

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

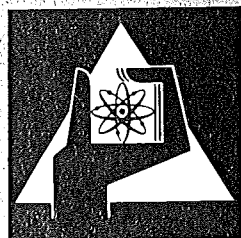
September 1973

KFK 1774

Institut für Angewandte Kernphysik  
Abteilung Reaktorbetrieb und Technik

**Untersuchung der kollektiven Bewegungen im  
polykristallinen und flüssigen Kupfer durch  
inelastische Neutronenstreuung**

S. Hagen



**GESELLSCHAFT  
FÜR  
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

**KARLSRUHE**

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1774

Institut für Angewandte Kernphysik  
und  
Abteilung Reaktorbetrieb und Technik

Untersuchung der kollektiven Bewegungen im  
polykristallinen und flüssigen Kupfer durch  
inelastische Neutronenstreuung \*

Siegfried Hagen

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe

\* von der Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe genehmigte  
Dissertation



## Zusammenfassung

Für die Untersuchung der Streuung langsamer Neutronen an Festkörpern und Flüssigkeiten wurde an der kalten Quelle des FR2 ein Drehkristall-Flugzeitspektrometer aufgebaut. Bei einer Einfallenergie von 4.98 meV wurde mit ihm der doppelt-differenzielle Streuquerschnitt am polykristallinen Kupfer bei 1323°K und am flüssigen Kupfer bei 1363°K unter 18 verschiedenen Streuwinkeln gemessen. Am flüssigen Kupfer wurde die Messung auch bei einer Einfallenergie von 13.2 und 52.8 meV für 8 verschiedene Streuwinkel durchgeführt. Aus diesen Daten konnte das Streugesetz von Kupfer in einem Bereich des Energie- und Impulsübertrages bis zu 30 meV und  $7 \text{ \AA}^{-1}$  bestimmt werden.

Ziel der Arbeit war, zu untersuchen, ob auch im flüssigen Zustand das dynamische Verhalten des Kupfers in dem der Neutronenstreuung zugänglichen Frequenzbereich durch kollektive Bewegungsformen beeinflusst wird. Im polykristallinen Zustand dicht unter dem Schmelzpunkt kann das sich in der kohärenten inelastischen Streuung äußernde kollektive Verhalten durch longitudinale und transversale Phononen beschrieben werden. Für den longitudinalen Anteil der Anregungen ließ sich eine mittlere Dispersionsbeziehung angeben. Durch Vergleich der Phononenfrequenzen bei 1323°K und 300°K wurde eine mittlere Grüneisenkonstante bestimmt, die mit dem aus thermodynamischen Größen berechneten Wert befriedigend übereinstimmt.

Für das flüssige Kupfer wurde die als de Gennes-narrowing bekannte  $Q$ -Abhängigkeit der quasielastischen Streuung beobachtet. Darüber hinaus zeigten sich im inelastischen Bereich Stellen bevorzugter Anregung, deren  $(Q, \omega)$ -Werte einen analogen Verlauf wie im Polykristall haben. Dies wird als Hinweis dafür angesehen, daß auch im flüssigen Zustand ausgezeichnete kollektive Bewegungen auftreten.

Zur Bestätigung dieses Ergebnisses wurde das Streugesetz der Flüssigkeit im inelastischen Bereich mit einem von Egelstaff vorgeschlagenen Modell verglichen, das die Existenz von longitudinalen und transversalen kollektiven Anregungen voraussetzt. Der Vergleich zeigt, daß diese Annahme zu einer brauchbaren Beschreibung des gemessenen Streugesetzes führt. Die Voraussetzung von nur longitudinalen Anregungen kann dagegen den Verlauf des Streugesetzes nicht beschreiben. Aus dem Vergleich kann ferner die als Parameter in die Rechnung eingehende transversale Frequenzverteilung bestimmt werden. Hierbei zeigt sich eine ausgeprägte Verschiebung der Zustandsdichte nach kleinen Frequenzen im Vergleich zum Festkörper.

Das Streugesetz wurde ferner mit einem von Sears vorgeschlagenen Modell verglichen, das im Gegensatz zu der festkörperähnlichen Beschreibung von Egelstaff von einer allgemeinen Formulierung der Korrelationsfunktion in der linearen Response-Theorie ausgeht und die Momententheoreme benutzt. Die durch Anpassung der Modellparameter an die quasielastischen Streudaten (de Gennes-narrowing) bestimmbare Hochfrequenzdispersion kann auch die Lage der Maxima im inelastischen Spektrum gut beschreiben. Beim Vergleich der absoluten Werte des Streugesetzes zeigt sich, daß die Maxima im Modell stärker ausgeprägt sind als im Experiment. Die in dem flüssigen Metall auftretende Dämpfung der kollektiven Anregung wird offenbar durch die Annahmen des Modells von Sears noch nicht befriedigend wiedergegeben.

# INVESTIGATION OF THE COLLECTIVE MOVEMENTS IN POLYCRYSTALLINE AND LIQUID COPPER BY INELASTIC NEUTRON SCATTERING.

## Abstract

For the investigation of the scattering of slow neutrons by solids and liquids a rotating crystal - time of flight - spectrometer was built at the cold neutron source of the FR2. At an incident energy of 4.98 meV the double differential scattering cross section was measured for polycrystalline copper at 1323°K and for liquid copper at 1363°K in 18 different scattering directions. For liquid copper measurements were also done with incident energies of 13.2 and 52.8 meV for 8 different scattering directions. From this measurements the scattering law of liquid copper could be determined for an energy and impulse transfer up to 30 meV and  $7 \text{ \AA}^{-1}$ .

The aim of this investigations was to see, whether the dynamical behaviour of copper in the liquid state is influenced by collective modes. In the polycrystalline state close to the melting point the collective behaviour, appearing in the coherent inelastic scattering, can be described by longitudinal and transversal phonons. For the longitudinal part of the excitations a mean dispersion relation can be given. By comparison of phonon frequencies at 1323°K and 300°K a mean Grüneisen-constant could be determined, which is comparable to the value, calculated from thermodynamical numbers.

For liquid copper a Q-dependency of the quasielastic scattering, which is known as the de Gennes-narrowing was observed. In the inelastic region favoured excitations are found with a  $(Q, \omega)$ -dependency very similar to the polycrystalline state. This indicates the existence of collective atomic motions in the liquid state.

To confirm this result the scattering law of liquid copper in the inelastic region was compared with a model proposed by Egelstaff, assuming longitudinal and transversal collective excitations. This leads to a suitable description of the measured scattering law. The assumption of longitudinal excitations alone cannot describe the form of the scattering law. By comparison with the model the transversal frequency distribution, used as a parameter in the calculation, is determined. Compared with the solid the density of states for low frequencies is enlarged.

The scattering law was also compared with the model of Sears, which starts in contrast to the solidlike description of Egelstaff, from a general formulation of the correlation function in the linear response theory using the momentum theorems. The high frequency dispersion relation, determined by fitting the parameters of this model to the quasielastic scattering data (de Gennes-narrowing), can also describe the position of the maxima in the inelastic spectrum. The maxima of the scattering law are more pronounced in the model than in the experiment. The description of the damping by the Sears-model is obviously too weak.

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
1. Einleitung	1
2. Theoretische Grundlagen	3
2.1 Streuquerschnitt und Korrelationsfunktion	3
2.2 Streuquerschnitt eines Kristalls	6
2.3 Streuquerschnitt einer Flüssigkeit	10
2.3.1 Das Egelstaff-Modell	11
2.3.2 Das Sears-Modell	12
3. Experimenteller Aufbau und Meßmethode	15
3.1 Versuchsanordnung	15
3.2 Das Drehkristallspektrometer	16
3.3 Das Flugzeitspektrometer	17
3.4 Elektronik	19
3.5 Streuprobe und Probeofen mit Temperaturregelung	20
3.6 Auswertung der Flugzeitspektren	22
4. Meßergebnisse und Diskussion	25
4.1 Inelastische Streuung am polykristallinen Kupfer	27
4.1.1 Kohärente Einphononenstreuung	28
4.1.2 Frequenzverteilungen und Dispersionskurven für den Polykristall	31
4.1.3 Grüneisenkonstante für Cu	36
4.1.4 Vergleich der Meßwerte mit den Modellrechnungen	38
4.2 Inelastische Streuung am flüssigen Kupfer	41
4.2.1 Meßergebnisse am flüssigen Kupfer	42
4.2.2 Beschreibung der Streuung am flüssigen Kupfer mit dem Egelstaff-Modell	46
4.2.3 Vergleich der Meßwerte mit dem Sears-Modell	55
5. Literaturverzeichnis	61





## 1. Einleitung

Unsere Kenntnis der atomaren Bewegungsvorgänge im flüssigen Zustand ist sehr viel geringer als für die beiden anderen Aggregatzustände. Dies liegt im wesentlichen daran, daß für die Flüssigkeit keine einfache mikroskopische Theorie angegeben werden kann, die die Wirklichkeit ausreichend annähert, wie es die Modelle des idealen Gases und des geordneten Kristallgitters für die gasförmige und feste Phase erreichen.

Um die atomaren Bewegungen in der Flüssigkeit verstehen zu lernen, wird man Untersuchungen zunächst an einfachen Flüssigkeiten durchführen, d.h. an Flüssigkeiten, deren Bausteine aus Einzelatomen bestehen, weil bei diesen das Verhalten nicht durch intramolekulare Bewegungen (Vibrationen, Rotationen) kompliziert wird. Monoatomare Flüssigkeiten liegen bei den Edelgasen und Metallen vor.

In dieser Arbeit wird das dynamische Verhalten des flüssigen Kupfers in der Nähe des Schmelzpunktes untersucht, wobei kollektive Effekte besonders interessieren. Hierzu wurde die inelastische Streuung langsamer Neutronen am flüssigen Kupfer gemessen. Zum Vergleich betrachten wir auch die Streuung am polykristallinen Kupfer dicht unter dem Schmelzpunkt.

Langsame Neutronen sind für die Bestimmung der dynamischen Eigenschaften von Vielteilchensystemen besonders geeignet, da für sie sowohl die Wellenlänge in der gleichen Größenordnung, wie der Abstand der Atome im Festkörper und in der Flüssigkeit, als auch ihre Energie im Bereich der Energien liegt, die mit der Bewegung der Atome verknüpft sind. So stehen im Falle des Kupfers mittlere Atomabstände von  $3 \text{ \AA}$  und maximale Phononenenergie von  $30 \text{ meV}$  einer Wellenlänge von  $4 \text{ \AA}$  bei der von uns benutzten Einfallenergie von  $5 \text{ meV}$  gegenüber. Zum Vergleich sei erwähnt, daß die zu einer Wellenlänge von  $4 \text{ \AA}$  gehörende Energie bei Röntgenstrahlen einen Wert von ca.  $3 \text{ keV}$  besitzt.

Zur Theorie der Streuung langsamer Neutronen liegen ausführliche Zusammenfassungen vor /1, 2, 3/. Es werden daher nur einige für die vorliegenden Untersuchungen benötigten Ergebnisse angegeben. Die von Van-Hove /4/ eingeführten orts- und zeitabhängigen Korrelationsfunktion  $G(\underline{r}, t)$ , die das Bewegungsverhalten des Systems beschreibt, hängt auf einfache Weise mit dem experimentell bestimmbar doppel-differentiellen Streuquerschnitt zusammen. Für seine Messung wurde ein Drehkristall-Flugzeitspektrometer an der kalten Quelle des FR2 aufgebaut. Der Streuquerschnitt kann nur für einen beschränkten Bereich von Energie- und Impulsänderungen der Neutronen gemessen werden. Daher ist eine direkte Bestimmung von  $G(\underline{r}, t)$  durch Fourierumkehr nicht möglich. Man muß umgekehrt das gemessene Streugesetz mit Modellrechnungen vergleichen, die von bestimmten Annahmen über das Bewegungsverhalten ausgehen.

In der Nähe des Schmelzpunktes wird dabei meistens von einem festkörperähnlichen Verhalten ausgegangen, was durch die große Ähnlichkeit einiger physikalischer Eigenschaften (spezifisches Volumen, spezifische Wärme, kontinuierlicher Übergang der Schallgeschwindigkeit am Schmelzpunkt, inelastische Neutronenspektren für hohe Frequenzen) gerechtfertigt scheint. Nach diesen Vorstellungen setzt sich das dynamische Verhalten in der Flüssigkeit aus zwei typischen Bewegungsarten zusammen. Dies sind erstens die kollektiven Bewegungen, die dem oszillatorischen Verhalten im Festkörper ähnlich sind und zweitens die Diffusionsbewegungen.

Um Aussagen über das kollektive Verhalten zu gewinnen, wird die in der vorliegenden Arbeit experimentell bestimmte inelastische kohärente Neutronenstreuung mit einem auf den genannten Vorstellungen basierenden Modell verglichen, das von Egelstaff vorgeschlagen wurde. Weiter wird versucht, die gemessene Streuung mit einem Modell von Sears zu beschreiben, daß allgemeiner, ohne die Analogie zum Festkörper zu benutzen, von einer näherungsweise Darstellung der Korrelationsfunktion ausgeht.

## 2. Theoretische Grundlagen

### 2.1 Streuquerschnitt und Korrelationsfunktionen

Wegen der geringen Reichweite der nuklearen Wechselwirkung kann bei der Behandlung der Streuung langsamer Neutronen an einem atomaren Vielteilchensystem das Fermi'sche Pseudopotential

$$V(\underline{r}) = 2\pi \frac{\hbar^2}{m} \sum b \delta(\underline{r} - \underline{R}_n(t)) \quad (1)$$

anstelle des wirklichen Kernpotentials verwendet werden.

$m$  = Neutronenmasse

$b$  = gebundene Streulänge

$\underline{R}_n(t)$  = Ortskoordinate des  $n$ -ten Kerns zur Zeit  $t$ .

In erster Born'schen Näherung ergibt sich mit diesem Potential für den doppelt differentiellen Streuquerschnitt der folgende Ausdruck:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \hbar b^2 \frac{k'}{k} \sum_{\substack{m \\ i \\ f}} p_i \langle i | e^{-iQR_m} | f \rangle \langle f | e^{iQR_n} | i \rangle \delta(\hbar\omega + E_i - E_f) \quad (2)$$

$|i\rangle$  und  $|f\rangle$  = Wellenfunktion des Systems vor und nach dem Stoß

$E_i$  und  $E_f$  = zugehörige Eigenwerte der Energie

$\underline{k}$  und  $\underline{k}'$  = Wellenzahlvektor des einfallenden und des gestreuten Neutrons

$p_i$  = Besetzungsdichte der Anfangszustände

$\hbar\omega$  = Energieübertrag des Neutrons an das Vielteilchensystem.

(2) kann unter Verwendung der Integraldarstellung der  $\delta$ -Funktion und der Darstellung der  $\underline{R}_n$  im Heisenbergbild auch folgendermaßen geschrieben werden:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = b^2 \frac{k'}{k} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp[-i\omega t] \left\{ \sum_{mn} \exp[-iQR_m(0)] \exp[-iQR_n(t)] \right\} \quad (3)$$

{ } steht für die thermische Mittelung  
 $Q = k' - k$

Man kann diesen Ausdruck für den doppelt differentiellen Streuquerschnitt in zwei Faktoren aufspalten:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = b^2 \frac{k'}{k} S(Q, \omega) \quad (4)$$

Der Faktor  $b^2 k'/k$  ist durch die Eigenschaften des Neutrons bestimmt, während  $S(Q, \omega)$  nur von der Struktur und dem dynamischen Verhalten des Systems abhängt.  $S(Q, \omega)$  hat unabhängig von der speziellen Strahlung z.B. für Neutronen, Gammastrahlung oder Licht die gleiche Form und ist nur eine Funktion des übertragenen Impulses  $\hbar Q$  und der übertragenen Energie  $\hbar\omega$ . Man nennt  $S(Q, \omega)$  das Streugesetz des betreffenden Systems. Van Hove /4/ hat gezeigt, daß  $S(Q, \omega)$  als Fouriertransformierte einer orts- und zeitabhängigen Korrelationsfunktion  $G(\underline{r}, t)$  dargestellt werden kann.

$$S(Q, \omega) = \frac{1}{2\pi} \iint_{-\infty}^{+\infty} \exp[i(Q\underline{r} - \omega t)] G(\underline{r}, t) d\underline{r} dt \quad (5)$$

Im klassischen Grenzfall ( $1/\omega \gg \hbar/k_B T$  und  $1/Q^2 \gg \hbar^2/2Mk_B T$ ) hat  $G(\underline{r}, t)$  folgende Form:

$$G(\underline{r}, t) = \frac{1}{N} \left\{ \sum \delta(\underline{r} + \underline{R}_m(0) - \underline{R}_n(t)) \right\} \quad (6)$$

$G(\underline{r}, t)$  stellt die Wahrscheinlichkeit dar, zur Zeit  $t$  am Ort  $\underline{r}$  ein Teilchen anzutreffen, wenn zur Zeit  $t = 0$  am Orte  $\underline{r} = 0$  ein Teilchen vorhanden war. Im Fall unterscheidbarer Teilchen gibt es zwei Möglichkeiten, weil das Teilchen zur Zeit  $t$  am Ort  $\underline{r}$  mit dem Teilchen zur Zeit  $t = 0$  am Ort  $\underline{r} = 0$  identisch sein kann oder nicht. Entsprechend kann  $G(\underline{r}, t)$  in zwei Anteile zerlegt werden.

$$G(\underline{r}, t) = G_s(\underline{r}, t) + G_d(\underline{r}, t) \quad (7)$$

$$G_s(\underline{r}, t) = \frac{1}{N} \left\{ \sum_n \delta(\underline{r} + \underline{R}_n(0) - \underline{R}_n(t)) \right\} \quad (8)$$

$$G_d(\underline{r}, t) = \frac{1}{N} \left\{ \sum_{m \neq n} \delta(\underline{r} + \underline{R}_m(0) - \underline{R}_n(t)) \right\} \quad (9)$$

Man nennt  $G_s$  die Selbstkorrelationsfunktion und  $G_d$  die Paarkorrelationsfunktion.

Wir hatten in (3) vorausgesetzt, daß alle Teilchen die gleiche Streulänge besitzen. Das ist nur der Fall, wenn das streuende Element ein Monoisotop mit dem Spin  $I = 0$  ist. Isotope eines Elements besitzen im allgemeinen verschiedene Streulängen. Ist der Spin eines Isotopes  $I \neq 0$ , so können Neutron und Kern mit paralleler und antiparalleler Ausrichtung der Spins wechselwirken. Die Streulänge für die beiden Fälle ist im allgemeinen ebenfalls verschieden. Nehmen wir weiter an, daß die Kerne mit den unterschiedlichen Streulängen statistisch verteilt sind, so können wir den doppelt differentiellen Streuquerschnitt in einen inkohärenten und kohärenten Anteil aufspalten:

$$\frac{d^2\sigma_i}{d\Omega d\omega} = (\bar{b}^2 - \bar{b}^2) \frac{k'}{k} \frac{1}{2\pi} \int \exp[i(\underline{Q}\underline{r} - \omega t)] G_s(\underline{r}, t) d\underline{r} dt = (\bar{b}^2 - \bar{b}^2) \frac{k'}{k} S_s(\underline{Q}, \omega) \quad (10)$$

$$\frac{d^2\sigma_k}{d\Omega d\omega} = \bar{b}^2 \frac{k'}{k} \frac{1}{2\pi} \int \exp[i(\underline{Q}\underline{r} - \omega t)] G(\underline{r}, t) d\underline{r} dt = \bar{b}^2 \frac{k'}{k} S(\underline{Q}, \omega) \quad (11)$$

Unter der kohärenten und inkohärenten Streulänge versteht man die Größen:

$$b_k = \bar{b} \qquad b_i = \sqrt{\bar{b}^2 - \bar{b}^2}$$

Wie man aus (8) bis (11) erkennt, wird die inkohärente Streuung durch die Einzelteilchenbewegung und die kohärente Streuung durch die korrelierte Bewegung der Atome bestimmt.

In (10) und (11) ist das Streugesetz eine Funktion von Betrag und Richtung der Impulsänderung  $\hbar\mathbf{Q}$ . Polykristall und Flüssigkeit sind Systeme, die in bezug auf die Einfallsrichtung der Neutronen isotrop sind. Das Streugesetz wird daher bei diesen Systemen nicht mehr von der Richtung von  $\mathbf{Q}$  abhängen, sondern nur noch vom Betrag  $|\mathbf{Q}| = Q$ .

Der zur Beschreibung der Streuung an einer Flüssigkeit benutzte statische Strukturfaktor  $S(Q)$  ist mit  $S(Q, \omega)$  folgendermaßen verknüpft:

$$S(Q) = \int S(Q, \omega) d\omega = 1 + \int \exp(-i\mathbf{Q}\mathbf{r}) g(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (12)$$

$g(\mathbf{r}) = G_d(\mathbf{r}, 0)$  ist die bei der Beschreibung der Streuung von Röntgenstrahlung an Flüssigkeiten eingeführte statische Paarverteilungsfunktion /5/.

## 2.2 Streuquerschnitt eines Kristalls

Die allgemeinen Ausdrücke des Abschnitts 2.1 für  $d^2\sigma/d\Omega d\omega$  können für die Streuung am Kristall weiter ausgewertet werden. Es ergibt sich ein expliziter Zusammenhang zwischen  $d^2\sigma/d\Omega d\omega$  und der Bewegung der Atome, da man im Kristall die zeitabhängige Ortskoordinate  $R_n(t)$  in die Gleichgewichtsposition  $R_{n0}$  und die oszillatorische Auslenkung  $u_n(t)$  aus dieser Gleichgewichtslage zerlegen kann. In harmonischer Näherung ist es möglich, die Auslenkungen durch Überlagerung von  $3N$  polarisierte nicht miteinander wechselwirkende ebene Wellen darzustellen, die durch den Wellenzahlvektor  $\mathbf{q}$  und einen der drei zugehörigen senkrecht aufeinander stehenden Polarisationsvektoren  $\underline{\alpha}_{qs}$  gekennzeichnet sind ( $s =$  Laufindex des Polarisationsvektors).

Entwickelt man in (3) den mit den Auslenkungen verbundenen Teil des exponentiellen Ausdrucks, so erhält man eine Reihe in  $Q^2$ , die als Phononenentwicklung bezeichnet wird, da ihre Glieder den Anteilen der Streuung entsprechen, bei denen kein Phonon (elastische Streuung), 1 Phonon (Einphononstreuung), 2 Phononen (Zweiphononenstreuung) usw. vom Kristall emittiert oder absorbiert werden.

Für die uns vor allem interessierenden Einphononenprozesse ergeben sich folgende Ausdrücke für den inkohärenten bzw. kohärenten Wirkungsquerschnitt:

$$\frac{d^2\sigma_{II}}{d\Omega d\omega} = b_1^2 \frac{k}{k} \sum_{qs} \frac{\hbar}{2M} e^{-2W} |\underline{Q} \cdot \underline{\alpha}_{qs}|^2 \frac{n + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}}{\omega_{qs}} \delta(\hbar\omega \pm \hbar\omega_{qs}) \quad (13)$$

$$\frac{d^2\sigma_{IK}}{d\Omega d\omega} = b_k^2 \frac{k}{k} \sum_{qs} \frac{\hbar}{2M} e^{-2W} |\underline{Q} \cdot \underline{\alpha}_{qs}|^2 \frac{n + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}}{\omega_{qs}} \delta(\hbar\omega \pm \hbar\omega_{qs}) \cdot \frac{(2\pi)}{V} \sum_{\tau} \delta(\underline{Q} \mp \underline{q} - 2\pi\tau) \quad (14)$$

Bei den Doppelvorzeichen in (13) und (14) bezieht sich das obere Vorzeichen auf Phononenerzeugung und das untere auf Phononenvernichtung.

