

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

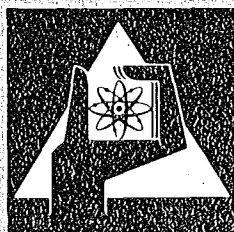
Dezember 1975

KFK 2231

Institut für Angewandte Kernphysik

**Streugesetze des polykristallinen und des flüssigen
Rubidiums**

Jens-Boie Suck



**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 2231

Institut für Angewandte Kernphysik

Streugesetze des polykristallinen
und des flüssigen Rubidiums

von

Jens-Boie Suck

Von der Fakultät für Physik der TH Karlsruhe (Universität)
genehmigte Dissertation.

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

The Scattering Law of Polycrystalline and Liquid Rubidium

Abstract

The scattering law of polycrystalline and liquid Rubidium was measured for momentum transfers between 1.0 and 2.5 $1/\text{\AA}$ and for energy transfers up to 16 meV with a rotating crystal TOF-spectrometer. The energy of the incoming neutrons was 5 meV. The polycrystal was measured at 123 and 294 K and the liquid at 318 K near its melting point. The data are corrected for background, selfabsorption, and multiple scattering.

In the scattering law of the polycrystal at 123 K a peak structure is seen for energy transfers > 0 , which is damped out in the results of the polycrystal at 294 K and the liquid. The measured scattering laws are compared with several scattering law models. Only the 123 K results give really satisfactory agreement. From the data of the polycrystals the density of states are extracted. For the liquid the 4. moment, some points of the 6. moment, and the relaxation function $\tau(Q)$ are determined.

Zusammenfassung

Das Streugesetz des polykristallinen und des flüssigen Rubidiums wurde für Impulsüberträge zwischen 1.0 und 2.5 $1/\text{\AA}$ und für Energieüberträge bis zu 16 meV mit einem Drehkristallflugzeitspektrometer gemessen. Die einfallenden Neutronen hatten eine Energie von 5 meV. Der Polykristall wurde bei 123 und 294 K, die Flüssigkeit bei 318 K in der Nähe ihres Schmelzpunktes gemessen. Die Daten sind für Untergrund, Selbstabsorption und Mehrfachstreuung korrigiert.

Im Streugesetz des Polykristalls bei 123 K zeigt sich eine Peakstruktur bei Energieüberträgen > 0 , die im Streugesetz des Polykristalls bei 294 K und dem der Flüssigkeit fast ganz herausgedämpft ist. Die gemessenen Streugesetze werden mit mehreren Streugesetzmodellen verglichen. Nur die Ergebnisse der 123 K Messung stimmen gut mit dem Modell überein. Aus den Meßdaten des Polykristalls wurden die Zustandsdichten berechnet. Für die Flüssigkeit wurde das 4. Moment, einige Punkte des 6. Momentes und die Relaxationsfunktion $\tau(Q)$ bestimmt.

INHALTSVERZEICHNIS	Seite
EINLEITUNG	1
I. THEORIE	
I.1 Definitionen	4
I.2 Einige Eigenschaften der zeitabhängigen Paarverteilungsfunktion	6
I.3 Das Streugesetz und seine Frequenzmomente	8
I.4 Streugesetz eines Polykristalls	10
I.5 Streugesetz einer einfachen, kohärent streuenden Flüssigkeit	13
II. EXPERIMENT UND AUSWERTUNG	
II.1 Drehkristallflugzeitspektrometer	19
II.2 Streuprobe	20
II.3 Messungen	22
II.4 Auswertung der Rohdaten	22
Detektorempfindlichkeit und Flußkartenmessung	24
II.5 Korrektur für Mehrfachstreuung	26
III. ERGEBNISSE UND DISKUSSION	
III.1 Streugesetze	28
III.2 Frequenzmomente	33
III.3 Vergleiche mit Streugesetzmodellen	39
III.4 Dispersionen im Polykristall	44
III.5 Frequenzspektren der Polykristalle	50
Summationsverfahren	50
Extrapolationsverfahren	53
III.6 Relaxationszeiten in der Flüssigkeit	63
ZUSAMMENFASSUNG	65
LITERATURVERZEICHNIS	67
ANHANG	

EINLEITUNG

Die Dynamik einer Flüssigkeit theoretisch zu beschreiben, ist erst in zwei Grenzfällen gelungen, im hydrodynamischen Grenzfall, in dem die Flüssigkeit als Kontinuum betrachtet werden kann, und im Gas-Grenzfall, in dem die Atome des Systems wie freie Teilchen behandelt werden können. Dazwischen liegt ein Bereich, in dem die Nahordnung der Atome und das Wechselwirkungspotential in der Theorie der Flüssigkeitsdynamik berücksichtigt werden müssen. Die Versuche, dieses komplexe Vielkörperproblem zu berechnen, sind bisher wenig erfolgreich gewesen.

Im Gas ist die kinetische Energie sehr viel größer als die potentielle. Im kristallinen Festkörper ist es umgekehrt. In beiden Aggregatzuständen läßt sich daher ein ideales System postulieren, in dem die kleinere Energieform gegenüber der größeren vernachlässigt wird. Dieser Idealzustand ist nur durch eine Form der Energie gekennzeichnet und kann daher leichter berechnet werden. Ausgehend von dem idealen Gas bzw. dem idealen Kristall können dann auch reale Systeme in die Theorie miteinbezogen werden. In der Flüssigkeit dagegen sind kinetische und potentielle Energie von gleicher Größenordnung. Eine "ideale" Flüssigkeit gibt es daher nicht, deren Dynamik ausgehend von einem Wechselwirkungspotential ohne zusätzliche Annahmen berechnet werden könnte.

In dieser Situation sind zeitabhängige Korrelationsfunktionen zu einem wichtigen Hilfsmittel der Beschreibung thermischer Bewegungen in der Flüssigkeit geworden. Eine hervorragende Rolle spielt dabei die Paarkorrelationsfunktion der lokalen Dichte (van Hove 54), deren Orts-Zeit-Fourier-transformierte, das Streugesetz, mit Strahlung gemessen werden kann.

Soll die mikroskopische Dynamik eines Systems experimentell untersucht werden, so müssen Abstände und Frequenzen gemessen werden, die der atomaren Struktur und den Bewegungen der Teilchen entsprechen. Deshalb eignen sich für solche Untersuchungen besonders thermische oder kalte Neutronen. Ihre De Broglie Wellenlänge und die atomaren Abstände, ihre Energie und die kinetische Energie der Atome im System sind etwa gleich groß. Als neutrale Teilchen durchdringen sie das ganze Streuervolumen, so daß Oberflächeneffekte keine Rolle spielen. Darüberhinaus koppeln sie an alle Bewegungen der Atome an.

Insbesondere lassen sich die Einzelteilchenbewegungen und die kollektive Dynamik gezielt untersuchen, wenn es gelingt, die inkohärente Streuung der Neutronen von der kohärenten zu trennen. Dieser kollektiven Dynamik gilt das Interesse dieser Arbeit.

Um so komplizierte atomare Bewegungen zu untersuchen, wird man sich eine möglichst einfache Flüssigkeit wählen, Edelgase oder Metalle z.B., die einatomare Flüssigkeit bilden. Alkalimetalle bieten sich an, da ihre makroskopischen und ein Teil ihrer mikroskopischen physikalischen Eigenschaften weitgehend bekannt sind und sie leicht geschmolzen werden können. Rubidium ist das einzige Alkalimetall, das Neutronen nahezu rein kohärent streut und das sich deshalb vor allem zur Untersuchung der kollektiven Anregungen eignet. Die Dynamik des festen Rubidiums zwischen 12 K und 205 K ist durch die Messungen der Phononendispersion in einem Einkristall weitgehend bekannt (Copley, Brockhouse 73). Es liegt deshalb nahe, neben der Flüssigkeit und dem Polykristall dicht oberhalb bzw. dicht unterhalb des Schmelzpunktes auch den Polykristall unter denselben Meßbedingungen bei einer Temperatur zu untersuchen, bei der auch die Phononen gemessen wurden (Copley et al. 68).

Das Streugesetz kann nur in einem beschränkten Bereich der Energie- und Impulsüberträge im System gemessen werden, so daß die Paarkorrelationsfunktion nicht ohne weitere Annahme durch Fouriertransformieren der Meßwerte bestimmt werden kann. Deshalb ist man auf den Vergleich der Meßdaten mit Streugesetzmodellen angewiesen. Bei der Berechnung dieser Modelle werden die Frequenzmomente des Streugesetzes benutzt, um die Modellparameter festzulegen. Da höhere Frequenzmomente als das zweite nur näherungsweise berechnet werden können, wird zusätzliche Information aus den gemessenen Streugesetzen benötigt.

Im Mittelpunkt des Interesses an den kollektiven Anregungen in der Flüssigkeit steht deren Dämpfung. Im Festkörper dagegen interessiert die Dispersion der Anregungen und deren Frequenzspektrum. Die Zustandsdichte läßt sich mit Hilfe der Phononendispersion berechnen, die meistens in einigen Symmetrierichtungen des Einkristalls gemessen wird. Experimentell bestätigt ist daher nur die Frequenzinformation aus den Symmetrierichtungen des Kristalls, in denen gemessen wurde. Bei Messungen im Polykristall dagegen werden die Frequenzbeiträge aller Richtungen erfaßt. Deshalb läßt sich durch Vergleich der berechneten mit der gemessenen Frequenzverteilung prüfen, ob sich die Dynamik des

Kristalls mit Hilfe der Phononenmessungen in einigen seiner Symmetrie-richtungen vollständig beschreiben läßt.

Erste Flugzeitspektren des Rubidiums dicht oberhalb und unterhalb des Schmelzpunktes wurden von Cocking (67) veröffentlicht. Das Streugesetz des flüssigen Rubidiums wurde für die Impulsüberträge oberhalb $4 \text{ (1/\text{Å})}$ von Egelstaff und Mitarbeitern (72) gemessen und für Impulsüberträge zwischen 0.3 und $5.5 \text{ (1/\text{Å})}$ von Copley und Rowe (74a, 74b). Außerdem wurden molekulardynamische Rechnungen mit zwei verschiedenen Potentialen von Schommers (72) und Rahman (74a, 74b) gemacht. Diese Rechner - Experimente geben zur Zeit die detaillierteste Auskunft über die Dynamik ungeordneter Systeme, wenn das benutzte Wechselwirkungspotential dem wahren Paarpotential sehr ähnlich ist.

I. THEORIE

I.1 Definitionen

Die Intensität der gestreuten Neutronen ist proportional zum doppelt-differentiellen Wirkungsquerschnitt. Dieser läßt sich in erster Bornscher Näherung berechnen, wenn an Stelle der wirklichen Wechselwirkung zwischen Kernpotential und Neutron das Fermische Pseudopotential benutzt wird (Fermi 36). Hängt das Potential nicht vom Ort \underline{R} des Kernes in der Streuprobe ab, so kann der doppelt-differentielle Wirkungsquerschnitt als Produkt zweier Faktoren dargestellt werden, von denen der erste die Eigenschaft der Strahlung, der zweite, unabhängig von der Art der Strahlung, die Dynamik des Streuers enthält

$$\frac{\delta^2 \sigma}{\delta \Omega \delta E} = \frac{\sigma_b}{4\pi} \frac{k}{k_0} S(Q, \omega) \quad (1)$$

Ω ist der Raumwinkel, in den gestreut wird, σ_b der totale Streuquerschnitt des gebundenen Kernes, \underline{k}_0 und \underline{k} sind die Wellenvektoren des Neutrons vor und nach der Streuung, k_0 und k deren Beträge. Das Streugesetz $S(Q, \omega)$ ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit mit einem Impulsübertrag $\hbar \underline{Q}$ einen Energieübertrag $\hbar \omega$ auf den Streuer zu übertragen.

$$\hbar \underline{Q} = \hbar(\underline{k} - \underline{k}_0)$$

$$\hbar \omega = \hbar^2(k^2 - k_0^2)/2m$$

m ist die Masse des Neutrons.

Van Hove (54) hat gezeigt, daß das Streugesetz mit einer Orts-Zeit-Fouriertransformation aus der zeitabhängigen Paarverteilungsfunktion $G(\underline{r}, t)$ berechnet werden kann, die ganz allgemein die Dynamik eines Systems beschreibt

$$S(\underline{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \int d\underline{r} e^{i\underline{Q}\underline{r}} G(\underline{r}, t) \quad (2)$$

$G(\underline{r}, t)$ enthält die Korrelation der Dichteschwankungen in einem System mit N -Teilchen

$$G(\underline{r}, t) = \frac{1}{N} \int d\underline{r}' \langle \bar{\rho}(\underline{r}' - \underline{r}, 0) \bar{\rho}(\underline{r}', t) \rangle \quad (3)$$

Die spitzen Klammern deuten die thermische Mittelung über das System an. $\bar{\rho}(\underline{r}, t)$ ist der Operator der mikroskopischen Teilchendichte

$$\bar{\rho}(\underline{r}, t) = \sum_l \delta(\underline{r} - \bar{R}_l(t)) \quad (4)$$

und $\bar{R}_l(t)$ ist der Heisenbergoperator des Ortsvektors \underline{R}_l des Streuers l

$$\bar{R}_l(t) = e^{iHt/\hbar} \underline{R}_l(0) e^{-iHt/\hbar}$$

$G(\underline{r}, t)$ ist nach Gl. (3) die Korrelationsfunktion der Teilchendichte an zwei (deshalb Paarverteilungsfunktion) verschiedenen Orten des Streuers mit dem Abstand r zu zwei verschiedenen Zeiten im zeitlichen Abstand t . Korrelationen höherer Ordnung, die hier nicht diskutiert werden, sind bei der Berechnung des Streugesetzes zu vernachlässigen (<0.3 %).

Das Streugesetz wird also durch zeitabhängige Paarkorrelationen beschrieben

$$S(\underline{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi N} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \int d\underline{r} \int d\underline{r}' e^{i\underline{Q}\underline{r}} \langle \bar{\rho}(\underline{r}' - \underline{r}, 0) \bar{\rho}(\underline{r}', t) \rangle \quad (5)$$

oder in äquivalenter Schreibweise

$$S(\underline{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi N} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \sum_l \sum_m \langle e^{-i\underline{Q}\bar{R}_l(0)} e^{i\underline{Q}\bar{R}_m(t)} \rangle \quad (6)$$

Die letzte Gleichung folgt aus Gl. (5), wenn in Gl. (4) die Delta-Funktion durch eine Exponentialfunktion ausgedrückt und die Orts-Fouriertransformation durchgeführt wird.

Wegen der Zeitumkehrinvarianz der Elementarprozesse muß der doppelt-differenzielle Wirkungsquerschnitt und damit auch das Streugesetz die Bedingung des detaillierten Gleichgewichts erfüllen

$$S(\underline{Q}, \omega) = e^{\beta} S(-\underline{Q}, -\omega) \quad (7)$$

$\beta = \hbar\omega/k_B T$ ist der dimensionslose Energieübertrag, k_B die Boltzmannkonstante und T die Probertemperatur. Deshalb liegt es nahe, ein symmetrisches Streugesetz zu definieren

$$S(Q, \omega) = e^{-\beta/2} S(Q, \omega) = e^{\beta/2} S(-Q, -\omega) \quad (8)$$

Da in dieser Arbeit nur das symmetrische Streugesetz benutzt wird, wurde es bei der Definition (8) nicht weiter gekennzeichnet. In isotropen Systemen, z.B. in Flüssigkeiten oder Polykristallen, hängt das Streugesetz nur vom Betrag des Impulsübertrages ab und die zeitabhängige Paarverteilung nur vom Abstand des Teilchenpaares.

I.2 Einige Eigenschaften der zeitabhängigen Paarverteilungsfunktion

Da der doppelt-differentielle Wirkungsquerschnitt eine meßbare Größe und das Streugesetz daher reell ist, ist die zeitabhängige Paarverteilungsfunktion im allgemeinen eine komplexe Funktion mit der Eigenschaft $G(\underline{r}, t) = G^*(-\underline{r}, -t)$

$$\text{Im } G(\underline{r}, t) = \frac{1}{2N} \int d\underline{r}' \langle \bar{\rho}(\underline{r}' - \underline{r}, 0) \bar{\rho}(\underline{r}', t) - \bar{\rho}(\underline{r}', t) \bar{\rho}(\underline{r}' - \underline{r}, 0) \rangle \quad (9)$$

$$\text{Re } G(\underline{r}, t) = \frac{1}{2N} \int d\underline{r}' \langle \bar{\rho}(\underline{r}' - \underline{r}, 0) \bar{\rho}(\underline{r}', t) + \bar{\rho}(\underline{r}', t) \bar{\rho}(\underline{r}' - \underline{r}, 0) \rangle \quad (10)$$

Van Hove (58) hat gezeigt, daß der Imaginärteil der zeitabhängigen Paarverteilungsfunktion ein Maß für die Dissipation einer äußeren lokalen Störung im Streuer ist, verursacht z.B. durch die Streuung eines Neutrons, während ihr Realteil die Dichtefluktuationen im ungestörten System beschreibt. Im thermischen Gleichgewicht gibt das Fluktuations-Dissipations-Theorem den Zusammenhang zwischen dem Real- und dem Imaginärteil (Schofield 60)

$$\int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \text{Im} G(\underline{r}, t) = -i \tanh(\beta/2) \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \text{Re } G(\underline{r}, t) \quad (11)$$

Die Messung im gestörten System gibt daher Auskunft über die Dynamik des ungestörten Systems.

Sind die Energieüberträge im Streuer klein im Vergleich zu seiner Temperatur, so können $G(\underline{r}, t)$ und $S(Q, \omega)$ in klassischer Näherung berechnet werden.

In diesem Fall treten an die Stelle der Operatoren $\bar{\rho}(\underline{r}, t)$ in Gl. (9) und (10) die Dichtefunktionen $\rho(\underline{r}, t)$, die vertauschbar sind.

Im klassischen und im statischen Grenzfall ($t=0$) entfällt deshalb der Imaginärteil der zeitabhängigen Paarverteilungsfunktion und ihr Realteil

vereinfacht sich zu

$$G(\underline{r}, t) = \frac{1}{N} \sum_l \sum_m \langle \delta(\underline{r} + \underline{R}_l(0) - \underline{R}_m(t)) \rangle \quad (12)$$

Werden die Korrelationen desselben Teilchens ($l=m$) und die verschiedener Teilchen ($l \neq m$) getrennt betrachtet, so zerfällt die Paarverteilungsfunktion in einen "self"- und einen "distinct"-Anteil

$$G_s(\underline{r}, t) = \frac{1}{N} \sum_l \langle \delta(\underline{r} + \underline{R}_l(0) - \underline{R}_l(t)) \rangle \quad (13)$$

$$G_d(\underline{r}, t) = \frac{1}{N} \sum_l \sum_{m \neq l} \langle \delta(\underline{r} + \underline{R}_l(0) - \underline{R}_m(t)) \rangle \quad (14)$$

$$G(\underline{r}, t) = G_s(\underline{r}, t) + G_d(\underline{r}, t) \quad (15)$$

Die Aussagen der Gleichungen (13) und (14) können im klassischen Grenzfall, für den sie gegeben sind, einfach interpretiert werden. $G_s(\underline{r}, t)$ ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, ein Teilchen, das zum Zeitpunkt 0 am Ort 0 war, nach einer Zeit t im Abstand r zu finden. Entsprechend beschreibt $G_d(\underline{r}, t)$ die Wahrscheinlichkeit, ein anderes Teilchen nach der Zeit t am Ort r zu finden, wenn ein Teilchen zur Zeit 0 am Ort 0 war. Diese Deutung der zeitabhängigen Paarverteilungsfunktion macht es leicht, ihre Werte im statischen Grenzfall zu bestimmen

$$G(\underline{r}, 0) = G_s(\underline{r}, 0) + G_d(\underline{r}, 0) = \delta(\underline{r}) + g(\underline{r}) \quad (16)$$

$g(\underline{r})$ ist die statische Paarverteilungsfunktion, die Zernike und Prins (27) zur Interpretation gemessener Strukturfaktoren einführten. Den Strukturfaktor erhält man aus einer Orts-Fouriertransformation der statischen Paarverteilungsfunktion

$$S(Q) = 1 + \rho \int e^{iQr} (g(r) - 1) d\underline{r} \quad (17)$$

Die zeitabhängige Paarverteilungsfunktion von Hoves läßt sich in diesem Zusammenhang als eine Verallgemeinerung der statischen Paarverteilungsfunktion auf die Dynamik eines Systems verstehen.

I.3 Das Streugesetz und seine Frequenzmomente

Der Selbstanteil des Streugesetzes

$$S_s(Q, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \int d\underline{r} e^{iQ\underline{r}} G_s(\underline{r}, t) \quad (18)$$

enthält nach Gl. (13) Information über die Einteilchenbewegung und bestimmt deshalb (Definition) den doppelt-differentiellen Wirkungsquerschnitt für inkohärente Streuung

$$\left. \frac{\delta^2 \sigma}{\delta \Omega \delta E} \right|_{\text{inc}} = \frac{\sigma_{\text{inc}}}{4\pi} \frac{k}{k_0} e^{-\beta/2} S_s(Q, \omega) \quad (19)$$

Kohärente Neutronenstreuung enthält die interferenzfähige Streuung an verschiedenen Teilchen, deren Dynamik durch $G_d(\underline{r}, t)$ beschrieben wird, so daß dieser Anteil in die Fouriertransformation der zeitabhängigen Paarverteilungsfunktion mit hineingenommen werden muß.

$$\left. \frac{\delta^2 \sigma}{\delta \Omega \delta E} \right|_{\text{coh}} = \frac{\sigma_{\text{coh}}}{4\pi} \frac{k}{k_0} e^{-\beta/2} S(Q, \omega) \quad (20)$$

Hierbei wurde der totale Streuquerschnitt σ_b in einen inkohärenten σ_{inc} und einen kohärenten Streuquerschnitt σ_{coh} der gebundenen Teilchen aufgeteilt, so daß der gemessenen doppelt-differentielle Wirkungsquerschnitt die Summe beider Anteile ist.

$$\frac{\delta^2 \sigma}{\delta \Omega \delta E} = \frac{k}{k_0} e^{-\beta/2} \left(\frac{\sigma_{\text{inc}}}{4\pi} S_s(Q, \omega) + \frac{\sigma_{\text{coh}}}{4\pi} S(Q, \omega) \right) \quad (21)$$

Da der inkohärente Streuquerschnitt des Rubidiums gegen den kohärenten vernachlässigt werden kann (Cocking 67), muß der gemessene doppelt-differentielle Wirkungsquerschnitt dem kohärenten Streugesetz zugeordnet werden, d.h. es kann Gl. (20) anstelle von Gl. (21) benutzt werden.

Bei der Suche nach Modellen für das Streugesetz ungeordneter, wechselwirkender Systeme ist es wichtig, dessen analytische Eigenschaften zu kennen. Eine hervorragende Rolle spielen dabei seine Frequenzmomente

$$\langle \omega^n \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \omega^n S(Q, \omega) d\omega \quad (22)$$

n ist die Ordnung des Moments.

Außer durch direkte Integration des Streugesetzes können seine Frequenzmomente auch mit Hilfe statischer Korrelationsfunktionen und eines Paarpotentials $u(r)$ berechnet werden (Placzek 52, de Gennes 59, Forster et al. 68, Bansal und Pathak 74, Bansal und Pathak 75). Dabei wird vorausgesetzt, daß die Geschwindigkeiten verschiedener Teilchen nicht miteinander korreliert sind.

Im klassischen Grenzfall ($\beta \ll 1$) ist das Streugesetz symmetrisch (s. Gl. (7)). Nach Gl. (22) entfallen dann die ungeraden Frequenzmomente. Die folgenden Momente werden für einen kohärenten Streuer angegeben.

Das nullte Moment ist der Strukturfaktor (Gl. (17)).

$$\langle \omega^0 \rangle = S(Q) \quad (23)$$

Das zweite Moment entspricht dem mittleren Energieübertrag auf ein freies Teilchen bei gegebenem Impulsübertrag

$$\langle \omega^2 \rangle = \frac{kT}{M} Q^2 \quad (24)$$

Das vierte Moment des Streugesetzes für eine Flüssigkeit enthält die zweite Ableitung des Paarpotentials u und damit als erstes Information über die Dynamik des Systems

$$\langle \omega^4 \rangle = \langle \omega^2 \rangle (3 \langle \omega^2 \rangle + \frac{\bar{n}}{M} \int d\underline{r} g(r) \frac{\delta^2 u}{\delta z^2} (1 - \cos \underline{Q} \cdot \underline{r})) \quad (25)$$

\bar{n} ist hier die Teilchenzahldichte und M die Masse des Streuers.

Momente mit $n > 4$ enthalten Ableitungen höherer Ordnung des Paarpotentials und Mehrteilchenkorrelationen und können daher nur mit großen Vereinfachungen berechnet werden (z.B. Bansal 73 a, Bansal 73 b).

In den meisten Modellen für das Streugesetz einer Flüssigkeit werden statt der Frequenzmomente ihre Quotienten benutzt, insbesondere das Verhältnis des zweiten zum nullten

$$\omega_0^2 = \frac{\langle \omega^2 \rangle}{\langle \omega_0^2 \rangle} = \frac{kT}{M} \frac{Q^2}{S(Q)} \quad (26)$$

und des vierten zum zweiten Moment

$$\omega_1^2 = \frac{\langle \omega^4 \rangle}{\langle \omega^2 \rangle} = 3\langle \omega^2 \rangle + \frac{\bar{n}}{M} \int d\underline{r} g(r) \frac{\delta^2 u}{\delta z^2} (1 - \cos \underline{Q} \cdot \underline{r}) \quad (27)$$

Die letzte Gleichung erinnert an die Dispersionsbeziehung der Phononen in einem Kristall. Der erste Summand entspricht der Dispersion eines freien Teilchens und wird - wie die Mehrphononenbeiträge für $T \gg 0$ den Einphononenanteil - bei großen Impulsüberträgen den Potentialanteil überwiegen.

I.4 Streugesetz eines Polykristalls

In einem Bravais Gitter kann der Ortsvektor \underline{R} eines Streuers durch die Gleichgewichtslage \underline{l} des Kernes und seine Auslenkung \underline{s} aus dieser Gleichgewichtslage charakterisiert werden.

$$\underline{R} = \underline{l} + \underline{s}$$

In diesem Fall werden nur die Operatoren der Auslenkung \bar{s} in die Mittelwertbildung in Gl. (6) miteinbezogen.

$$S(Q, \omega) = \left| \sum_{\underline{l}} e^{i\underline{Q}\underline{r}} e^{-W} \right|^2 \delta(\omega) + \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} e^{-2W} \sum_{\underline{l}} \sum_{\underline{m}} e^{-i\underline{Q}(\underline{l}-\underline{m})} (e^{\langle \underline{Q}\bar{s}(\underline{l},0) \underline{Q}\bar{s}(\underline{m},t) \rangle - 1}) \quad (28)$$

Der erste Term entspricht $G(\underline{r}, \infty)$, d.h. der elastischen Streuung, der zweite $G'(\underline{r}, t) = G(\underline{r}, t) - G(\underline{r}, \infty)$ und beschreibt die unelastische Streuung. $\text{Exp}(-2W)$ ist der Debye-Waller Faktor.

