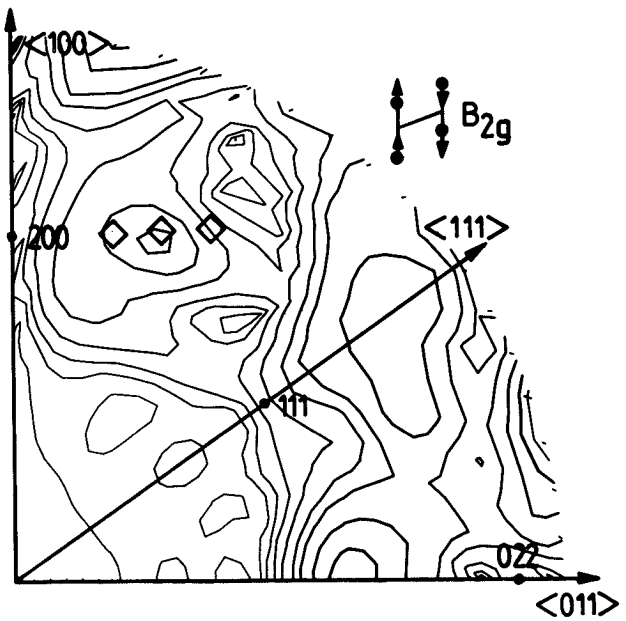
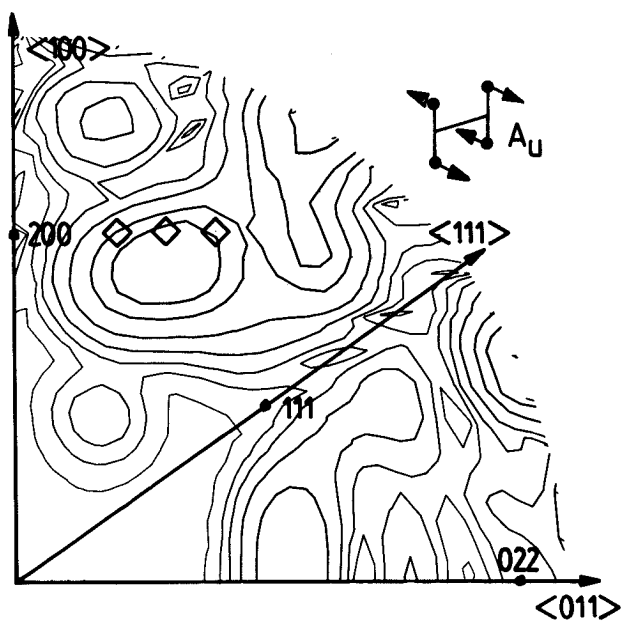
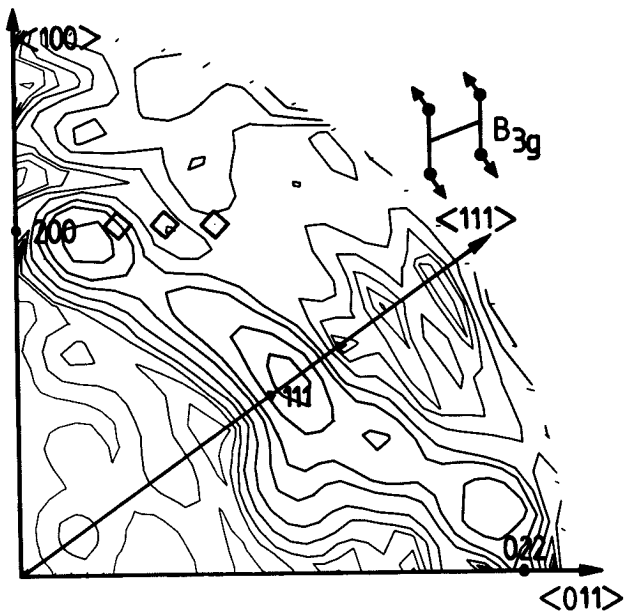
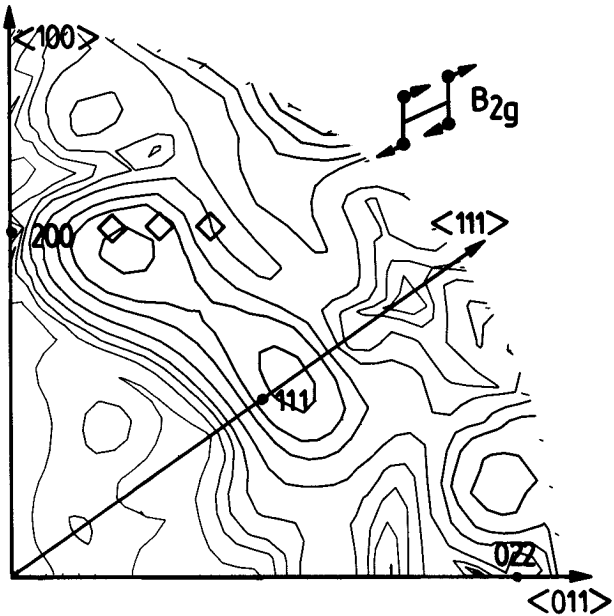


Abb. 7.5: Strukturfaktoren  
vom Typ  $E_g$ .



gleich- bzw. gegenphasig schwingende  $E_g$ -Moden. Auf Grund dieser Symmetrie zeigen beide Moden neben der  $\langle 100 \rangle$ -Achse auch destruktive Interferenz auf der  $\langle 011 \rangle$  bzw.  $\langle 111 \rangle$ -Achse. Die Maxima der  $B_{3g}$ -Mode sind noch weiter am (200) Reflex konzentriert als bei der  $B_{2g}$ -Mode. Das Maximum der  $A_u$ -Mode bei  $Q \approx (1.75, 0.6, 0.6) \frac{2\pi}{a}$  liegt ungefähr bei dem der  $E_g$ -Mode.

Unter die zwei folgenden Typen von Hantelmoden fallen ausschließlich ungerade Moden, die sich jedoch in der Schwingungsphase zwischen Hantelatomen und Nachbaratomen unterscheiden.

Typ: Hantel- und Nachbaratome alle gleichphasig (Abb. 7.6):

Zu diesem Typ gehören die  $E_u$ -Moden, wie sie sich aus den Morse-Potentialen ergeben, und die  $B_{2u}$ - und  $B_{3u}$ -Moden der Doppelhantel. Durch die ungerade Symmetrie der Moden und die gleichphasige Bewegung aller Nachbaratome mit der Hantel kommt es zu starker konstruktiver Interferenz am Ort der Braggreflexe. Da der Strukturfaktor vom Braggreflex aus schnell abfällt, tragen die Moden an den Meßpunkten nicht stark zur Streuintensität bei. Wie oben erwähnt, kann die  $E_u$ -Mode, wie sie sich aus dem Al-Pseudopotential ergibt, einen anderen Strukturfaktor zeigen, der mehr dem folgenden Typ entspricht.

Typ: Hantel- und Nachbaratome teilweise gleichphasig (Abb. 7.7):

Zu diesem Typ gehören neben der  $A_{2u}$ -Mode des Morse-Potentials die  $A_{2u}$ -Mode des Al-Potentials sowie die dazugehörige  $E_u$ -Mode. Während im Falle des Morse-Potentials bei dieser Mode alle Umgebungsatome gleichphasig mit den Hantelatomen schwingen, bewegen sich im Falle des Al-Potentials zwar die in der Schwingungsebene liegenden Nachbaratome gleichphasig mit den Hantelatomen, aber andere Nachbaratome schwingen gegenphasig oder senkrecht zur Schwingungsebene der Hantel. Ein ähnliches Bewegungsmuster zeigen die Umgebungsatome bei der  $A_{2u}$ -Mode.

Typ Nächste-Nachbarmode:

Noch stärker am Braggreflex lokalisiert ist der Strukturfaktor der Nächste-Nachbarmoden, da hierbei nur noch die Nachbaratome des Defektes schwingen und diese Moden weiter ins Gitter hin-

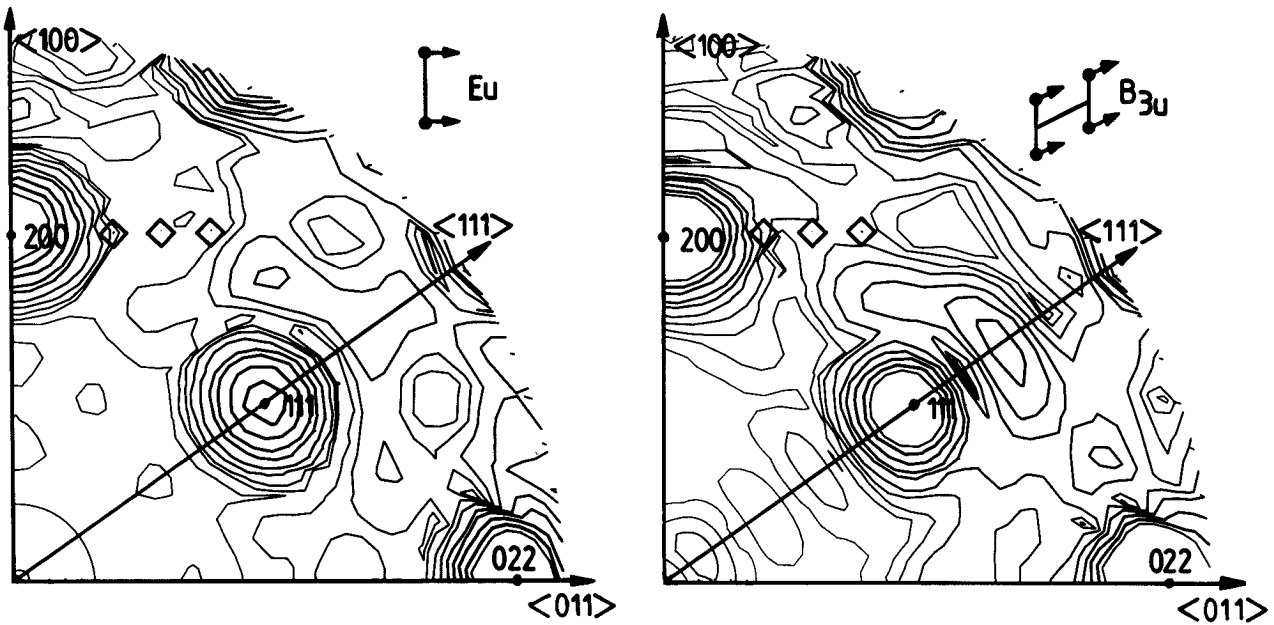


Abb. 7.6: Strukturfaktor der Moden vom Typ Hantel- und Nachbaratome alle gleichphasig - Morse-Potential.