M = Masse des streuenden Kerns

V = Volumen der Einheitszelle des Kristalls

$e^{-2W}$  = Debye-Waller Faktor mit  $2W = \sum |\underline{Q} \cdot \underline{\alpha}_{qs}|^2 \frac{2n+1}{2M\omega_{qs}}$

n =  $(e^{\hbar\omega_{qs}/k_B T} - 1)^{-1}$  ist der thermische Besetzungsfaktor der Phononen

$|\underline{Q} \cdot \underline{\alpha}_{qs}|^2$  beschreibt den Einfluß der Polarisationsrichtung der Phononen

$\delta(\hbar\omega \mp \hbar\omega_{qs})$  berücksichtigt den Energiesatz

$\delta(\underline{Q} \pm \underline{q} - 2\pi\tau)$  ist eine geometrische Auswahlregel, die nur in der kohärenten Einphononenstreuung auftritt (Quasiimpulssatz).

Für Kristalle mit kubischer Symmetrie kann man

$$\sum_{q_s} |\underline{Q} \cdot \underline{\alpha}_{q_s}|^2 \frac{n + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}}{\omega_{q_s}} \delta(\hbar\omega \pm \hbar\omega_{q_s}) \text{ durch } Q^2 \frac{n + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}}{\omega} f(\omega)$$

ersetzen /6/, wobei  $f(\omega)$  die auf 1 normierte Frequenzverteilung der Phononen ist. Damit ergibt sich für den inkohärenten Wirkungsquerschnitt:

$$\frac{d^2\sigma_{II}}{d\Omega d\omega} = b_I^2 \frac{k'}{k} \frac{\hbar}{2M} e^{-2W} Q^2 \frac{n + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}}{\omega} f(\omega) \quad (15)$$

Um im Falle der kohärenten Streuung den Wirkungsquerschnitt für eine polykristalline Streuprobe zu erhalten, muß man

$\delta(\underline{Q} \pm \underline{q} - 2\pi\underline{\tau})$  über alle Richtungen von  $2\pi\underline{\tau}$  und  $\underline{q}$  mitteln. Ferner machen wir die Annahme, daß der Zusammenhang zwischen den 3 Frequenzen  $\omega_{q_s}$  und dem Wellenzahlvektor  $\underline{q}$  durch eine rein longitudinale und eine entartete rein transversale Dispersionsbeziehung dargestellt werden kann.

Mit  $|\underline{Q} \cdot \underline{\alpha}_{q_L}|^2 = Q^2 \cos^2(\underline{Q}, \underline{q}_L)$  und  $|\underline{Q} \cdot \underline{\alpha}_{q_T}|^2 = 1/2 \cdot Q^2 \sin^2(\underline{Q}, \underline{q}_L)$  für den longitudinalen und transversalen Polarisationsfaktor sowie dem Mittelwert /7/ für die  $\delta$ -Funktion:

$\overline{\delta(\underline{Q} + \underline{q} - 2\pi\underline{\tau})} = (16\pi^2 \tau Q q)^{-1}$  ergibt sich für den kohärenten Wirkungsquerschnitt:

$$\frac{d^2\sigma_{IK}}{d\Omega d\omega} = b_K^2 \frac{k'}{k} \frac{\hbar}{2M} e^{-2W} Q^2 \frac{n + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}}{\omega} (f_L(\omega) \cdot Z_L + f_T(\omega) \cdot Z_T) \quad (16)$$

$f_L(\omega)$  und  $f_T(\omega)$  sind dabei der longitudinale und transversale Anteil der Frequenzverteilung (auf 1/3 und 2/3 normiert) und

$$Z_L = \frac{3}{2VQq_L} \sum_{\tau} \frac{F_{\tau}}{\tau} \cos^2(\underline{Q}, \underline{q}_L) = \frac{3}{2VQq_L} \sum_{\tau} \frac{F_{\tau}}{\tau} P_L \quad (17)$$

$$Z_T = \frac{3}{2VQq_T} \sum_{\tau} \frac{F_{\tau}}{\tau} \frac{1}{2} \sin^2(\underline{Q}, \underline{q}_T) = \frac{3}{2VQq_T} \sum_{\tau} \frac{F_{\tau}}{\tau} P_T$$



der longitudinale und transversale Kohärenzfaktor, die die Abweichung von der inkohärenten Form des Wirkungsquerschnitts  $I_L + I_T$  beschreiben. Der Faktor  $F_T$  berücksichtigt die Multiplizität der Netzebenenschar.  $q_L$  und  $q_T$  sind die zur Frequenz  $\omega$  gehörenden Wellenzahlvektoren der longitudinalen und transversalen Schwingungen.

Die Summation über  $\tau$  ist in (17) für alle Werte, die die Bedingung

$$Q - q < 2\pi\tau < Q + q \quad (18)$$

erfüllen, durchzuführen. Diese Bedingung ist in Abb. 1

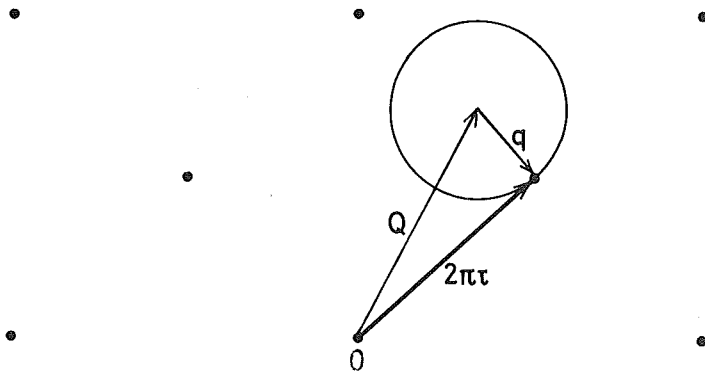


Abb.1a

Reziprokes Gitterdiagramm für Einphonon - Streuung am Einkristall

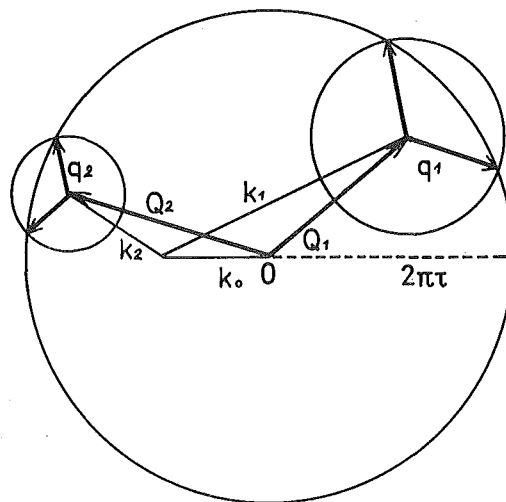


Abb.1b

Reziprokes Gitterdiagramm für Einphonon-Streuung am Polykristall

veranschaulicht. In Abb. 1a ist in Analogie zur üblichen Ewaldkonstruktion das reziproke Gitterdiagramm für die Einphononenstreuung am Einkristall wiedergegeben. Die Auswahlregel  $\delta(\underline{Q} + \underline{q} - 2\pi\underline{l})$  für die kohärente Streuung ist immer dann erfüllt, wenn  $\underline{Q}$ ,  $\underline{q}$  und  $2\pi\underline{l}$  ein Dreieck bilden, d.h. wenn die Kugel mit dem Radius  $q$  um den Endpunkt von  $\underline{Q}$  einen reziproken Gitterpunkt schneidet.

Die entsprechende Situation für die Einphononenstreuung am Polykristall ist in Abb. 1b dargestellt. Da hier die reziproken Gittervektoren alle möglichen Richtungen relativ zu  $\underline{Q}$  annehmen können, sind sie als Kugeln um den Anfangspunkt im reziproken Raum darzustellen. In Analogie zur Einphononenstreuung am Einkristall tritt die Streuung beim Polykristall immer dann auf, wenn die Kugel mit dem Radius  $q$  um den Endpunkt von  $\underline{Q}$  die Kugel des reziproken Gittervektors schneidet. Man sieht, daß die zwei Kugeln sich immer dann schneiden, wenn die Beziehung (18) erfüllt ist.

### 2.3 Streuquerschnitt einer Flüssigkeit

In der Einleitung haben wir schon darauf hingewiesen, daß für die Flüssigkeit noch keine befriedigende mikroskopische Theorie vorhanden ist. Die Korrelationsfunktion kann somit nicht exakt berechnet werden. Es wurden daher Modelle geschaffen, die meistens vom festen Zustand ausgehen und typische Eigenschaften der Flüssigkeit auf phänomenologische Weise einbauen. Durch Vergleich solcher Modelle mit den Ergebnissen von Experimenten kann ihre Gültigkeit überprüft und gegebenenfalls können offene Parameter bestimmt werden.

Analog zur elastischen und inelastischen Streuung im Festkörper wird man die Streuung in der Flüssigkeit dicht über dem Schmelzpunkt in zwei Bereiche, nämlich quasielastische und inelastische Streuung einteilen. Die quasielastische Streuung ist mit der diffusen Komponente der Bewegung der Flüssigkeitsteilchen verknüpft, während der periodische

Anteil der Bewegung sich in der inelastischen Streuung äußert.

Aus der Halbwertsbreite der Einphononenlinien /8/ von Einkristallen bei hohen Temperaturen weiß man, daß die Schwingungen der Gitterbausteine infolge der anharmonischen Kräfte gedämpft werden. Dies wird in der Flüssigkeit noch viel stärker der Fall sein. Kollektive Anregungen in einer Flüssigkeit werden also eine entsprechend kurze Lebensdauer besitzen.

### 2.3.1 Das Modell von Egelstaff

Unter der Annahme, daß die kollektiven Bewegungen in einer Flüssigkeit durch oszillatorische Bewegungszustände beschrieben werden können, hat Egelstaff /9/ vorgeschlagen, den Ausdruck (16) für den polykristallinen Zustand auf die flüssige Phase zu übertragen. Hierbei muß, neben den Unterschieden in der statischen Struktur, berücksichtigt werden, daß die Frequenzverteilung in der Flüssigkeit von der im Festkörper verschieden sein wird.

Aus Röntgen- und Neutronenstreuuntersuchungen ist bekannt, daß die durch die reziproken Gittervektoren  $2\pi\tau$  bestimmten diskreten Strukturformfaktoren beim Übergang in die Flüssigkeit in den kontinuierlichen Strukturformfaktor  $S(Q)$  übergehen. Es ist daher naheliegend im Kohärenzfaktor (17) die Summation über die diskreten Beiträge der reziproken Gittervektoren durch eine Integration über den Strukturformfaktor der Flüssigkeit zu ersetzen. Der Ausdruck (17) für den polykristallinen Kohärenzfaktor nimmt damit für die Flüssigkeit die folgende Form an:

$$Z_{L,T} = \frac{3}{2VQq_{L,T}} \int_{Q-q_{L,T}}^{Q+q_{L,T}} \frac{S(2\pi\tau)}{\tau} \frac{V}{(2\pi)^3} 4\pi(2\pi\tau)^2 P_{L,T} d(2\pi\tau) \quad (19)$$

oder

$$Z_{L,T}^F = \frac{3}{2Qq_{L,T}} \int_{Q-q_{L,T}}^{Q+q_{L,T}} Q' S(Q') P_{L,T} dQ' \quad (20)$$

Die Änderung der Phononenfrequenzen beim Übergang von der festen in die flüssige Phase wird sich in der Frequenzverteilung und in den mittleren Dispersionskurven bemerkbar machen. Diese werden in Abschnitt 4 besprochen.

### 2.3.2 Das Modell von Sears

Ein Modell für die kohärente Streuung an einer Flüssigkeit, das die Analogie zum Festkörper nicht benötigt, ist von Sears /10/ vorgeschlagen worden. Obwohl er eine andere Ableitung benutzt - Entwicklung der Gedächtnisfunktion in einem fortgesetzten Bruch (continued fraction representation) - ist sein Ausgangspunkt der gleiche allgemeine Ausdruck für  $S(Q, \omega)$ , wie er in der linearen Response-Theorie abgeleitet werden kann und zum erstenmal von Kadanoff und Martin /11/ angegeben wurde.

$$S(Q, \omega) = \frac{S(Q)}{\pi} \frac{\omega_0^2(Q) Q^2 \Gamma'(Q, \omega)}{\{\omega^2 - \omega_0^2(Q) + \omega^2 Q^2 \Gamma''(Q, \omega)\}^2 + \{\omega Q^2 \Gamma'(Q, \omega)\}^2} \quad (21)$$

$\omega_0^2(Q) = k_B T Q^2 / MS(Q)$  ist das 2. Moment von  $S(Q, \omega)$  in bezug auf  $\omega$ .

$S(Q, \omega)$  ist in (21) im Grunde genommen zunächst nur durch eine andere Funktion, die Dämpfungsfunktion

$$\Gamma(Q, \omega) = \Gamma'(Q, \omega) + i \Gamma''(Q, \omega)$$

ausgedrückt. Dies ist sinnvoll, wenn  $\Gamma(Q, \omega)$  einfacher als  $S(Q, \omega)$  oder sogar bekannt ist. Im hydrodynamischen Grenzfall ( $Q \rightarrow 0, \omega \rightarrow 0$ ) läßt sich  $\Gamma(Q, \omega)$  als Lösung der linearisierten Bewegungsgleichungen einer klassischen Flüssigkeit angeben.

$$\Gamma(Q, \omega) = \frac{(\gamma - 1) \chi^{-1}}{i \omega + a Q^2} + b \quad (22)$$

Hier ist  $\gamma$  das Verhältnis der spezifischen Wärmen  $c_p/c_v$ ;

$\chi_T$  ist die isotherme Kompressibilität. Weiter ist  $a = \lambda/\rho c_v$  mit der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  und der Dichte  $\rho$  und schließlich ist  $b = (4/3\eta + \xi)/\rho$  mit der Scherviskosität  $\eta$  und der Bulkviskosität  $\xi$ .

Außerhalb des hydrodynamischen Bereiches, insbesondere für  $Q$ - und  $\omega$ -Werte, wie sie bei der Neutronenstreuung auftreten, ist  $\Gamma(Q, \omega)$  nicht bekannt. Es ist naheliegend für  $\Gamma(Q, \omega)$ , einen allgemeinen Ansatz mit offenen Parametern zu machen und zu fordern, daß der hydrodynamische Grenzfall wiedergegeben wird und darüber hinaus die allgemeinen Summenregeln, den  $S(Q, \omega)$  immer genügen muß, erfüllt werden.

Sears hat deshalb eine Funktion  $\Gamma(Q, \omega)$  so konstruiert, daß

- 1) der korrekte hydrodynamische Grenzwert wiedergegeben ist,
- 2) das zugehörige  $S(Q, \omega)$  die Beziehungen für das 0., 2. und 4. Moment für alle  $Q$  erfüllt und
- 3) das  $S(Q, \omega)$  für  $Q \rightarrow \infty$  in den bekannten Ausdruck für das freie Gas übergeht.

Die drei Momentenrelationen lauten (de Gennes 1959):

$$\begin{aligned} \mu_0 &= \int_{-\infty}^{\infty} d\omega S(Q, \omega) = S(Q) \\ \mu_2 &= \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \omega^2 \frac{S(Q, \omega)}{S(Q)} = \frac{k_B T Q^2}{M S(Q)} = \omega_0^2(Q) \\ \mu_4 &= \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \omega^4 \frac{S(Q, \omega)}{S(Q)} = \omega_0^2(Q) \omega_\infty^2(Q) \end{aligned} \quad (23)$$

mit

$$\omega_\infty^2(Q) = \frac{3k_B T}{M} Q^2 + \frac{\rho}{M} \int d\mathbf{r} g(r) \frac{d^2 V}{dz^2} (1 - \cos Qz) \quad (24)$$

Hier sind  $V(r)$  das Paarpotential und  $g(r)$  die statische

Paarkorrelation in der Flüssigkeit.  $\omega_0(Q)$  wird gelegentlich auch isotherme Dispersion genannt, weil die Maxima von  $S(Q, \omega)$  durch  $\omega_0$  bestimmt werden, wenn der Reibungsterm klein ist. Die Funktion  $\omega_\infty(Q)$  wird im Gegensatz dazu Hochfrequenzdispersion genannt.

Die genannten Randbedingungen führen zu folgendem Ausdruck für  $\Gamma(Q, \omega)$ :

$$\Gamma(Q, \omega) Q^2 = \frac{(\gamma-1) \omega_0^2(Q)}{i\omega + \frac{\epsilon a Q}{\epsilon + a Q}} + \frac{\omega_\infty^2(Q) - \gamma \omega_0^2(Q)}{i\omega + \left\{ \frac{[\omega_\infty^2(0) - \gamma \omega_0^2(0)]}{b Q^2} + [\epsilon Q^2]^2 \right\}^{1/2}} \quad (25)$$

mit  $\epsilon = \left[ \frac{8 k_B T}{\pi^2 M} \right]^{1/2}$

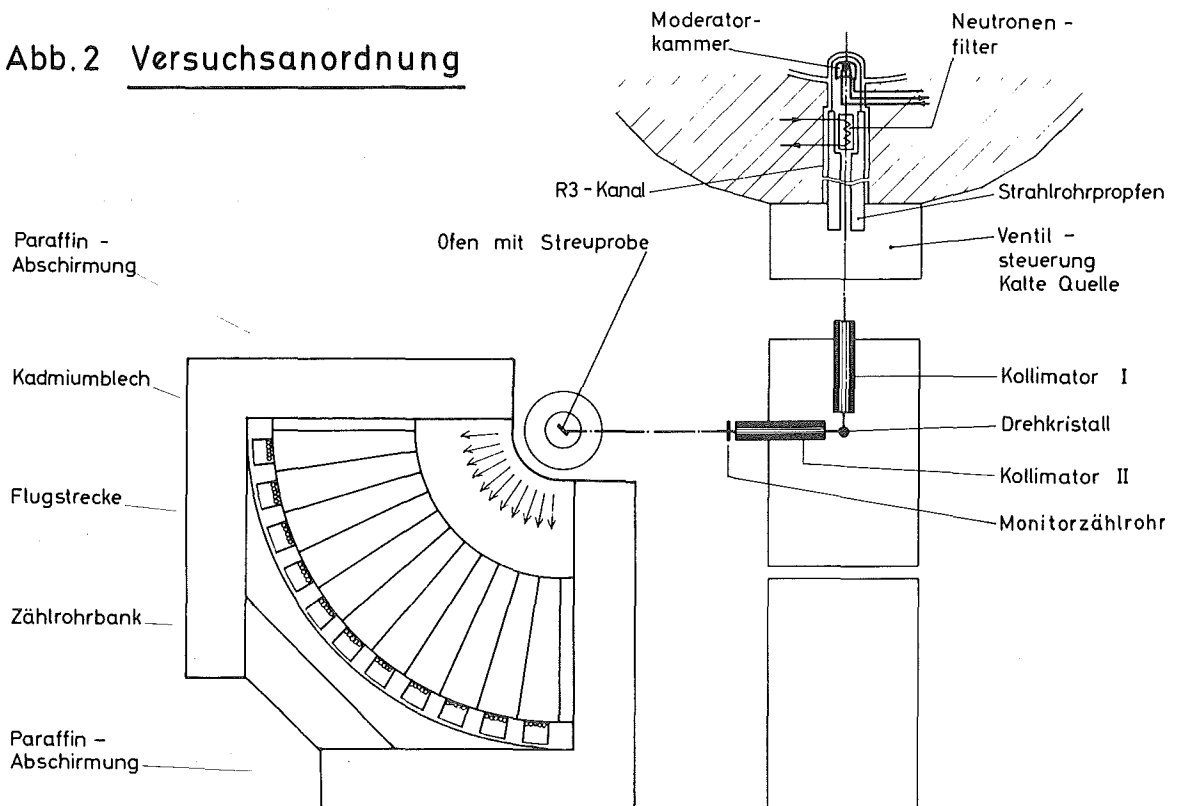
Man erkennt, daß die wesentliche unbekannte Größe in (25)  $\omega_\infty^2(Q)$  ist, die hauptsächlich durch das Paarpotential  $V(r)$  und den statischen Strukturfaktor festgelegt wird. Es ist allerdings zu bemerken, daß der Ansatz von Sears, der die richtigen Grenzwerte für  $Q \rightarrow 0$  und  $\rightarrow \infty$  wiedergibt, für den mittleren  $Q$ -Bereich zu grob sein kann. Wir werden bei der Diskussion der experimentellen Ergebnisse sehen, wie weit er die Einzelheiten von  $S(Q, \omega)$  wiedergeben kann.

### 3. Experimenteller Aufbau und Meßmethode

#### 3.1 Versuchsordnung

Zur Messung des doppelt differentiellen Streuquerschnitts von Kupfer wurde an der kalten Quelle des FR2 ein Drehkristall-Flugzeitspektrometer aufgebaut. Die Versuchsanordnung ist in Abb. 2 dargestellt. Das aus dem Reaktor austretende Neutronenspektrum wird in der kalten Quelle zu kleineren Energien verschoben, im Beryllium-Filter von den störenden Neutronen höherer Energie befreit und fällt dann auf den Drehkristall. Dieser läßt auf die sich in einem Ofen befindliche Streuprobe kurzzeitig monoenergetische Neutronenimpulse fallen, deren Energieänderung im Flugzeitspektrometer gemessen werden. Da es möglich ist, die Flugzeitmessungen in verschiedenen Streurichtungen gleichzeitig

Abb. 2 Versuchsordnung



durchzuführen, kann der Streuquerschnitt über den entsprechenden Bereich des Energie- und Impulsübertrages in einer Messung bestimmt werden.

Das Drehkristall-Flugzeitspektrometer sowie der elektronische Aufbau und die Anordnung der Streuprobe werden in den folgenden Abschnitten kurz beschrieben.

### 3.2 Das Drehkristallspektrometer

Das Drehkristallspektrometer blendet aus dem einfallenden Reaktorspektrum periodisch einen schmalen Energiebereich aus. Hierzu ist ein rotierender Einkristall zwischen zwei Kollimatoren angeordnet. Diese bestimmen die Ein- und Ausfallsrichtung der Neutronen. Der Winkel zwischen den Kollimatoren ( $180 - 2 \theta_B$ ) und der wirksame Netzebenenabstand  $d$  des rotierenden Einkristalls /13/ legt nach der Bragg-Bedingung  $n\lambda = 2d\sin\theta_B$  die Energie des Neutronenimpulses fest. Der bei diesem Spektrometer benutzte zylinderförmige Bleieinkristall (Durchmesser = 3 cm; Höhe = 7 cm) besitzt einen Netzebenenabstand von 2,852 Å für die benutzten 111-Ebenen. Unter dem festgelegten Bragg-Winkel von  $45,3^\circ$  erhalten wir Neutronen einer Energie von 4,98 meV. Die Abschneideenergie des Berylliumfilters liegt bei 5,2 meV, so daß im reflektierten Strahl nur die erste Ordnung ( $n = 1$ ) auftritt.