Mit $l = m$ folgt aus Gl. (28) der Selbstanteil des Streugesetzes.

$$S_S(Q, \omega) = e^{-2W} \delta(\omega) + \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} e^{-2W} \sum_l (e^{<Q\bar{s}(l,0)Q\bar{s}(l,t)>-1}) \quad (29)$$

Um das Streugesetz weiter berechnen zu können, müssen die Auslenkungen \underline{s} durch meßbare Größen beschrieben werden. Diesen Zusammenhang stellt die Theorie der Gitterdynamik her.

In dieser Theorie werden die Auslenkungen der Gitterbausteine in harmonischer Näherung durch $3N$ nicht miteinander wechselwirkende Oszillatoren beschrieben, deren Energiequanten, die Phononen, z.B. durch unelastische Neutronenstreuung in Einkristallen gemessen werden können. Aus den Bewegungsgleichungen für die Kerne im Gitter

$$M \ddot{s}_\alpha(l) = - \sum_\beta \sum_{l'} A_{\alpha\beta}(l, l') s_\beta(l')$$

folgt die Bestimmungsgleichung für die Frequenzen $\omega_j(q)$ und die Polarisationsvektoren $\sigma_\alpha^j(q)$ der Auslenkungen.

$$\omega_j^2(q) \sigma_\alpha^j(q) = \sum_\beta D_{\alpha\beta}(q) \sigma_\beta^j(q) \quad (30)$$

Der Index j berücksichtigt die verschiedenen Zweige der Dispersion und q ist der Wellenvektor des Phonons. $D_{\alpha\beta}(q)$ ist die dynamische Matrix, die Fouriertransformierte der zweiten Ableitung $A_{\alpha\beta}$ der Paarpotentiale. Sind diese bekannt, so können die Phononenfrequenzen und die zugehörigen Polarisationsvektoren nach Gl. (30) durch Diagonalisieren der dynamischen Matrix berechnet werden. Sind die Paarpotentiale nicht bekannt, so müssen Modelle (z.B. Born von Kármán) zur Berechnung der Matrixelemente in Gl. (30) herangezogen werden.

Entwickelt man die Exponentialfunktion in Gl. (28) und (29), die die Auslenkungen der Kerne im Gitter enthält, und berechnet die Korrelationen mit Hilfe der Theorie der Gitterdynamik, so erhält man die Phononenentwicklung des Streugesetzes (Sjölander 58).

Für ein kohärent streuendes Bravais Gitter sind die ersten beiden Glieder dieser Entwicklung

$$\begin{aligned}
 S^{0,1}(Q, \omega) &= \frac{(2\pi)^3}{v_0} \left(\sum_{\underline{\tau}} e^{-2W} \delta(Q - \underline{\tau}) \delta(\omega) \right) \quad (31) \\
 &+ \frac{1}{2M} \sum_{\underline{\tau}} e^{-2W} \sum_{\underline{j}} \sum_{\underline{q}} \frac{|Q \sigma^{\underline{j}}(\underline{q})|^2}{\omega_{\underline{j}}(\underline{q})} \frac{1}{e^{\beta_{\underline{j}}(\underline{q})/2} - e^{-\beta_{\underline{j}}(\underline{q})/2}} \\
 &\cdot \delta(\omega \pm \omega_{\underline{j}}(\underline{q})) \delta(Q \pm \underline{q} - \underline{\tau})
 \end{aligned}$$

v_0 ist das Volumen der Einheitszelle und $\underline{\tau}$ sind reziproke Gittervektoren. Das Plus- und Minuszeichen in den Delta-Funktionen, die den Energie- und den Impulssatz enthalten, berücksichtigen Phononenvernichtung und -erzeugung.

Der Einphononenanteil des Streugesetzes eines kohärent streuenden Polykristalls ist daher (de Wette, Rahman 68)

$$S^1(Q, \omega) = e^{-2W} \frac{\hbar Q^2}{2M} \frac{F(Q, \omega)}{\omega(e^{\beta/2} - e^{-\beta/2})} \quad (32)$$

$$F(Q, \omega) = \left\langle \sum_{\underline{j}} (\hat{Q} \cdot \sigma^{\underline{j}}(\underline{Q}))^2 \delta(\omega - \omega_{\underline{j}}(\underline{Q})) \right\rangle \quad (33)$$

\hat{Q} ist der Einheitsvektor in Richtung von \underline{Q} . $F(Q, \omega)$ kann als eine impulsübertragsabhängige Zustandsdichte eines Polykristalls interpretiert werden. Die eckigen Klammern deuten an, daß diese Zustandsdichte bei festgehaltener Kristallorientierung über alle Richtungen von \underline{Q} gemittelt wird.

Da die Polarisationsvektoren normiert sind, gilt

$$\int_0^{\infty} F(Q, \omega) d\omega = 1 \quad (34)$$

Die Wahrscheinlichkeit für Mehrphononenprozesse mit gleichen Phononen ist proportional zu $1/N$. Prozesse mit verschiedenen Phononen lockern die Restriktion der Delta-Funktion $\delta(Q \pm \underline{q} - \underline{\tau})$. Deshalb können Mehrphononenprozesse eines kohärenten Streuers in inkohärenter Näherung berechnet werden (Turchin 65). Da die Delta-Funktion $\delta(Q \pm \underline{q} - \underline{\tau})$ im Selbstanteil des Streugesetzes fehlt, können die Summationen in Gl. (31) ausgeführt werden. Für ein Bravais Gitter ist der Mittelwert von $(\underline{Q} \cdot \underline{\sigma})^2$ gleich $Q^2/3$. Aus den Summen über die zweite Deltafunktion $\delta(\omega - \omega_{\underline{j}}(\underline{q}))$ folgt die Zustandsdichte $F(\omega)$

$$F(\omega) = \frac{1}{3N} \sum_j \sum_{\underline{q}} \delta(\omega - \omega_j(\underline{q})) \quad (35)$$

Für die Phononenentwicklung des Streugesetzes eines inkohärent streuenden Polykristalls erhält man daher (Turchin 65)

$$S_s(Q, \omega) = e^{-2W} \left(\delta(\omega) + \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{\hbar Q^2}{2M} \right)^n \frac{f_n(\omega)}{n!} \right) \quad (36)$$

$$f_n(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' f_{n-1}(\omega') f(\omega - \omega') \quad (37)$$

ist die Faltung der Verteilungen $f(\omega)$, die im wesentlichen die Zustandsdichte $F(\omega)$ enthalten.

$$f_1(\omega) = \frac{F(\omega)}{(e^{\beta/2} - e^{-\beta/2})} \quad f_0(\omega) = \delta(\omega) \quad (38)$$

Dabei wechselwirken die Gitterschwingungen in den Mehrphononenprozessen nicht miteinander, d.h. das Streugesetz enthält keine Beiträge der anharmonischen Gitterdynamik.

Zur Berechnung des Streugesetzes werden die Polarisationsvektoren $\sigma_j(\underline{q})$, die Eigenfrequenzen $\omega_j(\underline{q})$ und deren Zustandsdichte $F(\omega)$ benötigt. Ist die dynamische Matrix bekannt, so können sie nach Gl. (30) berechnet werden.

I.5 Streugesetz einer einfachen, kohärent streuenden Flüssigkeit

Die Bewegungen der Atome in einer Flüssigkeit und damit deren zeitabhängige Paarverteilungsfunktion mikroskopisch zu beschreiben, wie das mit Hilfe der Phononen in der Theorie der Gitterdynamik für Kristalle erreicht wird, ist bisher noch nicht befriedigend gelungen.

Es gibt aber einige halbphänomenologische Ansätze, die zu einer großen Zahl phänomenologischer Modelle geführt haben. In diesen Modellen wird versucht, den Bereich der Energie- und Impulsüberträge zwischen den bekannten Grenzfällen des Streugesetzes zu überbrücken. Für kleine Q und $\hbar\omega$, im hydrodynamischen Grenzfall, kann das Streugesetz aus den linearisierten hydrodynamischen Gleichungen berechnet werden (Kadanoff, Martin 63).

Für große Impulsüberträge, im Gas-Grenzfall, wird das Streugesetz aller Substanzen durch die Dynamik wechselwirkungsfreier Teilchen beschrieben. Drei Modelle, die in der letzten Zeit häufiger benutzt wurden, sollen im folgenden mit ihrer Ausgangsbasis charakterisiert werden.

Die Mehrzahl der Modelle basiert auf der Projektions-Operator-Technik (Zwanzig 61, Mori 65), in der versucht wird, durch Herausprojizieren schnell fluktuierender Anteile dynamischer Variablen A langsamere Relaxationsprozesse zu beschreiben.

Ausgehend von Zwanzigs (61) Gedächtnisfunktion $K(t)$ beschrieb Mori (65a) die Zeitentwicklung einer dynamischen Variablen $A(t)$ (z.B. lokale Dichte oder Teilchenstrom) mit Hilfe dieser Gedächtnisfunktion:

$$\frac{\delta}{\delta t} A(t) = i\Omega A(t) - \int_0^t dt' A(t-t') K(t') + F(t) \quad (39)$$

Ω ist eine Resonanzfrequenz.

Gl. (39) hat die Form der Gleichung, die Langevin zur Berechnung der Brownschen Bewegung eines schweren Teilchens ($M_{Br} \gg M_{Fl}$) in einer Flüssigkeit aufstellte, und wird deshalb verallgemeinerte Langevin-Gleichung genannt. Sie dient hier zur Beschreibung eines Flüssigkeitsteilchens in Wechselwirkung mit anderen ($M_{Br} = M_{Fl}$). Anstelle der makroskopischen Zähigkeit beschreibt daher das Integral über die Gedächtnisfunktion die Dämpfung der Bewegung. $F(t)$ ist die statistische Kraft, die auf das Teilchen wirkt, die Fluktuationen in der Flüssigkeit. Die Korrelation dieser statistischen Kraft bestimmt die Gedächtnisfunktion (Kubo 66)

$$K(t-t') = \langle F(t) F(t') \rangle / \langle A(0) A(0) \rangle \quad (40)$$

Vollständig unkorrelierte Kräfte führen daher zu einer Deltafunktion für die Gedächtnisfunktion und nach Gl. (39) zu einem exponentiellen Abfall der Korrelationsfunktion, der Markoff-Prozesse charakterisiert (Doob 42). Vorgänge mit einer Gedächtnisfunktion, die Gedächtniseffekte nicht vernachlässigt, sind daher keine Markoff-Prozesse.

Mori (65b) hat gezeigt, daß die Laplace-Transformierte der Gedächtnisfunktion in einen Kettenbruch zerlegt werden kann, der die systematische Näherung der Gedächtnisfunktion ermöglicht. Die einzelnen Glieder des Kettenbruchs sind durch Frequenzmomente bestimmt, so daß nach Abbruch der Zerlegung nach n Gliedern $2n-2$ Frequenzmomente erfüllt sind (Sears 69). Da nur einige Frequenzmomente berechnet werden können, wird die Kettenbruchzerlegung nach wenigen Gliedern abgebrochen und der Rest durch eine einfache Funktion an-

genähert. Das Streugesetz wird mit Hilfe der Fouriertransformierten der Gedächtnisfunktion $K(\omega) = K'(\omega) + iK''(\omega)$ berechnet (z.B. Rowe et al. 72)

$$S(Q, \omega) = \frac{S(Q)}{\pi} \omega_0^2 \frac{(\omega_1^2 - \omega_0^2)K'(\omega)}{(\omega^2 - \omega_0^2 + \omega(\omega_1^2 - \omega_0^2)K''(\omega))^2 + (\omega(\omega_1^2 - \omega_0^2)K'(\omega))^2} \quad (41)$$

Mit $(\omega_1^2 - \omega_0^2)K(\omega) = Q^2\Gamma(\omega)$ geht Gl. (41) in das Streugesetz über, das Kadanoff und Martin (63) aus den linearisierten hydrodynamischen Gleichungen abgeleitet haben (Sears 69). Im Gegensatz zu den Streugesetzmodellen, die auf eine Näherung mit einem mittleren Feld zurückgehen und weiter unten besprochen werden, enthalten daher Streugesetze, die auf der verallgemeinerten Langevin-Gleichung und auf Gedächtnisfunktionen basieren, ihrer Struktur nach den hydrodynamischen Grenzfall.

In den beiden folgenden Modellen wird die Gedächtnisfunktion durch eine Exponentialfunktion mit einer Relaxationszeit τ genähert, die eine Funktion des Impulsübertrags ist.

Sears (69) beschreibt die Gedächtnisfunktion durch eine Summe zweier Exponentialfunktionen mit zwei Relaxationszeiten

$$K(t) = \frac{1}{\omega_1^2 - \omega_0^2} \left((\gamma - 1) \omega_0^2 e^{-t/\tau_1(Q)} + (\omega_1^2 - \gamma \omega_0^2) e^{-t/\tau_2(Q)} \right) \quad (42)$$

γ ist das Verhältnis der spezifischen Wärmen. Die Relaxationszeiten τ_1 und τ_2 werden mit Hilfe makroskopischer Größen und der Frequenzmomente beschrieben, so daß dieses Modell die Frequenzmomente bis zum vierten erfüllt.

$$\frac{1}{\tau_1(Q)} = \frac{\epsilon v a Q^2}{\epsilon v + a Q} \quad (43)$$

$\epsilon = 2/\sqrt{\pi}$ ist ein Normierungsfaktor des Streugesetzes bei $\hbar\omega = 0$,
 $v = \sqrt{2 k_B T / m}$ die mittlere thermische Geschwindigkeit und $a = \lambda / \rho C_V$ ist bestimmt durch die thermische Leitfähigkeit λ , die Dichte ρ und die spezifische Wärme bei konstantem Volumen C_V .

$$\frac{1}{\tau_2(Q)} = \sqrt{\frac{(C_\infty^2(0) - \gamma C_0^2(0))^2}{b^2} + (\epsilon v Q)^2} \quad (44)$$

Hierin sind die adiabatische $c_{\infty}^2(Q) = \omega_1^2/Q^2$ und die isotherme Schallgeschwindigkeit $c_0^2(Q) = \omega_0^2/Q^2$ für $Q = 0$ zu nehmen und $b = (3/4 \eta + \zeta)/\rho$ enthält die Scherviskosität η und die Volumenviskosität ζ .

Neben den Frequenzmomenten wurden der hydrodynamische und der Gas-Grenzfall zur Bestimmung der Modellparameter herangezogen, so daß beide Grenzfälle in diesem Modell enthalten sind.

Mit $\gamma = 1$ folgt aus Gl. (42) die Gedächtnisfunktion des Streugesetzmodells von Lovesey (71), wenn für $1/\tau_2(Q)$

$$\frac{1}{\tau_L(Q)} = \epsilon \sqrt{\omega_1^2 - \omega_0^2} \quad (45)$$

eingesetzt wird. Das Modell erfüllt die Frequenzmomente des Streugesetzes bis zum vierten und für $\hbar\omega = 0$ auch den Gas-Grenzfall, wenn in Gl. (45) $\epsilon = 2/\sqrt{\pi}$ gewählt wird. Die Tripletstruktur des Streugesetzes im hydrodynamischen Grenzfall wird von dem Modell wiedergegeben, ohne die Wärmeleitfähigkeit zu berücksichtigen (s. Gl. (43)).

Eine zweite Gruppe von Modellen basiert auf der Berechnung der Antwortfunktion eines Systems in linearer Näherung mit Hilfe eines mittleren Feldes (mean-field approximation). Die Näherung geht von einer Gleichung für die Antwortfunktion oder verallgemeinerte Suszeptibilität des Systems $\chi(Q, \omega)$ aus, die die Form einer Dyson Gleichung hat (Kugler 72)

$$\chi(Q, \omega) = \chi'(Q, \omega) + i\chi''(Q, \omega) = \frac{\chi_0(Q, \omega)}{1 - \phi(Q, \omega) \chi_0(Q, \omega)} \quad (46)$$

$\chi_0(Q, \omega) = \chi_0'(Q, \omega) + i\chi_0''(Q, \omega)$ ist die Antwortfunktion wechselwirkungsfreier Teilchen und $\phi(Q, \omega) = \phi'(Q, \omega) + i\phi''(Q, \omega)$ ist eine effektive Wechselwirkung, die im allgemeinen vom Impuls- und vom Energieübertrag abhängt. Mit Hilfe der Kramers-Kronig-Beziehung läßt sich die Antwortfunktion aus ihrem Real- oder Imaginärteil berechnen. Den Zusammenhang des Streugesetzes mit dem Imaginärteil der Antwortfunktion liefert das Dissipations-Fluktuations-Theorem

$$S(Q, \omega) = \frac{2\hbar}{\bar{n}(1-e^{-\beta})} \chi''(Q, \omega) \approx \frac{2k_B T}{\bar{n}\omega} \chi''(Q, \omega) \quad (47)$$

Der letzte Teil der Gl. (47) gilt im klassischen Grenzfall ($\hbar\omega \ll k_B T$), in dem das Streugesetz daher allgemein geschrieben werden kann als

$$S(Q, \omega) = \frac{2k_B T}{\bar{n} \omega} \frac{\chi_0'' - \phi''(\chi_0'^2 + \chi_0''^2)}{(1 + \phi' \chi_0' - \phi'' \chi_0'')^2 + (\phi'' \chi_0' + \phi' \chi_0'')^2} \quad (48)$$

Bei der näherungsweisen Berechnung der Gl. (48) wird der Imaginärteil der effektiven Wechselwirkung und die Energieabhängigkeit ihres Realteils nicht berücksichtigt. Kugler hat gezeigt, daß die Vernachlässigung von ϕ'' dem Fortfall der Dämpfung der Teilchenbewegungen durch Stöße entspricht. Diese überwiegt bei kleinen Impulsüberträgen die Landau Dämpfung, die im Modell enthalten und bei größeren Impulsüberträgen entscheidend ist. Die drastische Näherung für die effektive Wechselwirkung wird dadurch etwas ausgeglichen, daß ein Teil der Wechselwirkung zwischen den Teilchen in einer abgeschirmten Antwortfunktion χ_{sc} berücksichtigt wird, die χ_0 ersetzt.

Wird der Rest der effektiven Wechselwirkung $\psi(Q)$ genannt, so ist das Streugesetz in dieser Näherung

$$S(Q, \omega) = \frac{2k_B T}{\bar{n} \omega} \frac{\chi_{sc}''(Q, \omega)}{(1 + \psi(Q) \chi_{sc}'(Q, \omega))^2 + (\psi(Q) \chi_{sc}''(Q, \omega))^2} \quad (49)$$

Um das Streugesetz nach Gl. (49) berechnen zu können, muß man daher Annahmen über den Imaginär- oder Realteil der Antwortfunktion χ_{sc} und über das effektive Potential $\psi(Q)$ machen.

Pathak und Singwi (70) bestimmen in ihrem Modell $\psi(Q)$ mit Hilfe des nullten Moments. Die Antwortfunktion der wechselwirkungsfreien Teilchen wurde dahingehend geändert, daß die Breite der Gauß-Funktion in χ_0'' durch eine zusätzliche Breite $\Gamma(Q)$ renormiert wurde, d.h. die Bewegung der freien Teilchen gedämpft wurden.

Die Breite $\Gamma(Q)$ wurde so festgelegt, daß das Modell auch das vierte Frequenzmoment des Streugesetzes erfüllt

$$\psi(Q) = \frac{M}{2\bar{n}} (3 c_0^2(Q) - c_\infty^2(Q)) \quad (50)$$

$$\Gamma(Q) = \omega_1^2 - \omega_0^2 (1 + 2S(Q)) \quad (51)$$

Im klassischen Grenzfall enthält die Antwortfunktion eine Gaußbreite, die der Relaxationsfunktion in Lovesey's Modell entspricht.

$$\chi'_{SC}(Q, \omega) = \frac{2\bar{n}}{M} ((Q\tau_{PS}(Q))^2 - \sqrt{\pi}\omega Q^2 \tau_{PS}(Q) e^{-(\omega\tau_{PS}(Q))^2} \text{cerf}(\omega\tau_{PS}(Q))) \quad (52a)$$

$\text{cerf}(\omega\tau_{PS}(Q))$ ist die komplexe Fehlerfunktion

$$\chi''_{SC}(Q, \omega) = \frac{2\bar{n}}{M} \sqrt{\pi} \omega Q^2 \tau_{PS}^3(Q) e^{-(\omega\tau_{PS}(Q))^2} \quad (52b)$$

$$\frac{1}{\tau_{PS}(Q)} = \sqrt{\omega_1^2 - \omega_0^2} = \sqrt{\Gamma(Q) + 2\omega_0^2 S(Q)} \quad (53)$$

Für $\omega = 0$ stimmt dieses Modell mit Lovesey's überein, wenn dort $\varepsilon = 2/\sqrt{\pi}$ gewählt wurde. Die Dämpfung der freien Teilchenbewegung und die Näherung für die effektive Wechselwirkung zeigen, daß Pathak's und Singwi's Modell einer Extrapolation des Gas-Grenzfalls, in dem das Modell exakt ist ($\Gamma(\infty) = 0$), in den interessierenden Bereich der Impuls- und Energieüberträge entspricht. Der hydrodynamische Grenzfall ist in dem Modell nicht enthalten.

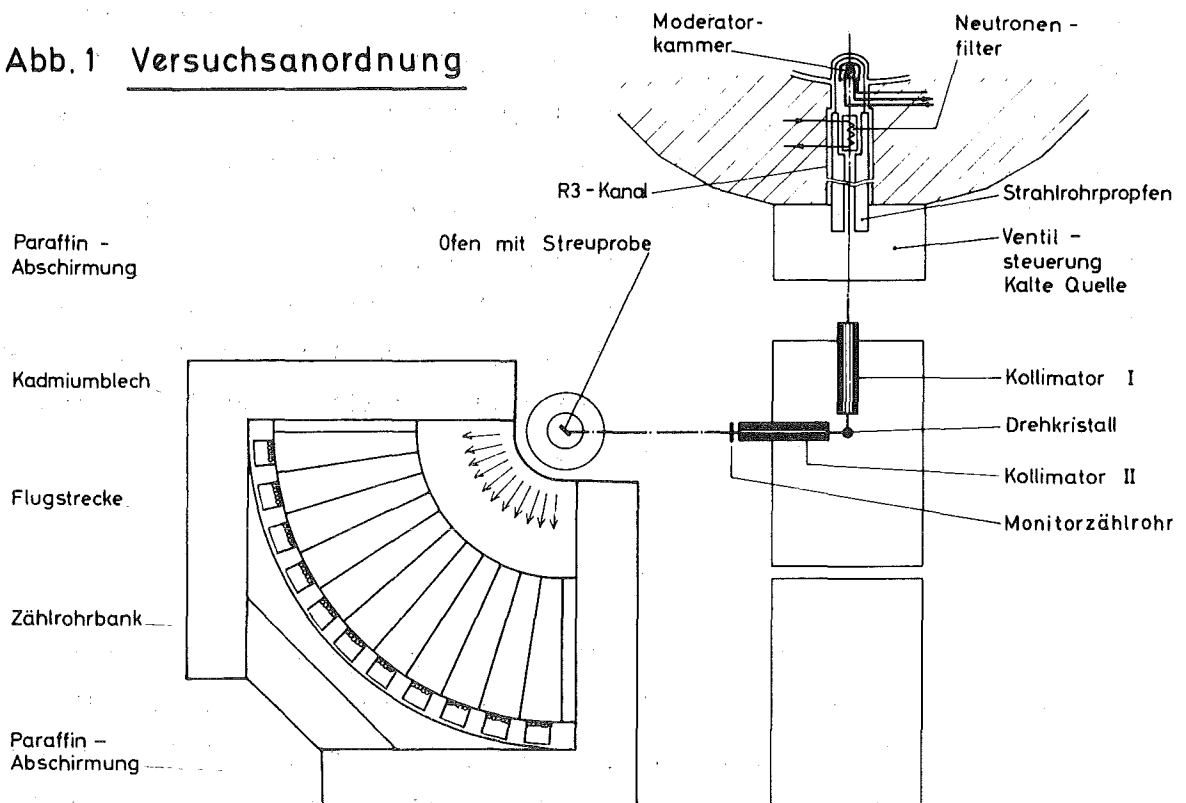
II. EXPERIMENT UND AUSWERTUNG

II.1 Drehkristallflugzeitspektrometer

Die Messungen wurden mit dem Drehkristallflugzeitspektrometer an der kalten Quelle des FR2 in Karlsruhe gemacht. Da das Spektrometer schon in zwei anderen Arbeiten beschrieben wurde, (Kapulla 72, Hagen 73), soll hier nur das Prinzip einer solchen Multidetektoranordnung skizziert werden.

Ein rotierender Einkristall (s. Abb. 1) reflektiert, gemäß der Bragg-Bedingung, je Umdrehung zwei Pulse monochromatischer Neutronen mit der Einfallenergie E_0 aus dem Reaktorneutronenstrahl in Richtung der Probe. Ein Teil der Neutronen wird in der Probensubstanz und deren Halterung gestreut. Ein Teil der gestreuten Neutronen wird nach Durchlaufen des sekundären Flugwegs in den Detektoren absorbiert. Die Detektorbänke sind auf einem Kreisabschnitt montiert, in dessen Mitte die Probe steht. Im Spektrometer

Abb.1 Versuchsanordnung



sind Cadmium Bleche vertikal radial angebracht, so daß nur solche Neutronen den Detektor erreichen können, die direkt aus dem Probenraum kommen.

Gemessen wird die Zahl der gestreuten Neutronen in Abhängigkeit von ihrem Streuwinkel und von ihrer Laufzeit zwischen Probe und Detektor, d.h. ihrer Energie nach der Streuung. Den Start der Laufzeitmessung bestimmt ein Triggerimpuls, der mit jedem Neutronenimpuls an dem Drehkristall abgenommen wird. Zur Berechnung des Wirkungsquerschnitts aus der Zahl der gestreuten Neutronen wird die Zahl der Neutronen benötigt, die auf die Proben fallen. Die relative Intensität des Primärstrahles wird deshalb vom Monitor registriert. Ein zweiter Monitor kontrolliert den Fluß der ungestreuten Neutronen hinter der Probe. Die Absorption eines Neutrons im Detektor löst dort einen Impuls aus, der, verstärkt in der nachfolgenden Elektronik, nach Detektor und Laufzeit des Neutrons sortiert und einer Rechenmaschine zum Speichern der Spektren zugeführt wird. Am Ende der Messung werden die Spektren auf ein Magnetband geschrieben, das als Eingabe für die Auswertung dient.