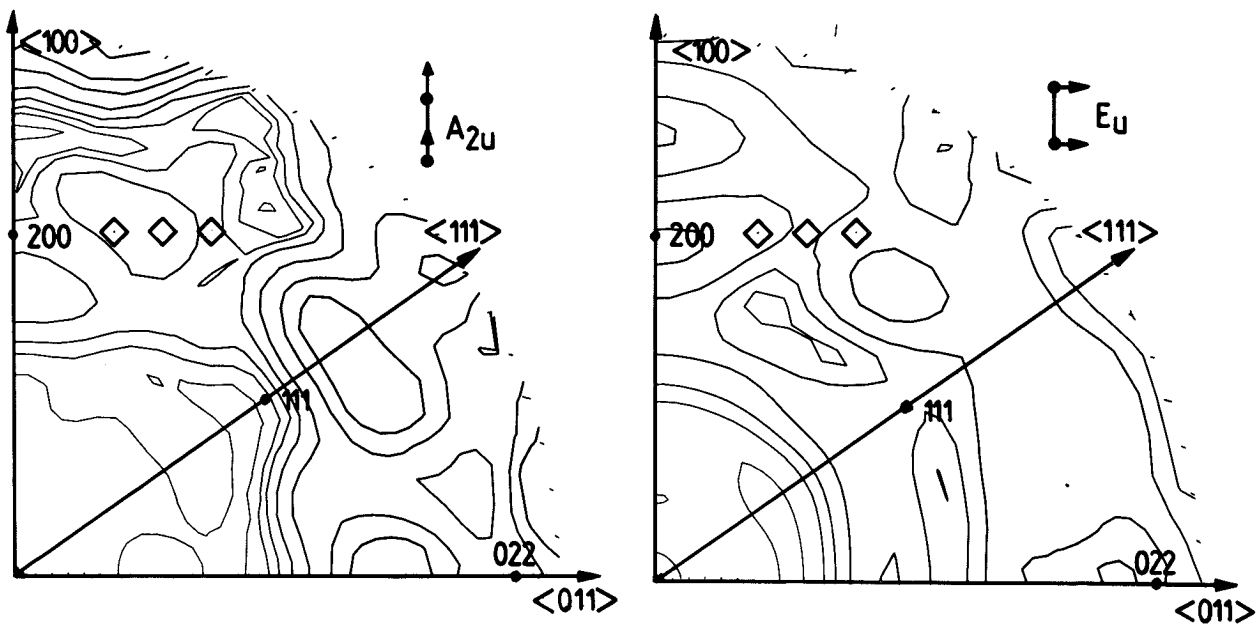


Abb. 7.7: Strukturfaktor der Moden vom Typ Hantel- und Nachbaratome teilweise gleichphasig

- a)  $A_{2u}$ -Mode: Morse-Potential
- b)  $E_u^{2u}$ -Mode: Al-Pseudopotential.

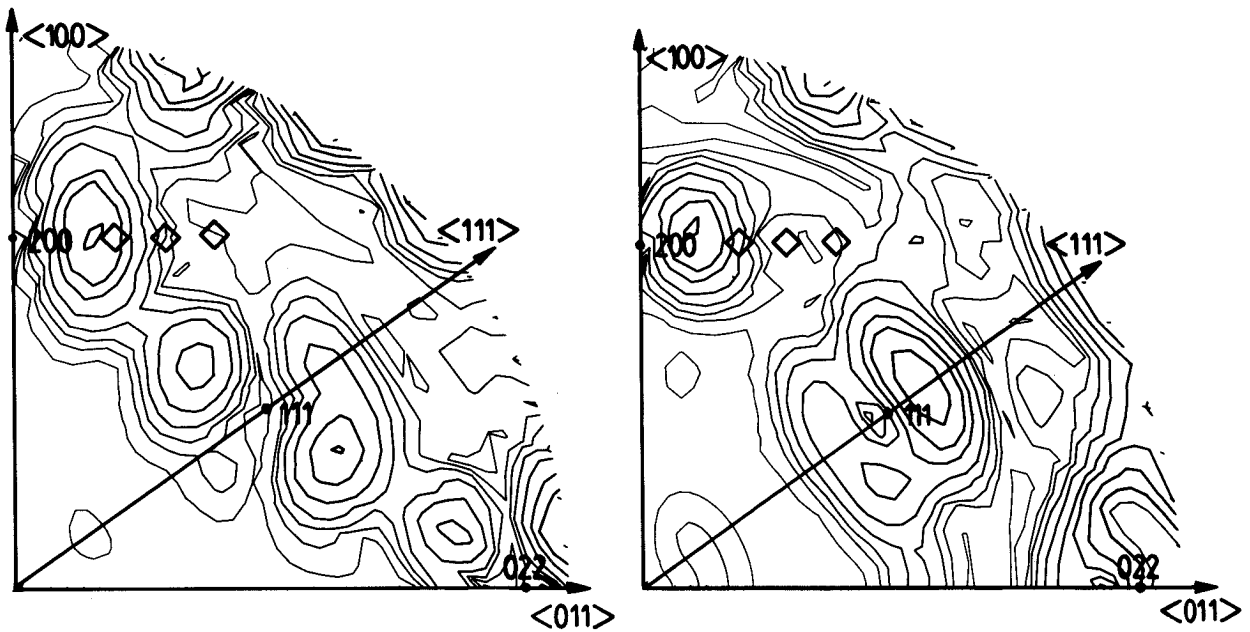


Abb. 7.8: Strukturfaktor vom Typ "Nächste-Nachbarmode"  
a) Morse-Potential; b) Al-Pseudopotential.

ausstrahlen als die Hantelmoden (Abb. 7.8). Je nach Symmetrie der Schwingung ergeben sich unterschiedliche Intensitätsverteilungen an den Braggreflexen. Ungerade Moden ergeben Maxima am Reflex ohne Nulllinien. Gerade Moden können destruktive Interferenz z.B. auf den verschiedenen Hauptsymmetrieachsen erzeugen. Dadurch kommen Maxima neben den Braggreflexen zustande. Am (200)-Reflex liegt das Maximum bei  $Q \approx (2, q, q) \frac{2\pi}{a}$  mit  $q$  zwischen 0.2 und 0.3. Das Maximum fällt in Meßrichtung stark ab und führt somit zu einem sehr viel größeren Streubeitrag bei  $q = 0.4$  als bei 0.6 und 0.8. Diese  $q$ -Abhängigkeit des Meßeffectes wurde bei Energieüberträgen von etwa 2 THz beobachtet.

Zusammenfassend läßt sich festhalten, daß die  $E_g$ -Mode einen grossen Strukturfaktor bei den drei für die Messung ausgewählten  $q$ -Werten besitzt. Die  $A_{2u}$ -Mode liefert einen ungefähr halb so grossen Beitrag bei  $q = 0.4$  und 0.6, fällt aber nach  $q = 0.8$  ab. Die dritte Mode des Einzelzwischengitteratoms,  $E_u$ , zeigt im Falle des Morse-Potentials einen grossen Strukturfaktor nur bei  $q = 0.4$ , im Falle des Al-Potentials zusätzlich bei  $q = 0.8$ . Die tiefste  $B_{2g}$ -Mode ist die Mode des Doppelzwischengitteratoms mit dem größten

Strukturfaktor bei  $q = 0.4$  und  $0.6$ , doch ist dieser bei  $q = 0.8$  schon stark abgefallen. Die  $A_u$ - und die zweite  $B_{2g}$ -Mode zeigen ein flaches aber niedrigeres Maximum. Alle anderen Moden sind stark am Braggreflex konzentriert und können daher nur bei  $q = 0.4$  zu stärkeren Beiträgen im Wirkungsquerschnitt führen.

### 7.3 Vergleich des gemessenen Wirkungsquerschnitts mit dem eines Modellkristalls mit Einzel- bzw. Doppelzwischen-gitteratomen

Die Wirkungsquerschnitte zeigen über den ganzen Frequenzbereich eine lineare Abhängigkeit des Meßeffectes von der Defektkonzentration. Darum möchte ich mich bei dem Vergleich zur Theorie allein auf die mit höherer Genauigkeit gemessene defektreichere Probe beschränken. Die Wirkungsquerschnitte des bestrahlten Kristalls zeigen eine Resonanzschwingung bei  $\approx 0.75$  THz sowie mehrere nicht mehr auflösende Moden zwischen 1.3 und 2.0 THz (Abb. 6.2). Da keines der berechneten Frequenzspektren eine Resonanz zwischen 0.7 und 0.8 THz zeigt, können die theoretischen Berechnungen nur als Anhaltspunkt für eine mögliche Zuordnung der Frequenzen dienen. In der folgenden Interpretation wird daher die Mode mit der tiefsten berechneten Frequenz auf 0.75 THz gelegt und diskutiert, wie die anderen Moden daran anzupassen sind. Hierbei ist zu beachten, daß mit der Festlegung der Frequenzen auch die Wirkungsquerschnitte wegen ihrer  $\nu^{-1}$ -Abhängigkeit (Gl. 4) festgelegt werden. Zum Vergleich mit den experimentellen Daten werden die Wirkungsquerschnitte über das Auflösungsvolumen gemittelt und mit einer Gaußskurve von  $\delta\nu = 0.36$  THz Breite verschmiert.

### 7.3.1 Einzeldefektmodell

Für eine Zuordnung der Frequenzen wird im folgenden zunächst davon ausgegangen, daß der weit überwiegende Defekttyp in der Probe das Einzelzwischengitteratom ist.