Abb. 3 zeigt den Aufbau des Drehkristalls. Er wird durch einen Hysteresis-Synchronmotor mit einer Drehzahl von 7200 U/min angetrieben. Die zum Betrieb des Synchronmotors erforderliche Frequenz und Spannung werden mit einer aus RC-Generator und Leistungsverstärker bestehenden Anordnung erzeugt.

Eine an der Kristallhalterung angebrachte Magnetnadel erzeugt beim Vorbeilaufen an zwei um  $180^\circ$  gegeneinander versetzten Tonköpfen die von der Flugzeiteinheit benötigten Startimpulse für den einzelnen Meßzyklus.



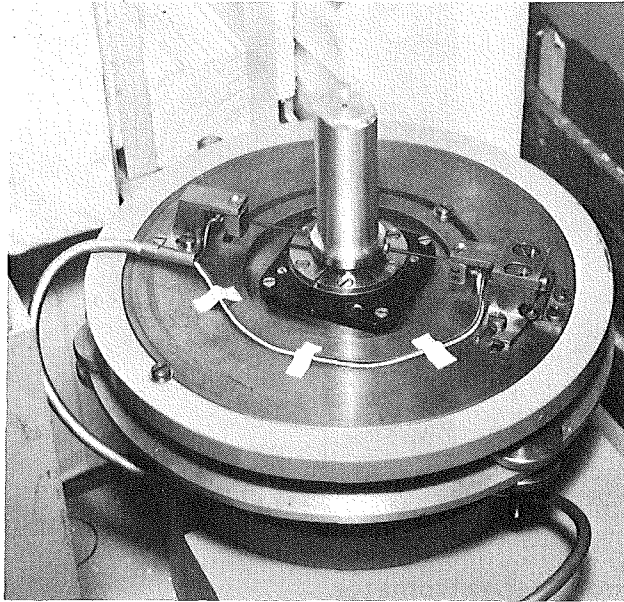


Abb. 3 Drehkristall

Am Ende des Ausgangskollimators (Kollimator II in Abb. 2) ist ein Monitorzählrohr angebracht, welches einen geringen, aber genau definierten Anteil der den Kollimator verlassenden monochromatischen Neutronen registriert und damit ein Maß für die auf die Streuprobe fallenden Neutronen liefert.

### 3.3 Das Flugzeitspektrometer

Die Energieänderungen, welche die Neutronen bei der Streuung an der Meßsubstanz erfahren, werden durch Flugzeitmessungen auf der Strecke von der Probe bis zu den kreisförmig um diese Probe angeordneten Neutronendetektoren bestimmt (Abb. 2). Bei dem im Rahmen der vorliegenden Arbeit aufgebauten Spektrometer kann die Neutronenstreuung über einen Bereich von  $90^\circ$  gleichzeitig gemessen werden. Um den gesamten interessierenden Streubereich von  $0 - 180^\circ$  erfassen zu können, wurde das Flugzeitspektrometer als eine auf Schienen bewegliche Einheit aufgebaut, die um eine vertikale Achse schwenkbar angeordnet ist und reproduzierbare Einstellungen gestattet.

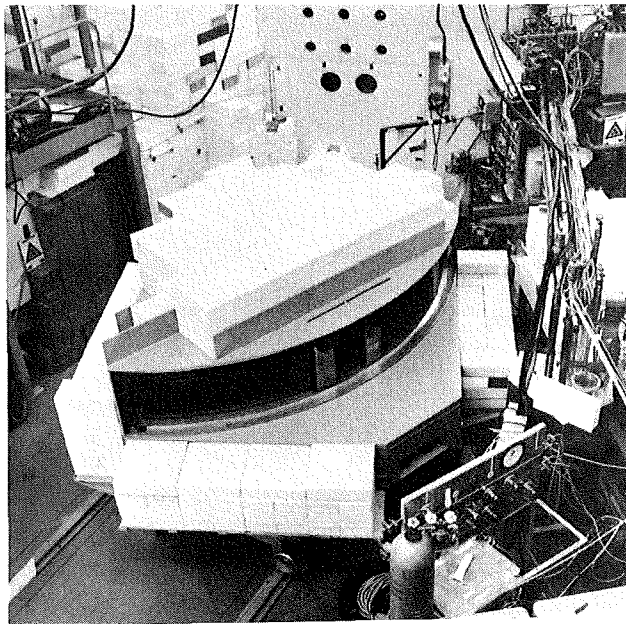


Abb.4 Flugzeitspektrometer

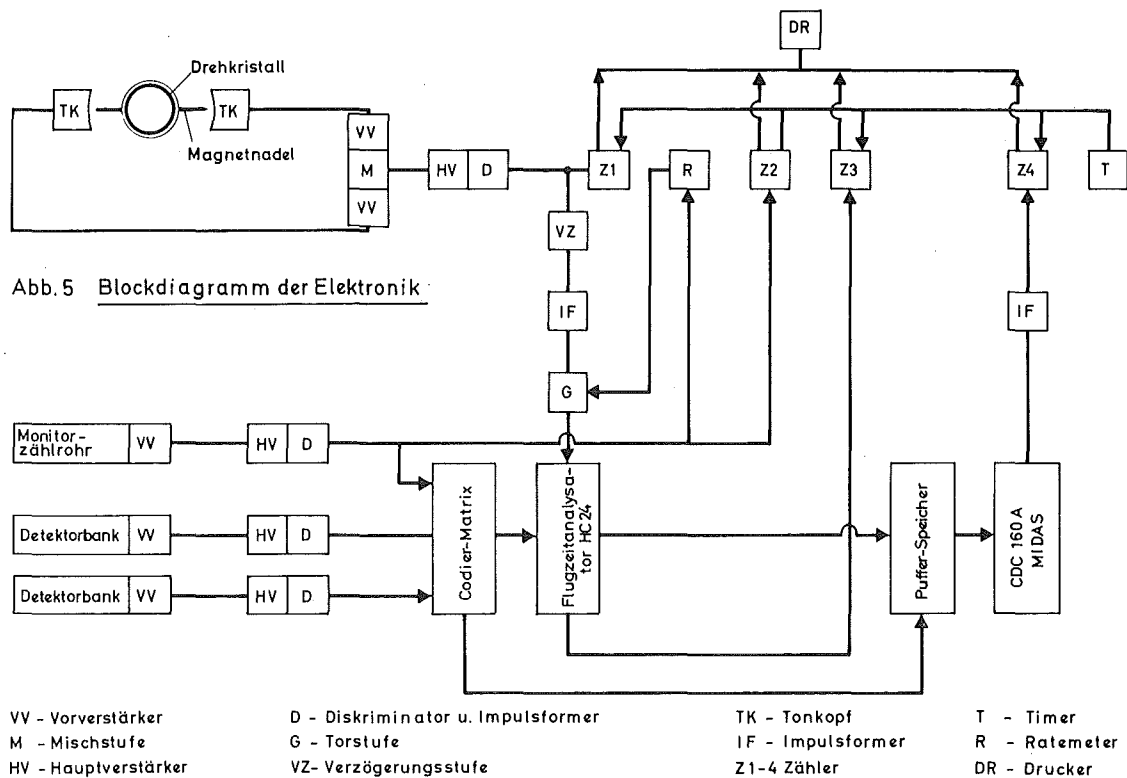
Abbildung 4 zeigt das Spektrometer mit nur teilweise Aufbau der 40 cm breiten Abschirmung aus Bor-Paraffin-Steinen.

Die Flugstrecke beträgt bei dieser Anordnung 208 cm. Als Neutronendetektoren wurden  $\text{He}^3$ -Zählrohre mit einem Durchmesser von 1 inch und einer Länge von 6 bzw. 12 inch verwendet. Der Druck in den Zählrohren betrug 2 bzw. 4 at. Maximal 5 Zählrohre wurden in eine Bank zusammengefaßt. Es standen 11 Zählrohrbänke zur Verfügung.

Die Rückseite der Zählrohrbänke ist mit Cadmiumblech verkleidet, um Rückstreuung der Neutronen am abschirmenden Bor-Paraffin zu verhindern. Zu dem gleichen Zweck ist der gesamte Innenraum der Spektrometer mit Cd ausgekleidet. Die einzelnen Flugstrecken sind durch senkrechte Cd-Wände getrennt, die zur Unterdrückung des Untergrundes dienen.

### 3.4 Elektronik

Das Blockdiagramm der elektronischen Datenerfassung ist in Abb. 5 dargestellt. Der Beginn des Meßzyklus wird durch den an einem der beiden Tonköpfe TK abgegriffenen Triggerimpuls eingeleitet, der den Flugzeitanalysator startet. Löst ein Neutron in dem einzelnen Zählrohr einer Detektorbank einen Impuls aus, so wird dieser vorverstärkt und über eine Mischstufe zu dem für alle Zählrohre einer Bank gemeinsamen Hauptverstärker mit Diskriminator weitergeleitet. Von dort gelangt er in die Codier-Matrix, in der er entsprechend seiner Detektornummer codiert wird.



Die Ankunftszeit des Impulses in der Flugzeiteinheit legt die Flugzeit des Neutrons relativ zum Startimpuls fest. Für jedes registrierte Neutron wird ein Datenwort, das die Detektornummer, die Flugzeit und die Experimentnummer enthält, zwischengespeichert und dann von der zentralen Datenverarbeitungsanlage Midas /14/ abgerufen. Dort werden die Ereignisse, nach Detektornummer und Kanalnummer der Flugzeit

geordnet, in einen Plattenspeicher aufsummiert. Die Ergebnisse können auf ein Sichtgerät, Magnetband oder Lochstreifen ausgegeben werden.

### 3.5 Streuprobe und Probenofen mit Temperaturregelung

Da das Kupfer bei sehr hohen Temperaturen und im geschmolzenen Zustand - Schmelzpunkt  $1083^{\circ}\text{C}$  - untersucht werden sollte, war es notwendig, die zu untersuchende Probe in einer geschlossenen Kuvette mit Hilfe eines Vakuum-Probenofens ( $10^{-5}$  Torr) auf die gewünschte Temperatur zu bringen. Um die Untergrundstreuung klein zu halten, müssen die Wände der Kuvette und die Strukturmaterialien des Ofens im Bereich der durchfallenden Strahlung so dünn wie möglich sein.

Als Kuvettenmaterial wurde Tantal - Schmelzpunkt  $2850^{\circ}\text{C}$  - gewählt. Tantal ist wegen seiner Korrosionsbeständigkeit gegen flüssige Metalle bekannt und in Vorversuchen zeigte es sich, daß Tantalküvetten mit dünnen Wandungen (0,3 mm) geeignet sind, geschmolzenes Kupfer über viele Tage aufzubewahren. Tantal hat als rein kohärenter Streuer den Vorteil, daß in den meisten Streurichtungen keine elastische Streuung vorhanden ist. Nur die beiden Detektorbänke unter  $116,9^{\circ}$  und  $121,4^{\circ}$  werden im elastischen Bereich durch die Braggstreuung des Tantals an den (011)-Ebenen gestört.

Die Kuvette hatte die Form einer flachen rechteckigen Platte von 70 mm Höhe und 40 mm Breite. Die Probendicke betrug 2 mm (Transmission 83 %) und die Wandstärke der Fenster 0,3 mm. Das Kupfer wurde in die halbfertigen Küvetten gebracht. Diese wurden dann im Hochvakuum mit Elektronenstrahlen verschweißt. Die Probe wurde durch ein dünnes Tantalrohr im Zentrum des Ofens gehalten. Bei der Messung unter den kleinen Winkeln war die Probe um  $135^{\circ}$  und bei der Messung unter den großen Winkeln um  $45^{\circ}$  gegen die Einfallrichtung geneigt.

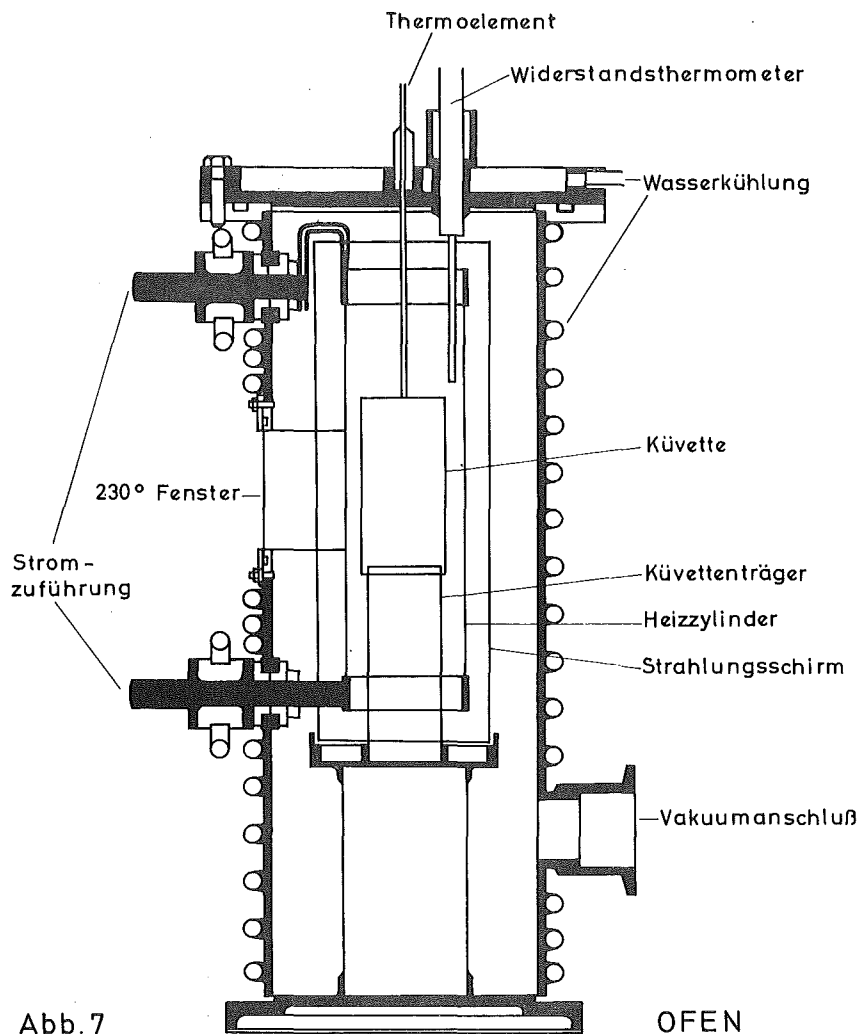
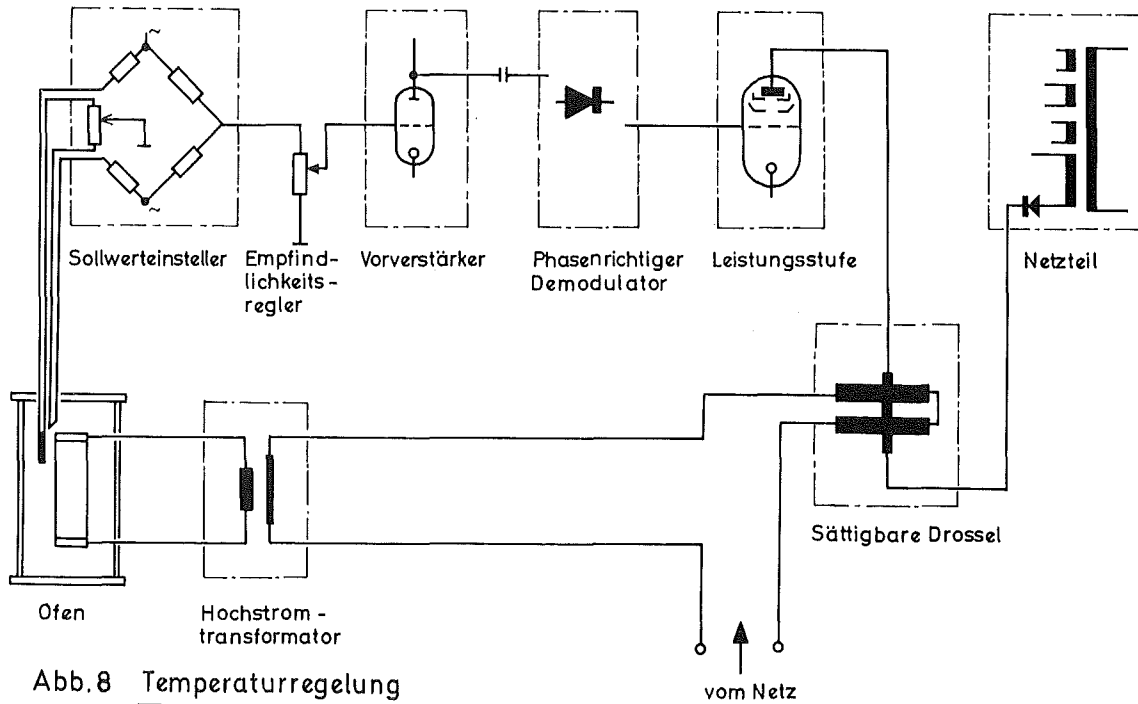


Abb.7

OFEN

Abb. 7 zeigt einen Querschnitt des Probeofens. Die Grundform des verwendeten Ofens ist in /15/ beschrieben. Hier seien nur einige Verbesserungen erwähnt. Alle im Strahlengang sich befindenden Strukturen - der die Probe zylinderförmig umschließende Heizer, der den Heizer wieder zylinderförmig umhüllende Strahlenschirm und das Fenster des Strahlenschirms - wurden aus Tantal hergestellt. Für alle Teile wurde eine Wandstärke von 0,1 mm gewählt. Um parasitäre Streuung an den Innenkanten des Fensterrahmens zu vermeiden, wurde die gesamte Innenfläche der zylinderförmigen Außenwand des Ofens elektrolytisch cadmiert.

Zur Temperaturregelung (Abb. 8) wurde ein Proportionalregler benutzt. Dieser besitzt als Fühler ein Platin-Widerstandsthermometer, das im Ofen innerhalb des Heizzylinders angeordnet war. Die Regelung zeigte hohe Ansprechempfindlichkeit bei großer Langzeitkonstanz ( $\Delta t < 1^\circ\text{C}$ ). Die Temperatur der Küvette wurde mit einem Nickel-Chromnickel Thermoelement gemessen.



### 3.6 Auswertung der Flugzeitspektren

Zu jeder Messung an einer Streuprobe wurde eine zweite unter gleichen Bedingungen an einer identischen Leerküvette zur Bestimmung des Untergrundes durchgeführt. Die gemessenen Flugzeitspektren wurden auf Lochstreifen ausgegeben und auf der IBM 7074 ausgewertet.

Aus den Kanalinhalt  $P_{ji}$  und  $L_{ji}$  der Proben- und der Leermessung unter dem Streuwinkel  $\theta_j$  wird der doppeltdifferentielle Streuquerschnitt wie folgt gewonnen:

$$\left( \frac{\Delta^2 \sigma}{\Delta \Omega \Delta \tau} \right)_{ji} = \frac{(P_{ji} - PW_j) - Z(L_{ji} - LW_j)}{D \cdot N \cdot M \cdot NPM \cdot \epsilon_{ji} \cdot \Delta \Omega_j \cdot \Delta \tau} \quad (26)$$

Hierbei bedeuten:

- j = Laufindex für die Detektorbank
- i = Laufindex für die Kanalnummer
- $PW_j$  = weißer nicht zeitkorrelierter Untergrund bei der Probenmessung für die j-te Detektorbank
- $LW_j$  = weißer Untergrund der Leermessung für die j-te Detektorbank
- Z = Verhältnis der Anzahl der Monitorimpulse während der Proben- und Leermessung
- D = Schichtdicke der Streuprobe [cm]
- N = Anzahl der Kerne pro  $cm^3$  Streusubstanz
- M = Anzahl der Monitorimpulse während der Probenmessung
- NPM = Anzahl der Neutronen, die pro Monitorimpuls auf die Probenfläche treffen
- $\epsilon_{ji}$  = flugzeitabhängige Empfindlichkeit der j-ten Detektorbank pro Raumwinkeleinheit
- $\Delta\Omega_j$  = Raumwinkel, der durch die Fläche der j-ten Detektorbank bestimmt ist
- $\Delta\tau$  = Zeitauflösung eines Flugzeitkanals = 16  $\mu\text{sec/m}$ .

Die Anzahl NPM der pro Monitorimpuls auf die Probe fallenden Neutronen wurde durch Aufnahme einer Flußkarte am Ort der Streuprobe bestimmt. Hierzu wurde die Intensitätsverteilung der auffallenden Neutronen relativ zur Zählrate des in 3.2 beschriebenen Monitors mit Hilfe eines  $\text{BF}_3$ -Zählrohrs (Reuter-Stokes, RSN 137 A), dessen Empfindlichkeit genau berechnet werden konnte, ausgemessen. Dieses Verfahren sowie die im folgenden angedeutete Vanadiummessung ist an anderer Stelle /16, 17/ ausführlich beschrieben.

Die Flugzeitabhängigkeit der Empfindlichkeit  $\epsilon_{ji}$  der Detektorbänke wurde durch die Formel

$$\epsilon_{ji} = A_j (1 - e^{-B_j \tau}) \quad (27)$$

dargestellt. Der Faktor  $A_j$  berücksichtigt die von dem experimentellen Aufbau abhängige Einflüsse, wie Luftstreuung und eventuell unterschiedliche Höhe der Diskriminator-schwellen. Die Größe  $B_j$ , die durch den  $\text{He}^3$ -Gehalt im Zählrohr bestimmt ist, wurde durch Transmissionsmessungen mit monoenergetischen Neutronen ermittelt. Der Einfluß der Zählrohrhülle wurde dabei berücksichtigt. Die Größe  $A_j$  wird aus einem Streuexperiment an einer in der Form mit der Streuprobe identischen Vanadiumplatte bestimmt. Da Vanadium ein praktisch rein inkohärenter Streuer ist, kann die Winkelabhängigkeit der elastischen Linie gut durch den Debye-Waller-Faktor beschrieben werden. Da weiter der Streuquerschnitt von Vanadium gut bekannt ist und man die Anzahl der auf die Vanadiumprobe fallenden Neutronen kennt, kann die Anzahl der in dem Raumwinkelbereich der einzelnen Detektorbank fallenden Neutronen berechnet werden. Der Vergleich dieser Werte mit der elastischen Streuung der Vanadiummessung ergibt die Faktoren  $A_j$ .

Die Vanadiummessung gibt ferner die Möglichkeit, die Auflösungsfunktion des Drehkristall-Flugzeitspektrometers, die in guter Näherung durch eine Gaußfunktion dargestellt werden kann, zu bestimmen. Die Breite der Neutronenimpulse an der Detektorposition unter kleinen Streuwinkeln betrug  $48 \mu\text{sec}$  und nahm bei den großen Streuwinkeln auf  $56 \mu\text{sec}$  zu. Die Theorie zur Auflösung des Flugzeitspektrometers ist in /18/ ausführlich behandelt.