In diesem Experiment waren 19 Detektorbänke zwischen 6° und 87° aufgestellt. Sie hatten einen Winkelabstand von 4.5° und der Abstand zwischen Proben- und Zählrohrmitte (sekundärer Flugweg) war im Mittel 201.7 cm. Jeweils 3 He^3 -Detektoren (2.5 cm Durchmesser, 30 cm aktive Länge, 4 atm He^3 -Gasdruck, $\sigma_a(25.3 \text{ meV}) = 5327 \text{ b}$) waren zu einer Detektorbank zusammengefaßt. Die einfallenden Neutronen hatten eine Energie von 5.1 meV. Neutronen mit Energien $E > 5.2 \text{ meV}$ waren von einem Berylliumfilter hinter dem Wasserstoffbehälter der kalten Quelle aus dem Reaktorstrahl reflektiert worden, so daß keine Neutronen der höheren Ordnungen ($\lambda/2$, $\lambda/4$ usw.) im monochromatischen Strahl waren. Für Messungen mit Streuwinkeln oberhalb 87° mußte das Spektrometer um 90° gedreht werden (Reflexionsstellung).

II.2 Streuprobe

Das chemisch aktive Rubidium wurde flüssig unter Argon-Schutzgas in eine Vanadiumküvette gefüllt und dort luftdicht eingeschlossen. Die Rubidiumprobe nahm in der Küvette ein Volumen von $4 \times 6 \times 1 \text{ cm}$ ein. Bei einem Streuquerschnitt von $6.2 \pm 0.3 \text{ b}$ (BNL 325) streut eine 1 cm dicke Rubidiumschiicht etwa 8 % der auftreffenden Neutronen. Eine Cadmiumblende begrenzte direkt vor der Probe den monochromatischen Neutronenstrahl auf eine Fläche von $3 \times 5 \text{ cm}^2$.

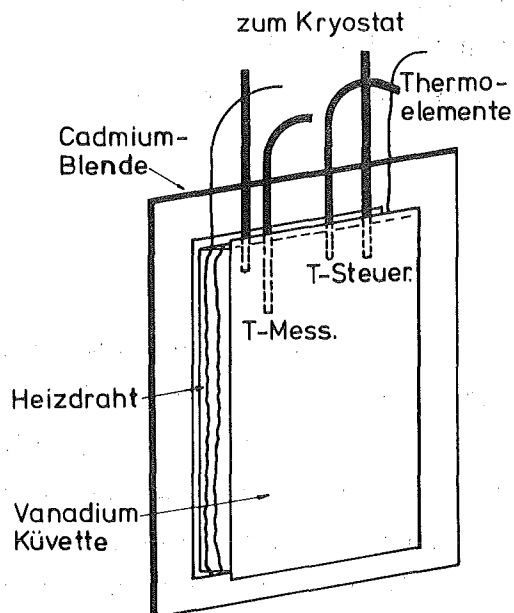


Abb. 2 Streuprobe

Die Küvette war im inneren Topf eines Stickstoffkryostaten thermisch isoliert befestigt. Bei der Tieftemperaturmessung übertrug Heliumgas die Temperatur des Kryostaten gradientenfrei auf die Probe. Bei den Messungen bei Zimmertemperatur und oberhalb des Schmelzpunktes diente das Vakuum zwischen dem inneren und äußeren Kryostatentopf als sehr gute thermische Isolierung. Die hinteren Wände der beiden Kryostatentöpfe wurden bei Messungen in Reflexionsstellung des Spektrometers (Streuwinkel größer 90°) mit Cadmium abgedeckt, so daß keine Bragg-Reflexe des Aluminiums dieser Wände in die Zähler gelangen konnten. Die Bragg-Reflexe der Vorderwände waren bei diesen Messungen in drei Detektoren zu sehen und mußten herauskorrigiert werden.

Die Proben temperatur wurde mit einem Thermoelement gemessen, das in einer dünnen Vanadiumhülle oberhalb des Neutronenstrahls bis in das Rubidium geführt war (s. Abb. 2). Ein zweites Thermoelement war auf der anderen Seite der Küvette in der Nähe des Heizdrahts befestigt. Mit diesem wurde die Temperatur der Küvette gesteuert. Der Lichtzeiger eines Galvanometers schaltete die Heizleistung über zwei Endkontakte zwischen zwei Transformatoren hin und her,

deren Leistung etwas oberhalb und etwas unterhalb der gewünschten Heizleistung eingestellt war. Dieses Verfahren hielt die Regelschwankungen unter ± 0.2 K. Die Temperatur wurde auf ± 1 K bestimmt.

II.3 Messungen

In jedem Winkelbereich wurde das Rubidium bei drei verschiedenen Temperaturen gemessen: bei 123 K, 294 K und in der Flüssigkeit bei 318 K. Vor der Messung 6 K über dem Schmelzpunkt wurde die Probe auf ca. 340 K erwärmt, so daß die Flüssigkeit von höheren Temperaturen der Endtemperatur genähert wurde. Um sicher zu sein, daß bei der Zimmertemperaturmessung festes Rubidium vorlag, wurde es vor der Messung abgekühlt und von niedrigeren Temperaturen bis zu der Meßtemperatur erwärmt. Zu jeder Probenmessung wurde eine Leerküvette gemessen, die ein Duplikat der Probenküvette war. Zwischen den einzelnen Probenmessungen wurden Messungen mit einer 2 mm dicken Vanadiumplatte anstelle der Probe gemacht und die zugehörigen Leermessungen. Sie dienten zur Eichung der Detektorbänke .

II.4 Auswertung der Rohdaten

Das Ziel der Messung ist das Streugesetz in Abhängigkeit vom Energieübertrag $\hbar\omega$ und Impulsübertrag $\hbar Q$ der Neutronen auf den Streuer. Deshalb muß die gemessene Zählrate der gestreuten Neutronen in den doppelt-differentiellen Wirkungsquerschnitt und die Parameter des Experiments, die Laufzeit der Neutronen und ihr Streuwinkel θ , mit Hilfe der gemessenen Einfallenergie E_0 in Energie- und Impulsüberträge umgerechnet werden (z.B. Abel, Suck 75):

$$\hbar\omega = E - E_0 \quad (54)$$

$$Q = \sqrt{2m(E + E_0 - 2\sqrt{EE_0}\cos\theta)} \quad (55)$$

$$\frac{\delta^2\sigma}{\delta\Omega\delta E} = \frac{NZR}{\Delta\Omega} \frac{SAF(E,\theta)}{NST NN \varepsilon(E)\Delta E} \quad (56)$$

E ist die Energie des Neutrons nach der Streuung.

$NZR = ZRP - F(E,\theta) \cdot MV \cdot ZRL$ ist die Nettozählrate, die von der Probensubstanz kommt.

Bei den Messungen wurde der zeitunabhängige Untergrund des Spektrometers nicht bestimmt (ungepulste Neutronen im Spektrometer und Impulse aus der Zählrohrelektronik). Deshalb wurde von jedem Spektrum ein konstanter Untergrund so abgezogen, daß mindestens ein Kanalinhalt Null war. Die resultierende Zählrate in den Proben- und Leermessungen wird mit ZRP bzw. ZRL bezeichnet.

$MV = MIP/MIL$ ist das Verhältnis des Monitor-I-Spektrum Inhaltes der Proben (MIP) zur Leermessung (MIL). Diese Größe enthält das Neutronenflußverhältnis bei den beiden Messungen. Der Faktor $F(E, \theta) < 1$ berücksichtigt, daß bei der Probenmessung weniger Neutronen, die in den Küvettenwänden gestreut werden, zum Detektor gelangen als bei der Leermessung, weil sie in der Probensubstanz absorbiert oder aus der Detektorrichtung gestreut werden. Der Faktor wurde für $E = E_0$ berechnet.

Der Faktor $SAF(E, \theta) > 1$ berücksichtigt, daß ein Teil der Neutronen, die in der Probe in Richtung eines Detektors gestreut wurden, den Detektor nicht erreichen, weil sie auf dem Weg durch die Probe und die Küvettenwände absorbiert oder in eine andere Richtung gestreut wurden (Selbstabsorption der Probe). Die Küvettenwände (0.4 mm V) wurden nicht berücksichtigt. Die Korrektur betrug im Mittel 4 % bei allen Messungen.

$\Delta\Omega = \text{Detektorfläche}/(FL2)^2$ ist der Raumwinkel, unter dem die Probenmitte den Detektor sieht.

$NST = n(\rho) \frac{d}{\sin\phi}$ ist die Zahl der Streuer je Flächeneinheit.

Dabei ist $n(\rho)$ die Teilchenzahldichte, d die Probendicke und ϕ der Winkel zwischen der Einfallsrichtung der Neutronen und der Probenrichtung in der Streuebene (Probenwinkel).

$NN = MIP \times FKF$ ist die Zahl der Neutronen, die während der Messung auf die Probenfläche fielen.

Der Faktor FKF ist der Anschluß der relativen Flußintensitätsmessung mit dem Monitor-I an eine Absolutmessung des Neutronenflusses am Ort der Probe (Flußkartenmessung); $\Delta E = t^3/\Delta t$ ist das Energieintervall, das einem Flugzeitkanal mit der Breite Δt und der Flugzeit t zwischen Proben und Detektor entspricht. $\epsilon(E)$ ist die Empfindlichkeit der Detektoren für Neutronen der Energie E .

Detektorempfindlichkeit und Flußkartenmessung

Die relative Empfindlichkeit der Detektoren für Neutronen der Energien E_0 wird aus der Intensität der Linie der elastisch gestreuten Neutronen (elastische Linie) der Vanadiumspektren bestimmt. Alle Messungen werden somit auf den inkohärenten Streuquerschnitt des Vanadiums $\sigma_{inc} = 5.13b$ (BNL 325) bezogen. Der Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen hängt von der Geschwindigkeit der Neutronen ab. Für Absorber geringer Dichte gilt in guter Näherung $\sigma_a \sim 1/\sqrt{E}$ (1/v-Absorber). Die Energieabhängigkeit der Detektorempfindlichkeit wurde nach Carvalho (67) berechnet

$$\epsilon(E) = ASF(E) (1 - e^{-ZF/\sqrt{E}}) \quad (57)$$

Der Faktor $ASF(E) < 1$ berücksichtigt die Absorption und Streuung der Neutronen zwischen Probe und Detektorgas in Kryostaten- oder Spektrometerfenstern, im Spektrometergas und in Zählrohrwänden.

ZF charakterisiert das absorbierende Detektorgas. Dieser Faktor wurde von Carvalho empirisch aus Vanadiummessungen mit verschiedenen Einfallsenergien bestimmt. (z.B. $ZF(\text{He}^3, 4 \text{ atm}) = 5.6$).

Neben der Vanadiummessung wurde zusätzlich die Zahl der Neutronen bestimmt, die je Monitor-I-Impuls auf die Probenfläche fallen. Hierzu wurde das Intensitätsprofil des einfallenden Neutronenstrahls am Ort der Probe gemessen (Flußkartenmessung). Die Empfindlichkeit des Flußkartenzählrohres⁺ wurde nach Beckurts (60) berechnet. Für kleine Werte der Empfindlichkeit gilt die Näherungsformel

$$\epsilon(E) = \frac{\pi}{2} \Sigma(E) R (1 - \frac{8}{3\pi} \Sigma(E)R + \frac{1}{2} \Sigma^2(E)R^2)$$

$\Sigma(E)$ ist der makroskopische Absorptionsquerschnitt des Zählrohrgases ($\sigma_a(25.3 \text{ meV}) = 3837b$).

R ist der Radius des zylindrischen Zählrohrs.

⁺) BF_3 -Zählrohr der Fa. Reuter-Stokes, Typ RSN-137 A.

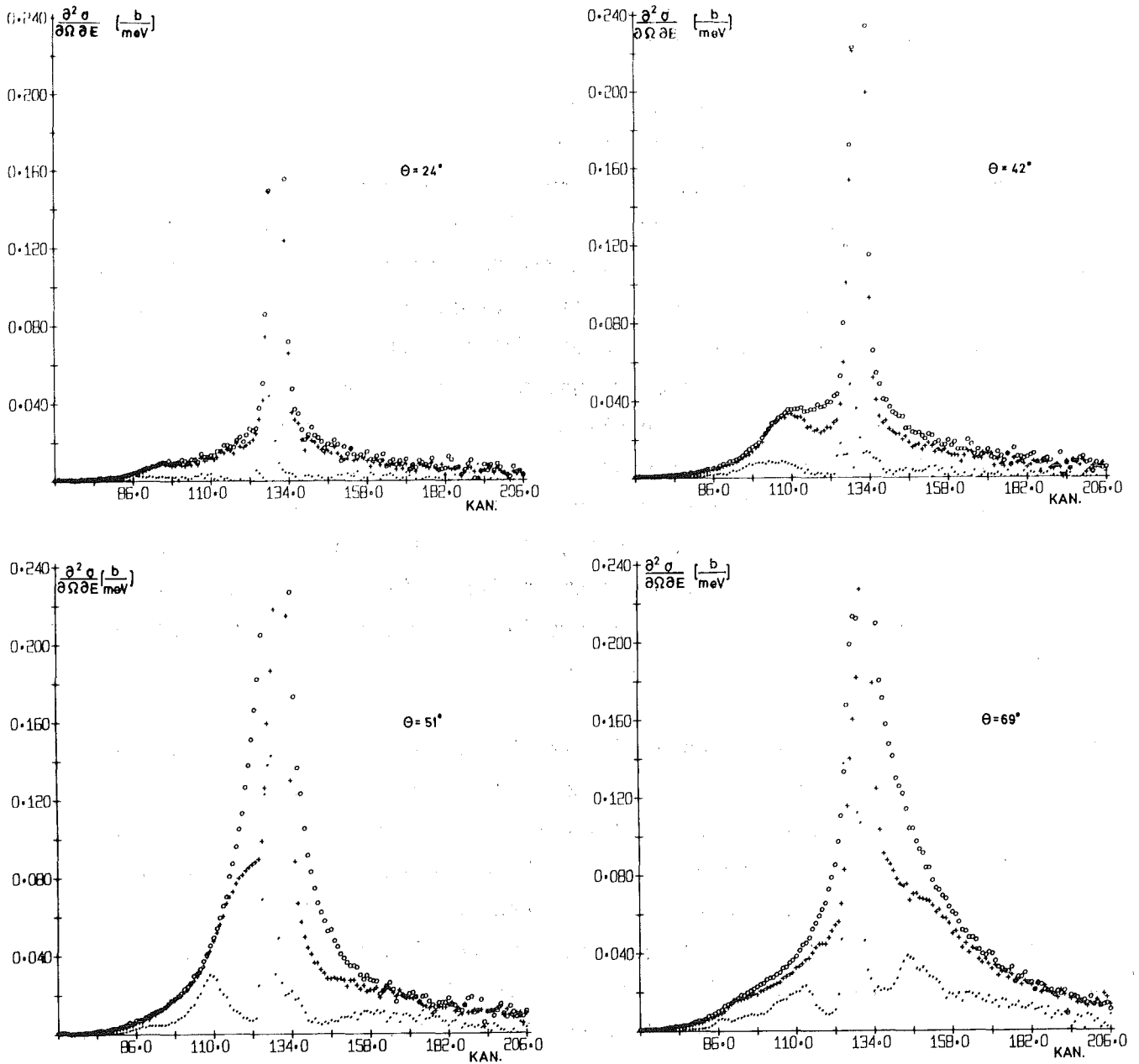


Abb. 3 Flugzeitspektren des Rubidiums bei drei Temperaturen.

Der doppelt-differentielle Wirkungsquerschnitt vor der Mehrfachstreuungkorrektur ist aufgetragen über den Flugzeitkanälen.

.. 123 K, ++ 294 K, oo 318 K.

Der so berechnete doppelt-differentielle Wirkungsquerschnitt ist für vier Streuwinkel der Transmissionsmessungen in Abb. 3 über den Flugzeitkanälen dargestellt. Die elastische Linie der 123 K-Spektren ist im Mittel um fünf Kanäle nach links verschoben im Vergleich zu den anderen beiden Messungen, da bei dieser Messung der Triggerimpuls etwas weniger verzögert war als bei den beiden anderen Messungen. Die Daten sind noch nicht für Mehrfachstreuung der Neutronen korrigiert und enthalten keine Normierungsfaktoren.

II.5 Korrektur für Mehrfachstreuung

Der doppelt-differentielle Wirkungsquerschnitt beschreibt die Wahrscheinlichkeit für einen einfachen Streuprozess in der Probe. Ein Teil der Neutronen wird aber in der Probensubstanz und in den Küvettenwänden mehrmals gestreut. Selbst bei Streuprobe, die wie bei diesem Experiment nur wenige Prozent der einfallenden Neutronen streuen, ist die Mehrfachstreuung der Neutronen nicht zu vernachlässigen. Vor dem Vergleich gemessener Streugesetze mit Streugesetzmodellen und der Berechnung einiger Folgegrößen aus den Meßdaten müssen die doppelt-differentiellen Wirkungsquerschnitte deshalb für Mehrfachstreuung korrigiert werden. Um die Wahrscheinlichkeit für Mehrfachstreuung berechnen zu können, muß sie für Einfachstreuung, d.h. das Streugesetz der Substanz bekannt sein. Dieses ist aber erst nach der Korrektur der Fall. Soll nicht iterativ korrigiert werden (s.z.B. Demichelis et al. 75), so muß anstelle des Streugesetzes ein Modell benutzt werden. Auch in diesem Fall muß die Korrektur wiederholt werden, falls ein oder mehrere Parameter zur Berechnung des Modells aus den Messungen bestimmt werden müssen.

Zur Korrektur der 318 K-Messung wurde das Streugesetzmodell von Pathak und Singwi benutzt, nachdem Voruntersuchungen mit diesem und Lovesey's Modell zwar einen Einfluß des Modells auf das korrigierte Streugesetz bei großen Energiebeträgen, aber keinen qualitativen Unterschied z.B. in den Frequenzmomenten zeigten. In dem Modell werden ω_0 und ω_1 (s. Gl. (26) und (27)) benötigt. Die Parameter für ω_1 (s. Gl. (27)) wurden in zwei Iterationsschritten aus den Messungen bestimmt. Zur Korrektur der 123 K- und der Zimmertemperaturmessung wurde das Modellstreugesetz eines Polykristalls benutzt, das zusammen mit den Streugesetzen für die Flüssigkeit in der Diskussion der Meßergebnisse beschrieben wird.

Das Korrekturprogramm VIPER (Ehret, Carvalho 67) wurde zur Korrektur kohärenter Streuer umgeschrieben. Die Integrale der Zweifachstreuung wurden numerisch berechnet und die Streuung höherer Ordnung nach Vineyard (54) daraus bestimmt. Die Küvettenwände wurden bei der Korrektur nicht berücksichtigt. Korrigiert wurde nach dem Faktorverfahren, bei dem der Meßwert mit einem Korrekturfaktor multipliziert wird, dem Verhältnis der Einfach- zur Gesamtstreuung. Dieses Vorgehen hat den Vorteil gegenüber dem Differenzenverfahren (Abzug des Mehrfachstreuanteils), daß die Daten vor der Korrektur nicht normiert sein müssen. Es hat aber den Nachteil, daß die Modelle einen größeren systematischen Fehler

in der Korrektur verursachen können als beim Differenzenverfahren.

Der Vergleich von Abb.3 mit Abb. 19 zeigt den Einfluß der Mehrfachstreuungskorrektur. Verglichen mit der Einfachstreuung sind die Korrekturen am größten bei kleinen Impuls- und großen Energieüberträgen.

III. ERGEBNISSE UND DISKUSSION

III.1 Streugesetze

Abb. 4 a und 4 b zeigen die Streugesetze des flüssigen und des polykristallinen Rubidiums nach der Mehrfachstreuokorrektur für vier Impulsüberträge zwischen $Q = 1.1$ und $Q = 2.3$ ($1/\text{\AA}$). Die Streugesetze für die übrigen Impulsüberträge zwischen 1.0 und 2.5 ($1/\text{\AA}$) sind in den Abbildungen A1a bis A1f im Anhang zu finden. Die Darstellung des Streugesetzes bei konstantem Impulsübertrag wurde durch Interpolation im zweidimensionalen Feld der Meßwerte bei konstantem Energieübertrag gewonnen (s. Abb. 5). Für jeden der drei Datensätze wurde ein Normierungsfaktor mit Hilfe des zweiten Moments berechnet. Dadurch wurde das Streugesetz der Flüssigkeit z.B. als ganzes um 14 % abgesenkt.

Alle Streugesetze ändern sich deutlich mit dem Impulsübertrag im Bereich der elastischen bzw. quasielastischen Streuung und im unelastischen Anteil des Spektrums. Das charakterisiert die kohärente, interferierende Streuung. Für die Flüssigkeit ist dieses zur Verdeutlichung noch einmal in Abb. 4 dargestellt. Besonders stark ändert sich die Form des Streugesetzes mit dem Impulsübertrag bei kleinen Energieüberträgen bis zu etwa 3 meV. Die Zunahme der Streuintensität mit wachsendem Q ist gut bei höheren Energieüberträgen zu sehen.

Die elastische bzw. quasielastische Streuung zeigt die stärkste Intensitätsänderung. Bei $Q_0 = 1.53$ ($1/\text{\AA}$), dem Impulsübertrag des ersten Debye-Scherrer-Kegels im Polykristall bzw. des Maximums des Strukturfaktors in der Flüssigkeit, zeigen alle Streugesetze ein ausgeprägtes Maximum, dessen Breite bei der Messung an einem Kristall bei tiefer Temperatur nur durch die Q -Auflösung des Spektrometers bestimmt sein sollte. Das Ansteigen der Streugesetzwerte bei Impulsüberträgen unterhalb Q_0 bei $\hbar\omega = 0$ in den 123 K-Daten muß deshalb einem nicht vollständig korrigierten Rest der starken elastischen Mehrfachstreuung oder der inkohärenten elastischen Streuung der Vanadiumküvette zugeschrieben werden. In den Streugesetzen des Kristalls bei 294 K tragen außerdem noch Mehrphononenprozesse zu dieser Intensität bei.

Die quasielastische Streuung in der Flüssigkeit wird durch die Beweglichkeit der Atome im System bestimmt. Da der Rückstoß des streuenden Kernes nicht von der ganzen Streuprobe aufgenommen werden kann, gibt es keine elastische Streuung in der Flüssigkeit. Deshalb spricht man von quasielastischer Streuung. Da die Atome in der Flüssigkeit nicht in einem festen Abstand voneinander gebunden sind, werden die Neutronen bei allen Impulsüberträgen quasielastisch gestreut. Bei einem kohärenten Streuer variiert die Intensität dieser Streuung mit der Höhe des Strukturfaktors. Die Halbwertsbreite des Streugesetzes wird durch die Streuung an den diffundierenden Atomen bestimmt. Im allgemeinen variiert diese Breite proportional Q^2 . Bei einer kohärent streuenden Flüssigkeit zeigen sich jedoch in der Nähe der Maxima des Strukturfaktors charakteristische Linienverschmälerungen, die zuerst von de Gennes (59) gedeutet wurden. Die Linienbreiten des Streugesetzes dieser Messung stimmen im Bereich des ersten Maximums des Strukturfaktors sehr gut mit Ergebnissen molekulardynamischer Rechnungen (Gläser et al. 73) und den Ergebnissen von Copley und Rowe überein.

Die ausgeprägten Peaks in den Streugesetzen bei Energieüberträgen außerhalb des elastischen Bereichs der 123 K-Messung sind bei den 294 K-Spektren schon sehr stark reduziert, insbesondere bei Impulsüberträgen oberhalb Q_0 . In den Streugesetzen der Flüssigkeit sind sie fast gänzlich herausgedämpft und zeigen in Übereinstimmung mit Copleys und Rows Ergebnissen keine Dispersion in dem Q -Bereich zwischen 1.0 und 2.5 ($1/\text{Å}$). Die Peaklagen variieren mit dem Impulsübertrag bei kleinen Q in den Polykristallmessungen. Bei Impulsüberträgen oberhalb Q_0 deutet sich im Streugesetz der 123 K-Messung die Zustandsdichte der Phononen an.

Im ganzen sind die unelastischen Beiträge zum Streugesetz am ausgeprägtesten zwischen den Maxima der elastischen bzw. quasielastischen Streuung (s. auch Abb. 5). Die Fehlerbalken bei $Q = 1.6$ beinhalten den statistischen Fehler der Messung und den angenommenen systematischen Fehler der Mehrfachstreuokorrektur.

Ausgenommen im Bereich der quasielastischen Streuung ähneln sich die Streugesetze des Polykristalls bei 294 K und der Flüssigkeit bei 318 K mehr als die Streugesetze des Polykristalls bei den zwei verschiedenen Temperaturen. Man könnte daher in diesem Fall die alte Fragestellung: "Wie kristallähnlich ist eine Flüssigkeit dicht über dem Schmelzpunkt?" umkehren in die Frage: "Wie flüssigkeitsähnlich ist ein Rubidium-Polykristall dicht unter dem Schmelzpunkt?" Dabei darf man aber nicht übersehen, daß die Ursachen dieser starken Dämpfung der kollektiven Anregungen im System in beiden Fällen sehr verschieden sein kann.