Nach allen bisherigen Rechnungen mit dem Morse-Potential besitzt die  $E_g$ -Mode die tiefste Frequenz des Einzelzwischengitteratoms. Daher muß in diesem Modell die Resonanz bei 0.75 THz dieser Mode zugeordnet werden. Oberhalb von 1 THz liegen die zwei Hantelmoden  $A_{2u}$  und  $E_u$  sowie die drei Nächste-Nachbarmoden in der aus dem einfachen Morse-Potential berechneten Frequenzfolge. Die in Tabelle IV zusammen mit den Wirkungsquerschnitten angegebene Frequenzzuordnung ergibt den in Abb. 7.9 dargestellten Fit an die Meßkurve. Gestrichelt ist der Mittelwert der gemessenen Wirkungsquerschnitte eingetragen.

Tabelle IV: Einzeldefekt-Modell (einfaches Morse-Potential).

| Mode        | $E_g$ | $A_{2u}$ | $E_u$ | Nächste Nachbar Moden |     |      |
|-------------|-------|----------|-------|-----------------------|-----|------|
| $\nu$   THz | 0.75  | 1.35     | 1.6   | 1.7                   | 1.8 | 2.2  |
| $q = 0.4$   | 15.4  | 2.6      | 3.7   | 1.2                   | 5.3 | 14.5 |
| $q = 0.6$   | 22.2  | 2.6      | 0.9   | 1.1                   | 0.9 | 1.1  |
| $q = 0.8$   | 14.1  | 1.1      | 0.9   | 0.3                   | 2.1 | 0.7  |

Wirkungsquerschnitt der Defektmoden pro Wirtsgitteratom

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\nu} \delta\nu \cdot C_{EZGA} \left[ 10^{-6} \frac{\text{barn}}{\text{sr Atom}} \right]$$

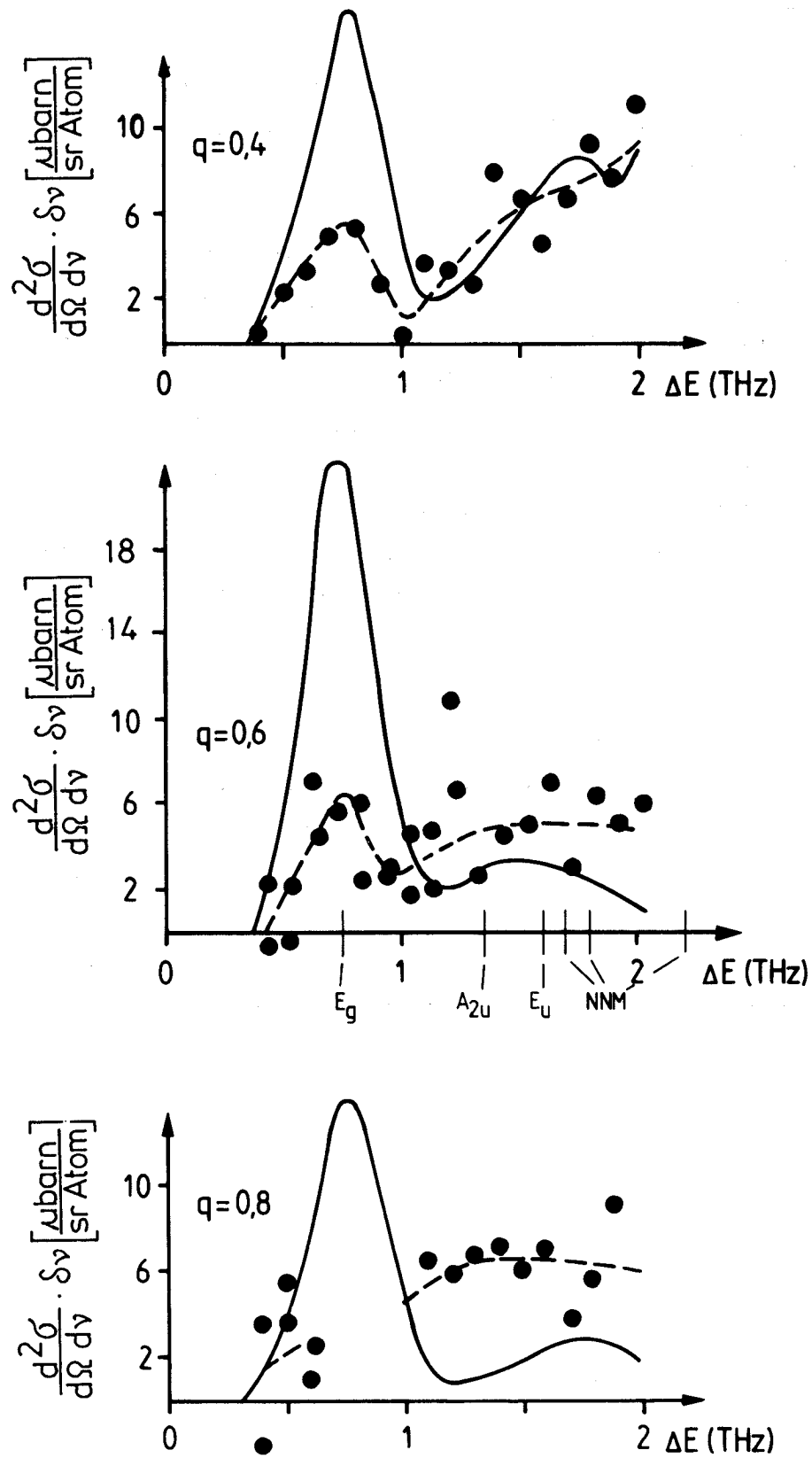


Abb. 7.9: Einzeldefektmodell (Morse-Potential).

Auffallend ist der um einen Faktor 3 zu groß berechnete Wirkungsquerschnitt der  $E_g$ -Mode. Die Frequenzen oberhalb von 1 THz wurden so gelegt, daß sie den besten Fit für  $q = 0.4$  ergaben. Dies gelingt mit den fünf Moden in befriedigender Form. Wesentlich dabei sind die um 2 THz gelegenen Nächste-Nachbarmoden, die den beobachteten starken Anstieg des Wirkungsquerschnitts für  $q = 0.4$  erklären können. Die Anpassung der Rechnung an die Messung ist für  $q = 0.6$  und  $0.8$  im gesamten Frequenzbereich unbefriedigend. Dies liegt an dem starken Abfall der Strukturfaktoren von  $E_u$ - und Nächste-Nachbarmoden in  $\langle 011 \rangle$ -Richtung. Dieser Fit ist im Rahmen dieses Modells nicht zu verbessern, solange die  $E_g$ -Mode als tiefste Resonanz bei 0.75 THz verbleibt.

Wie die Rechnungen mit dem Al-Pseudopotential zeigen, könnte auch die  $A_{2u}$ -Mode die tiefste Resonanzfrequenz des Einzelzwingitteratoms besitzen. Wenn die Resonanz bei 0.75 THz dieser Mode zugeordnet wird, liegt es nahe, die  $E_g$ -Mode für den Wiederanstieg des Wirkungsquerschnitts bei allen 3  $q$ -Werten verantwortlich zu machen. Damit ergibt sich die in Tabelle V zusammen mit den Wirkungsquerschnitten angegebene Frequenzzuordnung und der in Abb. 7.10 dargestellte Fit. Dieser Fit beschreibt die Meßergebnisse sehr viel besser. Dies liegt zum einen an dem kleineren und flacheren Strukturfaktor der  $A_{2u}$ -Mode, zum anderen an dem veränderten Strukturfaktor der  $E_u$ -Mode, wie er sich aus dem Al-Potential ergibt (s. Abb. 7.7). Die tiefste Nächste-Nachbarmode, deren Frequenzlage stark abhängig ist von den Abschneidebedingungen des Al-Potentials, wurde bei höheren Frequenzen als die  $E_g$ -Mode angeordnet. Läge sie in der Frequenz noch höher, würde sich der Fit bei  $q = 0.4$  verbessern. Wie beim Fit mit dem Morse-Potential erzeugen die Nächste-Nachbarmoden um 2 THz den starken Anstieg des Wirkungsquerschnitts bei diesem  $q$ -Wert. Auch bei  $q = 0.6$  und  $0.8$  ist der Fit in diesem Frequenzbereich besser. Beeinträchtigt wird die Anpassung mit diesem Potential lediglich durch den zu großen Wirkungsquerschnitt der  $E_g$ -Mode bei  $q = 0.6$ . Dies kann mit der Lage der Meßpunkte auf der Flanke des Maximums im Strukturfaktor zusammenhängen. Dies macht diese Mode besonders empfindlich auf die Näherungen in der theoretischen Behandlung.