Der Zusammenhang zwischen dem im Spektrometer gemessenen doppelt differentiellen Streuquerschnitt pro Flugzeitintervall  $d^2\sigma/d\Omega dt$  und dem symmetrischen Streugesetz wird durch folgende Beziehung wiedergegeben:

$$S(Q, \omega) = \frac{4\pi}{\sigma_b} \frac{\hbar}{m} \frac{\tau^4}{\tau_0} e^{\hbar\omega/2K_B T} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dt} \quad (28)$$



Die zu den einzelnen Kanälen gehörenden Energie- und Impulsüberträge ergeben sich aus den Flugzeitwerten  $\tau$  und der Flugzeit der einfallenden Energie  $\tau_0 = 1028 \mu\text{sec}/m$ :

$$\hbar\omega = \frac{m}{2}(\tau^2 - \tau_0^2) \quad (29)$$

$$\hbar Q = m[\tau^2 + \tau_0^2 - 2(\tau\tau_0)^{-1} \cos \theta]^{1/2}$$

#### 4. Meßergebnisse und Diskussion

Nach dem im vorigen Abschnitt beschriebenen Verfahren wurde bei einer Einfallenergie von 4.98 meV für 18 verschiedene Streuwinkel zwischen  $6^\circ$  und  $145^\circ$  die Streuung am polykristallinen Kupfer dicht unter dem Schmelzpunkt und am flüssigen Kupfer dicht über dem Schmelzpunkt gemessen. Die Temperatur der Probe betrug hierbei  $1323 \pm 1^\circ\text{K}$  bzw.  $1363^\circ\text{K}$ . Für flüssiges Kupfer wurden zusätzliche Messungen bei Einfallenergien von 13.2 und 52.8 meV unter 9 verschiedenen Streuwinkeln durchgeführt. Für die aus den aufgenommenen Flugzeitspektren nach Abschnitt 3 berechneten doppelt-differentiellen Streuquerschnitte sind in Abb. 9 Beispiele unter 3 Streuwinkeln dargestellt.

Aus einem qualitativen Vergleich der differentiellen Wirkungsquerschnitte für das polykristalline und flüssige Kupfer ergeben sich folgende Schlüsse:

Die größte Ähnlichkeit haben die Spektren im inelastischen Bereich der Streuung unter kleinen Winkeln. Wesentliche Beiträge zum Spektrum treten in diesem Fall nur bei größeren Energieüberträgen auf, die im Festkörper der Abregung von Phononen verhältnismäßig hoher Frequenz entsprechen. Es handelt sich, wie wir später durch Vergleich mit der longitudinalen und transversalen Frequenzverteilung sehen werden, im wesentlichen um longitudinale Phononen. Unter

DOPPELT DIFFERENTIELLER STREUQUERSCHNITT PRO FLUGZEITINTERVALL  
[  $10^{-4}$  barn/sterad $\cdot\mu\text{s}/\text{m}$  ]

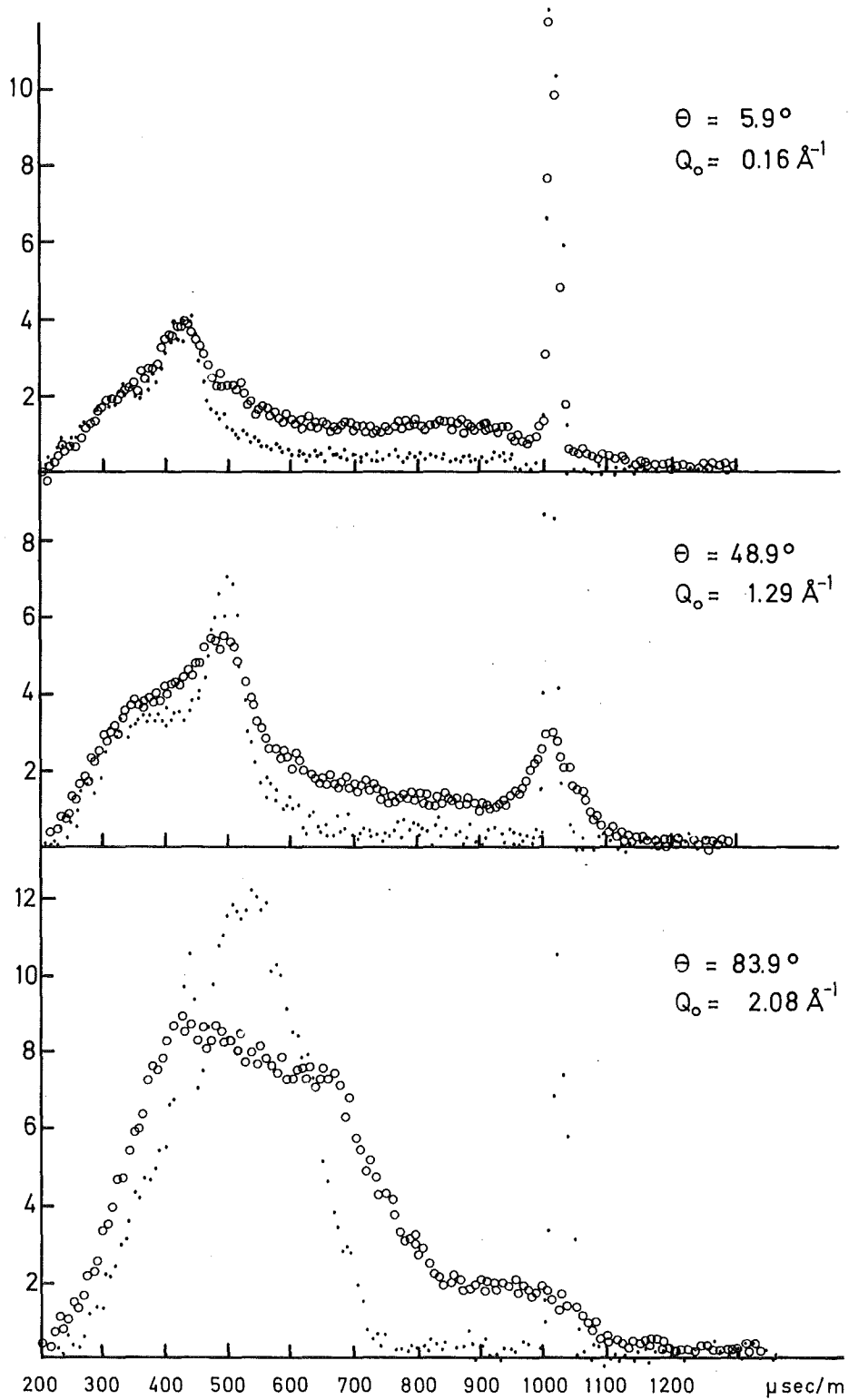


Abb. 9 Beispiele für die gemessene Streuung am polykristallinen (.....) und am flüssigen Kupfer (oooo) in drei verschiedenen Streurichtungen. Einfallensenergie der Neutronen 4.98 meV

größeren Winkeln ergibt sich auch ein starker Streubeitrag für kleinere Energieänderungen, die Phononen geringerer Frequenz zuzuordnen sind. Im Bereich kleiner Energieüberträge ist der Streuquerschnitt für die Flüssigkeit deutlich größer als im Festkörper. Aus dem Vergleich der longitudinalen und transversalen Frequenzverteilungen im Festkörper sieht man, daß für kleine Frequenzen der Anteil der transversalen Phononen überwiegt.

Im Bereich der einfallenden Energie erhalten wir im Polykristall für alle Streuwinkel infolge der im Cu vorhandenen geringen inkohärenten Streuamplitude /29/ eine elastische Linie. In der Flüssigkeit wird diese durch die um viele Größenordnungen höhere Diffusion zu einer quasielastischen Linie verbreitert. Die Halbwertsbreite dieser quasielastischen Linie nimmt mit zunehmendem Streuwinkel, d.h. mit zunehmenden Impulsübertrag stark zu. Kommt der Impulsübertrag in den Bereich des Maximum des Struktur factors ( $3 \text{ \AA}^{-1}$  beim Cu), so wird die quasielastische Linie im wesentlichen durch kohärente Streuung hervorgerufen und die Halbwertsbreite nimmt bei stark wachsender Intensität wieder ab.

Um die beim Übergang zur Flüssigkeit auftretenden Änderungen besser verstehen zu können, wollen wir uns im folgenden zunächst mit der inelastischen Streuung im Polykristall näher befassen.

#### 4.1 Inelastische Streuung am polykristallinen Kupfer

Im Abschnitt 2.2 hatten wir gesehen, daß die Streuung am Kristall als Summe von Prozessen dargestellt werden kann, die mit der Emission oder Absorption einer bestimmten Anzahl von Phononen verknüpft ist. Je größer hierbei die Zahl der Phononen ist, umso unempfindlicher wird der entsprechende Anteil im Wirkungsquerschnitt für die Einzelheiten des dynamischen Verhaltens des Kristalls sein. Um direkte Informationen über die Bewegung der Teilchen des streuenden

Systems zu erhalten, wird man daher versuchen, vor allem die Einphononprozesse näher zu untersuchen.

Der relativ glatte Verlauf des Mehrphononenquerschnittes erlaubt es auf der anderen Seite aber auch, den Anteil der Multiphononenstreuung näherungsweise durch einfachere Modelle zu beschreiben. So hat Larsson /19/ am Beispiel des rein kohärent streuenden Aluminiums gezeigt, daß man die Multiphononenstreuung im polykristallinen und flüssigen Zustand gut in der inkohärenten Näherung darstellen kann.

Bei der benutzten niedrigen Einfallenergie wird der Hauptbeitrag zur inelastischen Streuung bei nicht zu großen Impulsüberträgen von Einphononenprozessen (Absorption eines Phonons) geliefert. Wir werden daher bei der Beschreibung des Einphononenterms des fast ausschließlich kohärent streuenden Kupfers ( $\sigma_K = 7,2$  b;  $\sigma_I = 0,4$  b) den Ausdruck für die kohärente Streuung (16) benutzen, während wir für den Multiphononenterm eine von Egelstaff /20/ angegebene Entwicklung für die inkohärente Streuung vom 2. Term ab verwenden.

#### 4.1.1 Kohärente Einphononenstreuung

Das kohärente Verhalten des Einphononen-Wirkungsquerschnittes (16) wird durch die Kohärenzfaktoren (17) beschrieben. Sie bewirken, daß kohärente Einphononenstreuung nur für solche Energie- und Impulsüberträge möglich ist, die der Bedingung (18) genügen. Die Beschränkung, die sich hieraus für die verschiedenen Streurichtungen ergibt, ist aus Abb. 10 zu ersehen. Dort stellen die glatt ausgezogenen Kurven den Zusammenhang zwischen dem Energieübertrag  $\hbar\omega$  und dem Impulsübertrag  $\hbar Q$  für die verschiedenen Streurichtungen dar. Die punktierte Kurve ist die mittlere Dispersionskurve, die den Zusammenhang zwischen dem Wellenzahlvektor  $q$  und der Frequenz  $\omega$  für den hier als Beispiel gewählten longitudinalen Ast gibt. Sie ist an dem  $Q$ -Wert

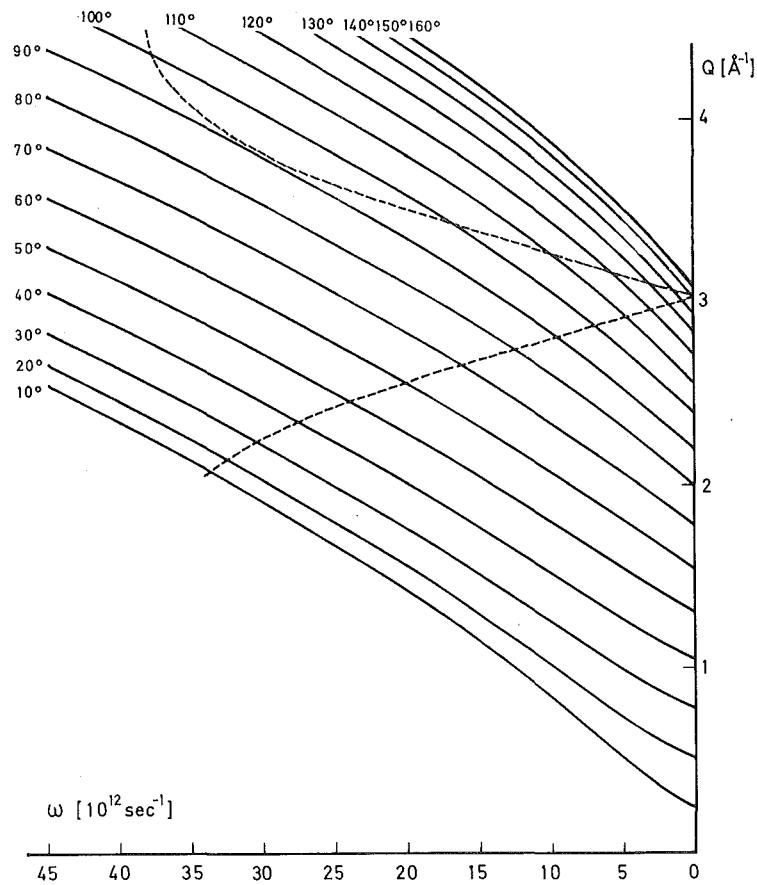


Abb.10 Einsetzen der kohärenten Streuung mit zunehmendem Energie- und Impulsübertrag am Schnittpunkt der Dispersionskurve (—) mit den  $(\omega, Q)$ -Linien (----) für die verschiedenen Streurichtungen. Einfallenergie 4.98 meV

angetragen, der dem Betrag  $2\pi\tau$  des kleinsten reziproken Gittervektors entspricht. Für alle  $Q, \omega$  -Punkte, die unterhalb der Dispersionskurve liegen, ist der Faktor  $Z = 0$ . Mit steigendem Energieübertrag wird der Kohärenzfaktor dann ungleich Null werden, wenn  $Q+q = 2\pi\tau$  ist. Er bleibt dies, solange nicht die Grenze  $Q-q = 2\pi\tau$  erreicht ist. Man erkennt anhand der Abb. 10 auch, daß die Streuung bei umso kleineren Energieüberträgen einsetzt, je größer der Streuwinkel ist, da dann zu gleichem  $\omega$  ein größeres  $Q$  gehört und damit nur noch ein kleineres  $q$  erforderlich ist, um die Bedingung  $Q+q = 2\pi\tau$  zu erfüllen. (Siehe auch Abb. 1b).

Zu jedem reziproken Gittervektor gehört ein analoger Bereich, in dem der Faktor  $Z$  ungleich Null ist. Es ist jedoch zu beachten, daß der Wirkungsquerschnitt durch die Frequenzverteilung  $f(\omega)$  und die thermische Besetzung  $(n + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2})/\omega$  auf einen bestimmten  $\omega$ -Bereich beschränkt ist und dort entsprechend gewichtet ist.

Die Polarisationsfaktoren  $P_L = \cos^2(Q, q)$  und  $P_T = 1/2 \sin^2(Q, q)$  in den Kohärenzfaktoren  $Z_L$  und  $Z_T$  führen zu einer unterschiedlichen  $Q$ -Abhängigkeit für den longitudinalen und transversalen Beitrag zum Wirkungsquerschnitt. Die beiden Polarisationsfaktoren sind schematisch in Abb. 11 dargestellt. Die longitudinale Komponente hat ihre Maxima an den Enden des Streubereiches bei  $Q = 2\pi\tau - q$  und  $Q = 2\pi\tau + q$ . Für  $Q^2 + q^2 = (2\pi\tau)^2$  ist  $P_L = 0$ . Dies führt dazu, daß die longitudinale Komponente im Streugesetz Maxima für  $Q = 2\pi\tau \pm q$  zeigt, wenn auch die Frequenzverteilung und der Besetzungsfaktor für die entsprechenden  $\omega$ -Werte groß sind.

Der transversale Polarisationsfaktor zeigt genau das entgegengesetzte Verhalten. Er verschwindet an den Enden des Streubereiches und hat sein Maximum an der Stelle  $Q^2 + q^2 = (2\pi\tau)^2$ . Da die transversalen Dispersionskurven im allgemeinen zum gleichen  $q$ -Wert einen kleineren  $\omega$ -Wert besitzen als die longitudinalen, wird der transversale Teil der Spektren schon bei kleineren Energieüberträgen zu finden sein.

Das Verhalten des longitudinalen Polarisationsfaktors ermöglicht es, den longitudinalen Anteil einer richtungsgemittelten Dispersionskurve zu bestimmen, wenn die Energie der einfallenden Neutronen und die Streuwinkel so klein sind, daß die Beiträge der einzelnen reziproken Gittervektoren sich gegenseitig nicht stören. Aus der Lage des Peaks erhält man den  $Q$ - und  $\omega$ -Wert. Die Beziehung  $Q = 2\pi\tau \pm q_L$  liefert den zu diesem  $\omega$ -Wert gehörigen  $q$ -Wert.

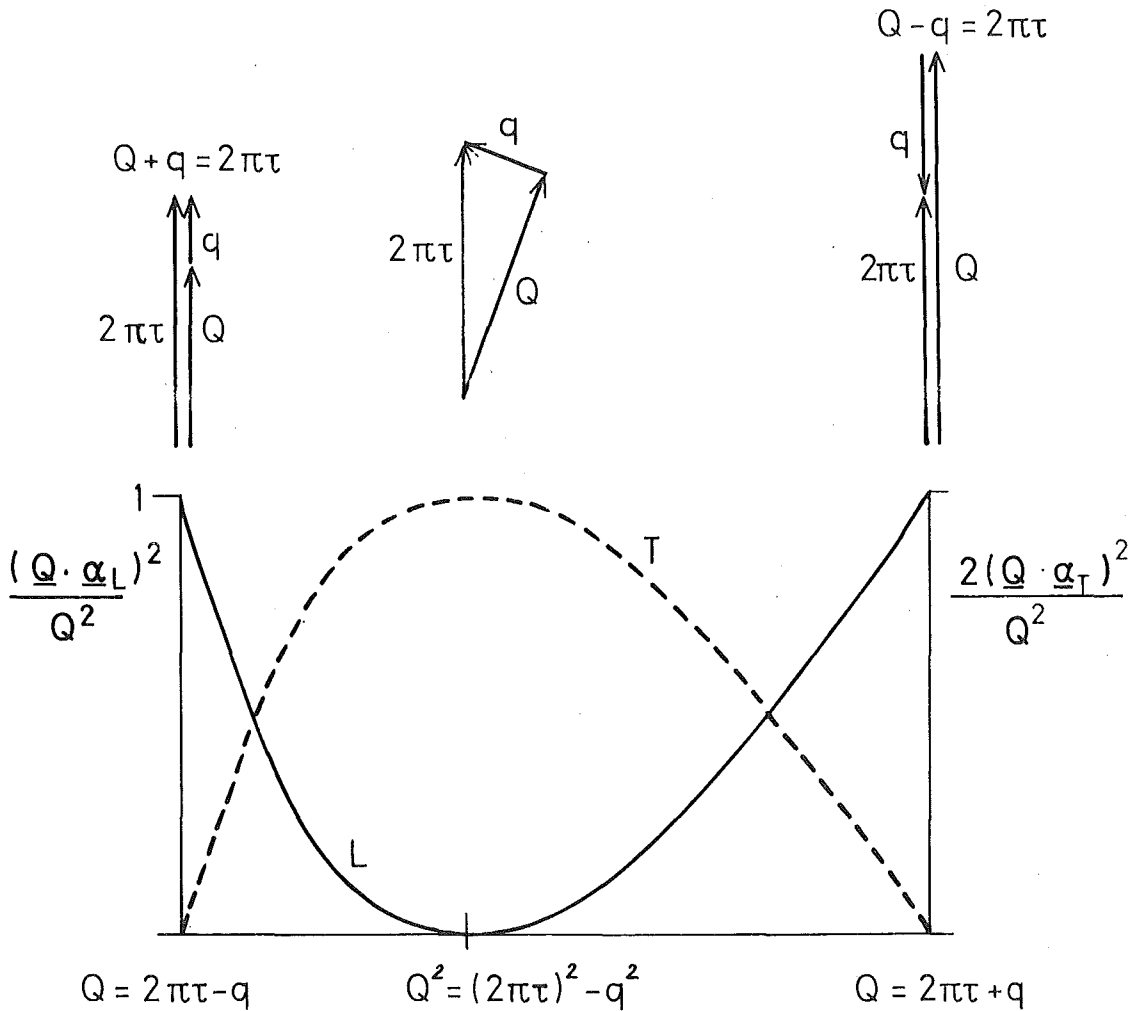


Abb.11 Änderung des Vektordiagramms im Streubereich und die sich daraus ergebenden Polarisationsfaktoren.

#### 4.1.2 Frequenzverteilungen und Dispersionskurven für den Polykristall

Wenn wir die Frequenzverteilungen und die über alle Richtungen gemittelten Dispersionskurven für den longitudinalen und transversalen Anteil des Spektrums kennen, können wir im Prinzip die inelastische Streuung an polykristallinem Material nach (16) berechnen. Wir werden eine solche Rechnung mit experimentellen Ergebnissen vergleichen, um die Güte dieser Näherung zu prüfen. Bei der Diskussion der

inelastischen Streuung am flüssigen Kupfer werden wir dann versuchen, die Frequenzverteilungen und die mittleren Dispersionskurven aus einer analogen Beschreibung als Parameter zu bestimmen, wobei wir bei der iterativen Bestimmung von den Werten des Polykristalls ausgehen.

Die Frequenzverteilungen und die mittleren Dispersionskurven des Polykristalls lassen sich im Prinzip berechnen, wenn möglichst vollständige Dispersionskurven  $\omega(q)$  für die Symmetrierichtungen des Einkristalls bekannt sind und ein geeignetes Interpolationsmodell zur Verfügung steht.

Im Born-von-Kármán-Modell können die zu einem bestimmten Wellenzahlvektor  $q$  gehörigen Frequenzen  $\omega$  mit Hilfe der dynamischen Gleichungen der Gitterschwingungen

$$| A_{ij} - \omega^2 \delta_{ij} | = 0 \quad (29)$$

bestimmt werden. Die Matrix  $A_{ij}$  hängt von den interatomaren Kraftkonstanten ab, die die Wechselwirkung zwischen den einzelnen Gitterbausteinen beschreiben. Die zunächst unbekanntes Kraftkonstanten können z.B. durch einen Fit an die am Einkristall gemessenen Dispersionskurven berechnet werden. Für Cu sind die interatomaren Kraftkonstanten von mehreren Autoren /21, 22, 23/ bestimmt worden. Wir benutzen im folgenden den von Svensson u.a. /24/ bestimmten und mit  $M^4$  bezeichneten Kraftkonstantensatz.