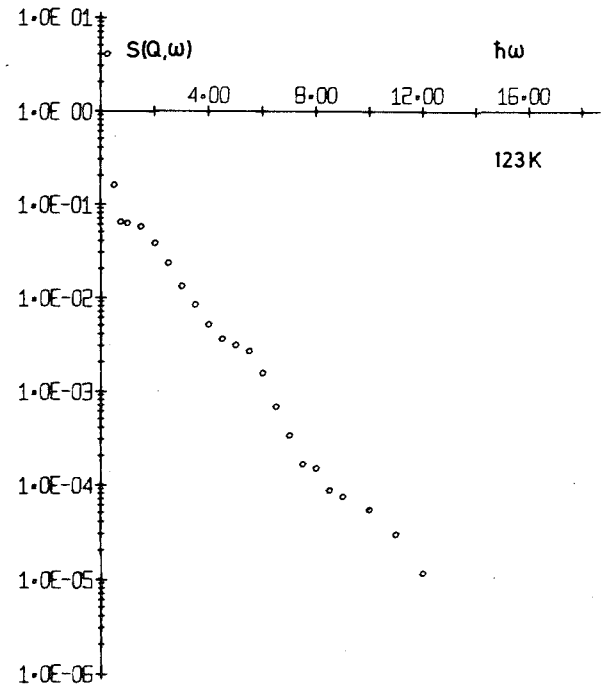
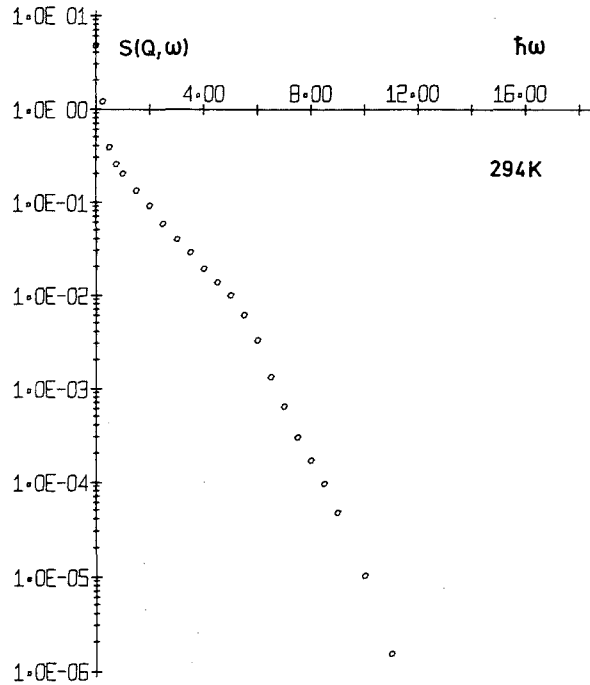
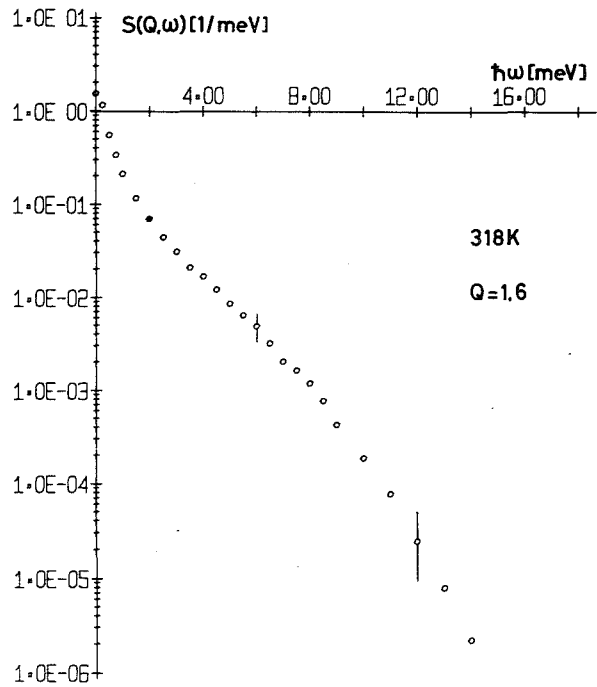
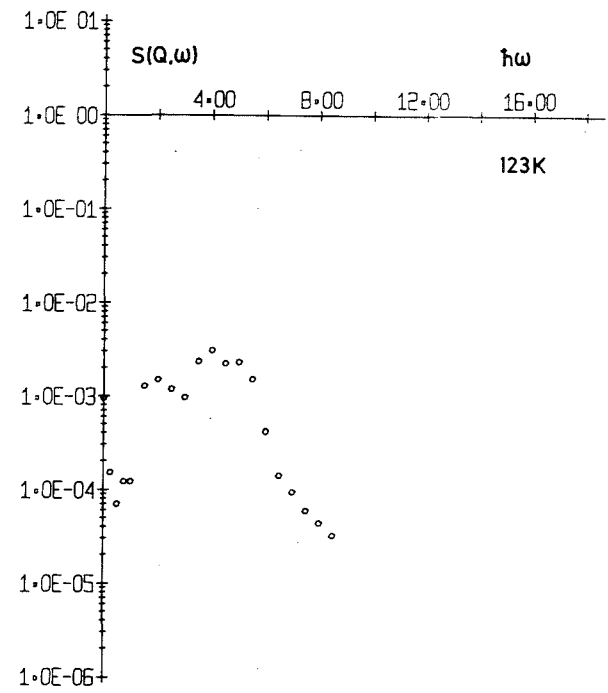
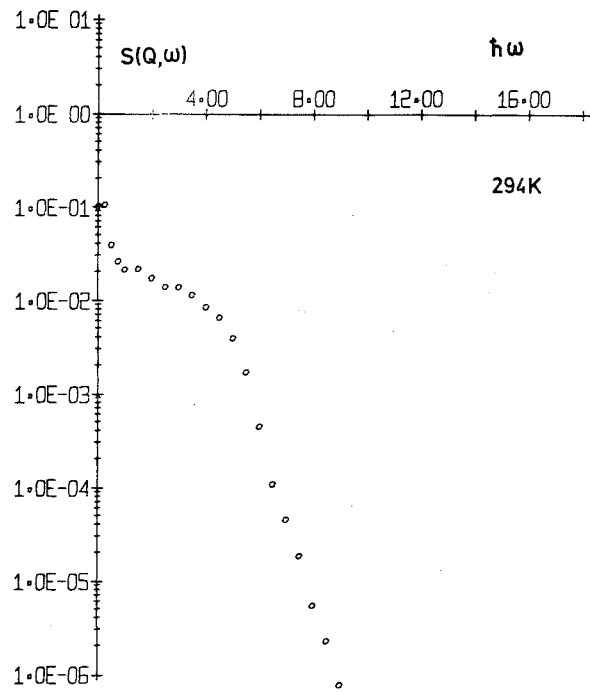
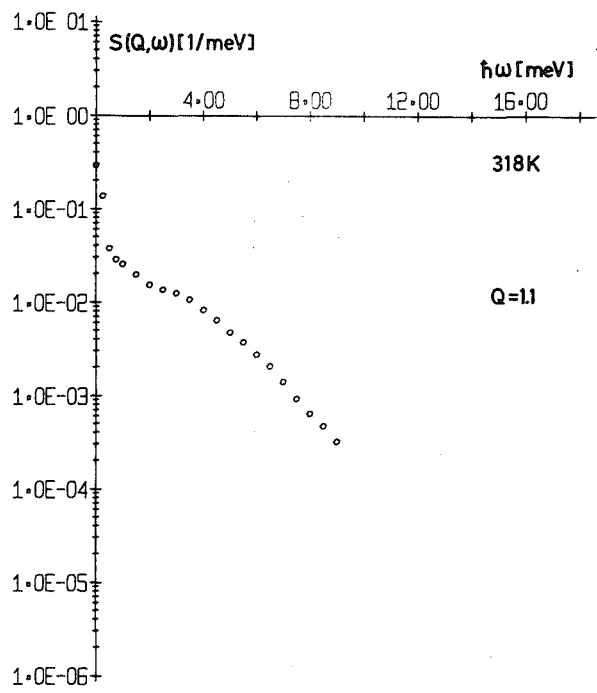


Abb. 4a Streugesetz des Rubidiums bei den Impulsüberträgen $Q=1.1$ und $Q=1.6$ ($1/\text{\AA}$) und den drei Probertemperaturen (waagrecht).

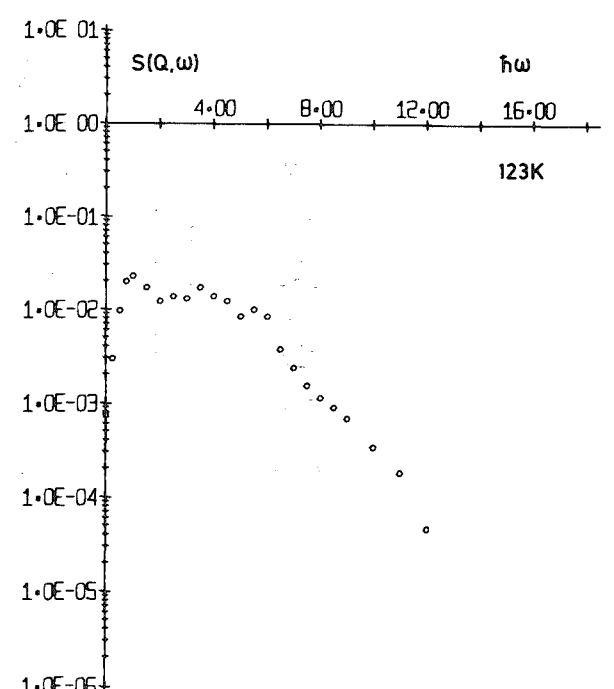
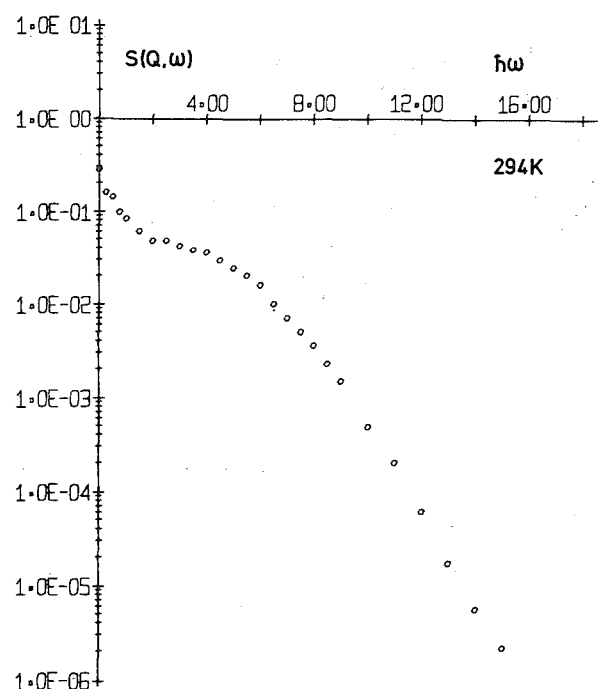
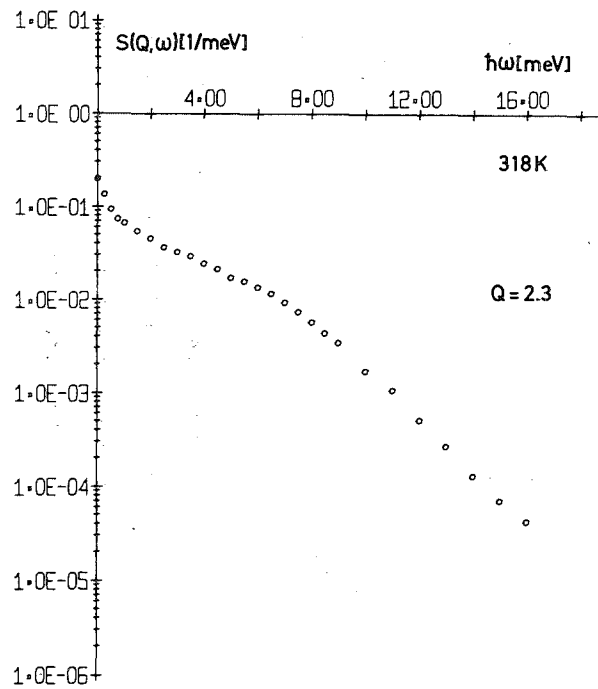
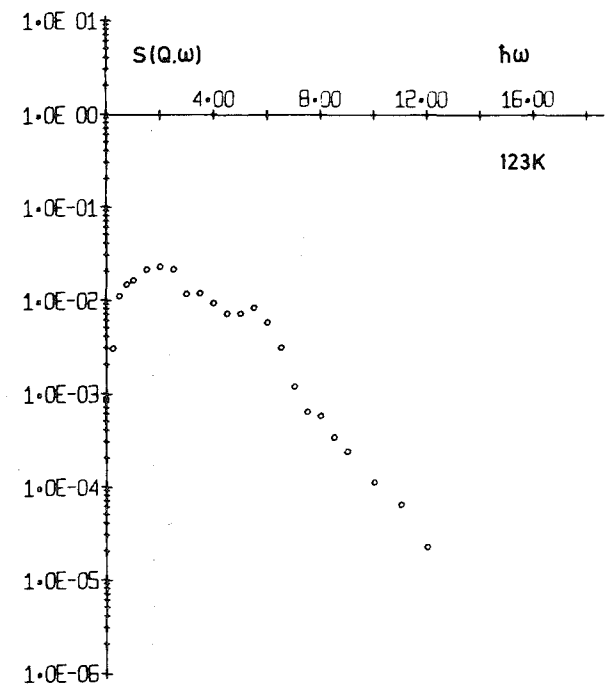
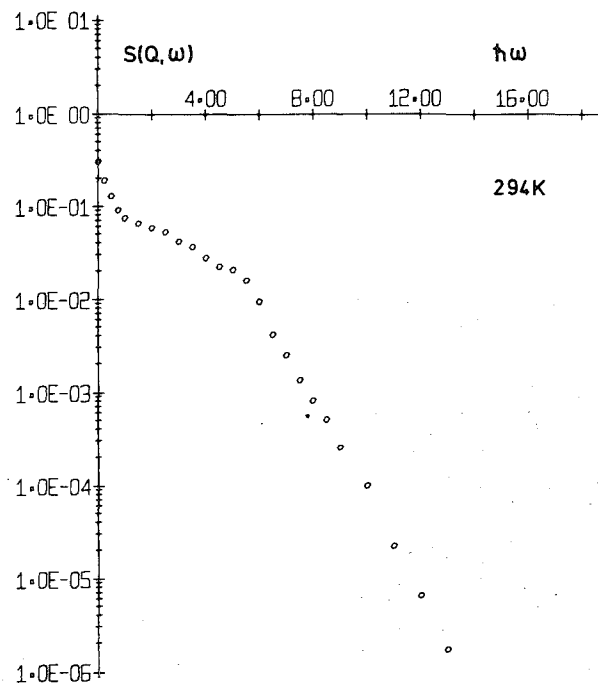
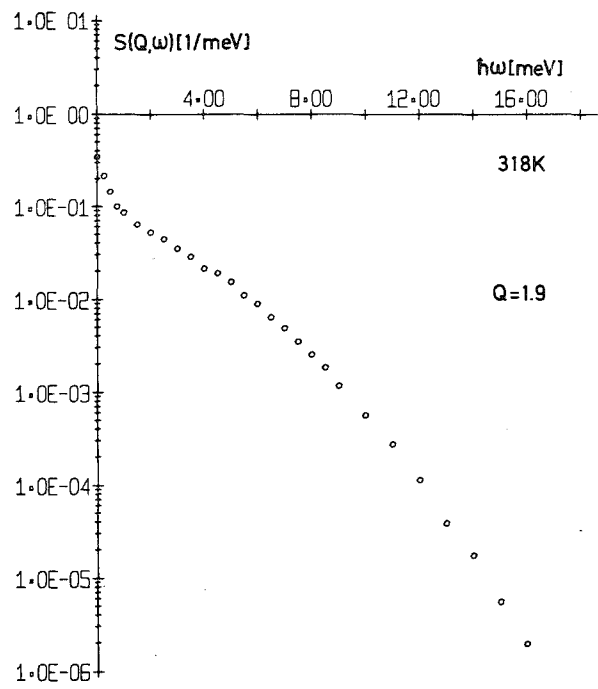


Abb. 4b Streugesetz des Rubidiums bei den Impulsüberträgen $Q=1.9$ und $Q=2.3(1/\text{\AA})$ und den drei Probertemperaturen (waagrecht)

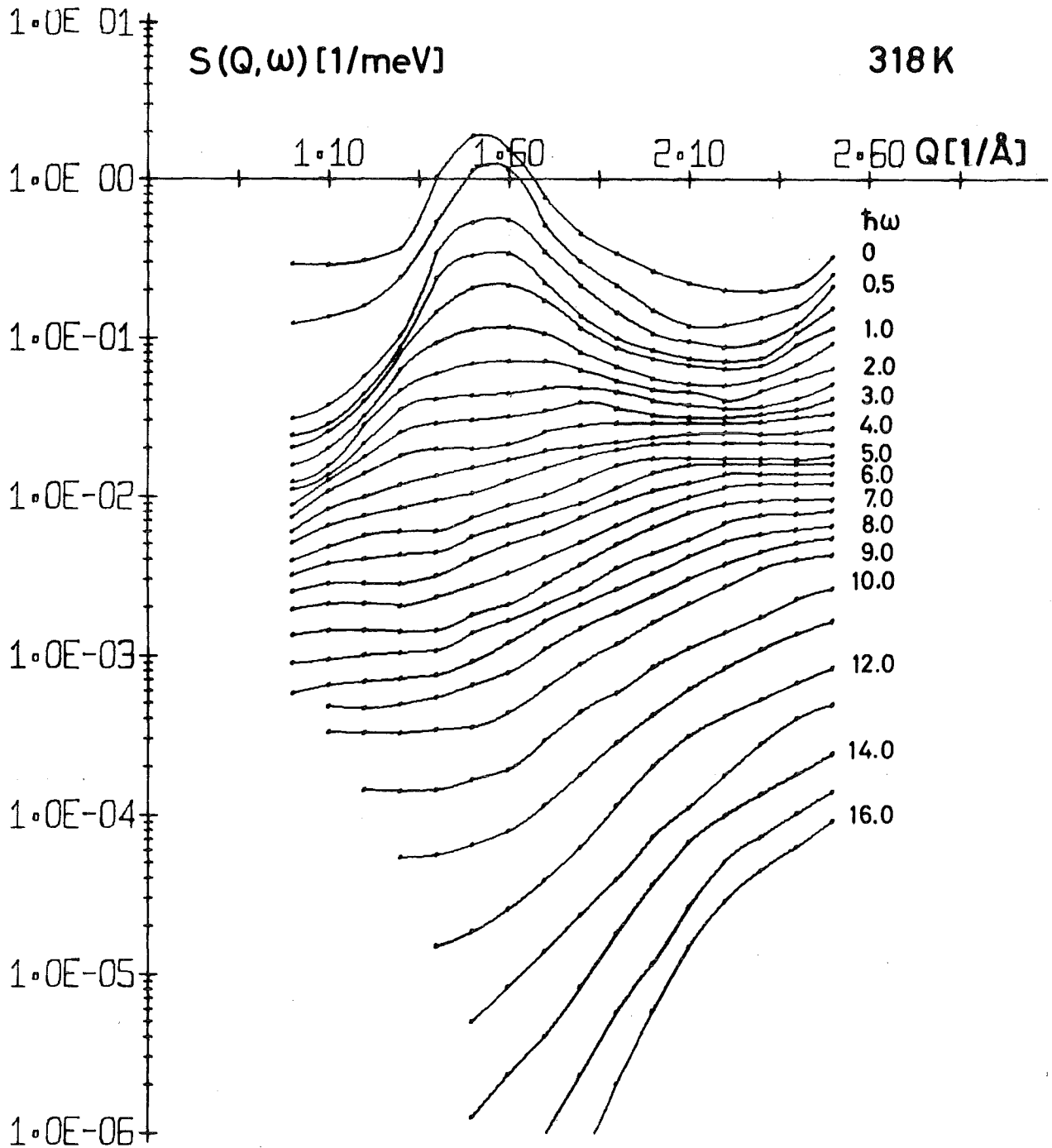


Abb. 5 Streugesetz des flüssigen Rubidiums bei konstanten Energieüberträgen zwischen 0 und 16 meV, aufgetragen über dem Impulsübertrag. Für jede zweite Linie ist der Energieübertrag angegeben. Die Linien geben die interpolierten Werte wieder.

III.2 Frequenzmomente

Da der Strukturfaktor $S(Q)$ in Diffraktionsexperimenten sehr genau bestimmt werden kann und das zweite Moment exakt berechnet wird (Gl. (24)), können diese beiden Momente zum Testen der Qualität gemessener Streugesetze oder zu deren Normierung herangezogen werden. Erst höhere Momente geben daher neue Informationen über das System. Wegen der niedrigen Einfallenergie konnte das Streugesetz bis zu Energieüberträgen von 16 meV nur aus den Energiegewinnspektren bestimmt werden. Deshalb wurden die Momente aus dem symmetrischen Streugesetz für $\hbar\omega \geq 0$ berechnet:

$$\langle \omega^n \rangle = 2 \int_0^{\omega_{\max}} \omega^n \cosh(\beta/2) S(Q, \omega) d\omega \quad (58)$$

Das nullte Moment aller drei Messungen ist in Abb. 6 dargestellt. Für die Flüssigkeit wird das Ergebnis mit dem gemessenen Strukturfaktor (Wingfield, Enderby 72) und einer Modellrechnung nach Ashcroft und Lekner (66) verglichen. Das Modell basiert auf einer Lösung der Percus-Yevick-Gleichung (Percus, Yevick 58) für ein System harter Kugeln (Wertheim 63, Thiele 63). In dieser Rechnung wurden der Durchmesser der harten Kugeln σ und die Packungsdichte η als unabhängige Modellparameter benutzt, so daß die Dichte auf den gemessenen Wert festgelegt wurde. Die Parameter wurden durch Anpassen des Modells an das erste Maximum des gemessenen Strukturfaktors bestimmt:

$$\sigma = 4.52(\text{\AA}), \quad \eta = 0.466$$

Das nullte Moment wurde in diesem Experiment nicht sehr gut bestimmt, wie Abb. 6 zeigt. Da die Intensität der elastischen Linie in den Flugzeitspektren im wesentlichen von der inkohärenten elastischen Streuung der Neutronen an der Vanadiumküvette stammte, konnte $S(Q, \omega)$ im Energiebereich der Auflösungsfunktion des Spektrometers nur als Differenz zweier großer Zahlen bestimmt werden. Diese Werte des Streugesetzes aber liefern den entscheidenden Beitrag zum Integral des nullten Moments. Eine Messung des Strukturfaktors des Polykristalls bei Zimmertemperatur mit einem Diffraktometer gab keinen Hinweis auf eine Verbreiterung der Debye-Scherrer-Kegel.

Das zweite Moment der drei Messungen ist in Abb. 7 dargestellt. Die experimentellen Werte stimmen mit den berechneten gut überein, weil für jeden

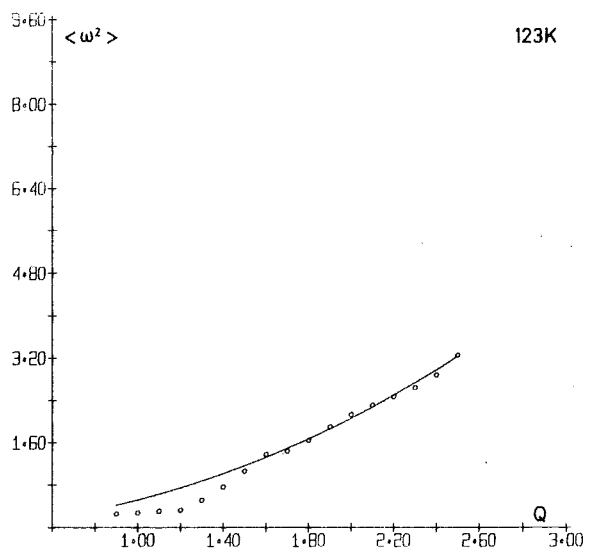
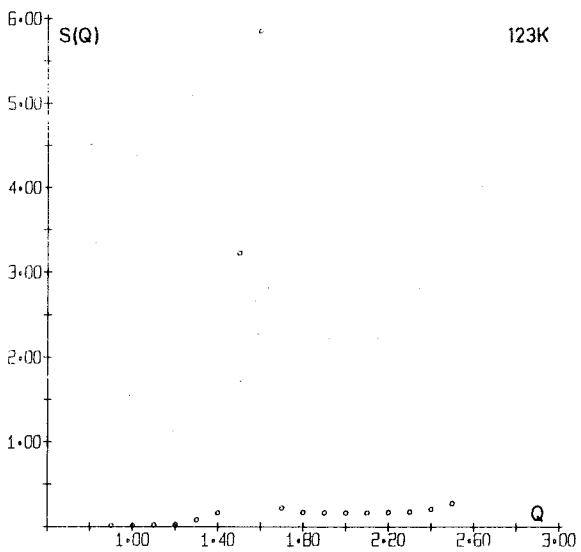
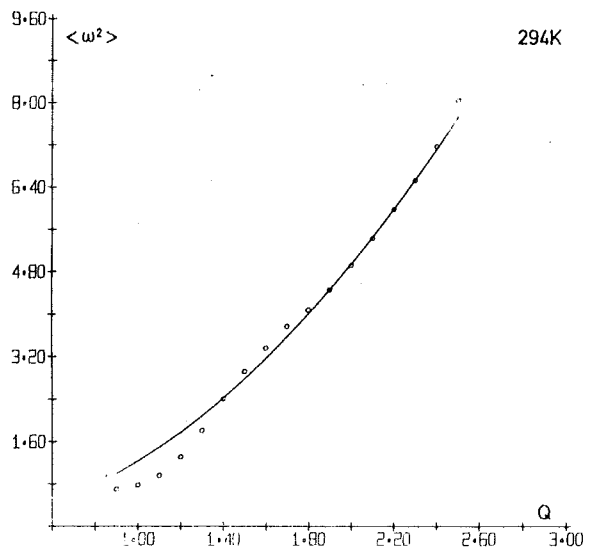
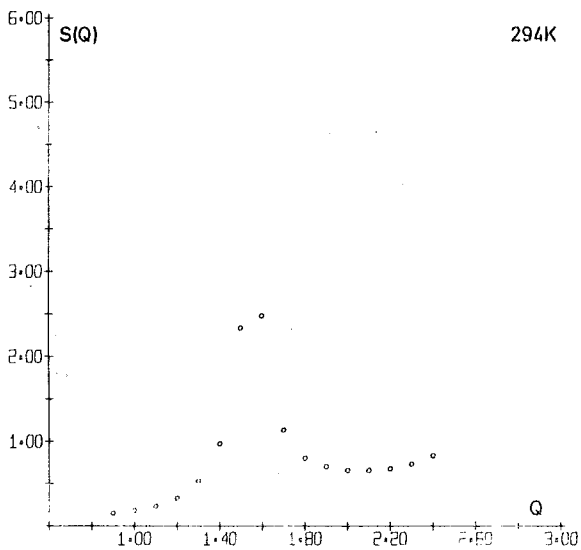
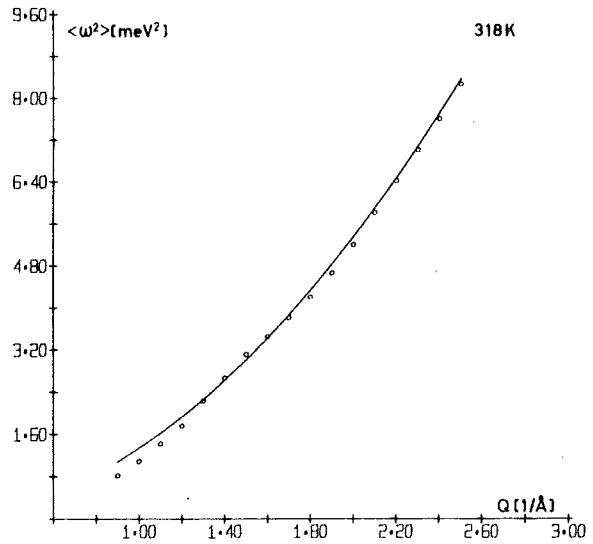
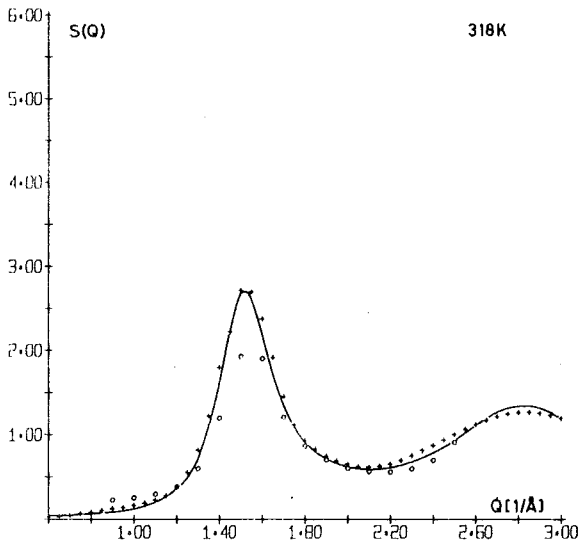


Abb. 6 Das nullte Moment:
 ++ $S(Q)$ von Wingfield und Enderby(72),
 — Rechnung nach Ashcroft und Lekner (66),
 oo aus der Integration des Streugesetzes

Abb. 7 Das zweite Moment:
 — berechnete Werte,
 oo durch Integration von $\omega^2 S(Q, \omega)$.