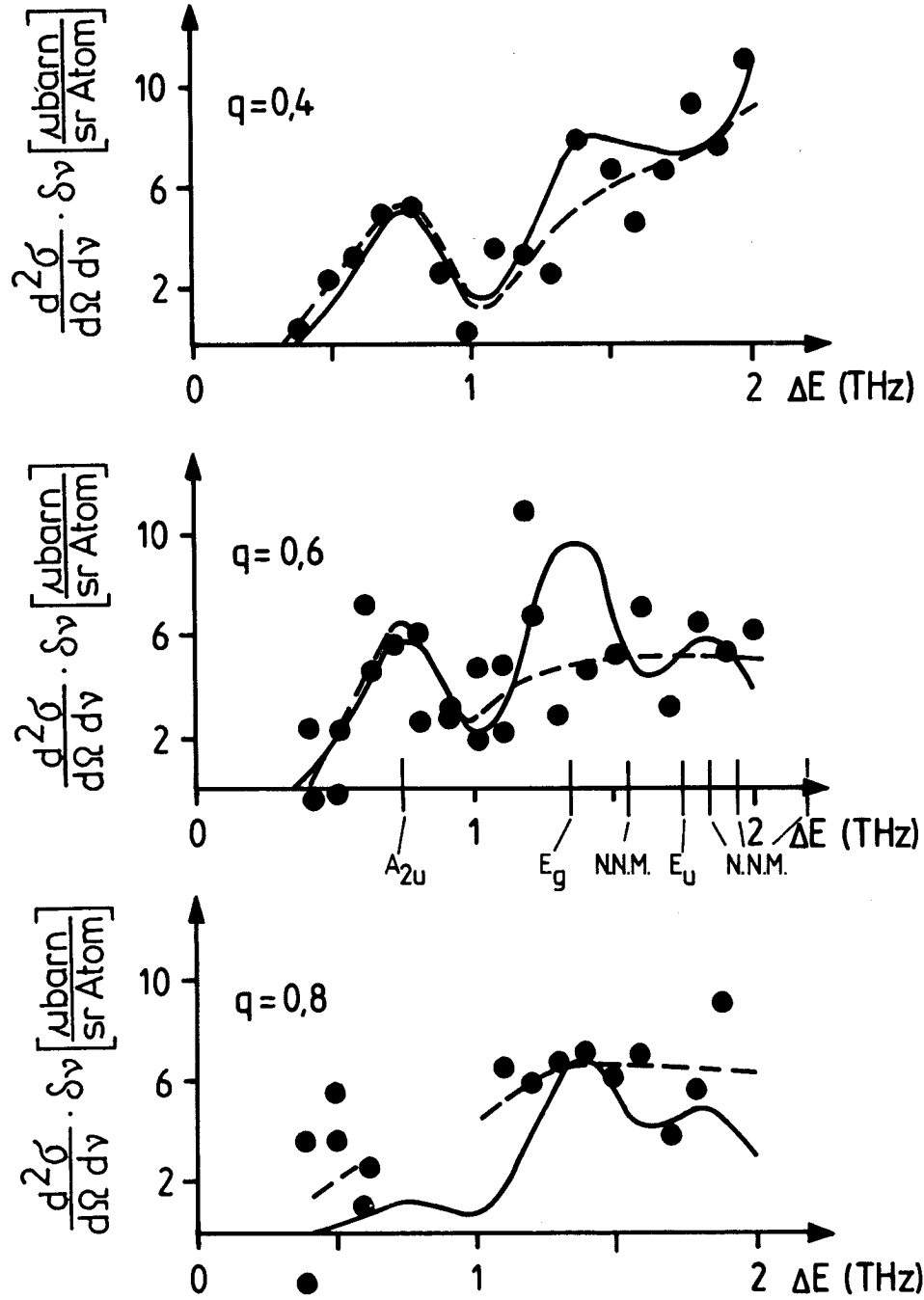


Abb. 7.10: Einzeldefektmodell (Al-Pseudopotential).

Tabelle V: Einzeldefekt-Modell (Al-Pseudopotential)

| Mode        | A <sub>2u</sub> | E <sub>g</sub> | N.-N.<br>Mode | E <sub>u</sub> | Nächste-Nachbar Mode |      |      |
|-------------|-----------------|----------------|---------------|----------------|----------------------|------|------|
| $\nu$ [THz] | 0.75            | 1.35           | 1.55          | 1.75           | 1.85                 | 1.95 | 2.1  |
| q = 0.4     | 5.3             | 6.0            | 3.3           | 3.5            | 1.6                  | 2.0  | 17.0 |
| q = 0.6     | 5.9             | 9.8            | 0.8           | 0.7            | 5.6                  | 0    | 1.3  |
| q = 0.8     | 1.2             | 6.7            | 0.2           | 2.8            | 1.5                  | 1.1  | 0.5  |

Wirkungsquerschnitt der Defektmoden pro Wirtsgitteratom

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\nu} \delta\nu \cdot c_{\text{EZGA}} \left[ 10^{-6} \frac{\text{barn}}{\text{sr Atom}} \right]$$

### 7.3.2 Mehrfachdefektmodell

Obwohl der letzte Fit eine relativ befriedigende Interpretation der Meßdaten darstellt, soll noch der Fall zweier verschiedener Defekttypen in der Probe diskutiert werden. In diesem Modell wird angenommen, in der Probe befänden sich sowohl Einzel- als auch Doppelzwischengitteratome. Dann müßte die niedrigste Resonanz der B<sub>2g</sub>-Mode des Doppelzwischengitteratoms zugeordnet werden. Wie im vorigen Modell kann nur die E<sub>g</sub>-Mode den Intensitätsanstieg oberhalb von 1.1 THz bei allen q erklären. Oberhalb von 1.4 THz überlagern sich dann die Moden von Einzel- und Doppelzwischengitteratom. Da die genauen Konzentrationsverhältnisse

Tabelle VI: Mehrfachdefektmodell (einfaches Morse-Potential)

| Mode        | B <sub>2g</sub> | E <sub>g</sub> | A <sub>2u</sub> | A <sub>u</sub> | B <sub>3g</sub> | N.-N.M<br>DZGA | B <sub>3u</sub> | N.-N.M<br>DZGA | E <sub>u</sub> | N.-N.M | EZGA |     |
|-------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------|----------------|--------|------|-----|
| $\nu$ [THz] | 0.75            | 1.35           | 1.60            | 1.66           | 1.70            | 1.80           | 1.82            | 1.85           | 1.90           | 1.95   | 2.0  | 2.1 |
| q = 0.4     | 3.7             | 4.0            | 1.1             | 0.7            | 0.6             | 0.6            | 0.9             | 1.0            | 1.5            | 2.6    | 0.4  | 8.6 |
| q = 0.6     | 3.3             | 5.7            | 1.1             | 1.3            | 0.8             | 0.4            | 0.2             | 0.7            | 0.4            | 0.4    | 0.7  | 0.7 |
| q = 0.8     | 0.9             | 3.3            | 0.5             | 0.9            | 0.2             | 0.4            | 0.7             | 0.2            | 0.4            | 1.1    | 0.4  | 0.4 |

Wirkungsquerschnitt der Defektmoden pro Wirtsgitteratom

$$\frac{d^2 \sigma}{d\Omega d\nu} \delta \nu \cdot C_{\text{Defekttyp}} \left[ 10^{-6} \frac{\text{barn}}{\text{sr Atom}} \right]$$

EZGA = Einzel-  
 N.-N.M = Nächste-Nachbarmode  
 DZGA = Doppelt-  
 Zwischengitteratom

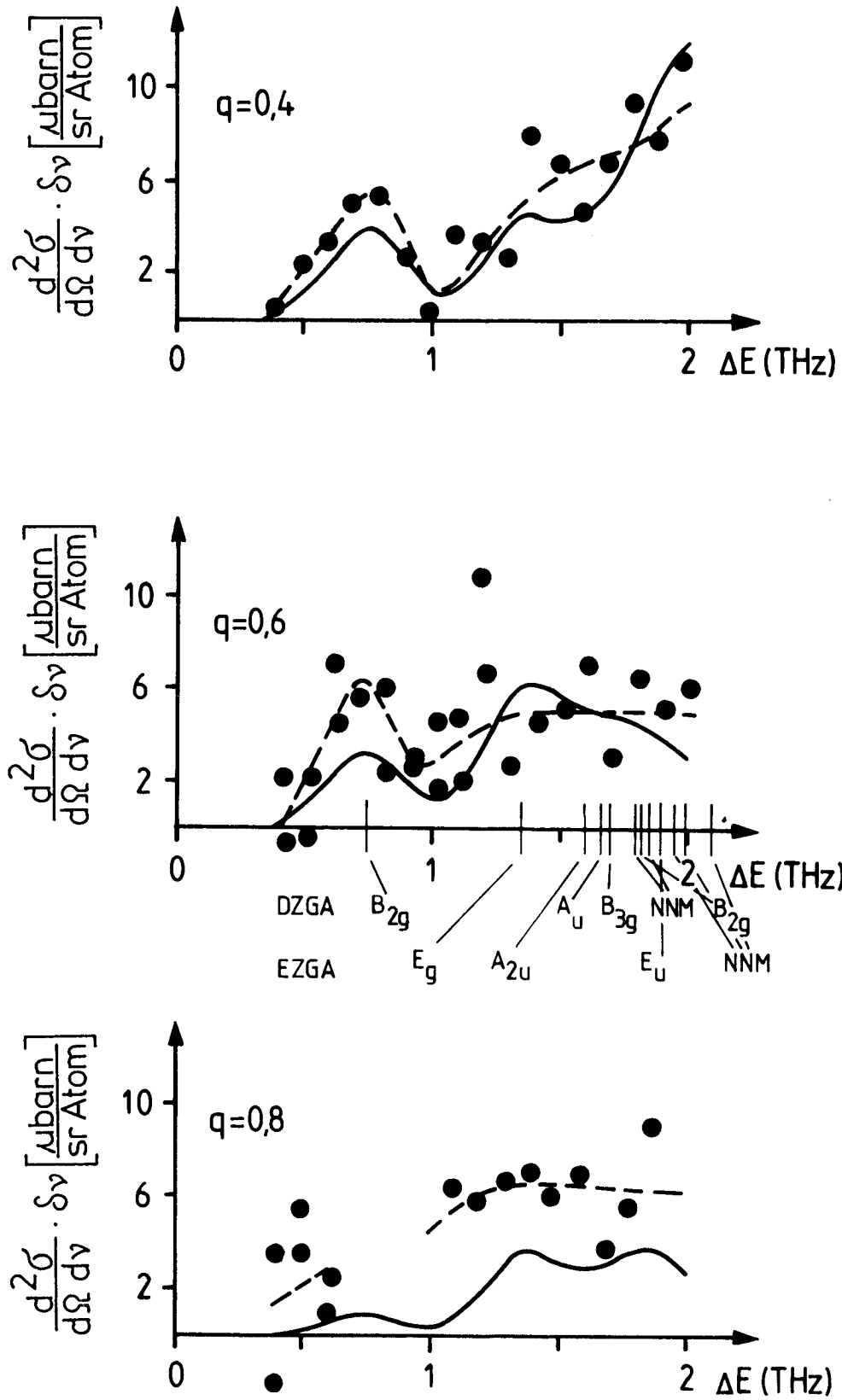


Abb. 7.11: Mehrfachdefektmodell (Morse-Potential).

unbekannt sind, wurde, um einen befriedigenden Fit zu erzielen, angenommen, daß 50 % der Zwischengitteratome in Form von Doppelzwischengitteratomen vorliegen. Damit ergeben sich die in Tabelle VI zusammen mit der Frequenzzuordnung angegebenen Wirkungsquerschnitte und der in Abb. 7.11 dargestellte Fit. Auch hier ist die gemittelte Meßkurve gestrichelt eingezeichnet. Bei der Festlegung der Frequenzen wurden die vom Potential vorgegebenen Reihenfolgen der Hantelmoden des Einzel- bzw. Doppelzwischengitteratoms beibehalten. Mit der dargestellten Frequenzzuordnung läßt sich der Wirkungsquerschnitt oberhalb von 1 THz für  $q = 0.4$  und  $0.6$  gut anpassen. Abweichungen der berechneten Intensität von der Messung treten im ersten Peak ( $B_{2g}$ -Mode) auf und beim größten gemessenen  $q$  im gesamten Frequenzbereich. Hier kann der Fit nicht verbessert werden, da weitere Doppelhantel- oder Nächste-Nachbarmoden im Frequenzbereich von 1-2 THz sehr viel stärker bei kleinen  $q$  beitragen als bei großen. Ein Fit mit dem modifizierten Morse-Potential führt zu keiner verbesserten Anpassung. Die  $B_{2g}$ -Mode zeigt eine noch stärkere  $q$ -Abhängigkeit und auch ein Vertauschen der Frequenzen von  $A_{2u}$ - und  $E_u$ -Mode kann den Fit nicht verbessern.