Mit dem Rechenprogramm ROSA /25/ wird die Gleichung (29) für ca. 10 000  $q$ -Werte im irreduziblen Teil der Brillouin-Zone gelöst. Für jeden  $q$ -Wert ergeben sich im Falle des kubisch-flächenzentrierten Cu-Gitters drei  $\omega$ -Werte, die auf eine vorgegebene Frequenzskala einsortiert werden. Die auf diese Weise für die einzelnen Zweige berechneten Frequenzverteilungen und die Gesamtfrequenzverteilung sind in Abb. 12 wiedergegeben. Zum Vergleich sind in dieser Abbildung auch die in den Symmetrierichtungen gemessenen



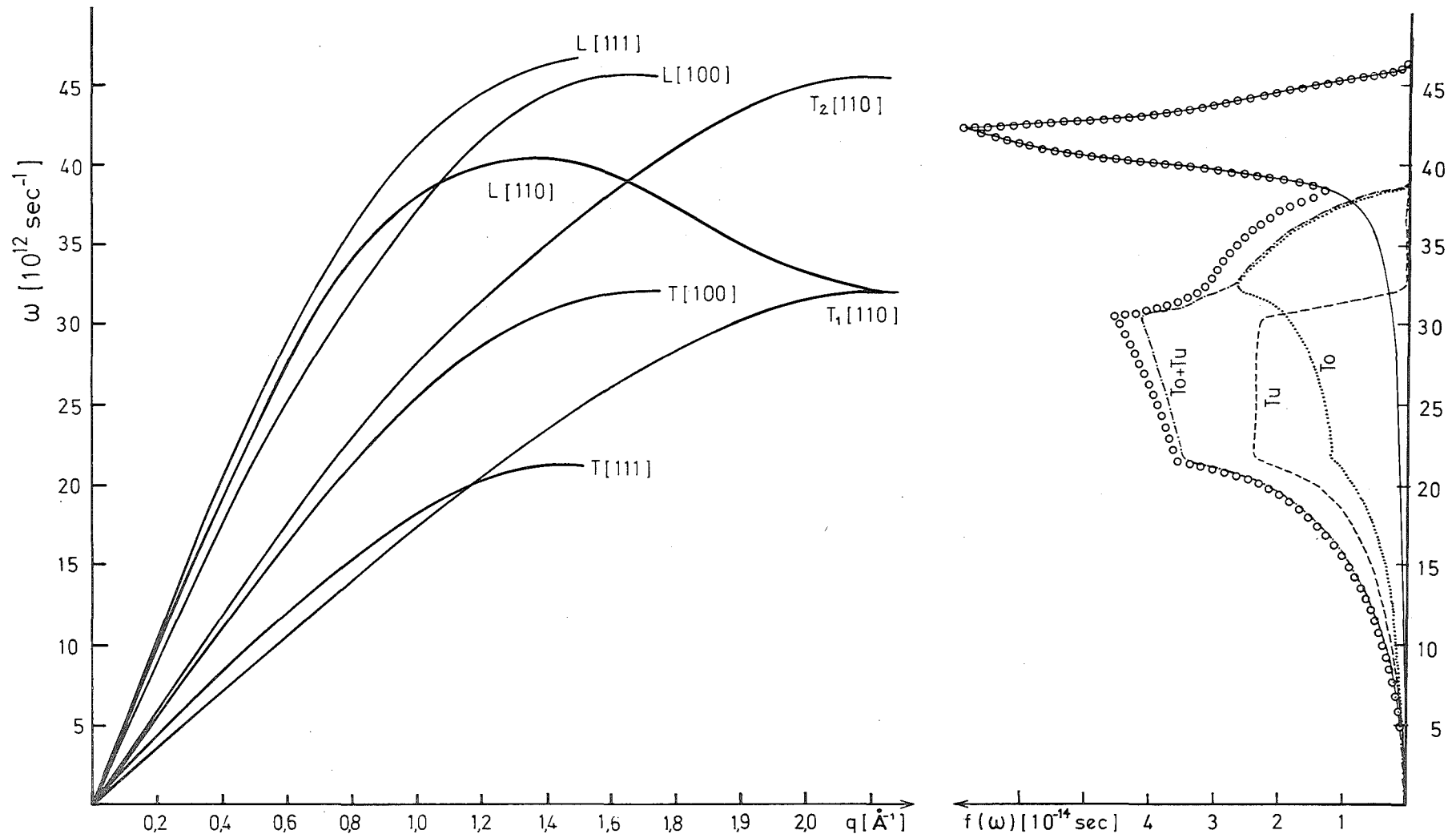


Abb.12 Dispersionskurven für Cu bei Zimmertemperatur nach Svensson und die sich daraus ergebende Frequenzverteilung (oooooo) mit dem longitudinalen (—) und den transversalen Anteilen (...../-----/.....)

Dispersionskurven angegeben, aus denen die benutzten Kraftkonstanten bestimmt wurden.

Mittlere Dispersionskurven wurden auf folgende Weise ermittelt: Für jeweils einen schmalen  $q$ -Bereich ( $q_{\max}/50$ ) wurden die drei  $\omega$ -Werte, die zu den einzelnen  $q$ -Werten dieses Bereiches gehörten, in je drei Frequenzverteilungen zusammengefaßt. Als Beispiel sind die zu dem Bereich um  $q = 1 \text{ \AA}^{-1}$  gehörenden Unterfrequenzverteilungen in der Abbildung 13b dargestellt. Die ausgezogene Kurve stellt das longitudinale, die punktierte und die gestrichelte, die obere und untere transversale Unterfrequenzverteilung dar. Die Summe der 2 transversalen Verteilungen ist durch die strichpunktierte Linie wiedergegeben.

Die  $\omega$ -Werte der Maxima dieser Unterfrequenzverteilungen sind in der Abb. 13a als Kreise über dem zugehörigen  $q$ -Wert aufgetragen und können als mittlere Dispersionskurve interpretiert werden. Der Bereich der zu einem  $q$ -Wert gehörigen  $\omega$ -Werte ist als ausgezogener Strich für den longitudinalen Ast und als punktierte und gestrichelte Linie für den oberen und unteren transversalen Ast dargestellt. Man sieht, daß die  $\omega$ -Bereiche der beiden transversalen Äste sich für die gesamte  $q$ -Skala fast vollkommen überlappen. Es wurde daher auf eine Trennung des transversalen Anteils in zwei Ästen verzichtet. Als  $\omega$ -Wert für die mittlere Dispersionskurve des transversalen Anteils wurde im folgenden der Mittelwert der  $\omega$ -Werte der beiden transversalen Maxima gewählt.

Zum Vergleich sind in Abb. 13a die in den Symmetrierichtungen des Einkristalls gemessenen Dispersionskurven eingezeichnet. Man sieht, daß beim flächenzentrierten Gitter des Kupfers die Dispersionskurven in den Symmetrierichtungen den Bereich der überhaupt möglichen Werte recht gut begrenzen.

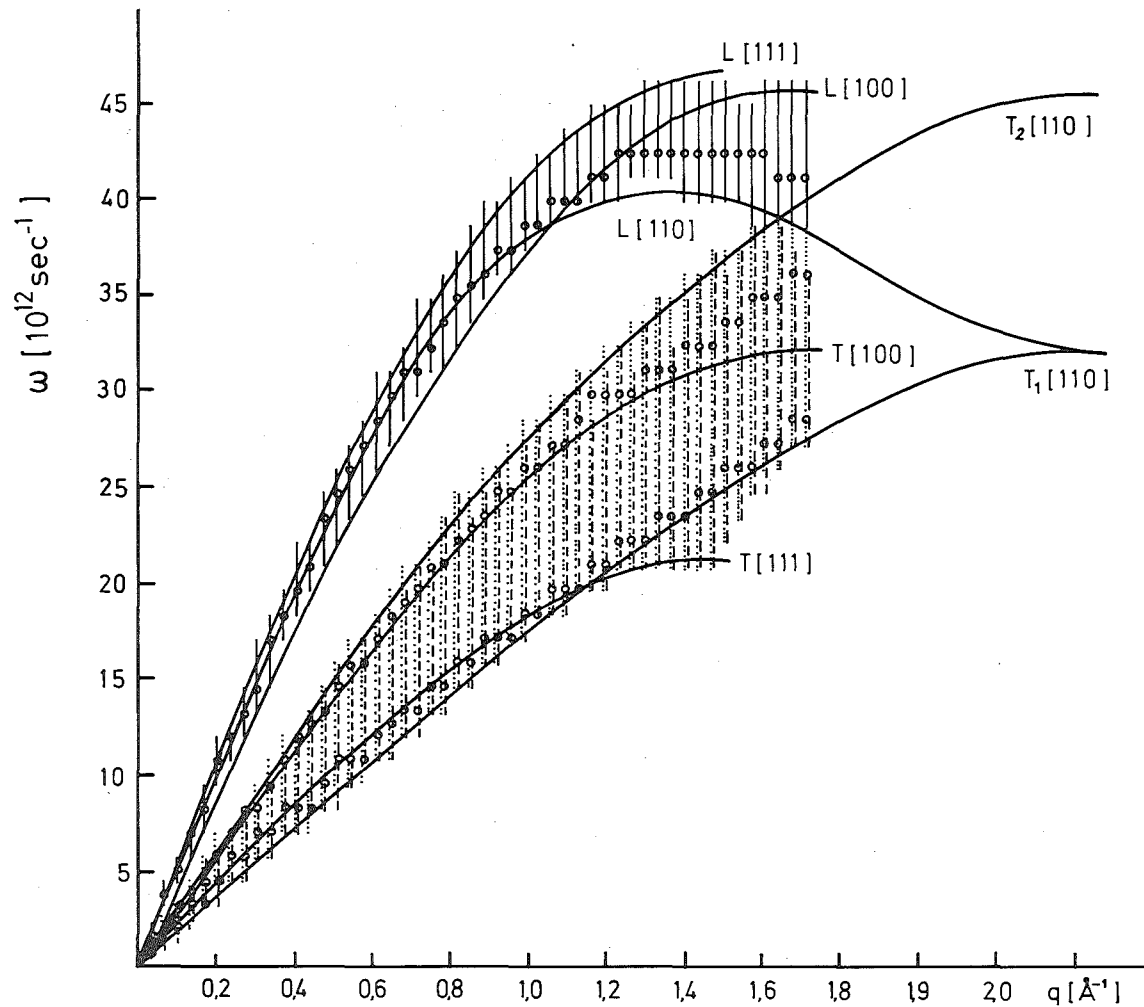
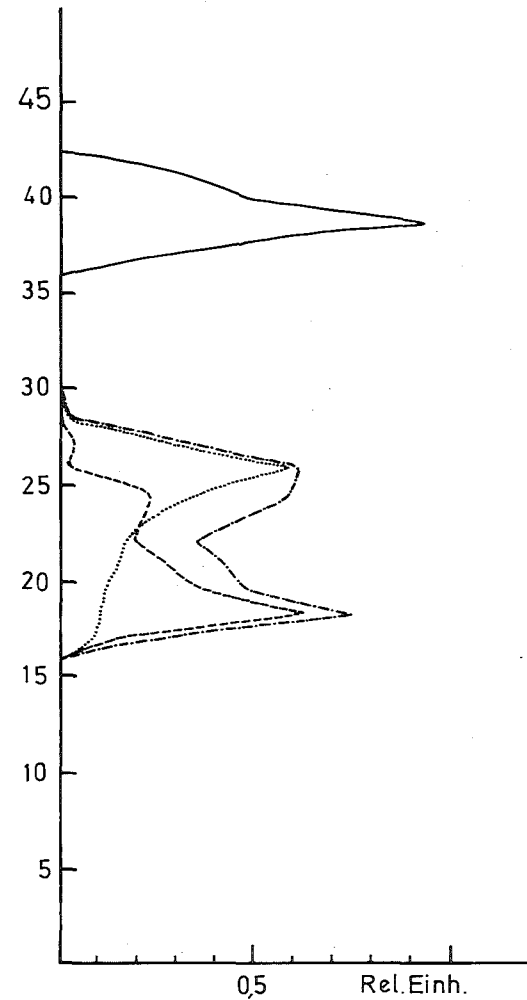


Abb.13a Mittlere Dispersionskurven für Cu bei Zimmertemperatur nach einem modifizierten ROSA - Programm im Vergleich zu den Dispersionskurven nach Svensson. Maxima der zu den einzelnen q gehörenden Frequenzbereiche (ooooo)



13b Beispiel für eine Unterfrequenzverteilung ( $q=1\text{Å}^{-1}$ ) nach denen die mittleren Dispersionskurven angegeben sind.

Die bisher beschriebenen Rechnungen wurden mit Hilfe der bei Zimmertemperatur gemessenen Kraftkonstante durchgeführt. Für Kupfer liegen keine Messungen bei höheren Temperaturen vor. Wir müssen daher die für Zimmertemperatur gewonnenen Frequenzverteilungen und Dispersionskurven auf die Temperatur (1323°K) der Messung am polykristallinen Kupfer extrapolieren.

#### 4.1.3 Grüneisenkonstante für Cu

In der quasiharmonischen Näherung ist die Änderung der Phononenfrequenzen der Volumenänderung proportional. Es gilt die Grüneisenbeziehung:

$$\frac{\Delta\omega}{\omega} = -\gamma \frac{\Delta V}{V} \quad (30)$$

$\gamma$  wird Grüneisenkonstante genannt.

In der Debye'schen Kontinuumsnäherung ist  $\gamma$  eine von der Temperatur unabhängige Konstante. Barron /26/ hat gezeigt, daß bei Benutzung eines Born-von-Kármán-Modells  $\gamma$  allgemein keine Konstante mehr ist, aber für kleine und große Temperaturen noch näherungsweise konstant ist, wobei allerdings die Zahlenwerte sich unterscheiden.

Da die Messungen der vorliegenden Arbeit bei einer Temperatur durchgeführt wurden, die groß gegen die Debye-Temperatur ist, wollen wir versuchen, die Frequenzänderungen beim Übergang von Raumtemperatur auf 1050°C aus der Volumenänderung nach Gleichung (30) zu beschreiben. Die Konstante  $\gamma$  wird dabei als offener Parameter angesehen, der durch Vergleich der longitudinalen Dispersionskurve bei Zimmertemperatur mit den experimentell gefundenen und im folgenden beschriebenen Werten bestimmt werden kann.

Wir haben im Abschnitt 4.1.1 gesehen, daß die kohärente longitudinale Streuung bei steigendem Energieübertrag peakartig

einsetzt, wenn die Summe  $Q + q$  den Wert  $2\pi\tau$  erreicht. Der Peak tritt bei umso größeren  $\omega$ -Werten auf, je kleiner der Streuwinkel ist, d.h. je kleiner  $Q$  ist. Da als weiterer Faktor in den differentiellen Streuquerschnitt die Frequenzverteilung eingeht, die für longitudinale Frequenzen wesentliche Beiträge nur für große  $\omega$ -Werte besitzt, wird man ein deutliches Auftreten dieser Maxima im wesentlichen nur bei den kleineren Streuwinkeln erwarten. Die bei der Streuung am polykristallinen Kupfer gefundene Maxima sind in Abb. 14 dargestellt (schwarze Balken). Zum Vergleich ist die longitudinale Dispersionskurve bei Raumtemperatur wiedergegeben. Paßt man diese Kurve nach Gleichung (30) an die Meßwerte an, so ergibt sich für  $\gamma = 1,7$  die beste Übereinstimmung mit den Meßwerten.

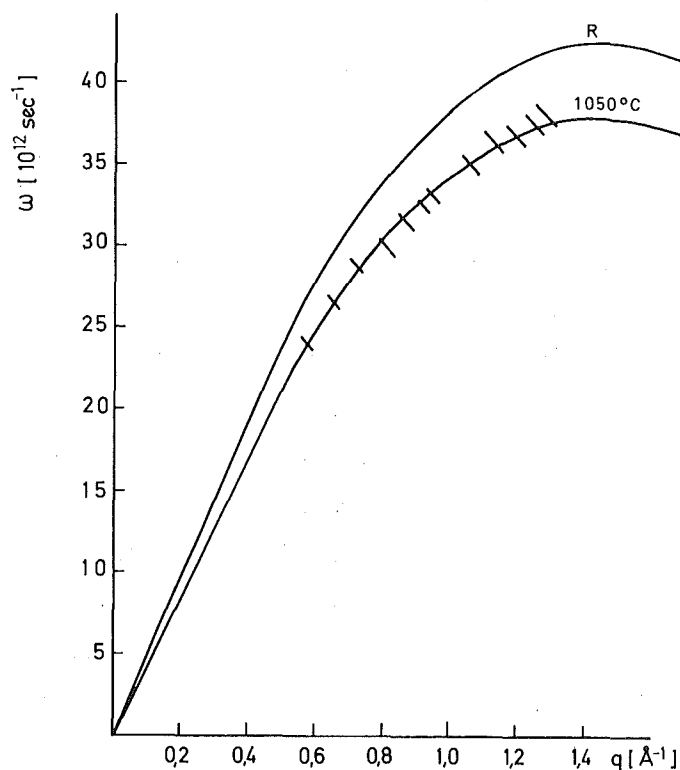


Abb. 14 Die aus der longitudinalen Dispersionskurve bei Raumtemperatur (R) an die Meßwerte bei 1050°C ( $\backslash$ ) nach Gleichung 23 angepaßte Dispersionskurve (1050°C)

Dieser Wert ist etwas kleiner als der sich aus den thermodynamischen Größen nach der Grüneisen-Beziehung

$$\alpha = \frac{\gamma C_v}{3KV}$$

für Kupfer ergebende Zahlenwert  $\gamma = 1.96$ .

In (31) bedeuten

$\alpha$  = linearer Ausdehnungskoeffizient

$C_v$  = spezifische Wärme

$K$  = Kompressionsmodul

$V$  = Volumen

Hierbei ist zu beachten, daß die Grüneisen-Beziehung unter Voraussetzung der Debye-Näherung abgeleitet wurde, die aber im Bereich der uns hauptsächlich interessierenden Frequenzen nicht mehr gut gilt.

#### 4.1.4 Vergleich der Meßwerte mit den Modellrechnungen

In Abb. 15 sind die für Cu von 1323°K gemessenen Werte des Einphononenterms des doppelt-differentiellen Streuquerschnittes für 3 Streurichtungen mit den nach Formel (16) berechneten verglichen. Bei der Rechnung wurden die oben erwähnten extrapolierten Dispersionskurven und die aus ihnen berechneten Frequenzverteilungen benutzt. Die dargestellten Meßwerte wurden für Multiphononen- und Vielfachstreuung korrigiert. Der Multiphononenterm wurde in der Phononenentwicklung /20/ mit Hilfe des Rechenprogramms LEAP /27/ berechnet. Als Eingabe für die Frequenzverteilung wurde die Summe der oben besprochenen longitudinalen und transversalen Anteile benutzt.

Die Vielfachstreuung wurde mit Hilfe des Rechenprogramms VIPER /28/ berechnet. Das für dieses Programm als Eingabe notwendige Streugesetz für einen großen  $(Q, \omega)$ -Bereich  $(0,1 \text{ \AA}^{-1} < Q < 40 \text{ \AA}^{-1}; 0,2 \text{ meV} < \hbar\omega < 500 \text{ meV})$  wurde ebenfalls

DOPPELT DIFFERENTIALER STREUQUERSCHNITT PRO FLUGZEITINTER-  
VALL [  $10^{-4}$  barn/sterad  $\cdot$   $\mu$ s/m ]

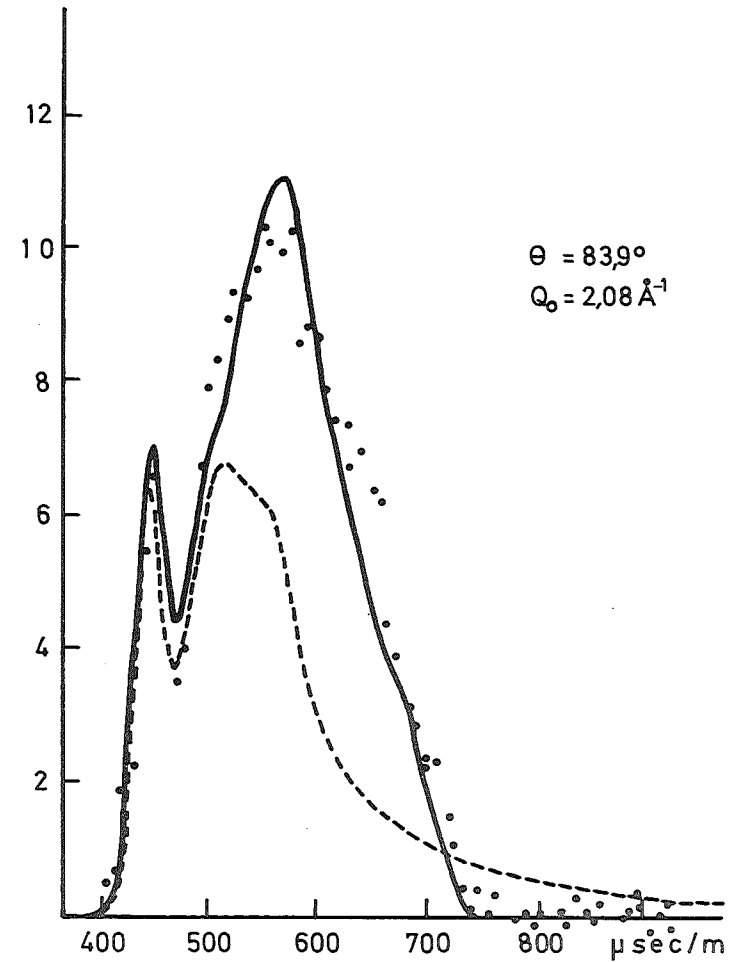
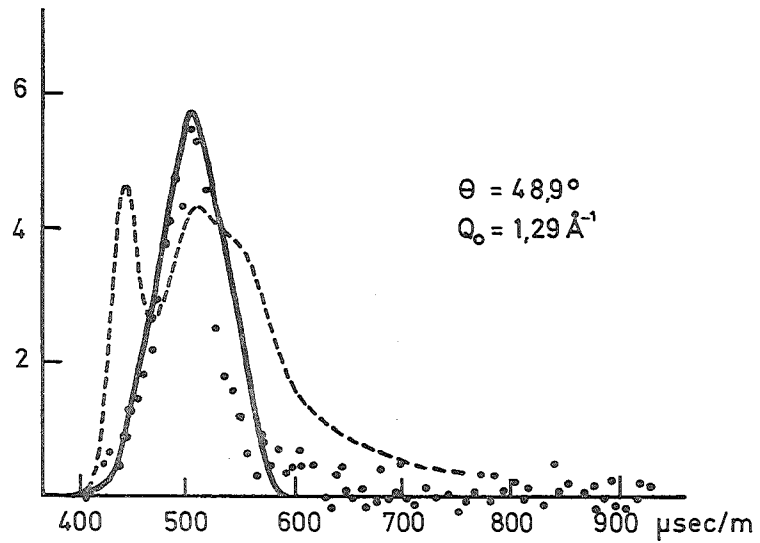
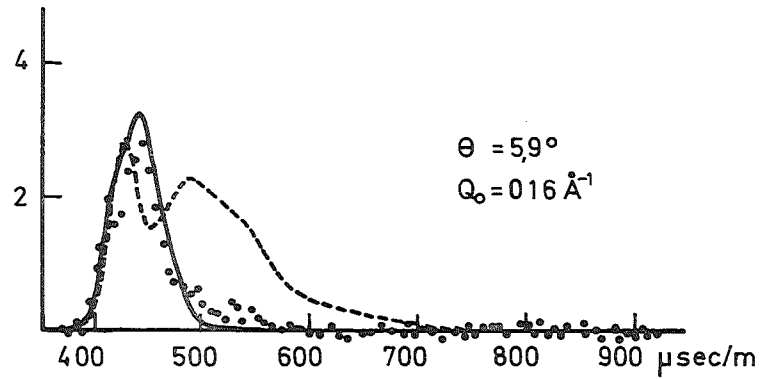


Abb.15 Beispiele des am polykristallinen Kupfer gemessenen Einphononen-Anteils (.....) im Vergleich zu den Rechnungen unter Annahme von kohärenter (—) oder inkohärenter (-----) Streuung in verschiedenen Streurichtungen.

mit LEAP in inkohärenter Näherung berechnet.