Datensatz der Normierungsfaktor mit Hilfe des berechneten zweiten Moments gefunden wurde. Die schwache Struktur in den experimentellen Daten ist wahrscheinlich auf Reste der Mehrfachstreuung und Auflösungseffekte zurückzuführen, die nicht herauskorrigiert wurden. Das kann eine Ungenauigkeit des Normierungsfaktors zur Folge haben.

Die Integranden des zweiten Moments dividiert durch das berechnete zweite Moment, sind in Abb. A2a bis A2d im Anhang dargestellt. Die Funktion konnte für Impulsüberträge zwischen $Q = 1.3$ bis $Q = 2.5$ ($1/\text{Å}$) fast vollständig bestimmt werden. Bei $Q = 1.6$ ($1/\text{Å}$) ist für drei Energiewerte der Fehler eingetragen, der sich aus dem statistischen Fehler und dem möglichen systematischen Fehler der Mehrfachstreuung zusammensetzt. Diese Fehler sind besonders schwerwiegend bei großen Energieüberträgen, die den überwiegenden Beitrag zum Integranden der höheren Momente liefern. Neben der unvollständigen Messung des Integranden ist dieses der Hauptgrund, weshalb höhere Momente als das zweite nur sehr schwierig aus gemessenen Streugesetzen berechnet werden können.

Das vierte Moment des flüssigen Rubidiums ist in Abb. 8 dargestellt. Es wird dort verglichen mit einem einfachen Modell, in dem das Produkt der zweiten Ableitung des Paarpotentials mit der Paarverteilungsfunktion, die beide bei etwa demselben Abstand r_0 ihr Maximum haben, durch eine Deltafunktion ersetzt und der Term proportional zu $\delta u / \delta r$ fortgelassen wurde. (Hubbard, Beeby 69)

$$\langle \omega^4 \rangle = \langle \omega^2 \rangle (3 \langle \omega^2 \rangle + \omega_E^2 (1 - 3 \frac{\sin x}{x} - 6 \frac{\cos x}{x^2} + 6 \frac{\sin x}{x^3})) \quad (59)$$

$$x = Q \cdot r_0$$

r_0 , der Abstand der Deltafunktion vom Atom bei $r = 0$, und ω_E^2 , die Wichtung der Delta Funktion (z.B. Copley, Lovesey 75)

$$\omega_E^2 = \frac{4\pi\bar{n}}{3M} \int_0^\infty dr r^2 g(r) \frac{\delta^2 u}{\delta r^2}$$

sind die Parameter dieses Modells für das vierte Moment und müssen aus den gemessenen Frequenzmomenten bestimmt werden (s.u.). Die Abweichungen der Meßwerte von dem Modell bei Impulsüberträgen unterhalb 1.4 ($1/\text{Å}$) sind auf die Unvollständigkeit der Integranden zurückzuführen, die hier nur zu etwa

90 % bestimmt werden konnten. Diese Integranden sind im Anhang in Abb. A3a und A3b zu sehen.

Die Punkte des sechsten Moments der Flüssigkeit, die experimentell bestimmt werden konnten, sind in Abb. 9 dargestellt. Die zugehörigen Integranden zeigt Abb. A4 im Anhang.

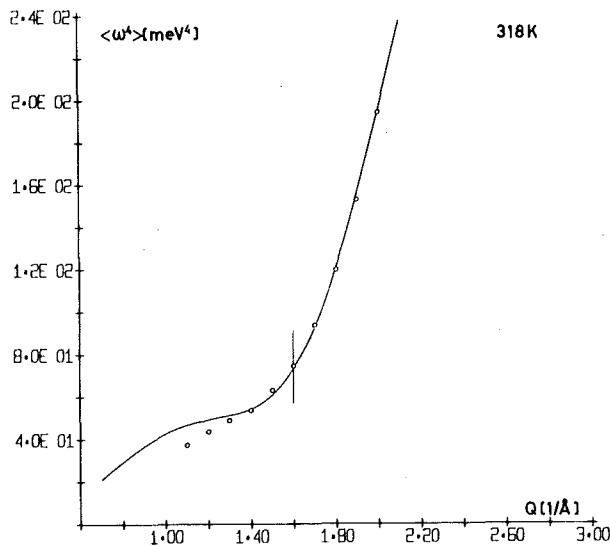


Abb. 8 Das vierte Moment:
 — berechnet nach Hubbard und
 Beeby (69),
 oo durch Integration von
 $\omega^4 S(Q, \omega)$.

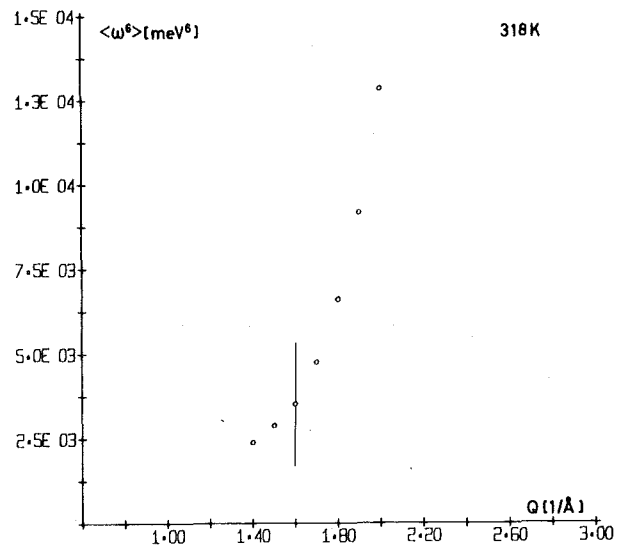


Abb. 9 Das sechste Moment
 für einige Impulsüberträge.

Die Wurzel aus dem Verhältnis des zweiten zum nullten Moment ω_0 und des vierten zum zweiten Moment ω_4 zeigt Abb. 10. ω_0 wird mit den Ergebnissen einer Rechnung verglichen, bei der für das nullte Moment der gemessene Strukturfaktor genommen wurde. Für das Verhältnis des vierten zum zweiten Moment ist auch das Ergebnis einer molekulardynamischen Rechnung von Rahman (74a) und der numerischen Integration des Potentialanteils der Gl. (27) von Schommers (75) dargestellt. Rahman benutzte in seinen Rechnungen das Potential von Price und Mitarbeitern (70). Schommers Rechnungen basieren auf einem Paarpotential, das er in selbstkonsistenter Weise (Schommers 73) aus einem gemessenen Strukturfaktor des flüssigen Rubidiums (Gingrich, Heaton 61) bestimmte. Die Wahl des Potentials hat einen entscheidenden Einfluß auf das Resultat der Rechnung. Die Fehlerbalken der Meßpunkte, die neben den

obengenannten Fehlern auch die Unvollständigkeit des Integranden berücksichtigen, sind aber viel zu groß, um eine Entscheidung zwischen den zwei Potentialen zuzulassen.

Die Berechnung des Momentenverhältnisses mit der Delta-Funktion-Näherung nach Gl. (59) ist ebenfalls eingetragen. Die Modellparameter wurden durch Anpassen dieser Kurve an die Meßpunkte bestimmt.

$$r_0 = 4.8 \text{ \AA} \quad , \quad \omega_E = 4.3 \text{ meV}$$

Der Vergleich mit dem Durchmesser der harten Kugeln σ , der im Rahmen des Strukturfaktormodells gefunden wurde, zeigt, daß sich die Meßdaten mit Hilfe der Delta-Funktions-Näherung zwar ganz gut beschreiben lassen, deren Parameter aber in diesem Fall als physikalische Aussage über das System kein zu großes Gewicht beigemessen werden darf. Bei Substanzen, deren Paarpotential durch ein Lennard-Jones-Potential beschrieben werden kann, stimmen die Parameter dagegen sehr gut überein. (z.B. Copley, Lovesey 75).

Bei kleinen Impulsüberträgen steigt ω_1 linear an. In diesem Bereich ist der Anstieg einer Dispersion eingezeichnet, der von der Geschwindigkeit des Schalls v in flüssigem Rubidium abhängt.

$$\hbar\omega = v Q \quad , \quad v = 1300 \text{ m/sec}$$

Die Lagen der Maxima der Fouriertransformierten der Strom-Strom-Autokorrelationsfunktion $\omega^2 S(Q, \omega)$, die nach einer Theorie von Zwanzig (67) für ungedämpfte longitudinale Moden mit ω_1 übereinstimmen sollten, sind ebenfalls in Abb. 10 eingetragen. Die Fehlerbalken an den Meßpunkten geben die Genauigkeit an, mit der das Maximum der Funktion festgelegt werden konnte. Diese Maxima liegen zwischen ω_1 und ω_0 , wie Löffler (73) schon feststellte.

Die Verhältnisse der Frequenzmomente können genauer bestimmt werden als die Momente selber. Energieunabhängige Faktoren, wie Normierungsfaktoren z.B., beeinflussen die Resultate nicht und die Unvollständigkeit der Integranden kompensiert sich zu einem Teil, da die Effekte Zähler und Nenner in gleichem Sinne - aber mit unterschiedlicher Wichtung - beeinflussen. Das zeigt sich deutlich im Verhältnis des vierten zum zweiten Moment, dessen Werte mit dem angepaßten Modell auch für Impulsüberträge unterhalb 1.4 ($1/\text{\AA}$)

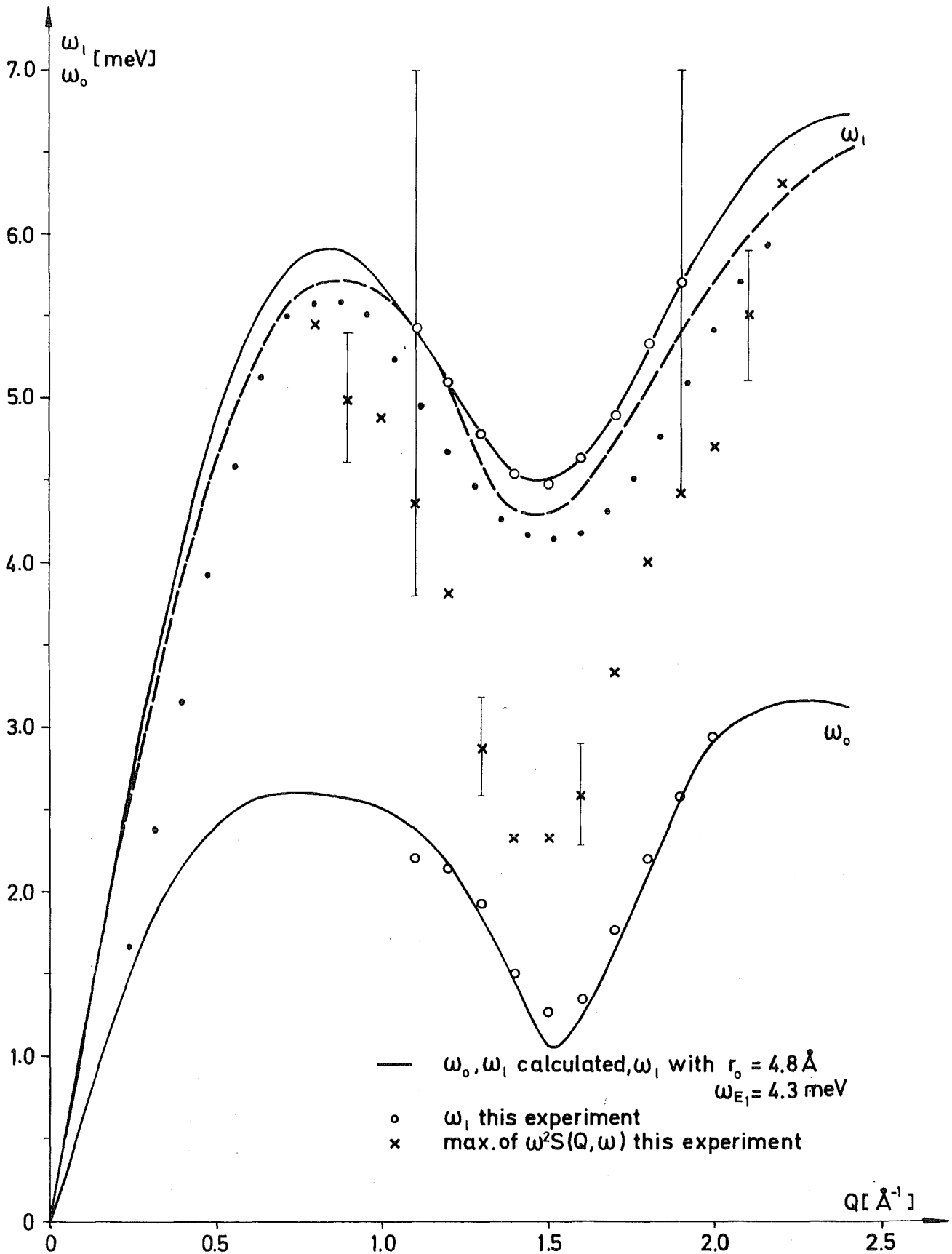


Abb. 10 Die Wurzel aus dem Verhältnis des zweiten zum nullten Moment ω_0 :
 — berechnet mit dem Strukturfaktor von Wingfield und Enderby (72),
 o dieses Experiment.
 Die Wurzel aus dem Verhältnis des vierten zum zweiten Moment ω_1 :
 -- berechnet von Rahman (74),
 ... von Schommers (75), und
 — nach Hubbard und Beeby (69), angepaßt an die Meßpunkte o dieses Experiments.

übereinstimmen, während die Werte des vierten Moments für diese Impulsüberträge unterhalb desselben Modells liegen. Das wird dadurch etwas kompensiert, daß auch die Werte des zweiten Moments bei kleinen Q-Werten unterhalb der berechneten liegen.

III.3 Vergleiche mit Streugesetzmodellen

Da die beiden wichtigsten Parameter der Streugesetzmodelle für die Flüssigkeit ω_0 und ω_1 mit Hilfe der experimentell bestimmten Frequenzmomente festgelegt wurden, können nun die gemessenen Streugesetze mit den Modellstreugesetzen verglichen werden. Alle drei im Abschnitt I.5 diskutierten Modelle werden zum Vergleich mit dem Streugesetz der Flüssigkeit herangezogen.

Sears Streugesetzmodell ist in Gl. (41) wiedergegeben. Die Fouriertransformierte der Gedächtnisfunktion ist

$$K(\omega) = \frac{1}{\omega_1^2 - \omega_0^2} \left(\frac{(\gamma - 1)\omega_0^2}{i\omega + \tau_1(Q)} + \frac{\omega_1^2 - \gamma\omega_0^2}{i\omega + \tau_2(Q)} \right) \quad (60)$$

Einfacher ist Lovesey's Modell

$$S(Q, \omega) = \frac{S(Q) \omega_0^2}{\pi} \frac{(\omega_1^2 - \omega_0^2) \tau_L(Q)}{(\omega(\omega^2 - \omega_1^2) \tau_L(Q))^2 + (\omega^2 - \omega_0^2)^2} \quad (61)$$

Die Relaxationsfunktionen $\tau_1(Q)$, $\tau_2(Q)$ und $\tau_L(Q)$ sind in den Gl. (43), (44) und (45) definiert worden.

Pathaks und Singwis Streugesetz wurde nach den Gl. (49) bis (53) berechnet. Für alle drei Modelle wurde ω_0 aus dem gemessenen Strukturfaktor (Wingfield, Enderby 72) berechnet und für ω_1 wurde die in Abb. 10 dargestellte Delta-Funktions-Näherung genommen. Weil diese Näherung an die Messpunkte angepaßt wurde, kann sie als eine Art Extrapolation der Meßwerte für Impulsüberträge betrachtet werden, für die keine experimentellen Ergebnisse vorliegen. Da die Wahl von ω_1 einen großen Einfluß auf das Modellstreugesetz hat und dieses wieder in der Mehrfachstreuokorrektur benutzt wurde, mußten zur Anpassung von ω_1 an die Meßdaten zwei Iterationsschritte in der Mehrfachstreuokorrektur gemacht werden. Die für Sears' Modell zusätzlich benötigten Transportgrößen des flüssigen Metalls wurden dem Rare Metals Handbook (61) entnommen. Wie die Abb. 11a und 11b zeigen, stimmen die Modelle nicht sehr gut mit den ge-

messenen Streugesetzen überein. Das trifft besonders zu für Werte unterhalb $\hbar\omega = 2$ meV, d.h. im Bereich größter Streuintensität. Bei dem üblichen Vergleich der Fouriertransformierten der longitudinalen Strom-Strom-Autokorrelationsfunktion wird dieser Bereich wegen der Wichtung mit ω^2 weniger beachtet. Die gute Übereinstimmung des Streugesetzes von Pathak und Singwi mit den Meßwerten für Energieüberträge oberhalb 8 meV ist vielleicht z.T. auf die großen Mehrfachstreu korrekturen zurückzuführen, die mit diesem Modell gemacht wurden. Sears Modellstreugesetz zeigt im Energiebereich zwischen 4 und 6 meV eine ausgeprägte Peakstruktur, die in den beiden anderen Modellen und in den gemessenen Streugesetzen nicht zu sehen ist. Sears' Modell berücksichtigt alle Bedingungen, die z.Z. an die analytischen Eigenschaften eines Streugesetzmodells gestellt werden. Da sich das Modellstreugesetz nicht qualitativ ändert, wenn die Modellparameter innerhalb sinnvoller Grenzen verändert werden, legt deshalb der Vergleich dieses Modells mit den Meßwerten die Vermutung nahe, daß es nicht genügt, die Frequenzmomente des Streugesetzes in der Kettenbruchentwicklung der Gedächtnisfunktion nur bis zum vierten mitzunehmen. Das sechste Moment in die Entwicklung einzuschließen (third order approximation) bedeutet, neben dem Abstand auch die Richtung der Teilchenkorrelationen in der Flüssigkeit zu berücksichtigen. Damit wird also nicht nur eine verfeinerte Beschreibung gewonnen, sondern eine neue physikalische Qualität in die Modelle eingeführt. In einigen Modellen wurde das sechste Moment berücksichtigt (z.B. Kim, Nelkin 71, Kugler 73), doch scheitern die Versuche bisher an der Schwierigkeit, das sechste Moment zu berechnen oder zu messen.

Die Modellstreugesetze des polykristallinen Rubidiums wurden mit Hilfe der Phononenentwicklung des Streugesetzes berechnet, wobei der elastische und der Einphononen-Beitrag für einen kohärent streuenden Polykristall nach Gl. (31) bzw. (32) und die Mehrphononen-Beiträge nach Gl. (36) berechnet wurden. Als Modellparameter wurden die Kraftkonstanten benutzt, die Copley und Brockhouse (73) durch Anpassen eines Born-von-Kärmän-Modells an die gemessenen Phononendispersionen bei 120 K und 205 K bestimmten. Es wurde versucht, aus dem Temperaturverlauf der ersten drei Kraftkonstanten aller Phononenmessungen Copleys (12 K bis 205 K) drei entsprechende Werte zur Beschreibung der 294 K-Messung zu extrapolieren. Zu diesen Werten

$$1XX = 540, \quad 1XY = 620, \quad 2XX = 460 \text{ (dyn/cm)}$$

wurden die restlichen Konstanten der 205 K-Messung hinzugenommen, da diese viel

kleiner als die ersten drei Werte sind und daher auch keine systematische Änderung mit der Temperatur zeigen. Für den Einphononenanteil des kohärenten Streugesetzes wurden mit diesen zwei Kraftkonstantensätzen die Frequenzen und Polarisationsvektoren der Phononen berechnet (Squires 63) und daraus die partiellen Zustandsdichten $F(Q, \omega)$ nach Gl. (33) bestimmt (Suck et al. 74). Um die Mehrphononen-Beiträge zum Streugesetz durch Falten der Frequenzverteilung bis zum Zehnphononenterm berechnen zu können, wurden mit denselben Kraftkonstanten die Zustandsdichten $F(\omega)$ mit Hilfe der root sampling Methode (Gilat, Raubenheimer 66) bestimmt. Da die gemessenen Streugesetze für Auflösungseffekte nicht korrigiert wurden, mußte die Spektrometerauflösung näherungsweise in den Streugesetzmodellen berücksichtigt werden. Deshalb wurden alle Zustandsdichten im doppeltdifferentiellen Wirkungsquerschnitt gefaltet und bei der Rechnung diese gefalteten Verteilungen benutzt. Die Auflösungsfunktionen des Flugzeitspektrometers wurde nach Carvalho und Mitarbeitern (67) bestimmt. Fokussierungseffekte wurden näherungsweise mitberücksichtigt. Dabei wurden die Parameter der Auflösungsfunktion mit Hilfe der Frequenzverteilung bestimmt, die aus den Streugesetzen der 123 K-Messung berechnet werden konnte (Abschnitt III.5). Zur Beschreibung des elastischen Anteils des kohärenten Streugesetzes wurden Gauß-Funktionen benutzt, deren Breiten den gemessenen Halbwertsbreiten (FWHM) in Q und $\hbar\omega$ (0.25 meV) entsprachen. Der Vergleich dieses Modells mit dem Streugesetz der 294 K-Messung in Abb. 11a und 11b zeigt, daß sich die Meßergebnisse mit den benutzten Kraftkonstanten nicht beschreiben lassen. Es ist wahrscheinlich, daß diese Diskrepanz eher auf die starke Anharmonizität des Rubidium-Kristalls dicht unter seinem Schmelzpunkt zurückzuführen ist, die eine Beschreibung seines Streugesetzes in harmonischer Näherung nicht zuläßt, als auf die Wahl der ersten drei Kraftkonstanten des Satzes. Insbesondere fällt auf, daß das gemessene Streugesetz oberhalb 6 meV viel steiler abfällt als die Mehrphononenterme des Modells, obwohl der Abbruch des Streugesetzes bei etwa 5.2 meV nicht früher erfolgt, als man das vom Modell her erwartet hätte. Zum Vergleich wurde noch der unelastische Anteil des Streugesetzes eingezeichnet, der in inkohärenter Näherung mit der gefalteten Zustandsdichte berechnet wurde (Gl. (36) $n=1,8$). Für kleine Impulsüberträge beschreibt dieses Streugesetz erwartungsgemäß die Meßwerte noch schlechter als das zuerst beschriebene Modell. Wird die experimentell bestimmte Frequenzverteilung anstelle der berechneten Zustandsdichte in der inkohärenten Näherung des Streugesetzes benutzt, so ergibt sich auch nur eine wenig bessere Übereinstimmung zwischen Experiment und Modell bei kleinen Energieüberträgen.