#### 7.4 Diskussion des Vergleichs von gemessenem und berechnetem Wirkungsquerschnitt der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung

Im vorhergehenden Kapitel wurden mit einem einfachen Morse-, einem modifizierten Morse und einem Al-Pseudopotential die Wirkungsquerschnitte der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung an einem Al-Kristall mit 480 ppm Frenkeldefekten berechnet. Dabei wurde von zwei unterschiedlichen Defektstrukturen ausgegangen. Im ersten Modell befanden sich in weit überwiegender Maße Einzelzwischengitteratome in der Probe, im zweiten lagen 50 % der Defekte in Form von Doppelzwischengitteratomen vor.

Den besten Fit ergibt das an Al-Daten angepaßte Pseudopotential für das erste Modell. Innerhalb der experimentellen und theoretischen Unsicherheiten werden die Meßkurven befriedigend wiedergegeben. Überraschenderweise ergibt dieses Potential als Resonanzschwingung mit der tiefsten Frequenz die  $A_{2u}$ -Mode. Dies steht im Gegensatz zu allen Rechnungen mit an Cu angepaßten Morse- und auch Born-Mayer-Potentialen. Dies legt nahe, daß diese Frequenzfolge materialspezifisch für Al ist.

Die Deutung mit der  $A_{2u}$ -Mode als der Mode mit der niedrigsten Resonanzfrequenz steht nicht im Widerspruch zu den aus anderen Experimenten vorliegenden Ergebnissen. Die Wanderungsenergie des Einzelzwischengitteratoms sollte z.B. von der Lage der  $A_{2u}$ -Mode nicht stark abhängig sein. Der Drehsprung der Hantel setzt sich zwar aus der Überlagerung der  $E_g$ - und der  $A_{2u}$ -Mode zusammen, doch entfällt der Hauptbeitrag der Auslenkung in Richtung zum Sattelpunkt auf die höherfrequente Librationsmode, die nach diesem Fit bei etwa 1.35 THz liegt. Diese Frequenz paßt sehr gut zu der gemessenen Wanderungsenergie des Einzelzwischengitteratoms von 0.11 eV. In einem einfachen Modell mit sinusförmigem Potential kann die Abhängigkeit der Wanderungsenergie von der Resonanzfrequenz  $\omega_r$  der Librationsmode mit Hilfe der folgenden Beziehung beschrieben werden:

$$E_{(\omega_r)}^m = 2M^{\text{eff}} \omega_r^2 d^2 \pi^{-2}$$

Dabei ist  $M^{\text{eff}}$  die effektive Masse eines Hantelatomes, die gegenüber der normalen Atommasse durch das Mitschwingen der Nachbaratome um einen Faktor 4 bis 5 vergrößert ist.  $d$  ist der Abstand des Sattelpunktes des Drehsprungs zur Ruhelage des Hantelatoms. Bei einem Abstand der Atome einer Hantel von  $0.6a$  beträgt  $d = \sqrt{2} \cdot 0.1a$ . Bei einem Gitterparameter von  $4.05 \cdot 10^{-10}$  m ergibt sich für  $M^{\text{eff}} = 4.5 M_{\text{Al}}$  eine Wanderungsenergie von  $E_{(\nu=1.35\text{THz})}^m = 0.12$  eV! Eine ebenso gute Übereinstimmung ergibt sich aus dem Zusammenhang von Resonanzfrequenz der Librationsmode und Änderung der elastischen Konstante  $c_{44}$  eines Kristalls mit Einzelzwischengitteratomen.  $\Delta c_{44}$  ist umgekehrt proportional der effektiven Rückstellkraft auf die Hantelatome bei einer Librationsmode. Da  $\omega^2 = f^{\text{eff}}/M^{\text{eff}}$

ist, geht die Änderung der elastischen Konstanten  $c_{44}$  umgekehrt proportional mit dem Quadrat der Frequenz der Librationsmode  $\Delta c_{44} \sim \omega^{-2}$ . Für eine Resonanzfrequenz  $\nu = 1.4$  THz in Al konnten Schober et al. /36/ die Änderung des elastischen Schermoduls  $c_{44}$ :  $\Delta c_{44}/c \cdot c_{44}$  an den für Al gemessenen Wert / 5/ von -25 fitten.

Nimmt man im ersten Modell dagegen an, daß die  $E_g$ -Mode die tiefstliegende Schwingung ist, wie es die mit Hilfe der Morse-Potentiale berechneten Frequenzfolgen nahelegen, läge deren Frequenz bei 0.75 THz. Dies führt nicht nur zu sehr großen Abweichungen des Fits von der Meßkurve, die außerhalb der Fehler liegen, sondern auch zu Widersprüchen mit anderen physikalischen Beobachtungen. Eine um einen Faktor 1.8 kleinere Resonanzfrequenz würde zu einer um einen Faktor 3.3 kleineren Wanderungsenergie und damit auch zu einer tieferen Wandlungstemperatur führen, sowie zu einer Änderung des elastischen Schermoduls von -83 statt -25. Das heißt, sowohl die Qualität der Fits als auch physikalische Argumente sprechen dafür, daß die mit dem Al-Pseudopotential berechneten Wirkungsquerschnitte den besseren Fit darstellen und die daraus folgende Interpretation der Meßergebnisse den physikalischen Sachverhalt richtig beschreiben könnte.

Nimmt man an, in der Probe lägen 50 % der Defekte in Form von Doppelzwischengitteratomen vor, kann die Reihenfolge der Hantelmoden belassen werden, wie sie die an Cu angepaßten Morse- und Born-Mayer-Potentiale liefern. Dann liegt die  $B_{2g}$ -Mode des Doppelzwischengitteratoms bei 0.75 THz unterhalb der  $E_g$ -Mode des Einzelzwischengitteratoms, die sich wie bei den Rechnungen mit dem Pseudopotential bei etwa 1.35 THz befände. Der Fit ist für diesen Fall etwas schlechter, doch kann im Rahmen der experimentellen und theoretischen Unsicherheiten nicht ausgeschlossen werden, daß ihm eine zutreffende Beschreibung des Schwingungsverhaltens der Hantel zu Grunde liegt. Dieses Ergebnis wäre physikalisch genauso sinnvoll wie das zuerstgenannte und würde auch nicht den Ergebnissen anderer Experimente widersprechen. Zudem gibt es experimentelle

Hinweise auf eine so tiefe Mode des Doppelzwischengitteratoms. Da die  $B_{2g}$ -Mode auch an die Änderung der elastischen Konstanten  $c_{44}$  koppelt und bei etwa der halben Frequenz wie die  $E_g$ -Mode liegt, zeigt sie eine sehr viel größere Polarisierbarkeit als die Librationsmode. Spiric hat dies in Messungen des Erholungsverhaltens der diaelastischen Polarisierbarkeit eines bestrahlten Al-Kristalls beim thermischen Anlassen gezeigt /16/.

Dieses Modell setzt aber voraus, daß in der bestrahlten Probe 50 % der einbestrahlten Defekte in Form von Doppelzwischen-gitteratomen vorliegen. Dagegen sprechen folgende Überlegungen: Die relativ hohe Bestrahlungstemperatur von 16 K kommt als Ursache für eine so hohe Doppelzwischengitteratomkonzentration nicht in Frage. Eine Abschätzung der Sprungzahl  $\nu$  eines Hantelatoms zeigt, daß diese Zahl selbst für die 700 h Bestrahlungszeit bei  $\nu = 10^{-12}$  liegt. Das Vorliegen von 50 % Doppelzwischen-gitteratome in der Probe kann, wie in Kapitel 6.2 gezeigt, selbst bei einer Inhomogenität der Defektverteilung ausgeschlossen werden. Dies zeigt auch der Vergleich der Messungen der diaelastischen Polarisierbarkeit eines Al-Kristalls mit 675 /16/ und 500 ppm /5/ Defekten. Beide Proben zeigen ein ähnliches Defektbild. Für Proben mit 500 ppm Frenkeldefekte andererseits konnte in Messungen der Huangstreuung als weit überwiegender Defekttyp das Einzelzwischengitteratom nachgewiesen werden /30/. Dies zeigen auch die Huangstreuungsergebnisse an Cu /37/ mit ähnlichen Defektkonzentrationen. Das heißt, das Mehrfachdefektmodell ist zwar im Rahmen der Fitqualität nicht auszuschließen, im Zusammenhang mit vergleichbaren Ergebnissen anderer Untersuchungen erscheint es allerdings unwahrscheinlich.

Das Ausheilen der untersten Resonanz bei Tempern bis 46 K läßt keine Zuordnung der Mode zu einem Defekttyp zu. Da nur ein Erholungsschritt in der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung gemacht werden konnte, mußte sichergestellt werden, daß nach diesem Tempern in der Probe keine Einzelzwischen-gitteratome mehr vorliegen. Wegen der Temperaturmeßungenauig-

keit von 1-2 K wurde daher am Ende von Stufe II<sub>1</sub> getempert, wenn alle Einzelzwischengitteratome, aber auch fast alle Doppelzwischengitteratome, ausgeheilt sind. In einem Erholungsprogramm mit engeren Temperaturschritten könnte jedoch an Hand des Ausheilungsverhaltens der tiefsten gemessenen Resonanz zwischen A<sub>2u</sub>-Mode des Einzelzwischengitteratoms und B<sub>2g</sub>-Mode des Doppelzwischengitteratoms unterschieden werden.