Der Ausdruck für den Einphononenanteil des kohärenten Wirkungsquerschnittes ist nach Gleichung (16) das Produkt aus dem inkohärenten Wirkungsquerschnitt und dem Kohärenzfaktor. Zum Vergleich ist deshalb in Abb. 15 der Einphononenquerschnitt in inkohärenter Näherung als gestrichelte Linie dargestellt. Die berechneten Wirkungsquerschnitte wurden mit der aus der Vanadiummessung bestimmten Auflösungsfunktion gefaltet.

Der Vergleich der Meßwerte mit der kohärenten und inkohärenten Rechnung zeigt den großen Einfluß der Kohärenzfaktoren. Bei kleinen Winkeln (kleinere  $Q$ ) führt die Kohärenzbedingung  $Q + q < 2\pi\tau < Q - q$  nur zu merklichen Beiträgen großer Energieüberträge, für große  $Q$  werden dagegen die kleineren Energieüberträge stärker gewichtet. Die sich ergebende Übereinstimmung zwischen der kohärenten Rechnung und den experimentell bestimmten Einphononen-Streuquerschnitten zeigt, daß die für die Anpassung der longitudinalen Dispersionskurve notwendige Frequenzänderung nach (30) auch zu einer brauchbaren Beschreibung der Frequenzverteilung bei den vorliegenden hohen Temperaturen führt. Das Einsetzen der Streuung schon bei kleineren Energieüberträgen im Vergleich zur kohärenten Rechnung findet seine Erklärung in der Tatsache, daß wir für die Rechnung eine mittlere Dispersionskurve mit einem eindeutigen  $q$ -Wert für einen vorgegebenen  $\omega$ -Wert benutzt haben, während in der Wirklichkeit die zu einem  $\omega$ -Wert gehörigen  $q$ -Werte einen gewissen Bereich überstreichen und damit einen etwas anderen effektiven Kohärenzfaktor ergeben.



#### 4.2 Inelastische Streuung am flüssigen Kupfer

Die Bewegungen der Atome eines harmonischen Kristalls können durch die Überlagerung von Normalschwingungen dargestellt werden. Diese kollektiven Anregungszustände bestimmen die kohärente Einphononenstreuung, die wir im vorigen Abschnitt für den Fall des polykristallinen Kupfers diskutiert haben.

Wie sieht es nun mit der Bewegung der Atome einer Flüssigkeit aus? Im Vergleich zum Festkörper findet eine sehr viel stärkere Diffusion (ca. Faktor  $10^5$ ) statt, die wir für makroskopische Zeiten als Einzelteilchenbewegung auffassen können. Die Untersuchung der Diffusion mit Hilfe der Neutronenstreuung hat jedoch gezeigt, daß für mikroskopische Zeiten das Bewegungsverhalten in flüssigen Metallen nicht mehr durch einfache Diffusion erklärt werden kann. Es tritt eine Verzögerung der Diffusion ein, die ihre Ursache darin hat, daß für sehr kurze Zeiten das Atom teilweise an seine Umgebung gebunden ist und an kollektiven Bewegungen teilnehmen kann.

Für den hydrodynamischen Grenzfall großer Wellenlänge oder kleiner Frequenzen wissen wir von der Ausbreitung der Schallwellen, daß niederfrequente kollektive Bewegungen in der flüssigen Phase existieren. Die Ähnlichkeit der inelastischen Neutronenstreuung im polykristallinen und flüssigen Zustand deutet darauf hin, daß die kollektiven Bewegungen in der Flüssigkeit auch im hochfrequenten Bereich auftreten. Durch Vergleich der am flüssigen Kupfer gemessenen inelastischen Streuung mit den im Abschnitt 2.3 besprochenen Modellen werden wir versuchen, Aussagen über das kollektive Verhalten in diesem Frequenzgebiet zu machen.

Bei der kohärenten inelastischen Neutronenstreuung am Festkörper treten bei den der Dispersionsbeziehung entsprechenden  $Q$ - und  $\omega$ -Werten scharf begrenzte Maxima auf. Die Breite dieser Phononenmaxima ist umso größer, je geringer die Lebensdauer des entsprechenden Phonons ist. Da in der

Flüssigkeit etwa vorhandene kollektive Anregungen sich wegen der gestörten Fernordnung nur über einen sehr beschränkten Bereich ausdehnen können und damit von kurzer Lebensdauer sind, werden wir hier nur stark verbreiterte Maxima erwarten können.

#### 4.2.1 Meßergebnisse am flüssigen Kupfer

Bei den Messungen am flüssigen Kupfer wurden die drei Einfallenergien 4.98, 13.2 und 52.8 meV benutzt, um einen möglichst großen  $(Q, \omega)$ -Bereich zu erfassen. In Abb. 16 sind die bei diesen drei Einfallenergien gewonnenen Ergebnisse für das Streugesetz als Funktion des Energieübertrages  $\hbar\omega$  und des Impulsübertrages  $\hbar Q$  zusammenfassend dargestellt. Diese Daten wurden durch Interpolation aus den Flugzeitspektren gewonnen, bei denen sich für eine bestimmte Streurichtung sowohl der Energiebetrag als auch der Impulsübertrag gleichzeitig mit der Flugzeit ändert. Die Meßpunkte wurden durch glatte Verbindungslinien ersetzt, die die kleinste Gesamtabweichung von den entsprechenden Meßpunkten aufwiesen. Der statistische Fehler der Einzelmeßwerte lag zwischen 2 und 10 %. Die dargestellten  $S(Q, \omega)$ -Werte sind für Vielfachstreuung korrigiert. Die Korrektur wurde in Analogie zum Festkörper mit dem Viper-Programm /28/ durchgeführt.

$S(Q, \omega)$  zeigt bei kleinen  $\omega$ -Werten als Funktion von  $Q$  einen Verlauf, der dem des statischen Strukturformfaktors  $S(Q)$  entspricht. Mit wachsenden  $\omega$  wird die Struktur aber schnell verwaschener.

Betrachtet man  $S(Q, \omega)$  als Funktion von  $\omega$  für konstante  $Q$ -Werte, so sieht man, daß die Halbwertsbreiten der in  $\omega$  symmetrischen Kurven ihren kleinsten Wert für  $Q_0$  besitzt.  $Q_0$  entspricht dem  $Q$ -Wert, bei dem der statische Strukturformfaktor

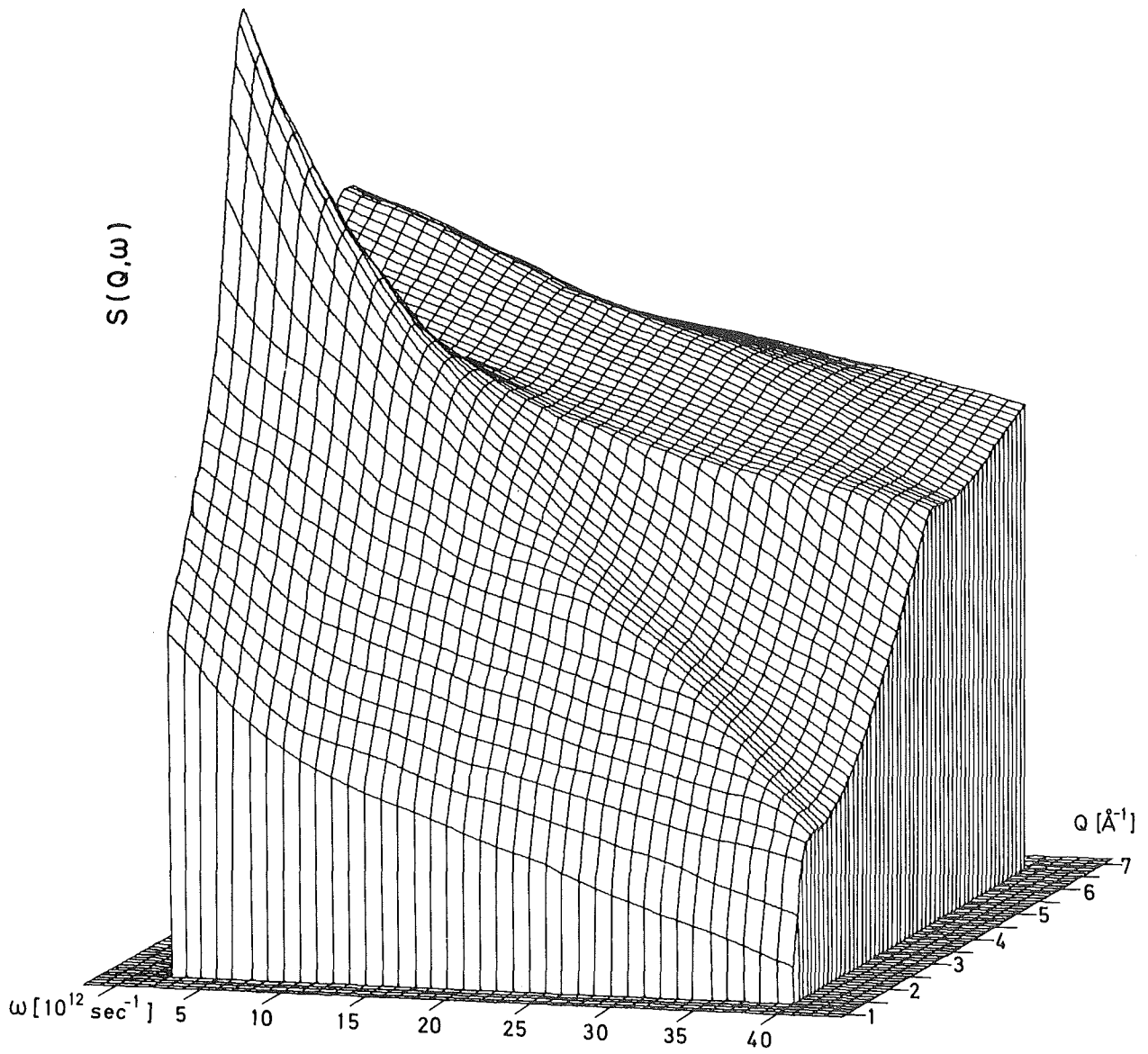


Abb.16 Streugesetz für flüssiges Kupfer bei  $1363^\circ\text{K}$

sein Hauptmaximum aufweist. Dieser als "de Gennes-narrowing" /12/ bezeichnete Verlauf der Halbwertsbreite der quasielastischen Streuung ist in Abb. 17 gesondert dargestellt.

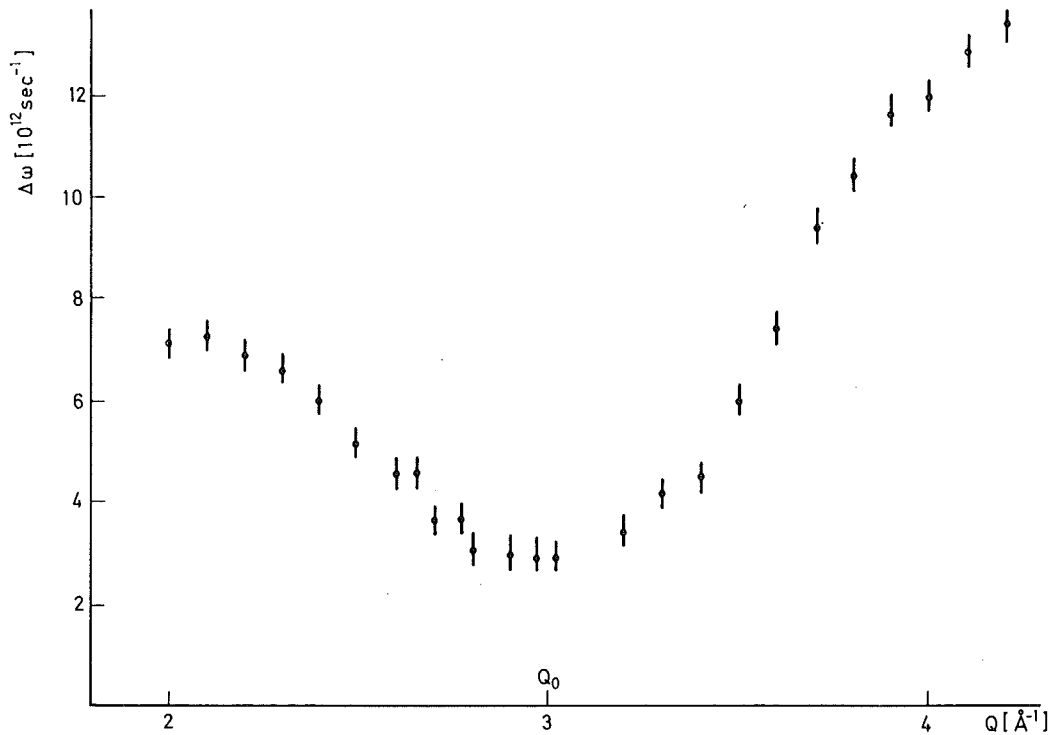


Abb.17 Halbwertsbreite des Streugesetzes  $S(Q, \omega)$  im Bereich des Hauptmaximums des Strukturfaktors.

Für große  $\omega$ -Werte ( $\omega > 20 \cdot 10^{12} \text{sec}^{-1}$ ) verschwindet das Maximum von  $S(Q, \omega)$  an der Stelle  $Q_0$ . Dagegen treten auf beiden Seiten von  $Q_0$  schwache Maxima auf, die sich mit zunehmenden  $\omega$  von  $Q_0$  entfernen. In Schnitten für konstante  $Q$  durch die  $S(Q, \omega)$ -Fläche entsprechen diese Maxima bevorzugten Anregungen bei großen  $\omega$ -Werten. Bei der Streuung am Festkörper würden in diesem Bereich ausgeprägte longitudinale Phononenmaxima auftreten.

In Abb. 18 sind einige Schnitte für konstante  $Q$ -Werte dargestellt. Außerdem sind die mit  $\omega^2$  multiplizierten Werte von  $S(Q, \omega)$  aufgetragen. Die sich in  $\omega^2 S(Q, \omega)$  klar

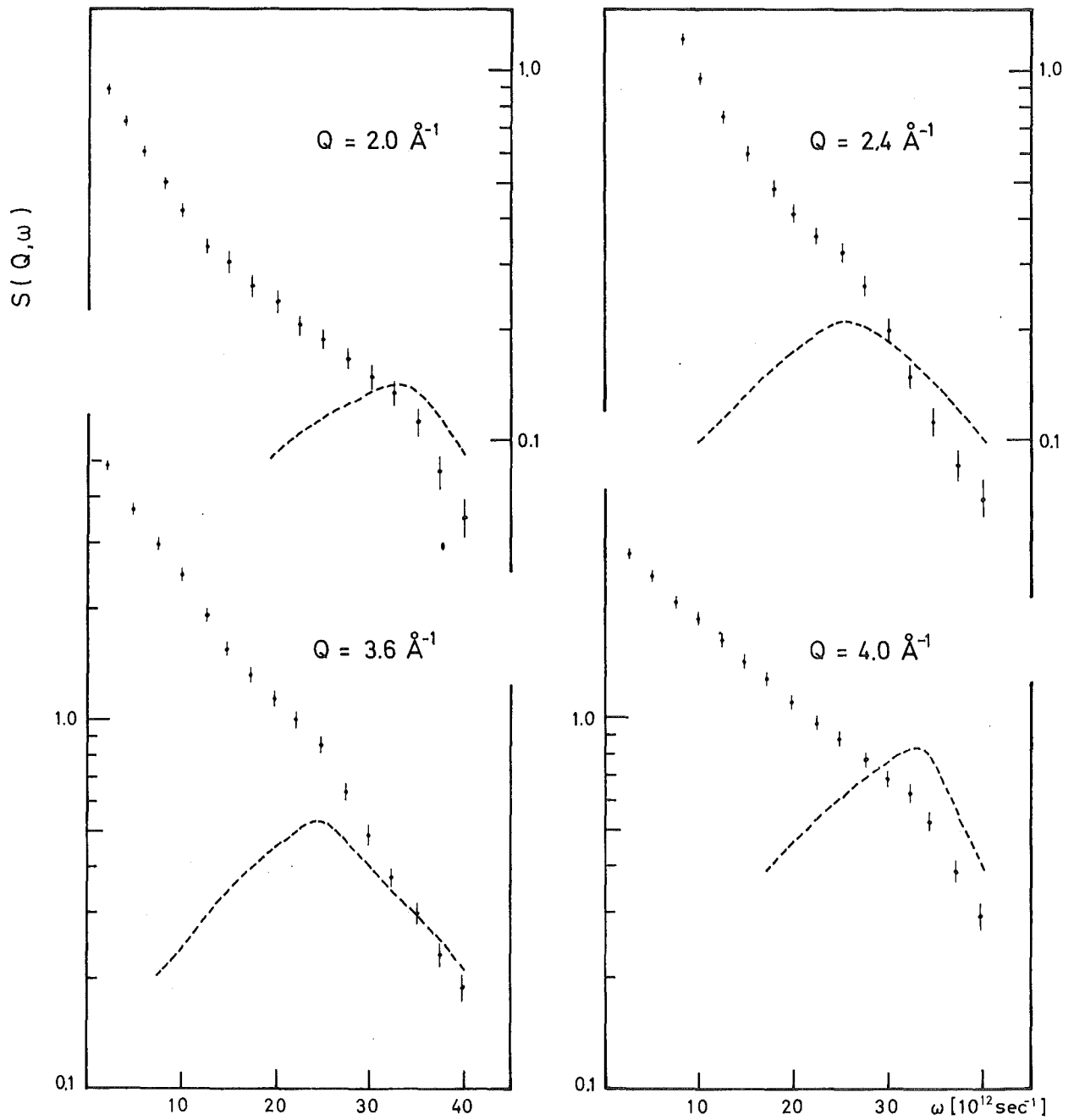


Abb.18 Darstellung von  $\omega^2 S(Q, \omega)$  (-----) im Vergleich zum Streugesetz  $S(Q, \omega)$  (|||||)

ausbildenden Maxima liegen praktisch an den gleichen Stellen, wie die Schultern im Streugesetz  $S(Q, \omega)$ .

$\omega^2 S(Q, \omega)$  ist die Fouriertransformierte der von Zwanzig /30/ zur Beschreibung kollektiver Anregungen in einer Flüssigkeit eingeführte Strom-Strom-Korrelationsfunktion.

#### 4.2.2 Beschreibung der Streuung am flüssigen Kupfer mit dem Egelstaff-Modell

Die Ähnlichkeit der Streuung am flüssigen und polykristallinen Kupfer, insbesondere für große Energieänderungen, läßt den Versuch sinnvoll erscheinen,  $S(Q, \omega)$  für die Flüssigkeit mit dem von Egelstaff vorgeschlagenen Modell zu beschreiben, das wir bereits in Abschnitt 2.3 skizziert haben. In diesem Modell wird apriori angenommen, daß auch in der Flüssigkeit bei hohen Frequenzen longitudinale und transversale phononenartige Anregungen auftreten. Der formale Ausdruck für das Streugesetz der Flüssigkeit entspricht dem für den polykristallinen Festkörper (16), wobei allerdings die für die Flüssigkeit definierten Kohärenzfaktoren (20) zu verwenden sind.

Zur Berechnung dieser Kohärenzfaktoren wird außer dem statischen Strukturfaktor  $S(Q)$  für die Flüssigkeit auch die Dispersionsbeziehung  $\omega_{L,T}(q)$  für die postulierten kollektiven Anregung benötigt. Über  $\omega_{L,T}(q)$  werden für jedes  $\omega$  sowohl die Polarisationsfaktoren als auch die Integrationsgrenzen im Ausdruck (20) für den Kohärenzfaktor festgelegt. Die Polarisationsfaktoren führen ähnlich wie beim polykristallinen Festkörper (Abschn. 4.1.1) zu einer verschiedenen  $Q$ -Abhängigkeit des longitudinalen und transversalen Kohärenzfaktors, wobei in der Flüssigkeit die Rolle des reziproken Gittervektors  $\tau$  durch  $Q_0$ , die Lage des Maximums von  $S(Q)$  übernommen wird.

Zwar ist  $S(Q)$  für flüssiges Kupfer aus unabhängigen Messungen bekannt, aber die Dispersionsbeziehungen  $\omega_{L,T}(q)$  und

die für die inkohärenten Streufunktionen benötigten partiellen Frequenzverteilungen  $g_{L,T}(\omega)$  können nur durch Anpassung des Modells an die experimentellen  $S(Q, \omega)$  Daten gewonnen werden.

Im Grunde genommen handelt es sich bei einer solchen Beschreibung dann mehr um einen Fit als um eine Erklärung der experimentellen Daten. Ein Fit der Daten mit diesem Modell kann kein sehr kritischer Test für die wesentliche Annahme, nämlich die Existenz von longitudinalen und transversalen phononenartigen Anregungen, darstellen. Wir stellen uns aber im folgenden auf den Standpunkt, daß diese Annahmen in einer gewissen Näherung berechtigt sind und fragen danach, wie die Funktionen  $\omega_{L,T}(q)$  und  $g_{L,T}(\omega)$  aussehen müssen, um die Daten richtig wiederzugeben.