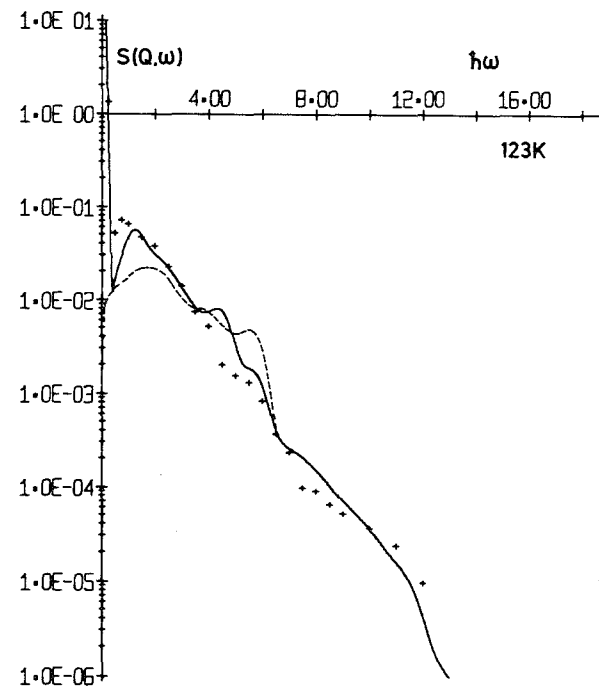
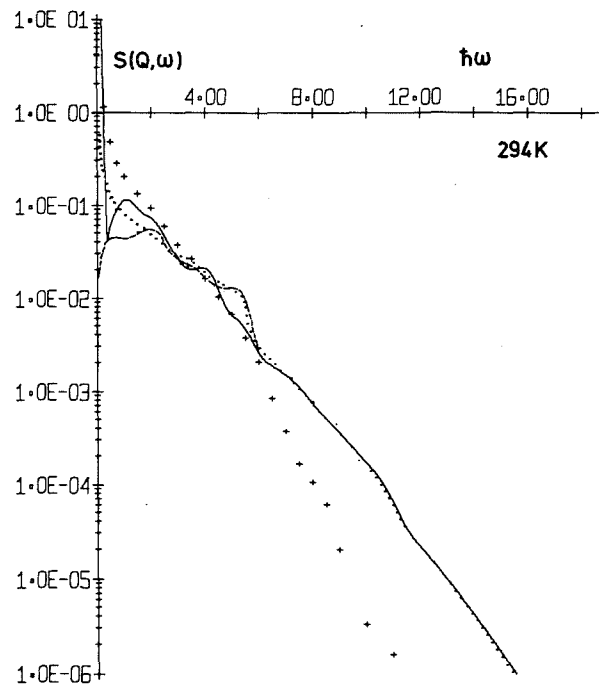
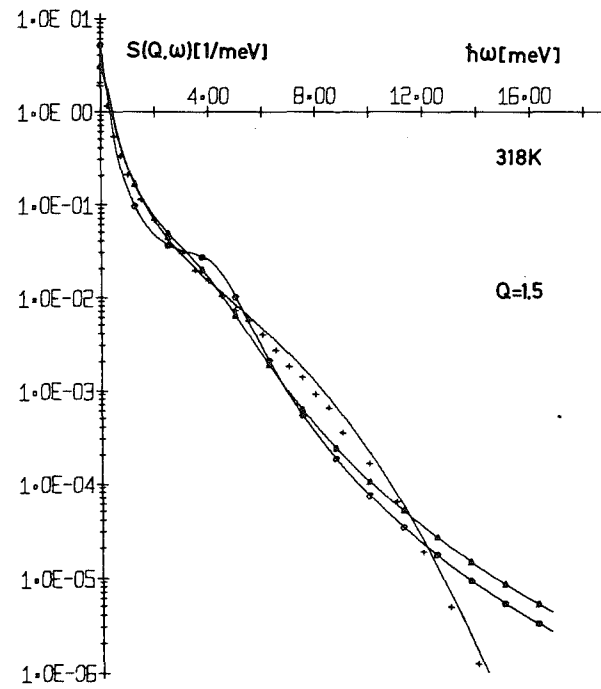
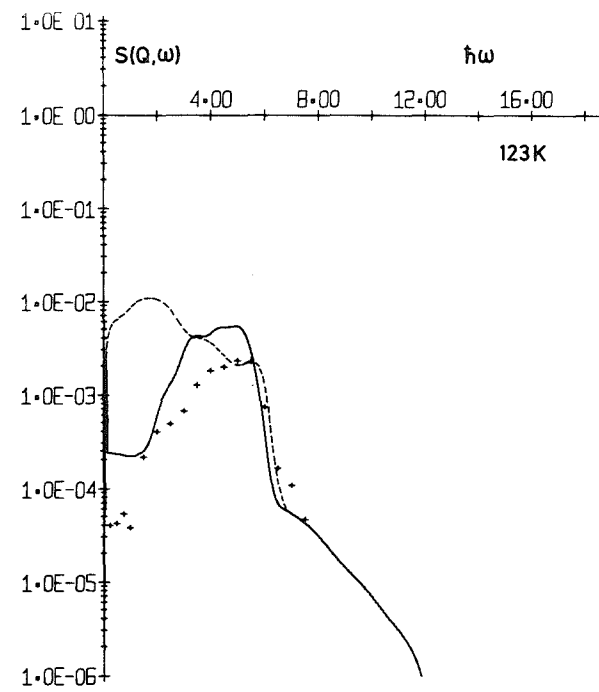
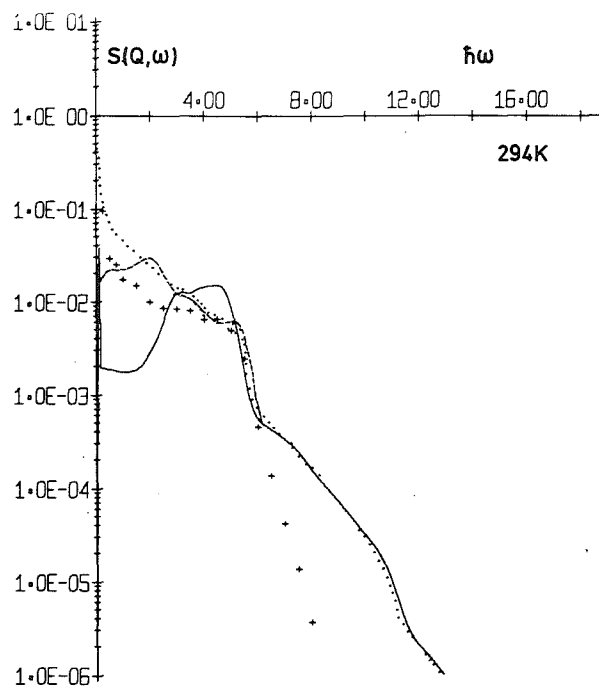
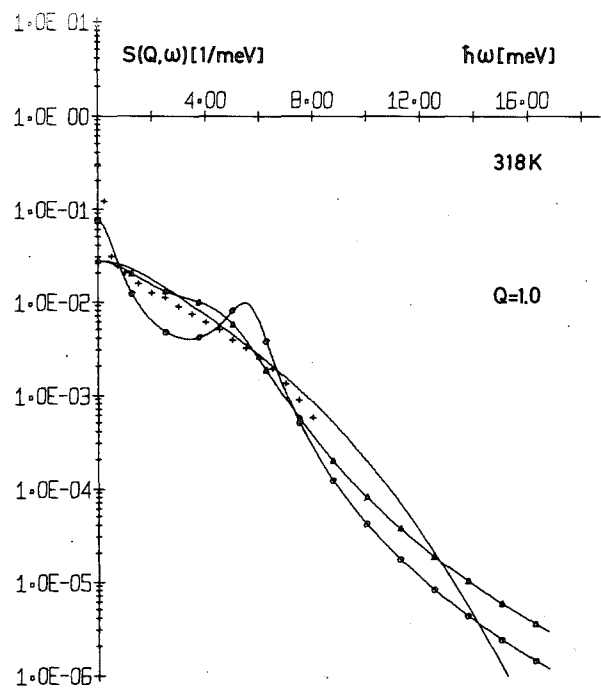
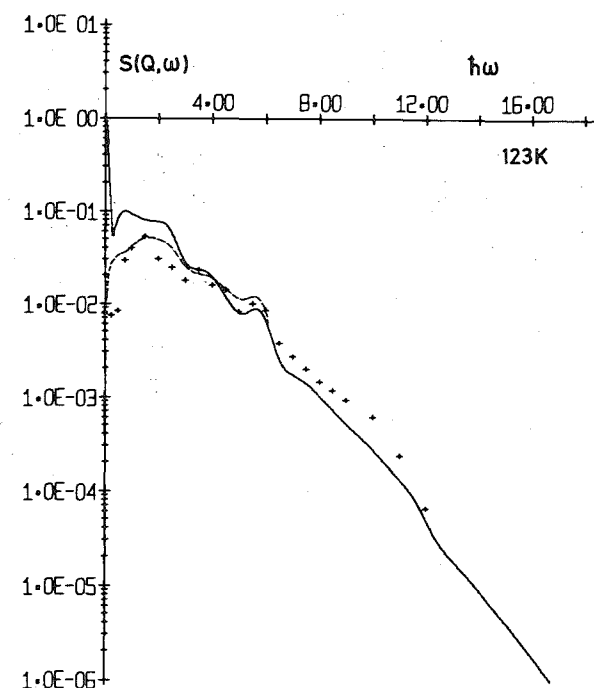
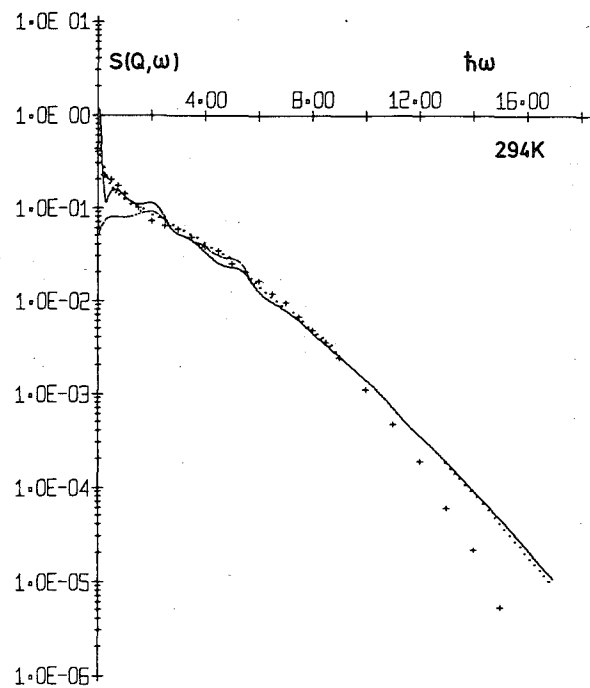
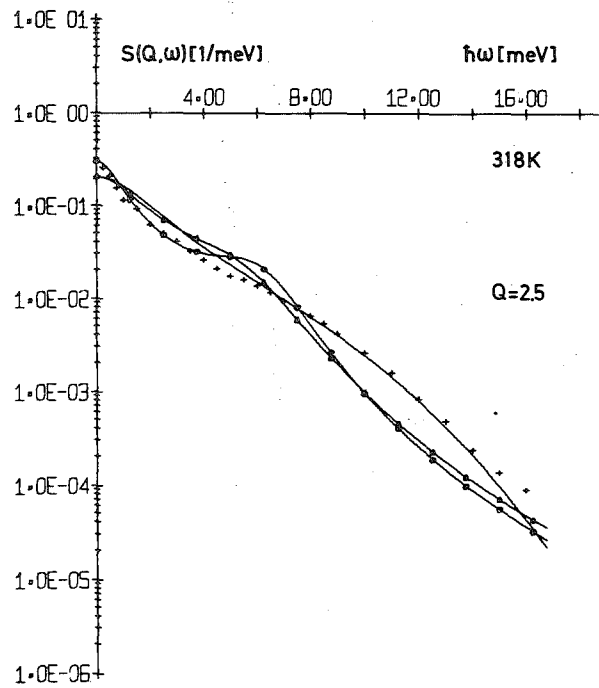
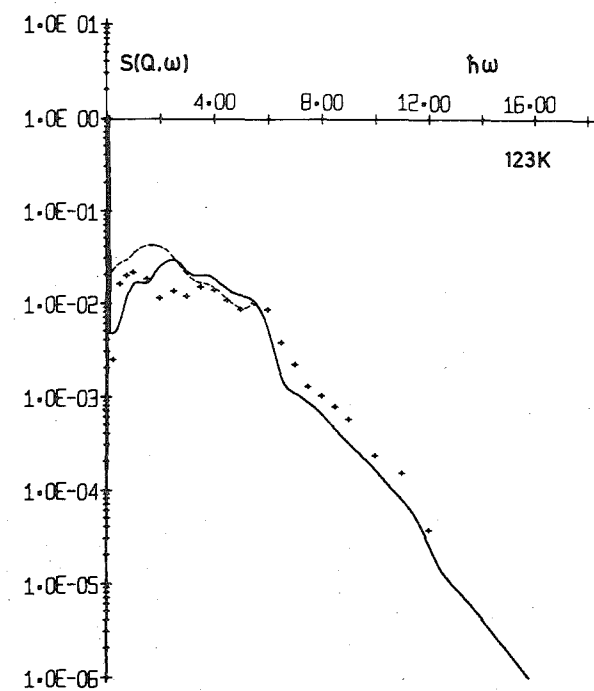
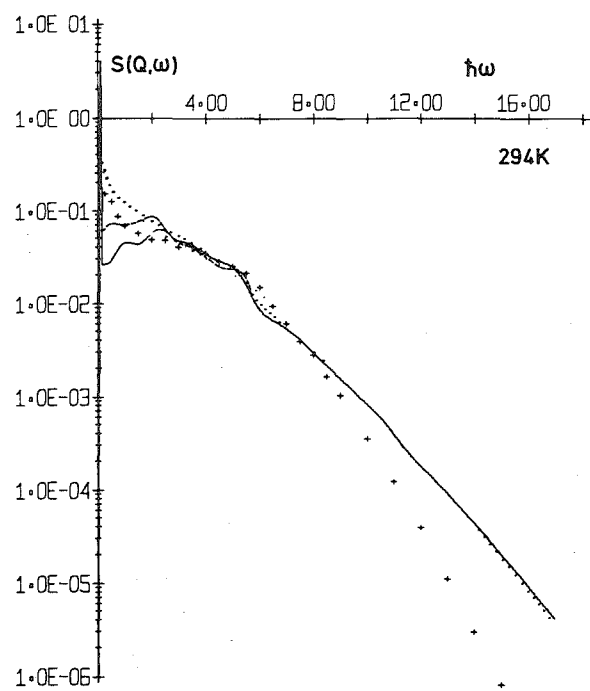
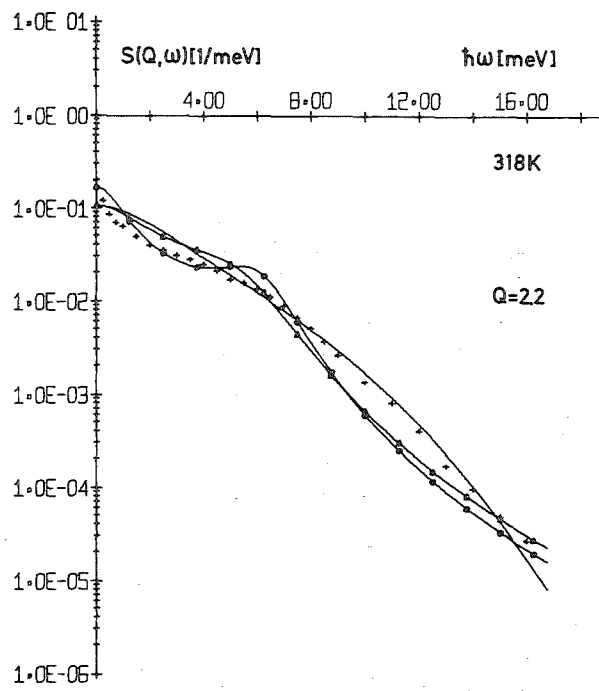


Abb. 11 a und 11 b Vergleich des gemessenen Streugesetzes (+) mit Streugesetzmodellen. 318 K: — Pathak and Singwi (70), —▲— Lovesey (71), —○— Sears (69), 294 K und 123 K: — kohärentes Modell, --- inkohärente Näherung mit Modellzustandsdichte.



(Fortsetzung von Abb. 11a) ... inkohärente Näherung mit experimentellem Frequenzspektrum.

Die Streugesetze der 123 K-Messung dagegen lassen sich recht gut in harmonischer Näherung beschreiben, wie Abb. 11a und 11b und auch Abb. 19 zeigen, insbesondere wenn man bedenkt, daß kein Anpassungsfaktor zwischen den Modellen und den Streugesetzen benutzt wurde. Wegen der starken kohärenten Struktur des Streugesetzes ist die Beschreibung dieser Meßdaten in inkohärenter Näherung bei kleinen Impulsüberträgen noch schlechter als bei der 294 K-Messung.

Der Vergleich gemessener und berechneter Streugesetze ist nicht besonders fruchtbar, da die Parameter phänomenologischer Modelle meistens nur geringe Einsicht in die Physik der Dynamik des Systems gewähren. Doch gibt dieser Vergleich einen Eindruck davon, wie weit die Streugesetze z.Z. berechnet werden können, wie gut die Modelle sind, die zur Mehrfachstreuung benötigt werden und wie genau sich die wichtigsten Modellparameter durch Anpassen des Modells an das gemessene Streugesetz bestimmen lassen.

III.4 Dispersionen im Polykristall

Einem Ansatz Egelstaffs (53) folgend, haben Kroo und Mitarbeiter (64) vorgeschlagen, den doppeltdifferentiellen Wirkungsquerschnitt für Einphononenprozesse mit Hilfe einer mittleren Dispersion im Polykristall zu beschreiben. Da im Polykristall bei 123 K die kollektiven Anregungen im Streugesetz als Peaks bei $\hbar\omega > 0$ zu sehen sind, kann man daher untersuchen, ob deren Maxima eine solche mittlere Dispersion im Polykristall anzeigen.

In Abb. 12 sind die Energieüberträge dargestellt, bei denen die Maxima dieser Peaks im Streugesetz des Polykristalls bei 123 K liegen. Die zugehörigen Impulsüberträge sind außerhalb der ersten Brillouinzone in der Umgebung des Impulses Q_{110} des 110-Reflexes. Für $Q < Q_{110}$ ist eine Veränderung der Peaklage schwach angedeutet. Für höhere Impulsüberträge dagegen ist keine Dispersion zu bemerken. Die Peaks im Streugesetz liegen bei Energieüberträgen, die im wesentlichen den Frequenzen der van Hove-Singularitäten in der Zustandsdichte entsprechen (s. Abb. 20) (van Hove 53).

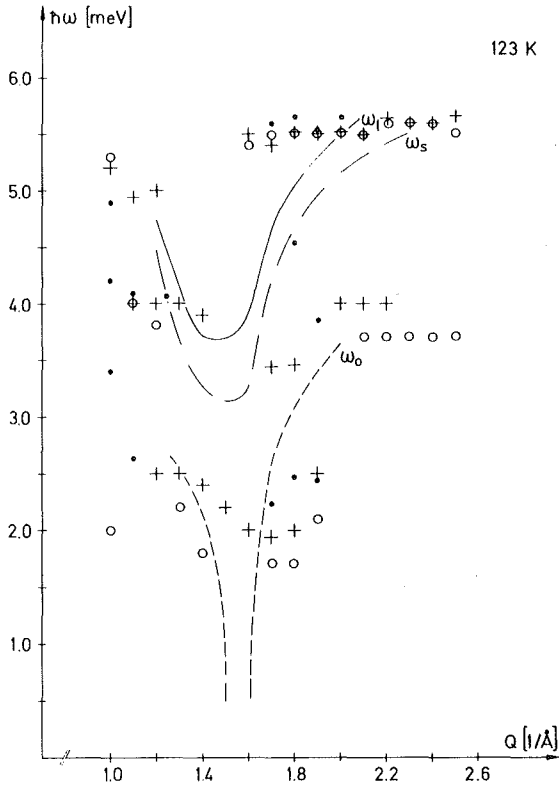


Abb. 12 Peaklagen bei 123 K:

- o im Streugesetz,
- + in $\omega^2 S(Q, \omega)$,
- in den partiellen Zustandsdichten
- Das Verhältnis ω_0 des zweiten zum nullten Moment und
- des vierten zum zweiten Moment ω_1 und die Lage des
- Schwerpunktes ω_s der Verteilung $\omega^2 S(Q, \omega)$.

Die Maxima im Streugesetz bei $\hbar\omega > 0$ bilden sich in der Fouriertransformierten der Strom-Strom-Autokorrelationsfunktion ab. Wegen der Breite der Peaks sind sie durch die Wichtung mit ω^2 zu etwas höheren Energien verschoben. Der Einphononenanteil dieser Autokorrelationsfunktion kann im klassischen Grenzfall mit Hilfe der partiellen Zustandsdichten berechnet werden (de Wette, Rahman 67)

$$\omega^2 S^1(Q, \omega) = \langle \omega^2 \rangle e^{-2W} F(Q, \omega) \quad (62)$$

Die Maxima beider Funktionen müssen daher übereinstimmen.

Die partielle Zustandsdichte ist für einige Impulsüberträge in Abb. 13 dargestellt. Unter der Annahme, daß die Struktur des Streugesetzes des Polykristalls bei 123 K noch wesentlich durch die Einphononenbeiträge zum Streugesetz gekennzeichnet ist, werden deshalb einige Maxima beider Funktionen in Abb. 12 verglichen. $F(Q, \omega)$ zeigt ein eindeutiges Maximum nur für Impulsüberträge innerhalb der ersten Brillouinzone. Danach spalten die Verteilungen auf, wie es auch in $\omega^2 S(Q, \omega)$ zu sehen ist. Unter Berücksichtigung der Fehlergrenzen, in denen die Maxima der Verteilungen festgelegt werden konnten, stimmen die experimentellen Werte

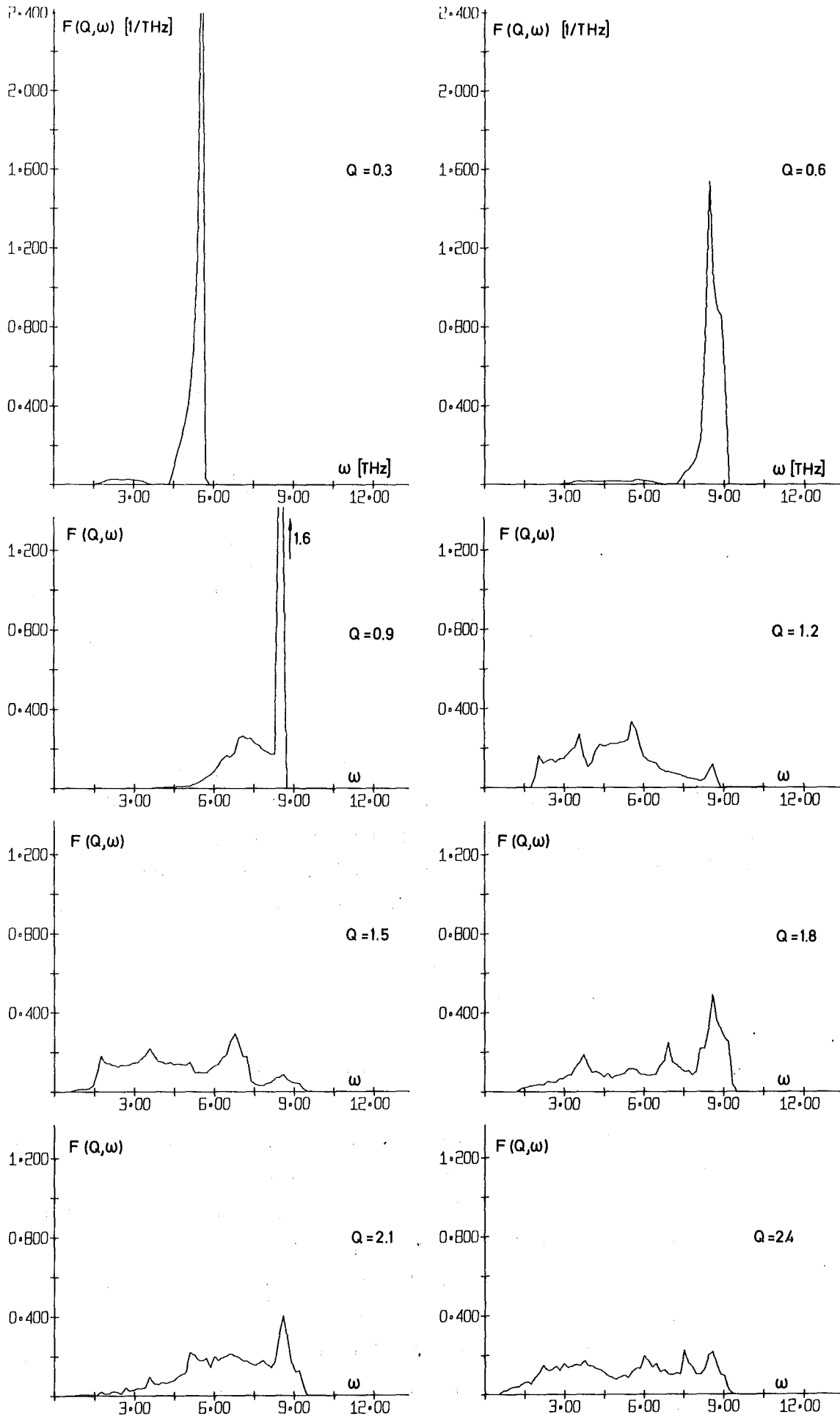


Abb. 13 Die partiellen Zustandsdichten bei 123 K für Impulsüberträge zwischen $Q=0.3$ und $Q=2.4$ ($1/Q$) aufgetragen über der Phononenenergie.

mit den berechneten ganz gut überein. Diese Maxima können aber kein anderes Verhalten zeigen als die Peaks im Streugesetz selber.

Das Schwergewicht dieser Verteilung

$$\omega_s(Q) = \frac{2 \int_0^{\infty} d\omega \omega \omega^2 S(Q, \omega)}{\langle \omega^2 \rangle} \quad (63)$$

dagegen zeigt eine ausgeprägte Veränderung mit dem Impulsübertrag, deren Verlauf an eine Dispersion erinnert. Da die Peaks im Streugesetz, insbesondere für $Q > Q_{110}$, keine Dispersion vermuten lassen, sieht man hier nur den Wechsel zwischen der intensiven Anregung transversaler Phononen in der Nähe des Bragg-Reflexes und der longitudinaler Phononen zwischen den Bragg-Reflexen. Oberhalb $Q = 2 (1/\bar{A})$ wird das Integral schon wesentlich durch Mehrphononenbeiträge bestimmt (s. Abb. A2 rechts). Dieser Wechsel in der Polarisation der Anregung in der Nähe der niederindizierten Bragg-Reflexe bei Einphononenprozessen ist, Egelstaff (53) folgend, in Abb. 14 erklärt. Liegt die Länge des Impulsübertrages zwischen dem Abstand der Punkte des reziproken Gitters vom Ursprung, so werden bevorzugt longitudinale Phononen angeregt werden; ist dagegen die Länge gleich dem Abstand eines reziproken Gitter-Punktes, so kann das Neutron mit longitudinalen Phononen kaum wechselwirken.

Das eben gesagte trifft genau so zu für das Verhältnis des vierten zum zweiten Frequenzmoment,

$$\omega_1^2 = \frac{\langle \omega^4 \rangle}{\langle \omega^2 \rangle} = \frac{2 \int_0^{\infty} d\omega \omega^2 \omega^2 S(Q, \omega)}{\langle \omega^2 \rangle} \quad (64)$$

d.h. den Mittelwert des Frequenzquadrats, nur daß in diesem Fall die longitudinalen Phononen und vor allem die Mehrphononenprozesse im Vergleich zu den transversalen Phononen mit einem noch größeren Gewicht zum Integranden beitragen als in Gl. (63) (s. Abb. A3). Wegen der starken Mehrphononenbeiträge zum Integranden könnte ohnehin von einer Dispersion kollektiver Moden nicht mehr die Rede sein.

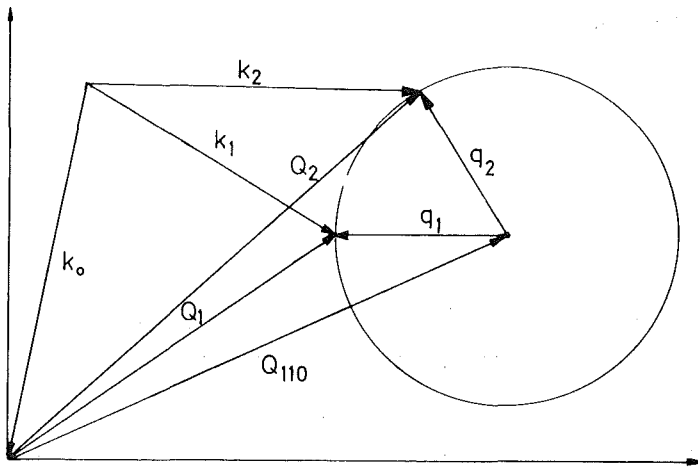


Abb. 14

Bevorzugte Anregung longitudinaler Phononen für $Q_1 < Q_{110}$ und die transversaler Phononen für $Q_2 \approx Q_{110}$.

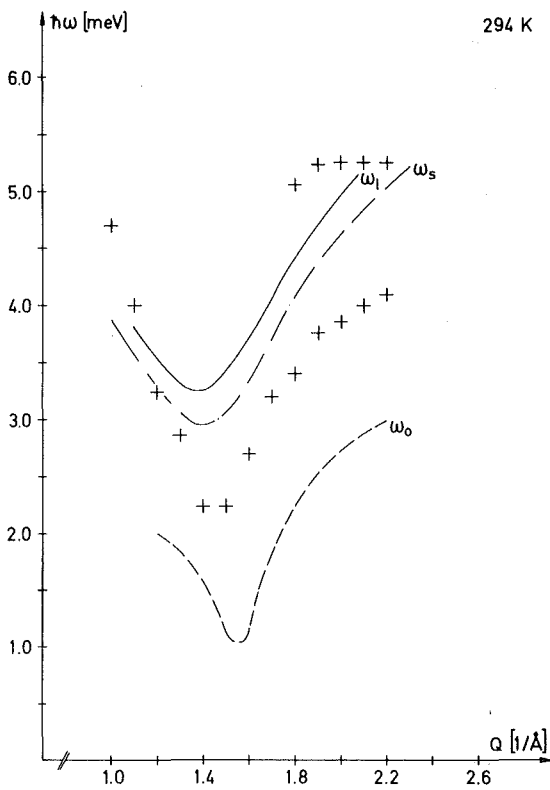


Abb. 15

Peaklagen bei 294 K:

+ in $\omega^2 S(Q, \omega)$.