Von Bedeutung wäre der Nachweis der B<sub>2g</sub>- und der B<sub>3g</sub>-Mode für die Interpretation der Messung der gestörten Phononenlinie von Böning et al. (siehe Kapitel 3.1). Sie hatten lediglich eine Absenkung der Linie beobachtet (Meßpunkte in Abb. 7.12c) und keinen charakteristischen s-förmigen Verlauf, wie er von der E<sub>g</sub>-Mode des Einzelzwischengitteratoms erwartet wurde (Abb. 7.12a). Da die B<sub>2g</sub>- und B<sub>3g</sub>-Mode des Doppelzwischengitteratoms aber wie die E<sub>g</sub>-Mode an das <100>-Phonon koppeln können, führen sie zu der gleichen Veränderung der Phononenlinie wie die E<sub>g</sub>-Mode. In Abb. 7.12b ist dies für die bei kleineren Frequenzen und daher bei kleinerem Phononenvektor  $\xi$  gelegene B<sub>2g</sub>-Mode dargestellt. Die durchgezogene Linie in Abb. 7.12c stellt eine von Ram rechnerisch simulierte Überlagerung der Einflüsse von E<sub>g</sub>- und B<sub>2g</sub>-Mode auf das Phonon dar /20/. Die Rechnung gibt die Meßkurve bis etwa  $\xi = 0.15$  gut wieder. Das für diesen Effekt notwendige Vorliegen eines Gemisches von Einzel- und Mehrfachzwischengitteratomen in der Probe ist angesichts der hohen lokalen Defektdichten, wie sie bei Neutronenbestrahlung in den Verlagerungskaskaden erzeugt werden, plausibel und wurde in Huangstreuexperimenten durch Grasse et al. /38/ nachgewiesen. Sie fanden einen mittleren Wert von 3 Zwischengitteratomen pro Cluster nach Neutronenbestrahlung bei 4 K. Von Bedeutung ist in diesem Zusammenhang ebenfalls die Beobachtung von Moden und Frequenzen oberhalb von 1.2 THz in unserer bei 46 K getemperten Probe (Abb. 6.5). Diese gehören zu kleineren Clustern, wie sie vermutlich bereits nach Neutronenbestrahlung bei 4 K in der Probe vorliegen. Da die E<sub>g</sub>-Mode bei 1.35 THz liegt, können diese Moden ebenfalls zur Absenkung der Phononenlinie sowohl oberhalb als auch unterhalb der Resonanzfrequenz der E<sub>g</sub>-Mode beitragen.

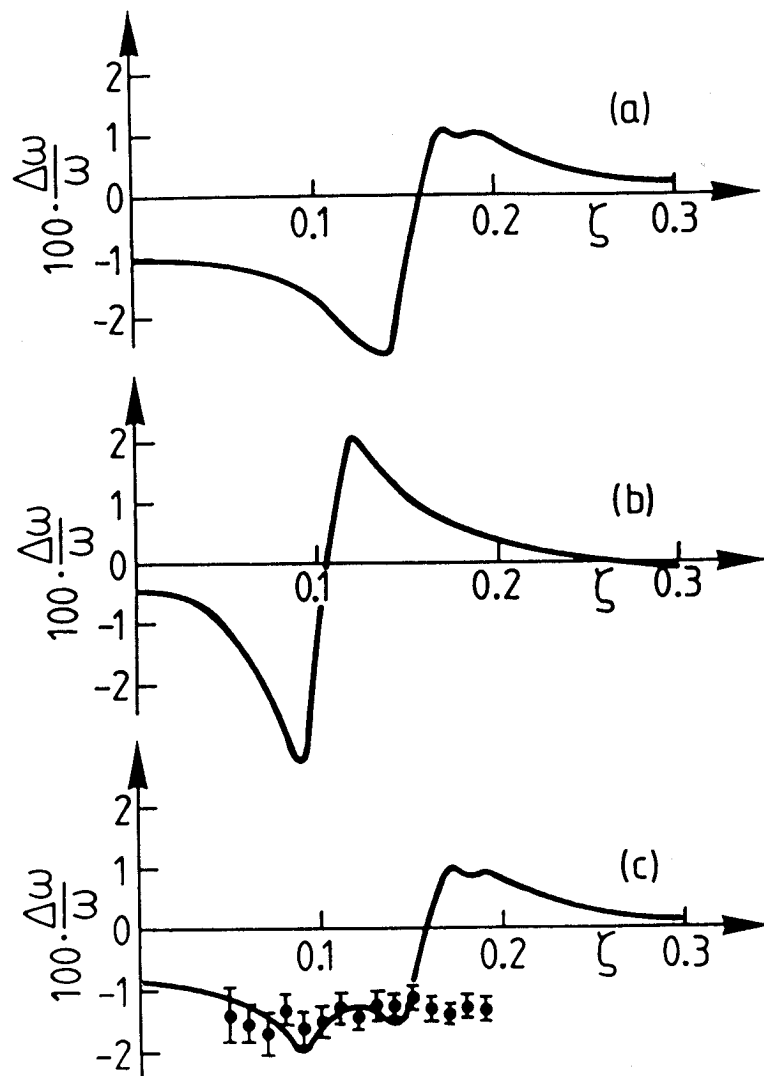


Abb. 7.12: Störung des  $\langle 100 \rangle$ -Phonons durch eine

- a)  $E_g$ -Mode des Einzelzwischengitteratoms um  $\zeta = 0,15$   
(und  $A_{2u}$ -Mode um  $\zeta \approx 0,18$ )
- b)  $B_{2g}$ -Mode des Doppelzwischengitteratoms
- c) Überlagerung der Störungen a+b und  
Vergleich mit Meßpunkten nach /20/.

## 8. Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde erstmals das Schwingungsverhalten von Einzelzwischengitteratomen in Al mit Hilfe der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung untersucht. Bei dieser Methode wird die inelastische Streuung der Neutronen an den Defekten und ihrer kohärent mitschwingenden Umgebung gemessen. Da die Messungen in Energieverlust des Neutrons ausgeführt wurden, d.h. der thermische Besetzungsfaktor praktisch unabhängig von der Frequenz ungefähr 1 ist, konnten auch höherfrequente Moden nachgewiesen werden. Die diffuse, inelastische Neutronenstreuung bietet gegenüber der bisher angewandten Methode, eine Defektmode durch die von ihr hervorgerufenen Störung der Phononenlinie des Kristalls nachzuweisen, folgende Vorteile: es werden nur geringe Q- und Energieauflösung benötigt und darüberhinaus können die Moden sowohl über ihre Frequenz, als auch durch den für sie charakteristischen Strukturfaktor der Neutronenstreuung identifiziert werden.

Um die bei früheren Messungen an neutronenbestrahlten Proben durch das Vorliegen eines Gemisches von Einzel- und Mehrfachzwischengitteratomen aufgetretenen Schwierigkeiten bei der Interpretation der Ergebnisse zu vermeiden, wurden Elektronenbestrahlungen für die Defekterzeugung gewählt. Dazu wurde eine spezielle Bestrahlungstechnik entwickelt, bei der die für die Neutronenstreuung nötigen, massereichen Proben mit 3 MeV Elektronen bei 16 K bestrahlt werden konnten. Als Proben wurden hohlzylinderförmige Einkristalle mit 7 cm Höhe, 2 cm Durchmesser und 0.3 cm Wanddicke verwendet. Die maximale Defektkonzentration betrug 480 ppm bei der - wie die bisherigen Ergebnisse nahelegen - im wesentlichen noch Einzelzwischengitteratome vorliegen sollten. Die Messungen der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung erfolgten bei drei verschiedenen Q-Werten im reziproken Raum. Dabei wurde ein starker Beitrag einer Mode zwischen 0.7 und 0.8 THz beobachtet, sowie weitere Beiträge mehrerer Moden zwischen 1.1 und 2 THz.

Für die Interpretation der Meßergebnisse wurden die Wirkungsquerschnitte der Defektmoden berechnet. Die in die Wirkungs-

querschnitte eingehenden Eigenvektoren dieser Moden wurden durch Diagonalisierung der dynamischen Matrix eines Modellkristalls mit 4343 Atomen und mit einem Einzel- bzw. Doppelzwischengitteratom im Zentrum erhalten. Die Rechnungen wurden von H.R. Schober durchgeführt, wobei für die Beschreibung der Wechselwirkung der Kristallatome ein einfaches bzw. modifiziertes Morse-Potential und ein Al-Pseudopotential verwendet wurden.

Auf Grund ihrer Intensitäts- und Q-Abhängigkeit wurde die tiefste beobachtete Resonanz der  $A_{2u}$ -Mode (Translationsmode) des Einzelzwischengitteratoms zugeordnet, bei der die Hantelatome gleichphasig, parallel zur Hantelachse schwingen. Dies steht im Gegensatz zu bisherigen Vorstellungen, daß die  $E_g$ -Mode (Librationsmode) die niedrigste Frequenz der Einzelhantel besitzt. Die neue Zuordnung wird durch Rechnungen mit dem Al-Pseudopotential unterstützt. Das Frequenzspektrum oberhalb von 1.1 THz läßt sich durch die Überlagerung von  $E_g$ -,  $E_u$ - und Nächste-Nachbarmoden des Einzelzwischengitteratoms beschreiben. Von diesen Resonanzen dürfte die  $E_g$ -Mode diejenige mit der niedrigeren Frequenz sein. Diese neuen Ergebnisse für die Frequenz der  $A_{2u}$ -Mode bei 0.75 THz und der  $E_g$ -Mode bei 1.35 THz sind auch verträglich mit den bisherigen Interpretationen der für Al gefundenen Werte der Aktivierungsenergie für freie Wanderung des Einzelzwischengitteratoms und seiner diaelastischen Polarisierbarkeit.

Im Prinzip wäre das beobachtete Frequenzspektrum auch unter der Annahme deutbar, daß die Resonanz bei 0.75 THz zur  $B_{2g}$ -Mode des Doppelzwischengitteratoms gehört. In diesem Falle müßten jedoch 50 % der Zwischengitteratome der Probe in Form von Doppelzwischengitteratomen vorliegen. Die Untersuchungen der Defektstruktur nach Bestrahlung bis zu vergleichbaren Dosen lassen diese Annahme jedoch unwahrscheinlich erscheinen.