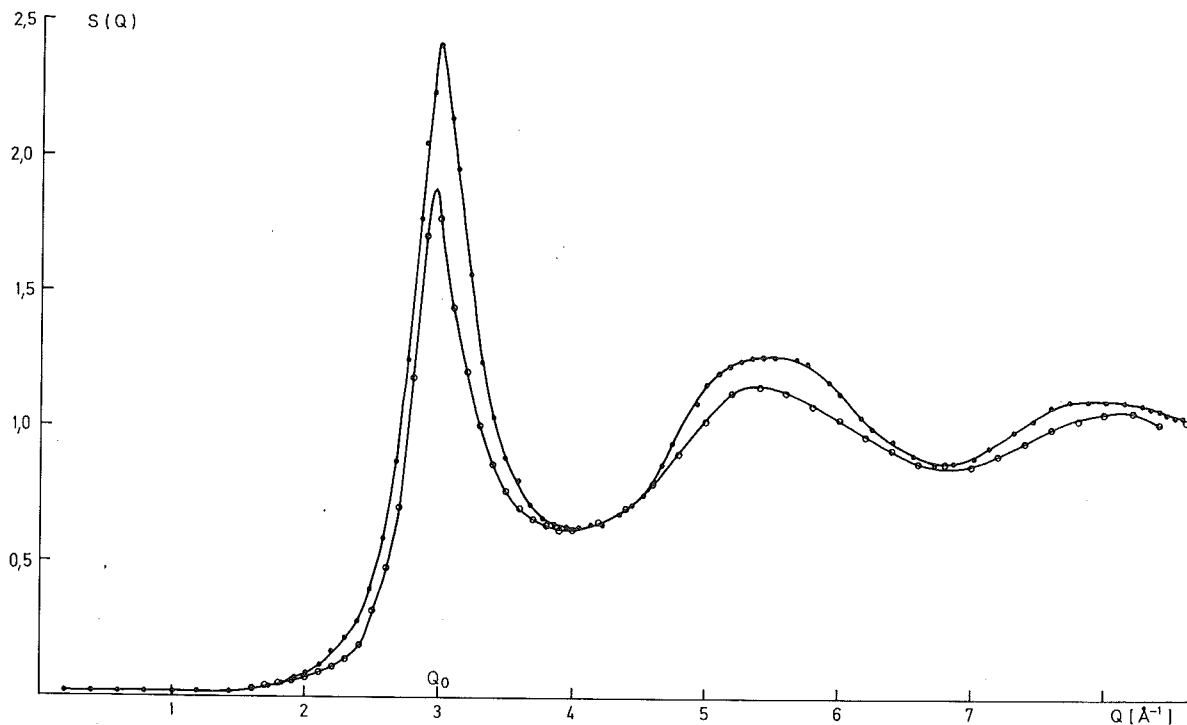


Abb. 19 Strukturfaktor für flüssiges Kupfer gemessen bei 1150°C mit Neutronenstreuung von Breuil u. Tourand und bei 1125°C mit Röntgenstrahlen von Wagner, Ocken u. Joshi (ooooo)

Der Strukturfaktor für flüssiges Kupfer ist von Wagner u.a. /31/ mit Röntgenstrahlen und von Breuil und Tourand /32/ mit Neutronen gemessen worden. Beide Messungen sind in Abb. 19 dargestellt. Der  $Q$ -Wert des Hauptmaximums  $Q_0$  liegt mit  $3 \text{ \AA}^{-1}$  ganz in der Nähe des ersten reziproken Gittervektors ( $3.02 \text{ \AA}^{-1}$ ) des Kristalls. Wir werden im folgenden die mit Neutronen bestimmte Funktion  $S(Q)$  benutzen, die uns zuverlässiger erscheint.

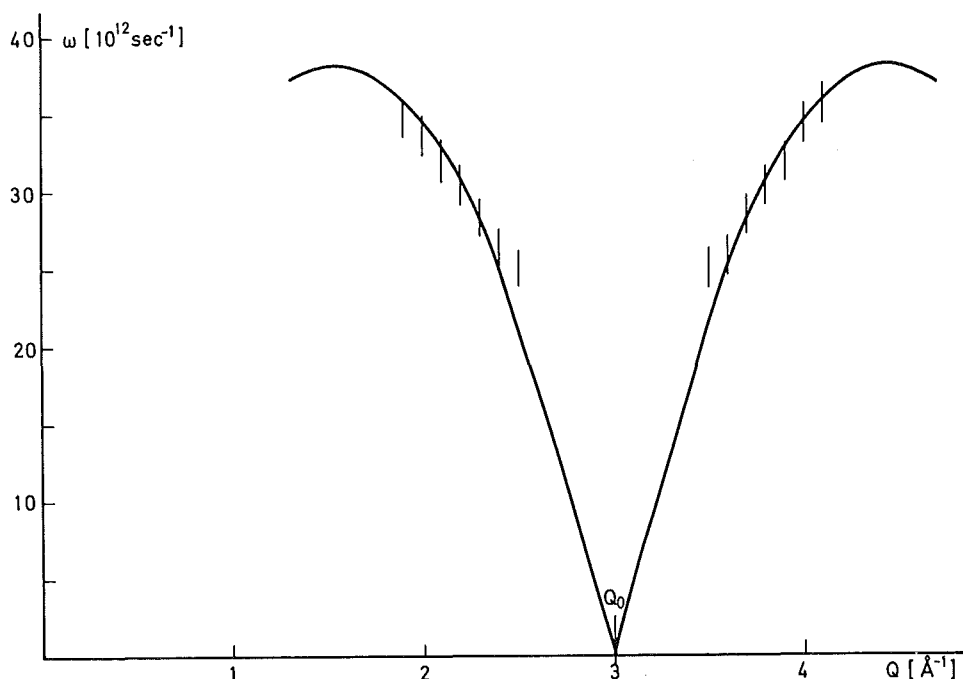


Abb. 20 Vergleich der Lage der Maxima im Streugesetz in der flüssigen Phase (III) mit den longitudinalen Dispersionskurven im Polykristall (—) dicht unter dem Schmelzpunkt.

Weiter übernehmen wir für die longitudinale Dispersionskurve und die zugehörige Frequenzverteilung der Flüssigkeit die für das polykristalline Kupfer dicht unter dem Schmelzpunkt gefundenen Werte (Abschn. 4.1.4). Hierfür sprechen folgende Argumente: Vergleicht man die Lage der Maxima von  $S(Q, \omega)$  der Flüssigkeit für große  $\omega$ -Werte, die den bevorzugten kollektiven Anregungen entsprechen, mit der am  $Q$ -



Wert des Hauptmaximums des Strukturfaktor aufgetragenen mittleren Dispersionskurve des Festkörpers, so findet man, daß innerhalb der Meßgenauigkeit die gemessenen  $(Q, \omega)$ -Werte der Flüssigkeit mit der mittleren Dispersionskurve des Festkörpers übereinstimmen. Dieser Vergleich ist in Abb. 20 dargestellt.

Da für kleinere Energieüberträge, die im Festkörper im wesentlichen transversalen Anregungen entsprechen, eine merkliche Erhöhung der inelastischen Streuung in der Flüssigkeit auftritt, muß auf eine deutliche Verschiebung der transversalen Frequenzverteilung zu kleinen Frequenzen geschlossen werden.

Die transversale Frequenzverteilung  $g_T(\omega)$  wird deshalb als unbekannte Funktion behandelt, die durch Anpassung an die Meßwerte erst bestimmt wird. Sie geht in den Einphononenanteil direkt und in die Korrekturglieder integral ein. Als Nebenbedingung wurde beachtet, daß die Fläche unter dem transversalen Anteil auf  $2/3$  normiert war. Die so gewonnene transversale Frequenzverteilung ist in Abb. 21 wiedergegeben.

Zum Vergleich ist die transversale Frequenzverteilung des polykristallinen Materials dicht unter dem Schmelzpunkt im gleichen Bild dargestellt. Wir finden eine deutlich ausgeprägte Verschiebung der Häufigkeit der Frequenzen zu kleineren Frequenzwerten hin. So nimmt bei einer Frequenz von  $\omega = 5 \cdot 10^{12} \text{sec}^{-1}$  die Zustandsdichte um einen Faktor 15 zu, während sie bei einer Frequenz von  $\omega = 25 \cdot 10^{12} \text{sec}^{-1}$  auf ungefähr die Hälfte reduziert wird.

Bei einer kritischen Betrachtung müssen wir beachten, daß wir die oben angegebene Kurve nicht vorbehaltlos als Zustandsdichte der transversalen Anregungen in der Flüssigkeit hinnehmen können. Unsere Aussage ist beschränkt. Sie kann nur lauten: Wenn das Egelstaff-Modell eine geeignete

Beschreibung der Streuung an einer Flüssigkeit ist, dann gibt es im flüssigen Kupfer transversale Anregungen mit der angegebenen Zustandsdichte.

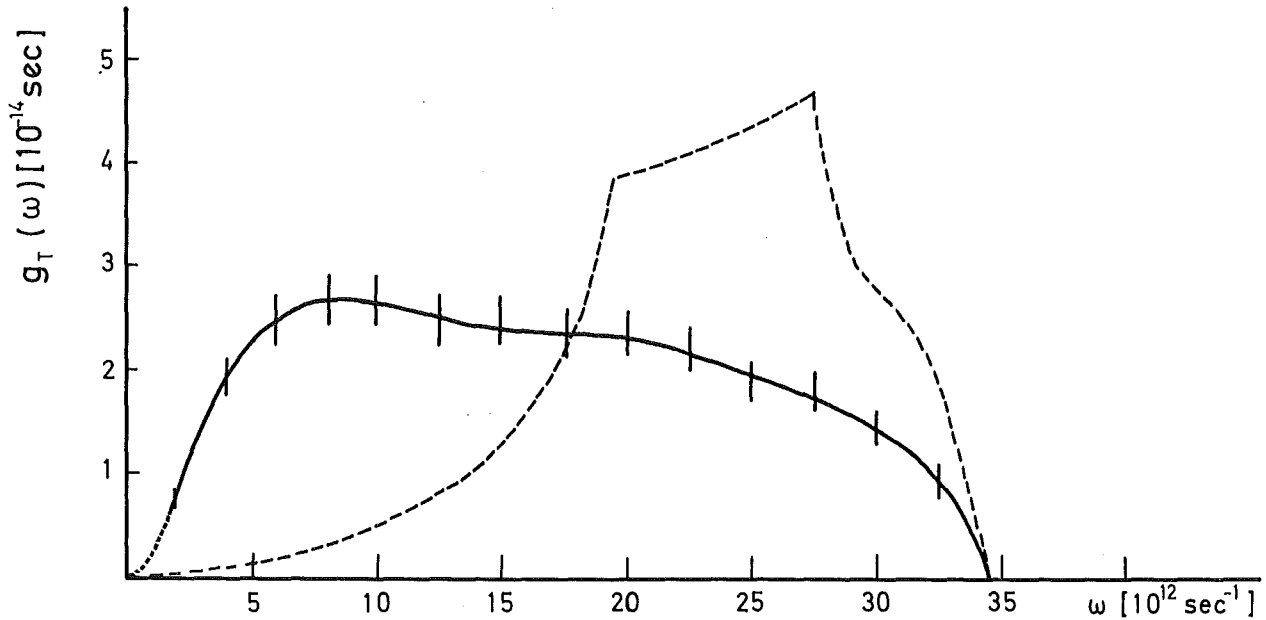


Abb. 21 Transversale Frequenzverteilung für flüssiges Kupfer bei  $1090^\circ\text{C}$  (—). Zum Vergleich ist die transversale Frequenzverteilung für polykristallines Kupfer (-----) angegeben.

Für die Bestimmung der transversalen Dispersionskurve nutzen wir einen von Blackman /33/ angegebenen Zusammenhang aus, der es gestattet, eine mittlere Dispersionskurve aus der Frequenzverteilung zu berechnen. Die bei der Ableitung von (16) benutzte Voraussetzung der Isotropie bedeutet, daß der einem  $\underline{q}$ -Wert im reziproken Raum zugeordnete  $\omega$ -Wert nur vom Betrag  $q$  abhängt. In einer Kugelschale zwischen  $q$  und  $q + dq$  mit der Dichte  $NV/(2\pi)^3$  im  $q$ -Raum liegen damit gerade

$$\frac{NV}{8\pi^3} \cdot 4\pi q^2 dq = \frac{NV}{2\pi^2} q^2 dq \quad (33)$$

q-Werte, den  $\omega$ -Werte in dem durch die mittlere Dispersionskurve bestimmten Bereich  $d\omega$  um  $\omega$  entsprechen. Mit Hilfe der Frequenzverteilung ausgedrückt, liegen in diesem Bereich  $Nf(\omega)d\omega$  Frequenzwerte. Setzen wir einen monotonen Zusammenhang zwischen q und  $\omega$  voraus, so ergibt sich:

$$\frac{V}{2\pi^2} \int_0^q q^2 dq = \int_0^\omega f(\omega) d\omega$$

$$q = \sqrt[3]{\frac{6\pi^2}{V} \int_0^\omega f(\omega) d\omega} \quad (34)$$

Um die Güte dieser Näherung zu testen, wurden nach diesem Verfahren für den longitudinalen und unteren transversalen Ast der Frequenzverteilung des polykristallinen Kupfers bei Zimmertemperatur die entsprechenden mittleren Dispersionskurven berechnet. Die Ergebnisse sind in Abb. 22 zusammen

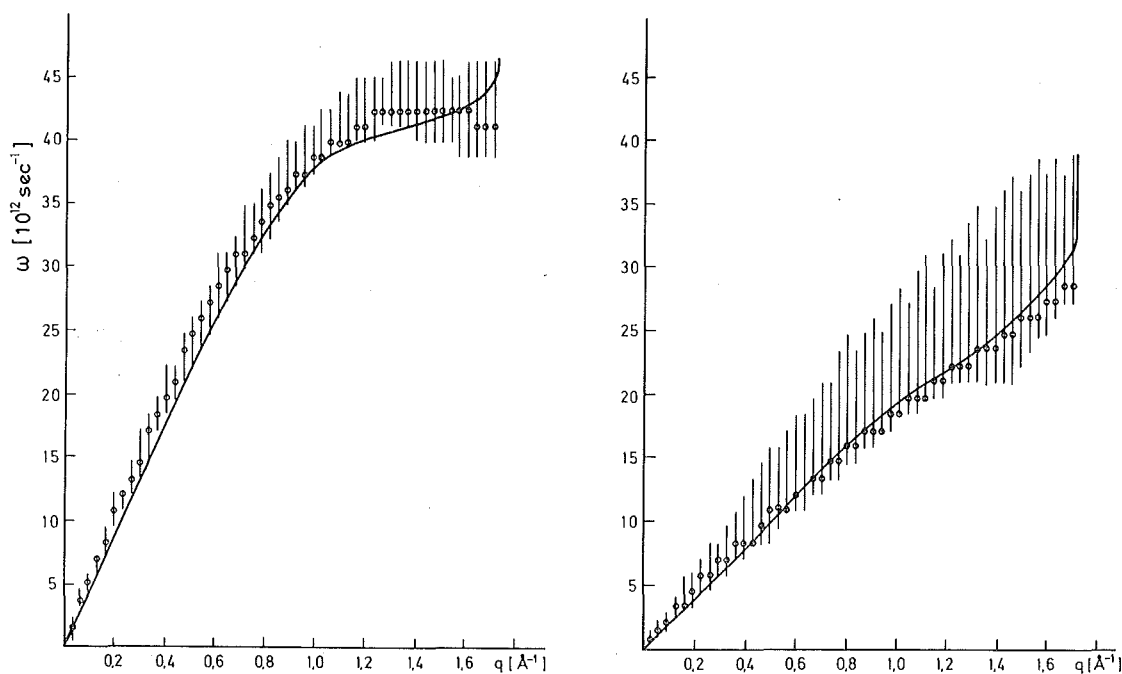


Abb.22 Vergleich der nach der Blackman-Formel aus der Frequenzverteilung berechneten Dispersionskurve (—) mit dem Dispersionsbereich ( $\phi$ ) nach dem modifizierten Rosa-Programm für den longitudinalen und unteren transversalen Anteil bei Zimmertemperatur. Die Kreise kennzeichnen die Maxima der Frequenzbereiche

mit den direkt bestimmten Dispersionsbereichen und den die mittlere Dispersionskurve darstellende Maxima wiedergegeben. Da in der Flüssigkeit die Voraussetzung der Isotropie sicher erfüllt ist, sollte Gl. (34) eine brauchbare Näherung zur Bestimmung von  $q_T(\omega)$  sein.

In den Abb. 23 und 24 ist der mit dem Egelstaff-Modell unter Anpassung der transversalen Frequenzverteilung gerechnete Verlauf des Streugesetzes für konstante  $\omega$ -Werte als Funktion von  $Q$  und für konstante  $Q$ -Werte als Funktion von  $\omega$  als glatte Kurve zusammen mit den experimentellen Punkten dargestellt. Der Multiphononenanteil wurde mit dem Programm LEAP /27/ berechnet. Man sieht, daß der sich in diesem Modell unter der Annahme von transversalen und longitudinalen kollektiven Anregungen ergebende Verlauf das Verhalten der Meßwerte gut wiedergibt.

Bei kleinen Frequenzen, die in diesem Modell im wesentlichen transversalen Anregungen entsprechen, zeigt sich in der Rechnung ein Verlauf genau wie im Experiment: ein Maximum bei  $Q_0$  mit einer bei zunehmendem  $\omega$  auch zunehmende Verbreiterung dieses Maximums. In Abb. 22 haben wir für den kleinsten  $\omega$ -Wert ( $10 \cdot 10^{12} \text{sec}^{-1}$ ) die Ergebnisse der Rechnung unter der Annahme von rein longitudinalen Anregungen als gestrichelte Linie angegeben. Man sieht, daß sich hier im Gegensatz zum experimentellen Verlauf schon ein Doppelmakimum ausbildet. Rein longitudinale Anregungen können also den Verlauf des Streugesetzes im Egelstaff-Modell nicht beschreiben.

Zu Beginn der Rechnung hatten wir die Annahme gemacht, daß die relativen Maxima, die im gemessenen  $S(Q, \omega)$  bei großen  $\omega$  auf beiden Seiten von  $Q_0$  auftreten, durch longitudinale Anregungen verursacht werden, die den longitudinalen Phononen im Festkörper ähnlich sind.

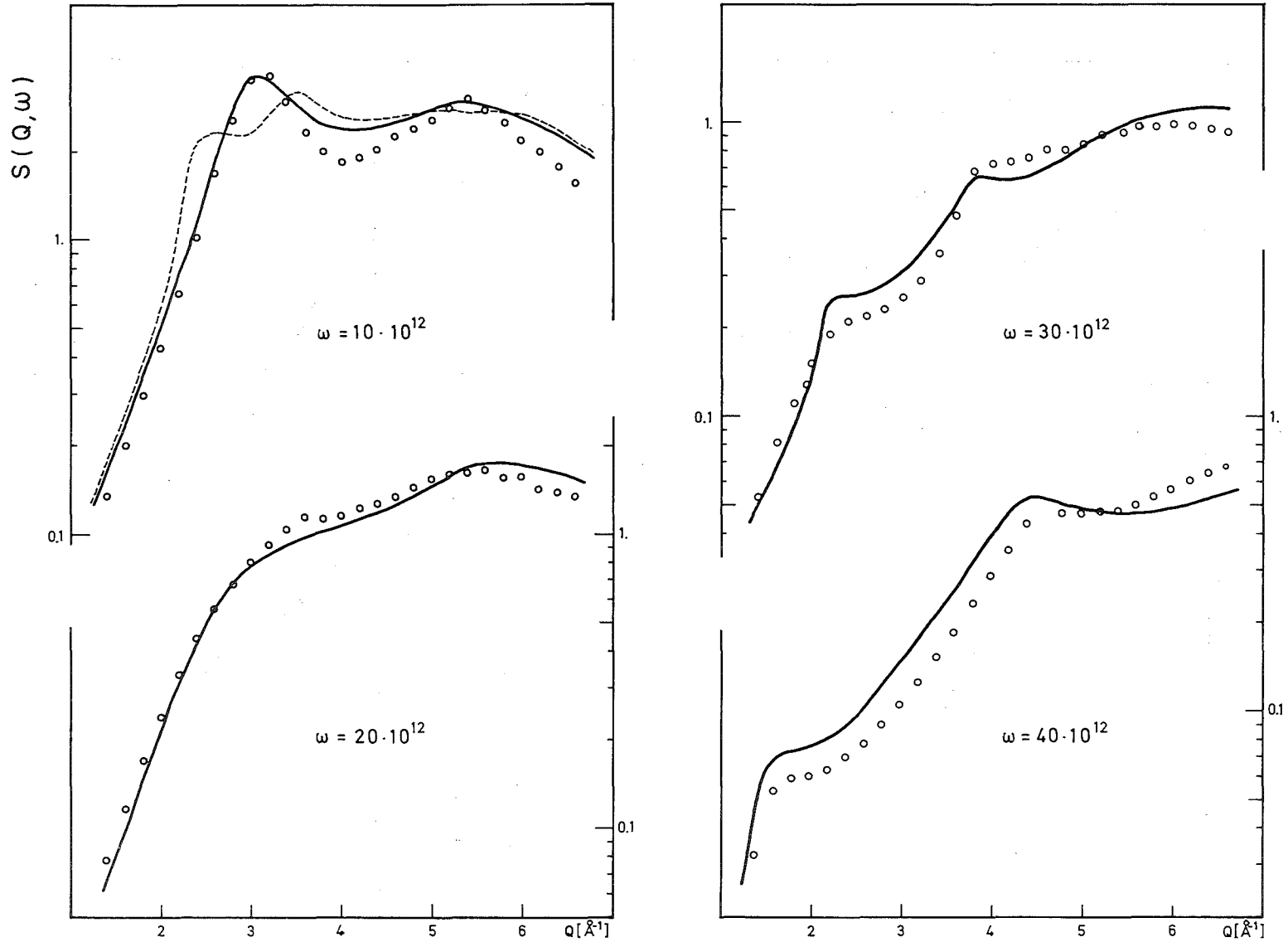


Abb.23 Vergleich des nach dem Egelstaff-Modell berechneten Streugesetzes (—) mit den experimentell bestimmten Werten (oooo) für konstante  $\omega$ -Werte. (----) Rechnung unter Annahme von rein longitudinalen Anregungen.

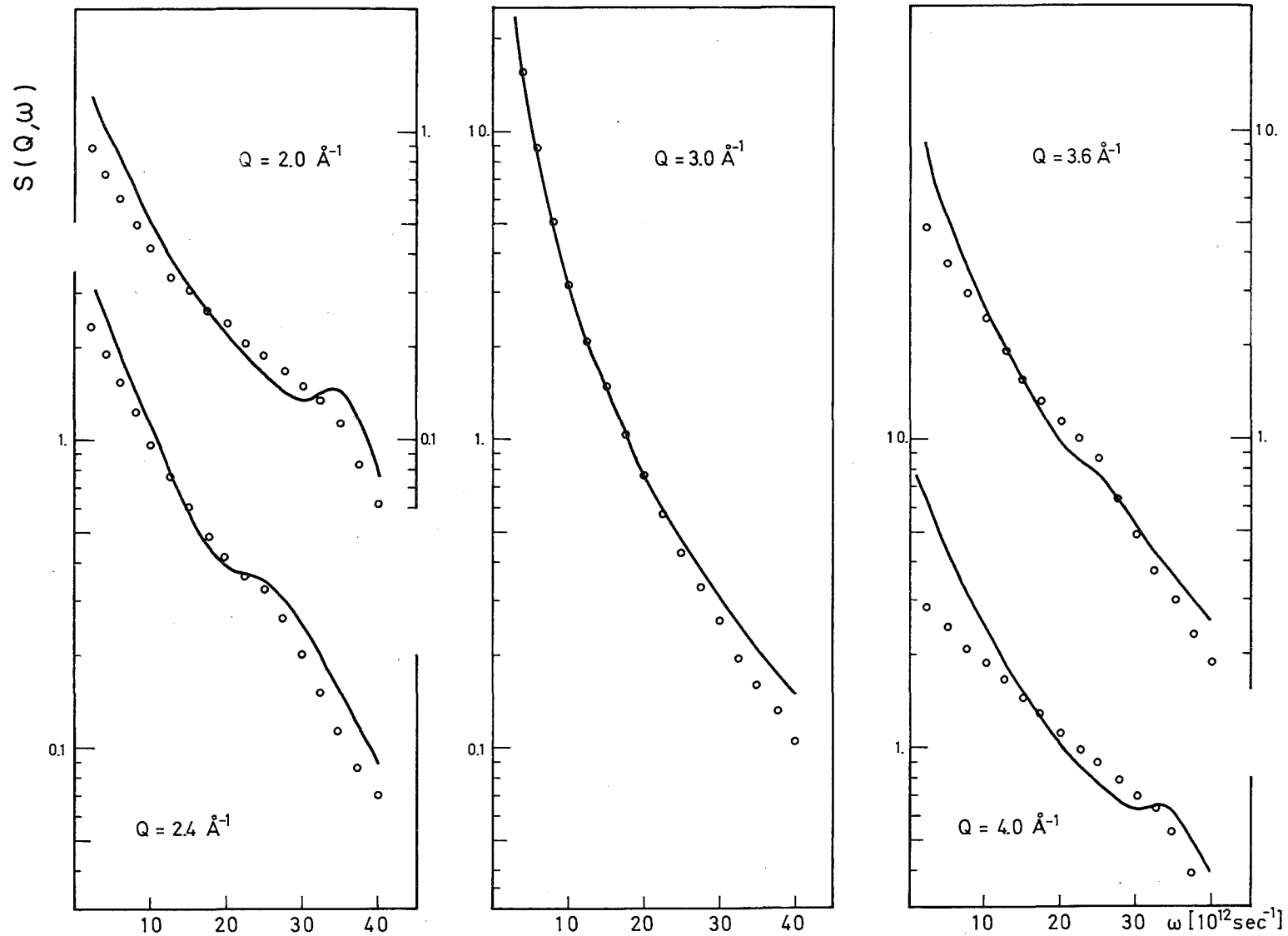


Abb.24 Vergleich des nach dem Egelstaff-Modell berechneten Streugesetzes (—) mit den experimentell bestimmten Werten (oooo) für konstante Q-Werte.