--- Das Verhältnis ω_0 des zweiten zum nullten Moment und

— des vierten zum zweiten Moment ω_1 und

- - - die Lage des Schwerpunktes ω_s der Verteilung $\omega^2 S(Q, \omega)$.

Schließlich ist in Abb. 12 auch noch das Verhältnis des zweiten zum nullten Moment ω_0 eingezeichnet, das wegen des hohen Bragg-Peaks bei Q_{110} einen trichterförmigen steilen Abfall zeigt.

Dieselben Funktionen sind in Abb. 15 für den Polykristall bei 294 K dargestellt. Da in dem Streugesetz ausgeprägte Maxima bei $\hbar\omega > 0$ fehlen und das benutzte Modell die Messungen nicht gut beschreibt, wurden in die Abbildung nur ω_0 , ω_S , ω_1 und die Maxima von $\omega^2 S(Q, \omega)$ aufgenommen. Für Impulsüberträge kleiner als 1.8 (1/\AA) konnte nur ein Maximum von $\omega^2 S(Q, \omega)$ festgestellt werden. Das entspricht den Verhältnissen bei der Flüssigkeit, die in Abb. 10 gezeigt wurden. Für größere Impulsüberträge wurde versucht, zwei Maxima zu identifizieren (s. Abb. A2 Mitte), die kein wesentlich anderes Verhalten zeigen, als die der 123 K-Messung. Der Beitrag von Frequenzen oberhalb der maximalen Energie der Phononenzustandsdichte ist sehr viel größer als beim Polykristall bei 123 K. Das führt dazu, daß das Gewicht der Funktion $\omega^2 S(Q, \omega)$ in der Nähe von Q_{110} weniger stark zu kleineren Energien verlagert wird. Daher ist ω_S um einen nahezu konstanten Faktor $\Delta\omega = (\omega_1 - \omega_S)$ zu kleineren Energien verschoben. Im Fall der Flüssigkeit ist $\Delta\omega$ 0.5 bis 0.7 meV. Während also das Maximum der Funktion $\omega^2 S(Q, \omega)$ sich stark mit dem Impulsübertrag ändert, tut ihr Schwerpunkt das nicht.

Im Abschnitt III.2 wurde gesagt, daß die Maxima der Fouriertransformierten der longitudinalen Strom-Strom-Autokorrelationsfunktion mit ω_1 zusammenfallen sollten, wenn die kollektiven Anregungen im System ungedämpfte longitudinale Moden sind. In diesem Fall bestände $\omega^2 S(Q, \omega)$ aus einem scharfen Peak, wie er ähnlich in $F(Q, \omega)$ innerhalb der ersten Brillouinzone zu finden ist, und die Wurzel aus dem Mittelwert des Frequenzquadrats fiel damit zusammen. Ein solch idealisiertes System wird aber in der Flüssigkeit nicht beobachtet, wie Abb. 10 zeigt. Im Festkörper wird die Struktur der Verteilung $\omega^2 S(Q, \omega)$ durch die kohärente Anregung transversaler und longitudinaler Phononen bestimmt. Die Maxima mit der höchsten Energie können vor allem longitudinalen Phononen zugeordnet werden und tragen wegen der Wichtung mit ω^4 hauptsächlich zum Integranden des vierten Moments bei. Beschränkt man sich auf die Betrachtung dieser Maxima, so gibt es wenigstens Schnittpunkte beider Funktionen bei Impulsüberträgen unterhalb und oberhalb Q_{110} . Für Impulsüberträge nahe Q_{110} überwiegen die transversalen Anregungen und oberhalb $Q = 2 \text{ (1/\AA)}$ die Mehrphononenbeiträge.

III. 5 Frequenzspektren der Polykristalle

Im vorigen Abschnitt wurde gezeigt, daß die unelastischen Peaks im Streugesetz für $Q > 2$ ($1/\text{Å}$) die Lagen der van Hove-Singularitäten (van Hove 53) in der Phononenzustandsdichte andeuten. Deshalb liegt es nahe zu versuchen, das Frequenzspektrum der eben diskutierten kollektiven Anregungen im Polykristall aus dem gemessenen Streugesetz zu bestimmen. Dabei werden die Ergebnisse zweier unterschiedlicher Auswerteverfahren und der Einfluß der Mehrfachstreuokorrektur auf die Frequenzverteilungen untersucht.

In harmonischer Näherung ist der Einphononenanteil des Streugesetzes eines inkohärenten Streuers der Phononenzustandsdichte $F(\underline{Q}, \omega)$ proportional (s. Gl. (36)). Sie läßt sich daher aus dem gemessenen Streugesetz bestimmen, wenn dessen Mehrphononenbeiträge herauskorrigiert werden können. Diese Korrektur kann in jedem Detektorspektrum eines inkohärenten Streuers gemacht werden. Die Flugzeitspektren eines kohärenten Streuers dagegen werden nach Gl. (31) jeweils nur einen Teil der Frequenzinformation enthalten, abhängig von der relativen Lage des Impulsübertrages \underline{Q} zum Polarisationsvektor $\underline{\sigma}_j$. Wird aber über alle Richtungen von \underline{Q} und über alle $\underline{\sigma}_j$ gemittelt, so kann man auch die volle Information über die Phononenzustandsdichte eines kohärenten Streuers bekommen.

Die Grundidee der beiden Auswerteverfahren ist deshalb, das Streugesetz für eine Frequenz $S(Q, \omega = \text{const})$ über alle zugehörigen Impulsüberträge zu mitteln und die Mehrphononenbeiträge in inkohärenter Näherung iterativ herauszukorrigieren. Die beiden Verfahren unterscheiden sich dadurch voneinander, daß im Summationsverfahren die Mittelung und die Korrektur numerisch durchgeführt werden, während das Extrapolationsverfahren auf einer graphischen Auswertung der Streugesetze basiert.

Summationsverfahren

Zur Mittelung über alle Impulsüberträge muß im Experiment über alle Einfallrichtungen (innere Mittelung) oder über alle Ausfallrichtungen der Neutronen gemittelt werden (äußere Mittelung). Diese Detektorsummationsmethode (z.B. Gompf

et al. 72) wurde in diesem Experiment benutzt.

Die Frequenzverteilung eines kubischen Bravais-Gitters kann aus dem über alle Winkel θ gemittelten Einphononenanteil des Streugesetzes berechnet werden (Bredov et al. 67).

$$G(\hbar\omega) = \frac{2\beta}{k_B T} \sinh(\beta/2) \bar{S}(\beta) / \bar{\alpha} \quad (65)$$

$\bar{S}(\beta)$ ist das gewichtete Summenspektrum

$$\bar{S}(\beta) = \sum_j e^{j\lambda} S^1(\alpha_j, \beta) \sin \theta_j \quad (66)$$

$$\bar{\alpha} = \frac{\alpha_{\max}^2 - \alpha_{\min}^2}{8 k k_0} = \frac{\hbar^2}{2M k_B T} (k_0^2 + k^2 - 2k_0 k \cos \theta_m \cos \theta_h) \cdot \sin \theta_m \sin \theta_h$$

$$\theta_m = (\theta_{\max} + \theta_{\min})/2$$

ist der mittlere Streuwinkel und

$$\theta_h = (\theta_{\max} - \theta_{\min})/2$$

ist der halbe Streuwinkelbereich.

$$S(\alpha, \beta) = k_B T S(Q, \omega) \quad (67)$$

ist das Streugesetz in der dimensionslosen Darstellung und $\alpha\lambda = 2W$ ist die entsprechende Darstellung des Debye-Waller-Koeffizienten

$$\lambda = \int_0^\infty d\beta \frac{\coth(\beta/2)}{\beta} F(\beta) \quad (68)$$

mit $F(\beta) = k_B T F(\hbar\omega)$

$$\alpha = \frac{\hbar^2 Q^2}{2M k_B T} \quad (69)$$

Die Mittelung des Streugesetzes (Gl. 66)) ist mit $\sin \theta$ gewichtet, weil im Experiment nicht die Q-Schritte, sondern die Winkelabstände konstant sind. Die Multiplikation mit $\sin \theta$ entspricht einer Wichtung der Streuintensität

mit dem Impulsübertrag. Der dadurch verursachte Fehler ist aber klein im Vergleich zu den anderen Fehlerquellen dieses Verfahrens (Reichardt 75).

Bei der Streuung der Neutronen finden neben Einphononenprozessen auch Mehrphononenprozesse statt, deren Beiträge zum Streugesetz herauskorrigiert werden müssen, bevor das Frequenzspektrum nach Gl. (65) berechnet werden kann. Wie die Diskussion der Gl. (32) zeigte, kann diese Korrektur auch für die Spektren eines kohärenten Streuers in inkohärenter Näherung mit Hilfe der Phononenentwicklung des Streugesetzes gemacht werden. Anharmonische Effekte bleiben dabei unberücksichtigt.

Zur Mehrphononenkorrektur wurde nach Gl. (65) eine Frequenzverteilung nullter Näherung $G_0(\hbar\omega)$ berechnet. Dabei wurde in Gl. (66) das gemessene Streugesetz (Energiegewinnspektren) anstelle des Einphononenanteils benutzt. Da der Beitrag der elastisch gestreuten Neutronen zum Streugesetz nicht herauskorrigiert worden war, konnten die ersten vier Kanäle an der elastischen Linie in die Korrektur nicht miteinbezogen werden. In diesem Energiebereich wurden die Frequenzspektren nachträglich für weitere Rechnungen durch ein angepaßtes Debye-Spektrum ergänzt. Zwischen 0 und 1.5 meV wurden Mittelwerte über je drei Kanäle gebildet, um beim Umrechnen von $G_0(\hbar\omega)$ auf die Verteilung über einer äquidistanten Energieskala keine Meßinformation zu verlieren. Mit Hilfe dieser Frequenzverteilung wurde das Streugesetz nach Gl. (36) im Energiebereich von 0 bis 14 meV bis zum Achtphononenterm für jeden Detektor und Flugzeitkanal des Experiments berechnet. Beiträge aus den Überlapp-Spektren (frame overlap) wurden bis zum Zweiphononenterm berücksichtigt. Diese Korrektur war etwa 1 % der Mehrphononenkorrektur. Wegen der kohärenten Effekte in den Flugzeitspektren konnte die Mehrphononenkorrektur nicht in den einzelnen Detektorspektren gemacht werden. Deshalb wurden die berechneten Werte nach Gl. (66) über alle Streuwinkel gemittelt und der Korrekturfaktor $C(\beta)$ aus dem Verhältnis der beiden Summenspektren bestimmt

$$C(\beta) = \bar{S}_{\text{exp}}(\beta) / \bar{S}_{\text{ber.}}(\beta) \quad (70)$$

Der berechnete Einphononenanteil des Summenspektrums wurde mit dem Korrekturfaktor multipliziert (Faktormethode) und mit Hilfe dieser Verteilung nach Gl. (65) eine Frequenzverteilung erster Näherung bestimmt, von der der nächste Iterationsschritt ausgeht (Suck, Reichardt 75). Das Korrekturverfahren basiert also da-

rauf, daß die Mehrphononenbeiträge im berechneten Vergleichsspektrum überschätzt werden, weil die bei der Rechnung als Zustandsdichte benutzten Frequenzspektren G_0, G_1, G_2 usw. noch Beiträge der Mehrphononenprozesse enthalten. Diese Beiträge werden im Laufe der Iteration immer kleiner im Vergleich zum Einphononenspektrum. Es konvergiert, wenn das gemessene Summenspektrum keine Beiträge höherer Phononenterme enthält, als in der Rechnung berücksichtigt werden.

Extrapolationsverfahren

In der Phononenentwicklung des Streugesetzes sind die Mehrphononenbeiträge durch steigende Potenzen von α charakterisiert. Im Grenzfall $\alpha \rightarrow 0$ ist deshalb $S_S^{\text{une1}}(\alpha, \beta)/\alpha$ direkt proportional zu $F(\hbar\omega)$. Die Phononenzustandsdichte kann daher aus dem Streugesetz eines inkohärenten Streuers durch Extrapolation zum Grenzwert $\alpha \rightarrow 0$ bestimmt werden (Egelstaff, Schofield 62)

$$G(\hbar\omega) = \frac{2}{k_B T} \beta \sinh(\beta/2) \lim_{\alpha \rightarrow 0} S_S^{\text{une1}}(\alpha, \beta)/\alpha \quad (71)$$

Das Extrapolationsverfahren kann auch auf das Streugesetz kohärenter Streuer angewandt werden, wenn bei der Extrapolation graphisch über alle Impulsüberträge gemittelt wird, wie das in Abb. 16 dargestellt ist.

Da das Streugesetz aller Streuer für große Impulsüberträge in seinen Selbstanteil $S_S(\alpha, \beta)$ übergeht, werden sich die Meßpunkte in Abb. 16 mit steigendem α einer Geraden nähern (inkohärenter Grenzfall), solange anharmonische Effekte nicht den Hauptbeitrag zum Streugesetz liefern. Das hat zur Folge, daß auch bei diesem Auswerteverfahren die Meßwerte bei großen α , bei denen die Mehrphononenbeiträge besonders gravierend sind, ein höheres Gewicht bekommen als Meßwerte bei kleinen α .

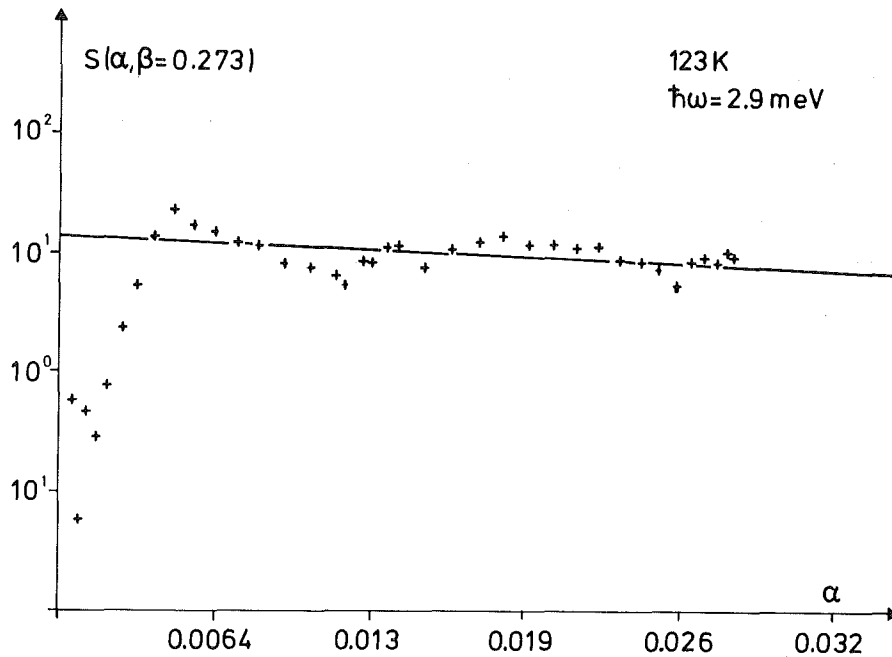


Abb. 16 Extrapolationsverfahren: die Extrapolationsgerade im Vergleich zu den Meßwerten $+ S(\alpha, \beta)/\alpha$ für den Energiebetrag $\hbar\omega = 2.9 \text{ meV}$ nach der Mehrfachstreuokorrektur der 123 K-Spektren.

Neben einem stärkeren Wichten der Streugesetzwerte, die bei großen Impulsüberträgen gemessen wurden, haben beide Verfahren zwei weitere Fehlermöglichkeiten gemeinsam. Bei kohärenten Streuern kann die Mittelung über die Impulsüberträge und die Polarisationsvektoren unzureichend sein, wenn der Abstand zwischen den Streugesetzwerten über der α -Skala zu groß gewählt wurde bzw. die Q -Vektoren nur bis in die erste oder zweite Brillouinzone hineinreichen. Diese Fehler können dadurch klein gehalten werden, daß genügend viele Streugesetzwerte für $\beta = \text{const.}$ mit ausreichend hoher Einfallenergie gemessen werden.

Die zweite Fehlermöglichkeit liegt im Nichtbeachten der Brillouinzonengrenzen im Experiment. Nach Definition der Phononenzustandsdichte (s. Gl. (35)) wird diese durch Sammeln aller Phononen in der ersten Brillouinzone bzw. einem ihrer irreduziblen Teile gewonnen. Das Streugesetz dagegen wird für Impulsüberträge gemessen, die mehrere Brillouinzonen überdecken, so daß die Frequenzverteilung für verschiedene Energien in verschiedenen Bereichen des reziproken Gitters bestimmt wird. Deshalb wurde das Frequenzspektrum in Gl. (65) und (71) mit $G(\hbar\omega)$ statt $F(\hbar\omega)$ bezeichnet. Bei der Messung bleiben die Grenzen der Brillouinzonen unberücksichtigt. Diese Zonenrandeffekte können die Genauigkeit der Zustandsdichtebestimmung beeinflussen, wenn die Impulsüberträge

nur wenige Zonen überdecken, was besonders bei kleinen Einfallsenergien der Fall ist. Der Fehler wird, wie der vorher diskutierte, umso kleiner, je mehr Brillouinzone vom Experiment erfaßt werden (hohe Einfallsenergien und großer Winkelbereich), weil dann die Randgebiete im Vergleich zum ganzen Sammelvolumen vernachlässigt werden können und die Fehler sich herausmitteln.

Bei der graphischen Extrapolation kann zusätzlich der Anstieg des Streugesetzes bei kleinen Impulsüberträgen näherungsweise berücksichtigt werden, der durch Mehrfachstreuung und Streuung der Neutronen im Spektrometeregas verursacht wird. Im Rahmen des Summationsverfahrens ist das nicht möglich, weil ihm die subjektive Komponente des Extrapolationsverfahrens fehlt. Bei der Auswertung wurde die Extrapolation interaktiv an einer Bildschirmeinheit für jeweils 72 β -Werte durchgeführt. Mit Hilfe des extrapolierten Frequenzspektrums wurde $S(\alpha, \beta)/\alpha$ in inkohärenter Näherung bis zum Sechophononenterm zurückgerechnet. Diese Werte waren die Basis des nächsten Iterationsschrittes in der Extrapolation. Das Verfahren konvergiert, wenn die berechnete Extrapolationsgerade mit der am Bildschirm gezeichneten übereinstimmt. (Abel 74).

Mit beiden Auswertemethoden wurde versucht, Frequenzspektren aus den Streugesetzen der 123 K- und der 294 K-Messung nach der Mehrfachstreuakorrektur zu bestimmen. Das Summationsverfahren wurde außerdem auch auf die Meßdaten vor der Mehrfachstreuakorrektur angewandt, um den Einfluß dieser Korrektur auf die Frequenzverteilungen zu untersuchen.

Die Ausgangsspektren $G_0(\hbar\omega)$ der Summationsmethode sind für die beiden Datensätze nach der Mehrfachstreuakorrektur in den Abb. 17. und 18 dargestellt. Die Verteilung der 123 K-Messung wird mit einem Frequenzspektrum nullter Näherung verglichen, das aus der Simulation des Experiments mit dem in Abschnitt III.3 beschriebenen Streugesetzmodell berechnet wurde.

Abb. 19 zeigt im Vergleich des doppelt-differentiellen Wirkungsquerschnittes einiger Flugzeitspektren des Experiments und des Modells deutlich den unterschiedlichen Beitrag jedes Streuwinkels zum Ausgangsspektrum $G_0(\hbar\omega)$.

Die Ergebnisse des Iterationsprozesses zeigen die Abb. 20 und 22 für die Meß-

daten vor und nach der Mehrfachstreu korrektur. Sie werden verglichen mit den Zustandsdichten, die mit Hilfe der root sampling Methode und denselben Kraftkonstanten berechnet wurden wie die Streugesetzmodelle (s. Abschnitt III.3).

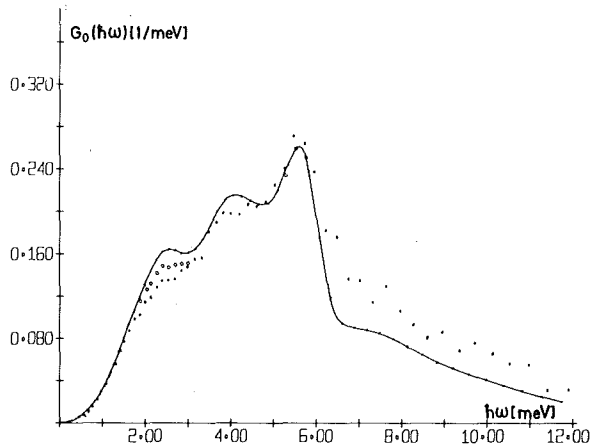


Abb. 17 Die Ausgangsverteilung $G_0(\hbar\omega)$ der Frequenzspektren bei 123 K:
— berechnet,
o gemessen,
.. die Meßwerte nach der Mehrfachstreu korrektur.

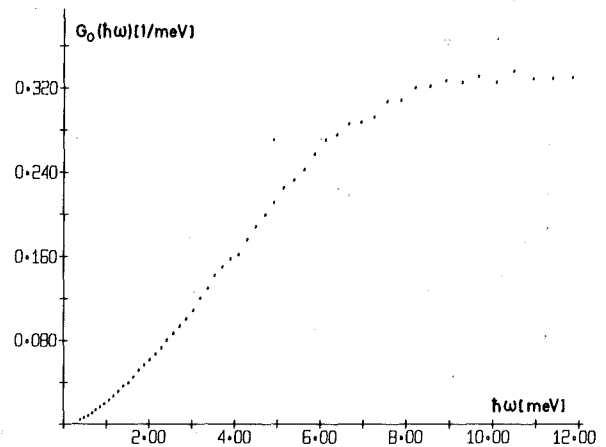


Abb. 18 Die Ausgangsverteilung $G_0(\hbar\omega)$ der Frequenzspektren bei 294 K nach der Mehrfachstreu korrektur.

Die gefaltete Zustandsdichte des 123 K-Modells ist in Abb. 21 zu sehen. Beim Vergleich mit den Modellspektren darf nicht übersehen werden, daß sie mit Kraftkonstanten berechnet wurden, die mit Hilfe der Phononenmessungen in den Symmetrierichtungen des Kristalls gewonnen wurden, und daß keine anharmonischen Effekte berücksichtigt wurden.

Die Mehrphononenbeiträge zum 123 K-Spektrum konnten weitgehend herauskorrigiert werden. Die Intensitäten oberhalb 6.2 meV zeigen deren Rest nach 8 Iterationsschritten. Das Streugesetz wurde mit dieser und der Modellzustandsdichte in inkohärenter Näherung berechnet. Es war kein wesentlicher Unterschied zwischen den beiden Ergebnissen festzustellen.

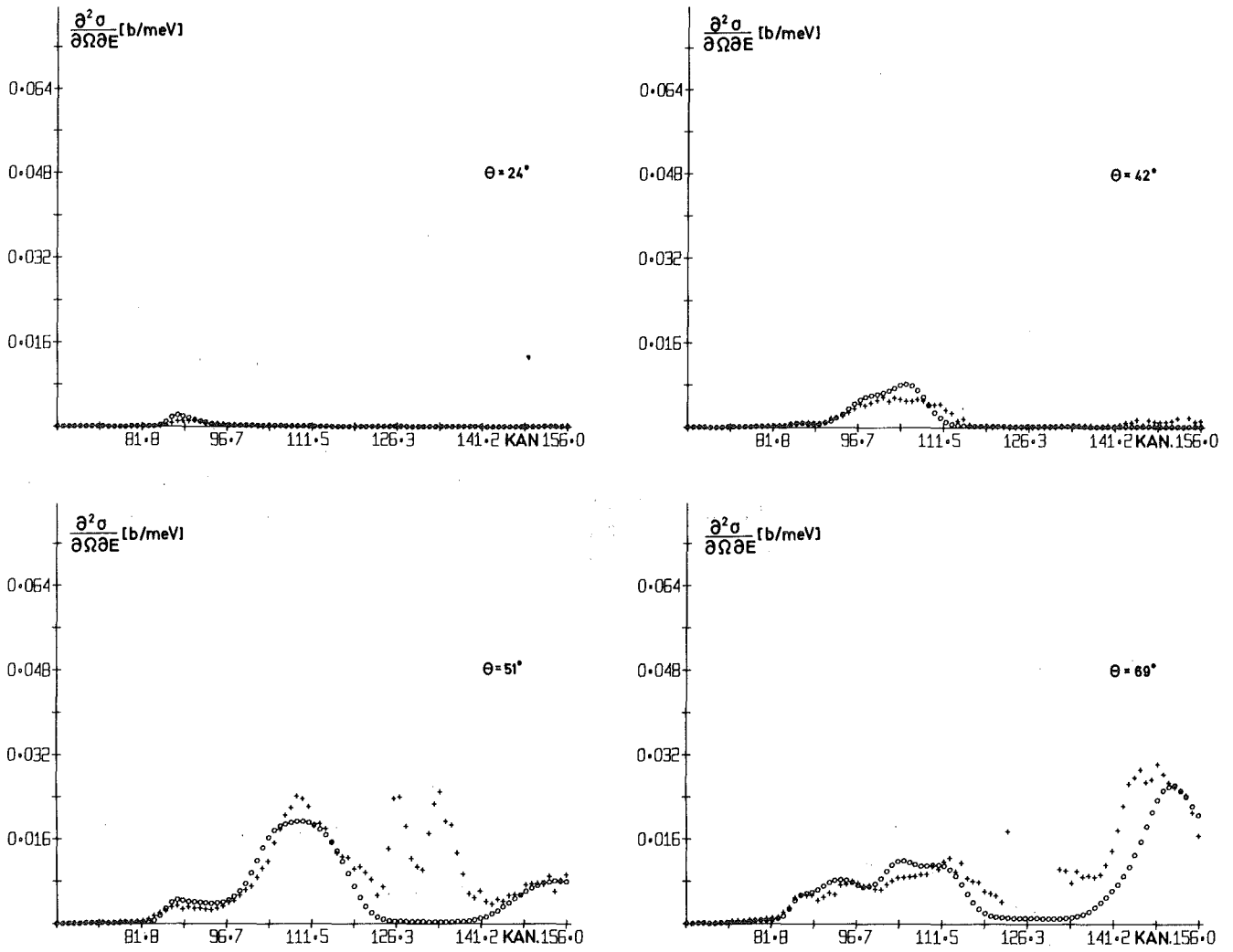


Abb. 19 Flugzeitspektren des polykristallinen Rubidiums bei 123 K für vier Streuwinkel. Der doppelt-differentielle Wirkungsquerschnitt ist über den Flugzeitkanälen aufgetragen:
oo Rechnung mit dem "kohärenten" Modell,
++ Meßwerte nach der Mehrfachstreuungkorrektur.