Zur weiteren Erhärtung des vorgeschlagenen Modells wären zusätzliche Messungen der diffusen, inelastischen Neutronenstreuung hilfreich. Zum einen müßte in einem anderen Q-Bereich

gemessen werden, in dem die symmetriebedingten Unterschiede der Struktur Faktoren von  $A_{2u}$ - und  $B_{2g}$ -Mode groß sind. Darüber hinaus müßte zur Untersuchung des Schwingungsverhaltens von Doppelzwischengitteratomen das Erholungsverhalten zwischen Stufe  $I_D$  und  $II_1$  im Detail gemessen werden, denn in diesem schmalen Temperaturbereich von etwa 4 K erfolgt der Aufbau und das Ausheilen von Doppelzwischengitteratomen.

## 9. Literaturverzeichnis

- /1/ P.H. Dederichs, R. Zeller: Springer Tracts in Modern Physics, Vol. 87, Dynamical Properties of Point Defects in Metals.
- /2/ P. Ehrhart, H.-G. Haubold, W. Schilling: Adv. Solid State Phys. 14, 87 (1974).
- /3/ K. Forsch, J. Hemmerich, H. Knöll, G. Lucki, Phys. Stat. Sol. (a) 23, 223 (1974).
- /4/ H.-G. Haubold, D. Martinsen, J. Nucl. Mat. 69/70, 644 (1978).
- /5/ K.-H. Robrock, W. Schilling: J. Phys. F: Metal Physics 6, 303 (1976).
- /6/ J. Holder, A.V. Granato, L.F. Rehn, Phys. Rev. B10, 349 (1974).
- /7/ P.H. Dederichs, C. Lehmann, A. Scholz, Z. Physik B20, 155 (1975).
- /8/ G. Vogl, M. Mansel, P.H. Dederichs, Phys. Rev. Lett. 36, 1497 (1976).
- /9/ J. Holder, A.V. Granato, L.E. Rehn, Phys. Rev. B10, 363 (1974).
- /10/ H. Adrian, Dissertation Uni. Erlangen Nürnberg (1981).
- /11/ K. Böning, G.S. Bauer, H.J. Fenzl, R. Scherm, R.M. Nicklow in: Proc. Int. Conf. on Lattice Dynamics, Paris 1977, ed. M. Balkanski p. 386.
- /12/ R.M. Nicklow, W.P. Crummett, J.M. Williams: Phys. Rev. B20, 5034 (1979).
- /13/ A. Scholz, C. Lehmann, Phys. Rev. B6, 813 (1973).
- /14/ H.R. Schober, R. Zeller, J. Nucl. Mat. 69/70, 341, (1978).
- /15/ K. Oda, R. Yamamoto, M. Doyama J. Phys. F: Met.Phys. 12, L 85 (1982).
- /16/ V. Spiric, Report der KFA-Jülich, Jül-1270 (1976).
- /17/ F.W. Young, J. Nucl. Mat. 69/70, 310 (1978).
- /18/ W. Schilling, J. Nucl. Mat 69/70, 465 (1978).
- /19/ R.A. Johnson, Phys. Rev. 152, 629 (1966).
- /20/ P.N. Ram, P.H. Dederichs, Report der KFA-Jülich, Jül-1725, (1981).

- /21/ J.B. Roberto, B. Schoenfeld, P. Ehrhart, Phys. Rev B 18, 2591 (1978).
- /22/ H.-G. Haubold, Report der KFA-Jülich, Jül-1090-FF (1979).
- /23/ M. von Ardenne, Tabellen zur angewandten Physik, Band I, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaft, Berlin (1962).
- /24/ J. Hemmerich, Report der KFA-Jülich, Jül-597-FN (1969).
- /25/ P. Ehrhart, Report der KFA-Jülich, Jül-810-FF (1971).
- /26/ Neutron Beam Facilities Available for Users, Edition 1981, ILL Grenoble.
- /27/ International Tables of X-Ray Crystallography, Vol. III.
- /28/ R. Urban, Diplomarbeit RWTH Aachen (1981).
- /29/ H. Wagner, Report der KFA-Jülich, Jül-664-FN (1970).
- /30/ P. Ehrhart, W. Schilling, Phys. Rev. B 8, 2604 (1973).
- /31/ W. Sassin, Report der KFA-Jülich, Jül-586-FN (1969).
- /32/ J. Peisl, H. Dosch, A. von Schwerin in: Atomic Transport and Defects in Metals by n-Scattering, Proc. of an IFF-ILL Workshop Jülich 1985 ed. C. Janot, W. Petry, D. Richter, T. Springer, p. 106.
- /33/ R.M. J. Cotterill, M. Doyama, Lattice Defects and their Interactions, R.R. Hasigutti, ed. (New York) 1967.
- /34/ L. Dagens, M. Rasolt and R. Taylor, 1975, Phys. Rev. B 11, 2726.
- /35/ H.R. Schober and P.H. Dederichs, 1981, Phonon Dispersion and Spectra of Elemental Metals, Landolt Börnstein (K.H. Wellwege ed.) New Series III/13a, Springer Verlag, Berlin.
- /36/ H.R. Schober, V.K. Tewary, P.H. Dederichs, Z. Physik B 21, 255 (1975).
- /37/ P. Ehrhart, U. Schlagheck in: Proceedings of the Conference of Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Gatlinburg, Tenn., USA, (1975) ed. M.T. Robinson, F.W. Young, Jr., p. 839.
- /38/ D. Grasse, B. v. Guérard, J. Peisl, Rad. Effects 66, 21 (1982).

## ANHANG

### Greenfunktion eines Gitters mit nur einer Hantel / 1 /

Nach der Methode von Krumhansl und Matthew wird das Gitter zerlegt in 2 Unterräume. Einer enthält nur den Defekt, in diesem Fall die beiden Hantelatome, der andere beinhaltet das Restgitter (Abb. A1).

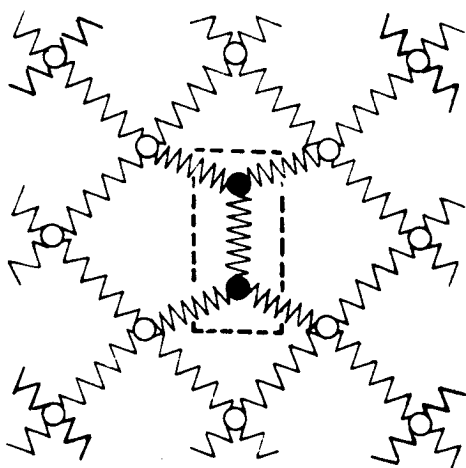


Abb. A1 : Zerlegung des Gitters mit nur einem Defekt in Defektregion --- und Restgitter.

Entsprechend werden die in der Bewegungsgleichung des Kristalls auftretenden Matrizen in Untermatrizen zerlegt.

$$\left\{ \begin{pmatrix} \phi_{HH} & \phi_{HR} \\ \phi_{RH} & \phi_{RR} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} M_{HH} & 0 \\ 0 & M_{RR} \end{pmatrix} \right\} \omega^2 \begin{pmatrix} G_{HH} & G_{HR} \\ G_{RH} & G_{RR} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$\phi_{HH}$  ist die Koppelungsmatrix für die Einsteinoszillation der Hantel im starren Restgitter und entsprechend beschreibt  $\phi_{RR}$  die Koppelung der Restgitteratome bei eingefrorenem Defekt und  $\phi_{HR}$  und  $\phi_{RH}$  die Koppelung des Defektes an das Restgitter.

Diese Gleichung beinhaltet vier gekoppelte Bewegungsgleichungen, aus denen sich die vier Greenfunktionen der Hantel  $G_{HH}$ , des Restgitters  $G_{RR}$  und des Interferenzterms  $G_{HR} = G_{RH}^T$  berechnen lassen.

Die vier gekoppelten Bewegungsgleichungen sind:

$$(\phi_{HH} - M_{HH} \omega^2) G_{HH} + \phi_{HR} G_{RH} = 1 \quad (a)$$

$$(\phi_{HH} - M_{HH} \omega^2) G_{HR} + \phi_{HR} G_{RR} = 0 \quad (b)$$

$$(\phi_{RR} - M_{RR} \omega^2) G_{RH} + \phi_{RH} G_{HH} = 0 \quad (c)$$

$$(\phi_{RR} - M_{RR} \omega^2) G_{RR} + \phi_{RH} G_{HR} = 1 \quad (d)$$

aus (a) und (c) läßt sich  $G_{HH}$  bestimmen:

$$(\phi_{HH} - \phi_{HR} \frac{1}{\phi_{RR} - M_{RR} \omega^2} \phi_{RH} - M_{HH} \omega^2) G_{HH}(\omega) = 1$$

$G_{HH}$  ist die Verschiebung eines Hantelatoms auf Grund einer Einheitskraft auf ein Hantelatom. Zu der Einsteinrückstellkraft  $\phi_{HH}$  bei eingefrorenem Restgitter addiert sich bei Mitschwingen des Restgitters der Ausdruck

$$\phi_{HR} \frac{1}{\phi_{RR} - M_{RR} \omega^2} \phi_{RH} = \phi_{HR} \hat{G}_{RR} \phi_{RH}$$

wobei  $\hat{G}_{RR}$  die Einsteingreenfunktion des Restgitters bei festgehaltenem Defekt ist. Der obige Ausdruck zeigt anschaulich die Einbettung der Hantel ins Restgitter:

$$\phi_{HR} \hat{G}_{RR} \phi_{RH}$$

\_\_\_\_\_ durch Verschiebung eines Hantelatoms  
Kraft auf ein RA

\_\_\_\_\_ durch diese Kraft auf das RA  
Verschiebung eines RA

\_\_\_\_\_ durch diese Verschiebung des RA  
Kraft auf ein HA

Die Verschiebung eines Hantelatoms führt also durch Rückkoppelung über das Restgitter zu einer Kraft auf ein Hantelatom.