Die gute Übereinstimmung von gemessenen und berechneten  $S(Q, \omega)$  kann als Bestätigung dieser Annahme angesehen werden.

Die stärksten Abweichungen der Rechenwerte vom Experiment treten bei kleinen  $\omega$ -Werten auf. Dies ist auch nicht verwunderlich, wenn wir uns daran erinnern, daß das Egelstaff-Modell, im Grunde genommen ein Festkörpermodell ist, dem Flüssigkeitseigenschaften mit Hilfe des statischen Struktur factors  $S(Q)$  aufgepfropft wurden. Es kann, da der Einteilchenaspekt der Bewegung in der Flüssigkeit (Diffusion) nicht berücksichtigt wird, die quasielastische Streuung nicht beschreiben. Damit verbunden ist, daß es die Streueigenschaften einer Flüssigkeit im hydrodynamischen Grenzfall ( $Q > 0$ , kleine  $\omega$ ), für die aus den klassischen Bewegungsgleichungen ein exakter Ausdruck abgeleitet werden kann, nicht wiedergibt. Schließlich werden anharmonische Effekte, die in einem Festkörper in der Nähe des Schmelzpunktes und erst recht in der Flüssigkeit eine große Rolle spielen, nicht berücksichtigt. Deshalb kann über die Dämpfung und damit über die Lebensdauer der kollektiven Moden nichts ausgesagt werden.

#### 4.2.3 Vergleich der Meßwerte mit dem Sears-Modell

Im Gegensatz zu der sehr phänomenologischen festkörperähnlichen Beschreibung von Egelstaff, geht das Modell von Sears von einer in der linearen Resonanztheorie exakten allgemeinen Formulierung des Streugesetzes für eine Flüssigkeit aus. Allerdings sind für wirkliche Berechnungen von  $S(Q, \omega)$  eine Reihe von Näherungen erforderlich, deren Güte nur durch Vergleich mit experimentellen Daten geprüft werden kann. Die entsprechenden Ausdrücke wurden in Abschnitt 2.3 angegeben. Für flüssige Edelgase hat sich das Sears-Modell als brauchbare Näherung erwiesen. Uns interessiert wieweit dieses Modell auch für flüssige Metalle zu gebrauchen ist.

Als Eingabegrößen benötigt das Sears-Modell neben den makroskopischen Größen (Dichte, thermische Leitfähigkeit, Scher- und Bulkviskosität) den Strukturfaktor  $S(Q)$  und das Paarpotential. Da zuverlässige Daten für das Paarpotential beim flüssigen Kupfer nicht vorhanden sind, müssen wir die entsprechenden Größen an die Meßdaten anpassen. Das Paarpotential geht nur in den Ausdruck für die Hochfrequenzdispersion  $\omega_\infty(Q)$  in Gl. (24) ein. Wenn wir Hubbard und Beeby /34/ folgen und berücksichtigen, daß die Größe  $\partial^2 V / \partial r^2 \cdot g(r)$  und  $\partial V / \partial r \cdot g(r)$  ihren Hauptbeitrag zum Integral (24) an der Stelle  $r_0$ , der Position des 1. Maximums der Paarverteilung  $g(r)$  liefern, dann können wir  $\omega_\infty(Q)$  folgendermaßen approximieren /35/.

$$\omega_\infty^2 = \frac{3k_B T Q^2}{M} + \omega_1^2 \left\{ 1 - \frac{3 \sin Q r_0}{Q r_0} - \frac{6 \cos Q r_0}{(Q r_0)^2} + \frac{6 \sin Q r_0}{(Q r_0)^3} \right\} - \omega_2^2 \left\{ 1 + \frac{3 \cos Q r_0}{(Q r_0)^2} - \frac{3 \sin Q r_0}{(Q r_0)^3} \right\} \quad (35)$$

Hierbei sind  $\omega_1^2$  und  $\omega_2^2$  Parameter, die durch die Krümmung und die Neigung des Potentials bei  $r_0$  festgelegt werden. Der Ausdruck für das Streugesetz (21) geht für  $\omega \rightarrow 0$  in eine einfache Lorentzkurve mit der Halbwertsbreite

$$\Delta \omega = \frac{2k_B T}{M S(Q) \Gamma'(Q, 0)} \quad (36)$$

über. Durch Anpassen der Werte nach Gl. (36) an die gemessenen und in Abbildung 19 wiedergegebenen Halbwertsbreiten im Bereich des de Gennes-Minimums können  $\omega_1$  und  $\omega_2$  bestimmt werden.

Die auf diese Weise für das flüssige Kupfer bestimmte Hochfrequenzdispersion ist in Abb. 25 dargestellt. Zum Vergleich sind die Maxima der experimentellen  $\omega^2 S(Q, \omega)$  Kurven



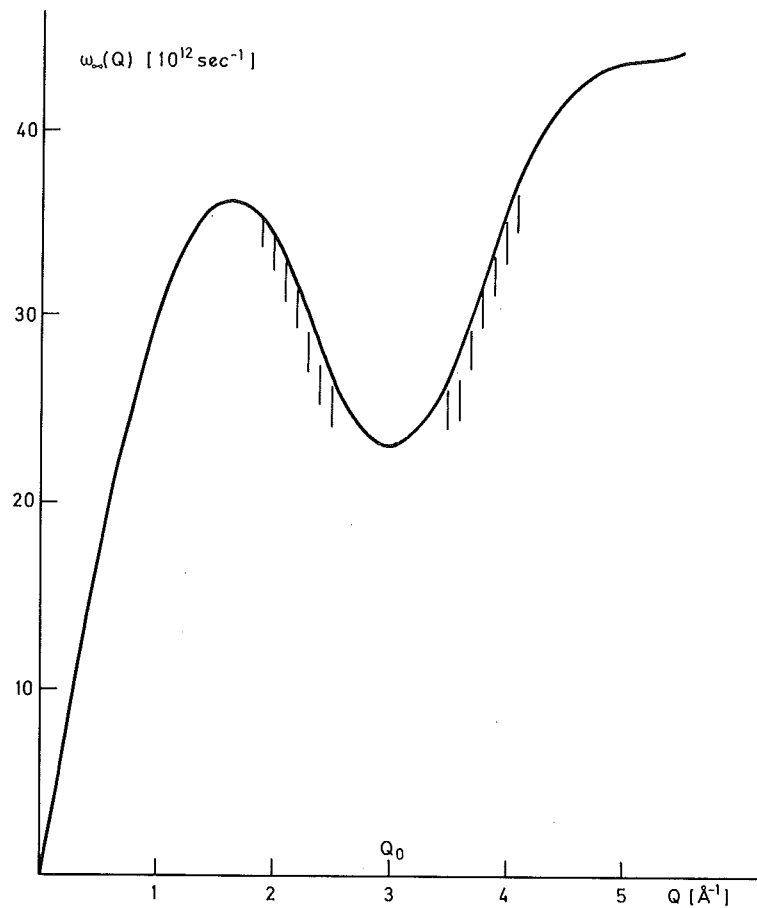


Abb. 25 Vergleich der Lage der Maxima im Streugesetz in der flüssigen Phase mit der Hochfrequenzdispersion  $\omega_\infty(Q)$

eingetragen. Die relativ gute Übereinstimmung der Lage dieser Maxima mit dem Verlauf von  $\omega_\infty(Q)$  deutet darauf hin, daß  $\omega_\infty(Q)$  eine ähnliche Bedeutung hat, wie die Dispersionsbeziehung eines Festkörpers. Für diesen Vergleich spricht auch die Tatsache, daß der Ausdruck (24) der Hochfrequenzdispersion  $\omega_\infty(Q)$  für  $T \rightarrow 0$  in die Dispersionsbeziehung  $\omega^2 = 2/M \sum_{p>0} \partial^2 V / \partial z_p (1 - \cos p a Q)$  in den Symmetrierichtungen des harmonischen Festkörpers übergeht, wenn das Integral über  $g(r)$  durch die Summation über die Nachbaratome ersetzt wird.

Die in Abb. 25 wiedergegebene Funktion  $\omega_\infty(Q)$  wurde benutzt, um mit Gl. (21) das Streugesetz zu berechnen. In den Abbildungen 26 und 27 ist das Ergebnis der Rechnung im

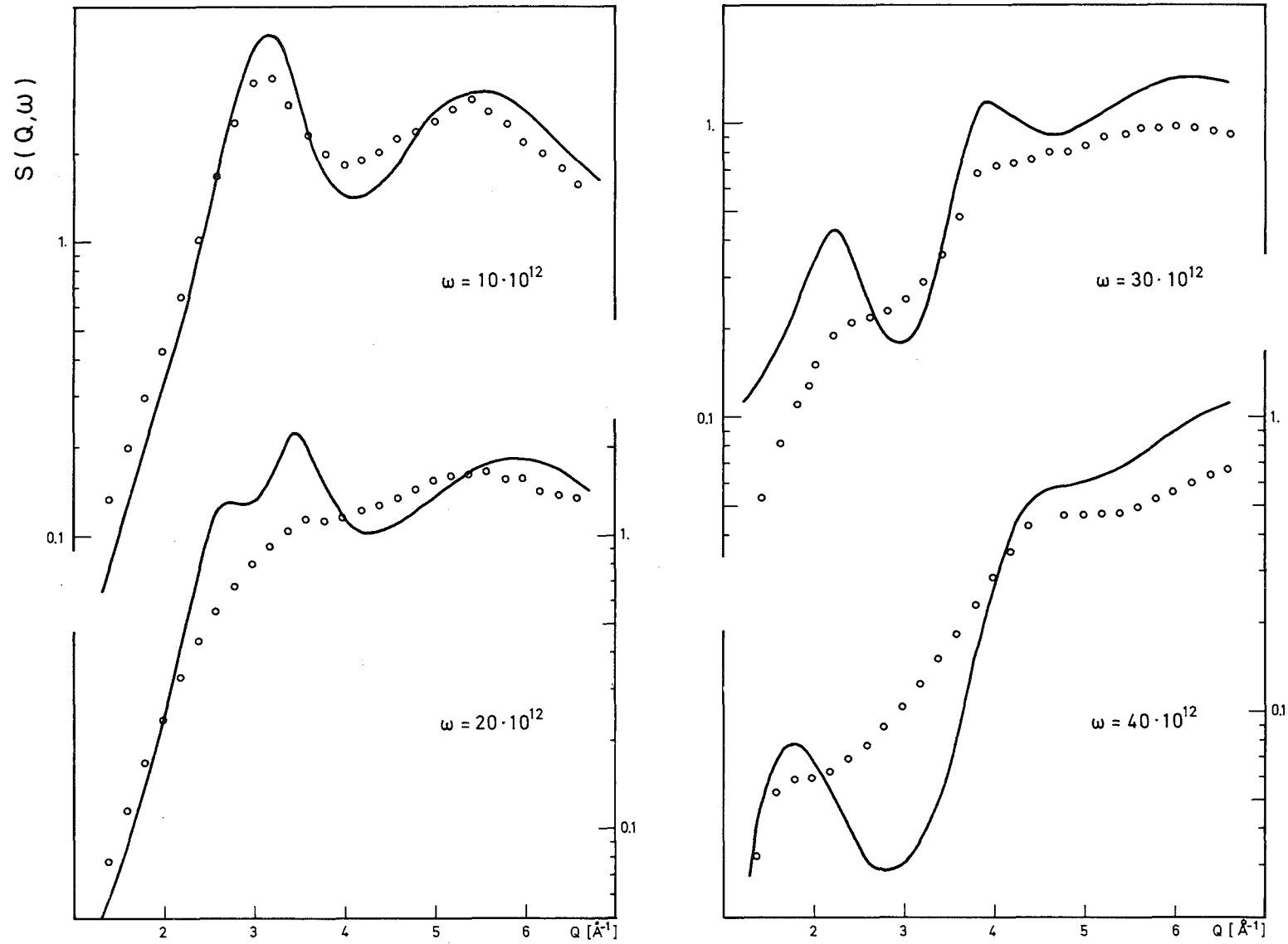


Abb. 26 Vergleich des nach dem Sears-Modell berechneten Streugesetzes (—) mit den experimentell bestimmten Werten (oooo) für konstante  $\omega$ -Werte.

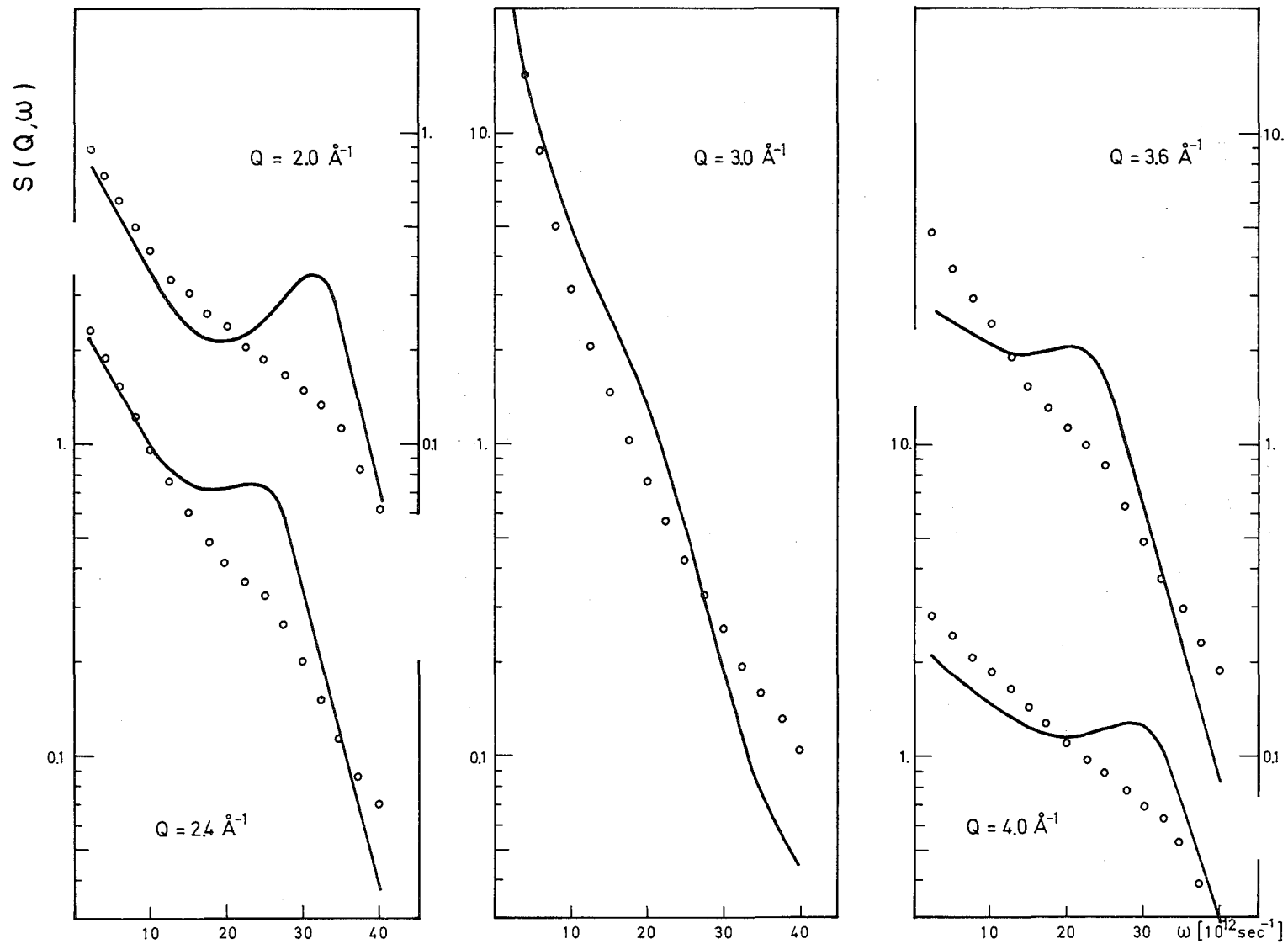


Abb. 27 Vergleich des nach dem Sears-Modell berechneten Streugesetzes (—) mit den experimentell bestimmten Werten ( $\circ$ ) für konstante  $Q$ -Werte.

Vergleich zu den Meßwerten für konstante  $\omega$  - und  $Q$ -Werte wiedergegeben. Man sieht, daß dieses Modell den allgemeinen Verlauf von  $S(Q, \omega)$  im wesentlichen wiedergibt. Insbesondere liegen die Maxima bei der Rechnung an den gleichen Stellen, wie im Experiment. Bei den Kurven mit konstantem  $\omega$  geht das Maximum bei  $Q_0$  mit wachsendem  $\omega$  in die beiden Nebenmaxima über, die sich ebenfalls in den Kurven mit konstantem  $Q$  als Maximum bemerkbar machen. Das Sears-Modell liefert also für das flüssige Kupfer einen Verlauf des Streugesetzes wie man ihn beim Vorhandensein kollektiver Anregungen erwarten sollte.

Die Maxima im Streugesetz liegen bei diesem Modell zwar nahezu an der richtigen Stelle, sind aber in der Rechnung sehr viel stärker ausgebildet und machen sich außerdem schon für  $\omega$ -Werte bemerkbar, bei denen im Experiment noch ein glatter Verlauf vorliegt. Wir hatten im Abschnitt 2.3 gesehen, daß der Dämpfungsfaktor von Sears so bestimmt worden ist, daß er zwar die richtigen Grenzwerte für kleine und große  $Q$  besitzt, in dem bei der Neutronenstreuung aber vorliegenden mittleren  $Q$ -Bereich nur an die Beziehung für die 3 ersten geraden Momente angepaßt wurde. Die zu starke Ausbildung der Maxima deutet also darauf hin, daß die Näherung des Sears-Modells die Dämpfung der kollektiven Anregungen in flüssigen Metallen noch nicht ausreichend beschreibt.

6. Literaturverzeichnis

- /1/ P.A. Egelstaff,  
Thermal Neutron Scattering; Academic Press, London  
(1965)
- /2/ V.F. Turchin,  
Slow Neutrons; Israel Program for Scientific Trans-  
lations, Jerusalem (1965)
- /3/ I.I. Gurevich, L.V. Tarassov,  
Low-Energy Neutron Physics; North-Holland Publishing  
Company, Amsterdam (1968)
- /4/ L. Van Hove,  
Phys. Rev., Vol. 95, 249 (1954)
- /5/ F.Zernicke, J.A. Prins,  
Zeitschrift für Physik 41, 184 (1927)
- /6/ I.I. Gurevich, L.V. Tarassov,  
Low-Energy Neutron Physics, Seite 492
- /7/ P.A. Egelstaff,  
AERE-Report 1164 (1958)
- /8/ K.E. Larsson, U. Dahlberg, S. Holmryd,  
Archiv för Fysik Band 17, Nr. 21, 369 (1960)
- /9/ P.A. Egelstaff,  
AERE-Report 4101 (1962)
- /10/ V.F. Sears,  
Canadian Journal of Physics, Vol. 48, 616 (1970)
- /11/ L.P. Kadanoff, P.C. Martin,  
Ann. Phys. (N.Y.), 24, 419 (1963)
- /12/ P.G. de Gennes,  
Physica, 25, 825 (1959)
- /13/ W. Gläser,  
Proc. of the Symp. on Neutron time-of-flights methods,  
EANDC Saclay, Juli 1961, S. 301
- /14/ G. Krüger,  
Kerntechnik 8, 273 (1966)
- /15/ Oehme, Hauschild,  
1964 (unveröffentlicht)
- /16/ W. Gläser,  
Dissertation, Technische Hochschule Karlsruhe (1964)
- /17/ W. Gläser,  
KFK-Bericht 261 (1964)
- /18/ F. Carvalho, G. Ehret, W. Gläser,  
Nuclear Instruments and Methods, 49, 197 (1967)
- /20/ P.A. Egelstaff, P. Schoffield,  
Nuclear Science and Engineering, 12, 260 (1962)

- /21/ R.M. Nicklov, G. Gilat, H.G. Smith, L.J. Raubenheimer,  
M.K. Wilkinson,  
Phys. Rev., 164, 922 (1967)
- /22/ S.K. Sinha,  
Physical Rev. Vol. 143, Number 2, Seite 422 (1966)
- /23/ W. Bühner,  
Dissertation ETH Zürich (1970)
- /24/ E.C. Svensson, B.N. Brockhouse, J.M. Rowe,  
Physical Review, Vol. 155, Number 3, 619 (1967)
- /25/ O. Abeln,  
Kernforschungszentrum Karlsruhe, Programmbeschreibung  
Nr. 108, Mai 1967
- /26/ T.H. Barron,  
Phil. Mag., 46, 720 (1955)
- /27/ A. Döderlein,  
LEAP-Programmbeschreibung (unveröffentlicht)
- /28/ F. Carvalho, G. Ehret,  
VIPER-Programmbeschreibung, (1967)  
(unveröffentlicht)
- /29/ D.T. Keating, W.J. Neidhardt, A.H. Goland,  
Phys. Rev., 111, 261 (1958)
- /30/ R. Zwanzig,  
Phys. Rev., 156, 190 (1967)
- /31/ Wagner, Ocken, Joshi,  
Zeitschrift für Naturforschung, 20a, 325 (1965)
- /32/ Breuil u. Tourand,  
Journ. Phys. chem. Solids, Vol. 31, 549 (1970)
- /33/ M. Blackman  
Handbuch der Physik 7, Seite 325 (1955)
- /34/ J. Hubbard, J.L. Beeby,  
J. Phys. C (Solid State Physics), 2, 556 (1969)
- /35/ U. Löffler,  
wird in KF -Bericht veröffentlicht
- /36/ K.S. Singwi, A. Sjölander,  
Phys. Rev. Vol. 119, No. 3, 863, August 1960.