Mit  $\phi_{HH}^{\text{eff}}(\omega) = \phi_{HH} - \phi_{HR} \hat{G}_{RR}(\omega) \phi_{RH}$  ergibt sich

$$G_{HH}(\omega) = \frac{1}{\phi_{HH}^{\text{eff}} - M_{HH} \omega^2}$$

Für Resonanzmoden hat  $G_{HH}(\omega)$  Quasipole bei kleinen Frequenzen, so daß  $\phi_{HH}^{\text{eff}}$  nach  $\omega$  entwickelt werden kann, getrennt für Real- und Imaginärteil. Der Realteil setzt sich zusammen aus einer frequenzunabhängigen, effektiven Kraftkonstante  $f_{(\omega=0)}^{\text{eff}}$  und einem frequenzabhängigen Ausdruck  $M^{\text{eff}} \cdot \omega^2$ , der aus der Vergrößerung der trägen Masse bei Mitschwingen des Restgitters herrührt. Der Imaginärteil ergibt die Dämpfung  $\Gamma$ , die ebenfalls frequenzunabhängig ist.

Für jede Schwingungsmode einzeln können die Greenfunktionen in skalarer Form geschrieben werden. So ergibt sich für eine bestimmte Schwingungsmode der Hantelatome

$$(f_{(\omega=0)}^{\text{eff}} - \omega^2 M^{\text{eff}} - i \Gamma \omega) G_{HH}(\omega) = 1$$

Das entspricht der Form eines Einsteinoszillators, in dem allerdings sowohl das Mitschwingen des Restgitters durch die Einführung einer effektiven Koppelungskonstanten und einer effektiven Masse als auch die Energieabstrahlung der Hantel ins Restgitter durch eine Dämpfung  $\Gamma$  berücksichtigt sind.

$f_{(\phi_{HH}, \phi_{HR}, \phi_{RH})}^{\text{eff}}$  wird bestimmt durch die Ankoppelung der Hantel an das statische Restgitter ( $\phi_{HH}$ ), die sich allerdings durch die Auslenkung der Restgitteratome auf Grund der Hantelschwingungen ändert ( $\phi_{HR}, \phi_{RH}$ ).

Die träge schwingende Masse wird vergrößert durch die mitschwingenden Restgitteratome, deren Massen mit dem Quadrat der statischen Relaxationsmoden  $u_{(\omega=0)}^R$  gewichtet sind.

$$M^{\text{eff}} = M_{\text{HH}} + \sum_{R,i} M_{\text{RR}} |u_i^{\text{R}}|^2$$

$u^{\text{R}}$  ist das Verhältnis von Verschiebung des Restgitteratoms zur Amplitude der Hantelschwingung, die die Verschiebung des Restgitteratoms hervorruft.

Die Resonanzfrequenz der Hantel ergibt sich damit zu

$$\omega_{\text{res}} = \sqrt{\frac{f^{\text{eff}}}{M^{\text{eff}}}} \quad \text{und mit } \gamma = \frac{\Gamma}{M^{\text{eff}}} \quad \text{folgt}$$

$$G_{\text{HH}}(\omega) = \frac{1}{M^{\text{eff}} (\omega_{\text{res}}^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)}$$

Aus (c) folgt  $G_{\text{RH}} = -\hat{G}_{\text{RR}} \phi_{\text{RH}} G_{\text{HH}}$

Diese Beziehung beschreibt, wie die Kraft auf ein Hantelatom die Verschiebung eines Restgitteratoms bewirkt. Die Kraft auf ein Hantelatom führt zur Verschiebung eines Hantelatoms:  $G_{\text{HH}}$ , diese bewirkt auf Grund der Koppelung ( $\phi_{\text{RH}}$ ) eine Kraft auf ein Restgitteratom. Die daraus resultierende Verschiebung eines Restgitteratoms kann dann mittels der Einsteingreenfunktion des Restgitters beschrieben werden. Setzt man in die vorige Gleichung  $u_{(\omega)}^{\text{R}}$  ein, folgt

$$G_{\text{RH}}(\omega) = u_{(\omega)}^{\text{R}} G_{\text{HH}}(\omega)$$

$u^{\text{R}}$  ist also ein Maß für die Stärke der Kraft auf ein Restgitteratom auf Grund einer Verschiebung eines Hantelatoms, also ein Maß für die Stärke der Koppelung. Als Maß für die Stärke der Koppelung zwischen Restgitter und Hantel geht  $u^{\text{R}}$  auch in  $f^{\text{eff}}$  und  $M^{\text{eff}}$  ein.

Dies gilt natürlich auch umgekehrt, so daß

$$G_{\text{HR}}(\omega) = G_{\text{HH}}(\omega) u_{(\omega)}^{\text{R}}$$

Für  $G_{RR}$  folgt aus den Bewegungsgleichungen:

$$\begin{aligned} G_{RR}(\omega) &= \hat{G}_{RR}(\omega) - \hat{G}_{RR}(\omega) \phi_{RH} G_{HR}(\omega) \\ &= \hat{G}_{RR}(\omega) + u_{(\omega)}^R G_{HH}(\omega) u_{(\omega)}^R \end{aligned}$$

Für Frequenzen nahe der Resonanzfrequenz wird der 2. Ausdruck in  $G_{RR}$  dominierend, d.h. die Koppelung des Restgitteratoms an die Hantel und deren Rückwirkung auf das Restgitter wird stärker als die Koppelung der Restgitteratome untereinander.

Für die Greenfunktion des Restgitters gilt also für  $\omega \approx \omega_{res}$

$$G_{RR}(\omega) \approx u_{(\omega)}^R G_{HH}(\omega) u_{(\omega)}^R$$

Das heißt, über die Hantel wirkt eine Verschiebung eines Restgitteratoms zurück auf ein Restgitteratom. Damit können alle Greenfunktionen einheitlich dargestellt werden als:

$$G_{i,j}^{m,n}(\omega) = \frac{u_{i(\omega \approx 0)}^m u_{j(\omega \approx 0)}^n}{M_{res}^{eff}(\omega_{res}^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)} \quad m,n = R,H$$

Auch die Interferenzterme  $G_{HR} = G_{RH}^T$  werden erfaßt, wenn man  $u^H = 1$  setzt. Diese Beziehung gilt für Frequenzen nahe  $\omega_{res}$ , wobei die statischen Relaxationsmoden  $u_{(\omega=0)}^R$  nur für defekt-nahe Restgitteratome und kleine  $\omega$  benutzt werden können, da sonst Retardierungseffekte wichtig werden.

$G_{i,j}^{m,n}(\omega)$  sind die Elemente der Greenfunktion eines Kristalls mit nur einem Defekt. Da die Hantel aber in allen drei  $\langle 100 \rangle$ -Richtungen gleichverteilt sein wird, muß noch über diese 3 Lagen  $\eta$  gemittelt werden, so daß

$$G_{i,j}^{m,n}(\omega) = \frac{1}{3} \sum_{\eta=1}^3 G_{i,j}^{m,n,\eta}(\omega) = \frac{1}{3} \sum_{\eta=1}^3 \frac{u_{\eta i(\omega \approx 0)}^m u_{\eta j(\omega \approx 0)}^n}{M_{res}^{eff}(\omega_{res}^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)}$$

Die Relaxationsmoden  $\underline{u}_{\alpha}(\omega_{\alpha})$  einer Resonanz  $\alpha$  sind mit den Eigenvektoren der Resonanz  $\underline{v}_{\alpha}(\omega_{\alpha})$  verbunden über die Normierungsgleichung

$$\sum_m \sum_{i=1}^3 (v_{i(\omega_{\alpha})}^m)^2 = 1 = \frac{M_{HH}}{M_{eff}} + \sum_R \sum_{i=1}^3 \frac{M_{RR}}{M_{eff}} |u_{i(\omega_{\alpha})}^R|^2$$

## DANKSAGUNG

Diese Arbeit wurde am Institut für Festkörperforschung der Kernforschungsanlage Jülich GmbH durchgeführt.

Herrn Prof. Dr. W. Schilling gilt mein Dank dafür, daß er mir dieses interessante Thema zur Verfügung gestellt hat und es mir ermöglichte, diese Arbeit an seinem Institut anzufertigen. Seine Ratschläge und Anregungen, sowie sein fortwährendes Interesse auch bei experimentellen Rückschlägen waren mir eine große Unterstützung.

Herrn Dr. P. Ehrhart möchte ich nicht nur für viele klärende Diskussionen und seine ständige Hilfsbereitschaft danken, sondern ganz besonders dafür, daß er mich an seinem reichen, experimentellen Erfahrungsschatz teilhaben ließ. Seiner Familie schulde ich Dank, daß sie während der wochenlangen Meßzeit in Grenoble auf ihren Vater verzichtet hat.

Herrn Dr. H. Lauter möchte ich für die herzliche Betreuung als Local Contact des Spektrometers IN3 am ILL in Grenoble danken, sowie Herrn Dr. B. Dorner für sein andauerndes Interesse an dieser Arbeit.

Herrn Dr. H.R. Schober sei für die Berechnungen des Schwingungsverhaltens der Kristalle gedankt sowie für die wertvollen Diskussionen, die mir bei der Interpretation der Ergebnisse sehr hilfreich waren.

Ebenso möchte ich Herrn Prof. Dr. P.H. Dederichs danken für sein stetes Interesse und die zahlreichen Gespräche, die mir die Schwierigkeiten im Verständnis der Theorie zu überwinden halfen.

Den Herren Prof. Dr. T. Springer und Prof. Dr. W. Schmatz gilt mein Dank für ihre stete Förderung.

Die Herren Ch. Cremer, H. Fink und H. Scheeren haben mit ihrem großen Einsatz ganz wesentlich zum Gelingen der Langzeitbestrahlungen beigetragen. Ihnen, Herrn J. Patay und der Mannschaft der Helium-Verflüssigungsanlage sei hier herzlich gedankt.

Der Transportabteilung der KFA danke ich für die Organisation der Transporte der heliumkalten Proben von Jülich nach Grenoble.

Den Herren Ch. Mambor und G. Jungerberg sei für die Probenpräparation und Frau L. Gain und Frau R. Fischer für die kristallographische Analyse gedankt.

Bei Herrn J. Koslowski bedanke ich mich für die akurate Anfertigung zahlreicher Zeichnungen.

Weiterhin danke ich allen Mitarbeitern des IFF und ILL, die mich während meiner Promotion unterstützt haben.

Schließlich gilt mein besonders herzlicher Dank meiner Ehefrau Gisela für das umsichtige, sorgfältige und geduldige Schreiben des Manuskriptes, vor allem aber für das in unserer gemeinsamen Zeit am Institut gewachsene Verständnis für meine Arbeit, obwohl sie besonders während der langen Bestrahlungszyklen und der Messungen oft auf mich verzichten mußte.