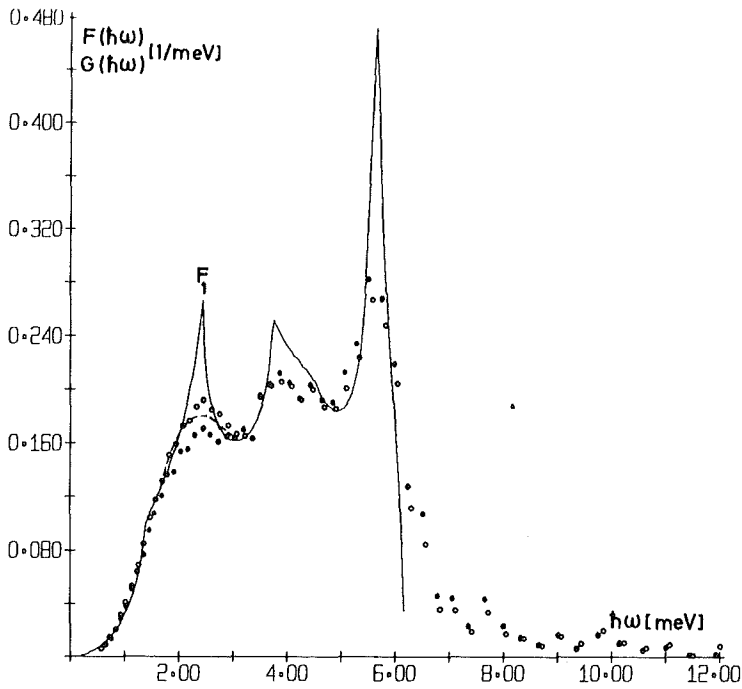


Abb. 20

Frequenzspektrum des Rubidiums bei 123 K, berechnet mit dem Summationsverfahren:

- Modellrechnung mit den Kraftkonstanten von Copley und Brockhouse (73),
- o o Meßwerte vor der Mehrfachstreuungkorrektur,
- .. Meßwerte nach der Mehrfachstreuungkorrektur,
- Korrektur nach Abb. 23 wurde zu letzterem Spektrum hinzuaddiert.

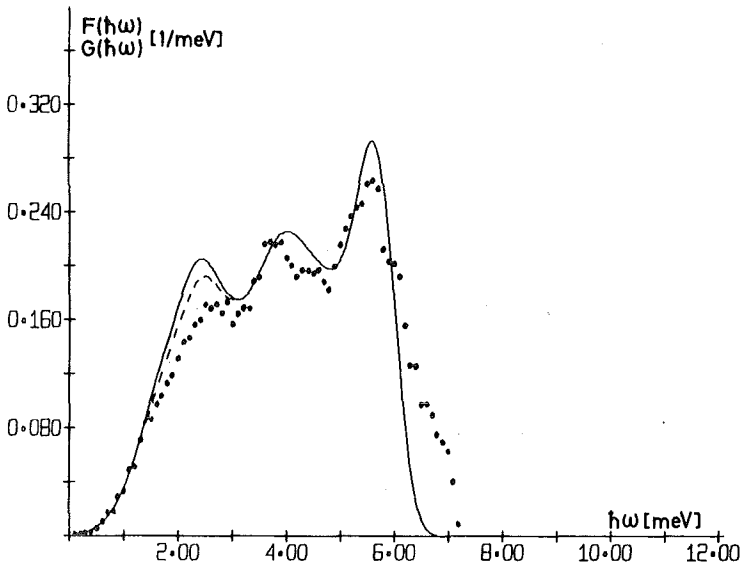


Abb. 21

Frequenzspektrum des Rubidiums bei 123 K, aus den Streugesetzen extrapoliert:

- Modellverteilung aus Abb. 20 nach dem Falten mit der Auflösungsfunktion des Spektrometers,
- .. extrapolierte Werte nach der Mehrfachstreuungkorrektur,
- Korrektur aus Abb. 23 wurde vom berechneten Spektrum abgezogen.

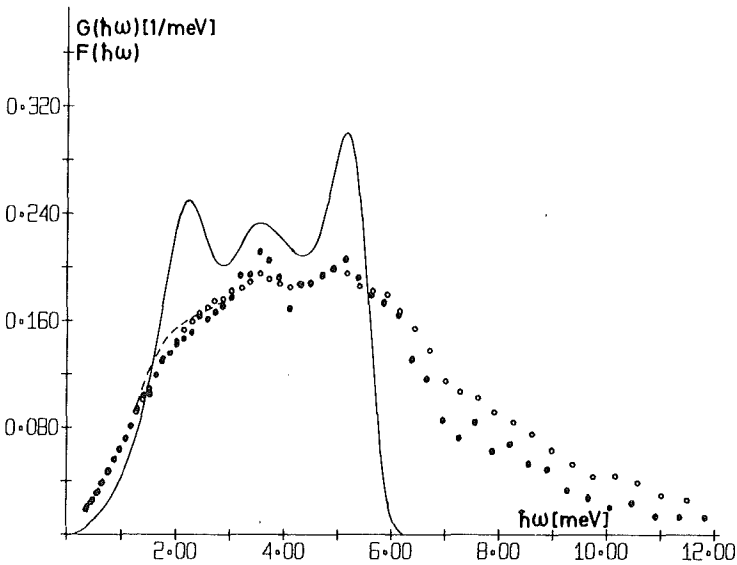


Abb. 22

Frequenzspektrum des Rubidiums bei 294 K, berechnet mit dem Summationsverfahren:

- Modellrechnung,
- o o Meßwerte vor der Mehrfachstreuungkorrektur,
- .. Meßwerte nach der Mehrfachstreuungkorrektur,
- Korrektur nach Abb. 23 wurde zu letzterem Spektrum hinzuaddiert.

Im 294 K-Spektrum dagegen konnte nur ein Teil der Mehrphononenbeiträge zum Streugesetz herauskorrigiert werden. Das ist nicht verwunderlich, da das Streugesetz des Kristalls bei Zimmertemperatur nicht in harmonischer Näherung beschrieben werden kann, wie im Abschnitt III.3 gezeigt wurde, und die berechneten Mehrphononenanteile im Ausgangsspektrum $G_0(\hbar\omega)$ etwa sechs bis siebenmal größer waren als die Modellzustandsdichte. Die Ergebnisse nach 15 Iterationsschritten können deshalb nur eine ungefähre Vorstellung von der Zustandsdichte im Polykristall bei 294 K vermitteln. Mit dieser Frequenzverteilung wurde wie vorher das Streugesetz berechnet. Dabei blieben die Werte der Frequenzverteilung oberhalb 5.6 meV unberücksichtigt. Die Ergebnisse wurden im Abschnitt III.3 diskutiert.

Die Lagen der van Hove-Singularitäten und der Anstieg des 123 K-Spektrums stimmen gut mit dem gefalteten Modellspektrum überein. Im Vergleich zu diesem Spektrum sind die Singularitäten im 294 K-Spektrum zu kleineren Frequenzen verschoben. Diese Verschiebung ist auch im Modell zu sehen. Darüberhinaus aber unterscheidet sich das Modell von der gemessenen Verteilung. Das Frequenzspektrum, das Schommers durch Fouriertransformieren der Geschwindigkeitsautokorrelationsfunktion berechnete, stimmt in der Form recht gut mit dem Modell überein, zeigt aber die Verschiebung der van Hove-Singularitäten nicht. In der Zustandsdichte, die mit dem 205 K-Kraftkonstantensatz von Copley und Brockhouse berechnet wurden, sind diese Singularitäten um etwa 0.2 meV zu kleineren Frequenzen verschoben im Vergleich zur Zustandsdichte bei 120 K.

Um die Vollständigkeit des Mittelungsprozesses zu prüfen, wurde das Experiment mit einem Rechner simuliert (Suck et al. 74). Hierzu wurde der Einphononenanteil des kohärenten doppeltdifferentiellen Wirkungsquerschnitts, wie in Abschnitt III.3 beschrieben, für alle Detektoren und Flugzeitkanäle des Experiments berechnet und daraus die Frequenzverteilung nach Gl. (65) bestimmt. Die Rechner-Simulation zeigt, daß die gemessene Frequenzverteilung am stärksten bei kleinen Frequenzen von der Zustandsdichte abweicht (s. Abb. 23).

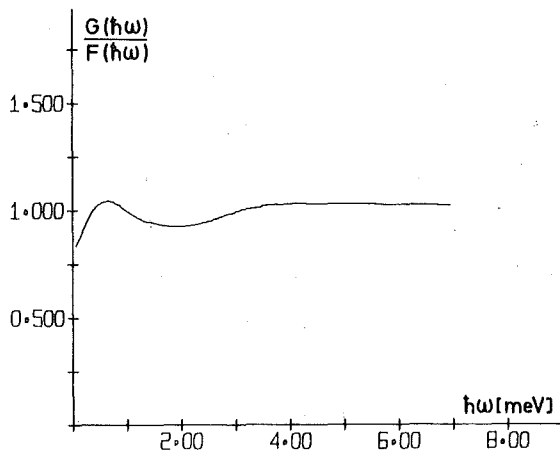


Abb. 23 Die Abweichung der Frequenzverteilung des simulierten Experiments von der Zustandsdichte.

Im Energiebereich von 1.5 bis 3 meV liegt die simulierte Verteilung bis zu 10 % unter der Zustandsdichte (s. Abb. 21). Die daraus folgenden Korrekturen der gemessenen Spektren, bezogen auf die Daten nach der Mehrfachstreu Korrektur, sind in Abb. 20 und 22 als gestrichelte Linie eingezeichnet. Die Abweichungen sind dadurch verursacht, daß im Experiment wegen der niedrigen Einfallenergie nur wenige Brillouin zonen von den Impulsüberträgen ausgefüllt werden, die mit kleinen Energieüberträgen verbunden sind. Trotz der niedrigen Einfallenergie ist aber sonst die Mittelung im reziproken Gitter des Kristalls ausreichend. Das war zu vermuten, da sich bei größeren Impulsüberträgen die Lagen der van Hove-Singularitäten im Streugesetz schon abzeichneten.

Der Einfluß der Mehrfachstreu Korrektur auf die Frequenzspektren ist auch in Abb. 20 und 22 zu sehen. Die elastisch - unelastischen Streuprozesse führen zu einer Mittelung über alle Einfallrichtungen der Neutronen im Kristall (innere Mittelung). Diese unterstützt die äußere Mittelung. Deshalb wird die Frequenzverteilung im Bereich des Peaks, der in Abb. 20 Copley und Brockhouse folgend mit F_1 gekennzeichnet wurde, weniger unterbewertet als nach der Mehrfachstreu Korrektur. Auf der anderen Seite unterstützt diese die Mehrphononenkorrektur, wie Abb. 22 deutlich zeigt.

Die Extrapolation der Streugesetze der 294 K-Messung konvergierte nicht, wahrscheinlich wegen der anharmonischen Effekte im Polykristall, die sich schon bei dem Vergleich des gemessenen Streugesetzes mit dem harmonischen Modell andeutete, und der subjektiven Komponente des Verfahrens. In Abb. 21 ist das Frequenzspektrum dargestellt, das aus den Streugesetzen der 123 K-Messung nach der Mehrfachstreuungkorrektur extrapoliert wurde. Es stimmt recht gut mit dem Ergebnis der Summationsmethode überein. Wegen der starken kohärenten Struktur des Streugesetzes bei kleinen Energieüberträgen (s. Abb. 5) ist die Extrapolation für diese Energien besonders schwierig. Deshalb sind die Abweichungen zwischen beiden Ergebnissen bei Frequenzen bis zu 2.7 meV auf individuelle Fehler im Mittelungsprozeß bei der Extrapolation zurückzuführen.

Die Gültigkeit der harmonischen Näherung, die aus der Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen der Messung und der Modellrechnung der 123 K-Spektren folgt, rechtfertigt es, einige Folgegrößen der Zustandsdichte zu berechnen. Dabei wurde die Frequenzverteilung benutzt, die nach der Mehrfachstreuungkorrektur mit der Summationsmethode bestimmt worden war. Werte oberhalb 6.9 meV wurden nicht berücksichtigt. Zum Vergleich wurde das gefaltete Modellspektrum aus Abb. 21 herausgezogen.

Aus den Frequenzmomenten μ_n der Phononenzustandsdichte

$$\mu_n = (k_B T)^n \int_0^\infty d\beta \beta^n F(\beta) / \int_0^\infty d\beta F(\beta) \quad (72)$$

lassen sich die Debye-Abschneidefrequenzen ν_D berechnen (Barron et al. 57)

$$h \nu_D = n \sqrt{\frac{n+3}{3}} \mu_n \quad (73)$$

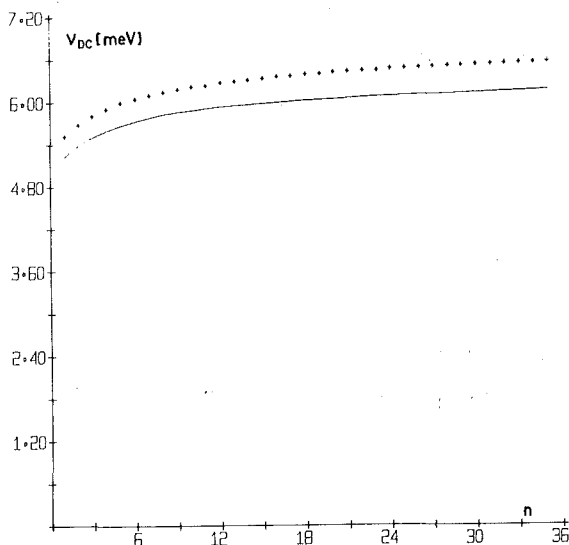


Abb. 24 Debye-Abschneidefrequenzen (123 K) in Abhängigkeit von der Ordnung des Frequenzmoments:
 — Rechnung mit dem Modellspektrum,
 ++ Rechnung mit der experimentell bestimmten Frequenzverteilung

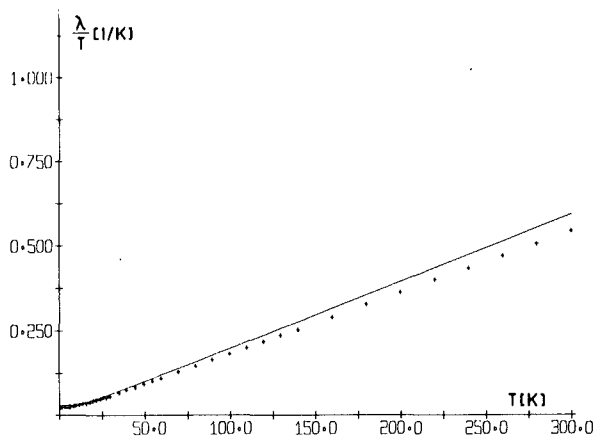


Abb. 25 Debye-Waller-Koeffizient/T in Abhängigkeit von der Proben-temperatur berechnet mit den 123K-Spektren:
 — Modell,
 ++ experimentelle Verteilung aus Abb. 21.

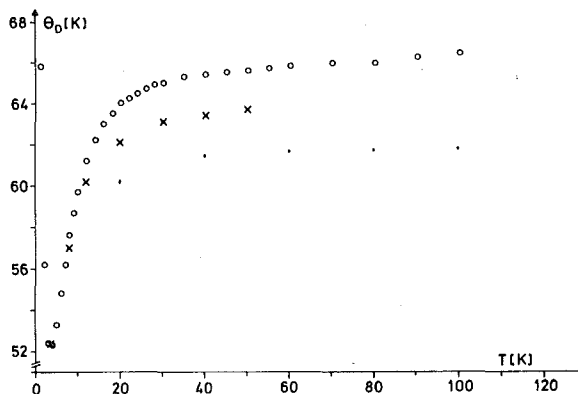


Abb. 26 Debye-Temperaturen in Abhängigkeit von der Proben-temperatur berechnet mit den 123 K-Spektren:
 .. Modellspektrum,
 oo experimentelle Verteilung,
 xx experimentelle Werte nach Filby und Martin (65).

In Abb. 24 werden die Ergebnisse verglichen, die mit dem experimentellen Frequenzspektrum und dem Modell bis $n = 35$ berechnet wurden. Die höheren Abschneidefrequenzen des experimentellen Spektrums werden durch die Intensitäten oberhalb 6 meV verursacht.

Der Debye-Waller-Koeffizient (s. Gl. (68)) dividiert durch die Temperatur ist in Abb. 25 über der Temperatur aufgetragen. Die Resultate der Rechnung mit dem experimentellen und dem Modellspektrum weichen bei kleinen Temperaturen etwa 6 % bei größeren 10-11 % voneinander ab. Dabei muß berücksichtigt werden, daß die Frequenzspektren wegen des Einflusses der elastischen Linie im Bereich der Energieüberträge unterhalb 1 meV bzw. etwa 10 K besonders unsicher sind. Aus dem gitterdynamischen Anteil der spezifischen Wärme wurden die Debye-Temperaturen θ_D bestimmt

$$C_V = 3R \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^3 \int_0^{\theta_D/T} dx \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} \quad (74)$$

Sie sind in Abb. 26 dargestellt. Für $T > \theta_D$ liegen die Debye Temperaturen, die aus der experimentellen Frequenzverteilung folgen, etwa 4 K oberhalb der Werte

des Modells. Zwischen diesen beiden Resultaten liegen die Werte, die Martin (65) aus der gemessenen spezifischen Wärme berechnete (Filby, Martin 65).

III.6 Relaxationszeiten in der Flüssigkeit

Wenn in der Flüssigkeit die kollektiven Anregungen nicht als ausgeprägte unelastische Peaks im Streugesetz zu sehen sind, wie das im Polykristall bei 123 K der Fall ist, dann stellt sich die Frage nach ihrer Dämpfung. Aus Mangel an einer Theorie, die solche Dämpfungsvorgänge mikroskopisch beschreibt, kann diese Frage nur im Rahmen der phänomenologischen Streugesetzmodelle beantwortet werden.

In den meisten Modellen wird versucht, die Dämpfung der kollektiven Anregungen durch eine konstante Relaxationszeit τ (z.B. Murase 70) oder eine impulsübertragsabhängige Relaxationsfunktion $\tau(Q)$ zu berücksichtigen, wie es im Abschnitt I.5 dargestellt wurde. Durch einen Least-Squares-Fit eines Modells an gemessene Streugesetze kann daher die Relaxationsfunktion bestimmt werden. Dabei darf allerdings nicht übersehen werden, daß der Ansatz für diese Funktion meistens ein kritischer Punkt eines Modells ist.

Um die Beschränkung dieser Aussage durch die Wahl des Modells etwas abzuschwächen, wurden Lovesey's und Pathak's und Singwi's Modell zur Bestimmung der Relaxationsfunktion an die gemessenen Streugesetze gefittet, zwei Modelle, die auf ganz verschiedenen Ansätzen basieren und in denen die Dämpfung unterschiedlich berücksichtigt wird. Für jedes der beiden Modelle wurde der Datensatz genommen, der mit Hilfe desselben Modells für Mehrfachstreuung korrigiert worden war.

Die Ergebnisse der Fits zeigt Abb. 27. Zum Vergleich ist die Relaxationsfunktion des Modells von Lovesey mit eingezeichnet, die nach Gl. (45) berechnet wurde. Dabei wurden dieselben ω_1 -Werte benutzt wie in den Modellrechnungen. Die Relaxationszeiten des Modells von Pathak und Singwi (Gl. 53)) liegen um den Faktor $\epsilon (= 1.13$ in diesem Fall) oberhalb der eingezeichneten Funktion.

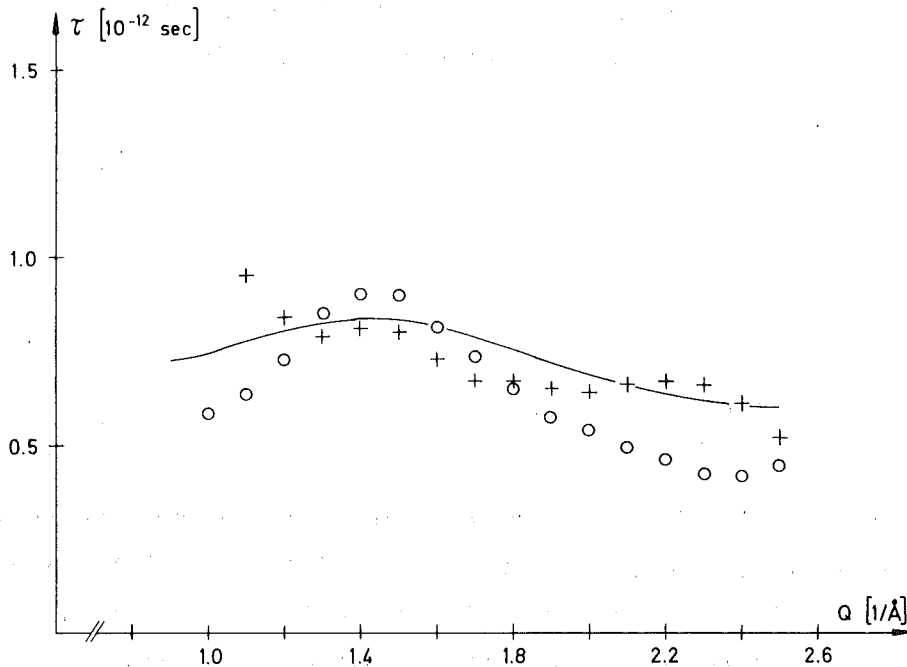


Abb. 27 Relaxationsfunktion:
 oo durch Fit mit Pathaks und Singwis (70) Modell,
 ++ durch Fit mit Lovesey's (71) Modell,
 — berechnet nach Lovesey's Modell.

Die Relaxationszeiten, die aus dem Fit des Modells von Pathak und Singwi bestimmt wurden, zeigen eine stärkere Variation mit dem Impulsübertrag als die mit Lovesey's Modell berechneten Werte. Das kann daran liegen, daß beim Fit des Modells von Lovesey zwei voneinander abhängige Parameter (s. Gl. (61)) ω_1 und $\tau_L(Q)$ variiert werden mußten, während bei der Rechnung mit Pathaks und Singwis Modell nur $\Gamma(Q)$ als freier Parameter benutzt wurde. Da die Modelle mit dem gemessenen Streugesetz nicht sehr gut übereinstimmten, waren dementsprechend die Fits an die Meßwerte mangelhaft, so daß die beiden Resultate im Rahmen dieser Fehler einander nicht widersprechen.

Die Größenordnung der Relaxationszeit von etwa 0.6×10^{-12} sec zeigt, daß kollektive Anregungen in der Flüssigkeit bei Impulsüberträgen oberhalb $Q=1.0(1/\text{Å})$ schon zerfallen, bevor sie sich ausbreiten können, da die Relaxationszeit und die Frequenz der Anregung gleich groß sind (nonpropagating collective excitations). Für kleinere Impulsüberträge dagegen werden sich ausbreitende kollektive Moden beobachten (propagating collective modes) (Copley, Rowe 74b). Auch die Relaxationsfunktionen der Modellstreugesetze zeigen einen starken Anstieg mit fallendem Impulsübertrag unterhalb $1(1/\text{Å})$. Im Polykristall bei 294 K wird eine ähnlich starke Dämpfung der unelastischen Peaks im Streugesetz beobachtet. Nähme man deshalb einen ähnlich schnellen Zerfall der kollektiven Moden aufgrund der starken Phonon-Phonon-Wechselwirkung an, so entspräche das einer Phononenlinienbreite von etwa 4 meV.

ZUSAMMENFASSUNG

Das Streugesetz des Rubidiums wurde dicht oberhalb und unterhalb des Schmelzpunktes (312 K) und bei 123 K mit der Flugzeitmethode für Impulsüberträge zwischen 1.0 und 2.5 ($1/\text{\AA}$) gemessen. Bei allen drei Temperaturen wurden in dem kohärent streuenden Metall kollektive Anregungen beobachtet, die unterschiedlicher Natur sein können.

Das Streugesetz bei 123 K zeigt eine ausgeprägte Peakstruktur, die der Anregung von Phononen zugeordnet werden kann. Eine mittlere Dispersion dieser Moden im Polykristall ist bei Impulsüberträgen unterhalb 1.5 ($1/\text{\AA}$) schwach angedeutet. Für größere Impulsüberträge geben die Peaks die Lage der van Hove-Singularitäten in der Phononenzustandsdichte wieder. Dies gilt auch für die Maxima der Fouriertransformierten der Strom-Strom-Autokorrelationsfunktion. Deren Schwerpunkt ω_s zeigt den Wechsel zwischen der intensiven Anregung transversaler Phononen in der Nähe des ersten Maximums des Strukturfaktors und der longitudinaler Moden bei kleineren und größeren Impulsüberträgen an, ohne eine Dispersion der Moden zu beschreiben. Das trifft auch zu auf das Verhältnis des vierten zum zweiten Moment, nur daß dabei die Mehrphononenprozesse für Impulsüberträge oberhalb 2.0 ($1/\text{\AA}$) noch stärker als bei ω_s zum Integral beitragen. Das Frequenzspektrum der Anregungen stimmt recht gut mit der Phononenzustandsdichte überein, die mit den Kraftkonstanten berechnet wurde, die Copley und Brockhouse aus ihren Phononenmessungen in den Symmetrierichtungen des Kristalls im Rahmen eines Born-von-Kármán-Modells bestimmten. Das Summations- und das Extrapolationsverfahren gaben nahezu gleiche Resultate. Ein Teil der Mehrfachstreuung unterstützt die Mittelung über die Polarisationsvektoren und Impulsüberträge im Polykristall. Mit Hilfe des Frequenzspektrums wurden die Debye-Abschneidefrequenzen und die Temperaturabhängigkeit des Debye-Waller-Koeffizienten und der Debye-Temperatur berechnet. Mit einem Modell, in dem die elastische Streuung und die Einphononenprozesse eines kohärenten Streuers und die Mehrphononenprozesse in inkohärenter Näherung berücksichtigt wurden, lassen sich die gemessenen Streugesetze ganz gut beschreiben.

Die kollektiven Anregungen im Polykristall bei 294 K zeichnen sich nicht mehr als Peaks im Streugesetz ab. Geblieben ist eine nur bei kleinen Impulsüberträgen ausgeprägte, breite Verteilung. Deshalb ähnelt der inelastische Anteil

dieses Streugesetzes insbesondere für Impulsüberträge oberhalb des Maximums des Strukturfaktors, mehr dem der Flüssigkeit als dem des Kristalls bei 123 K. Die Maxima der Fouriertransformierten der Strom-Strom-Autokorrelationsfunktion, der Schwerpunkt dieser Verteilung und die Wurzel aus dem Verhältnis des vierten zum zweiten Moment geben wie bei der 123 K-Messung keine mittlere Dispersion im Polykristall wieder. Da es nicht gelang, die Mehrphononenprozesse vollständig aus dem Streugesetz herauszukorrigieren, kann die gefundene Verteilung nur ein grobes Abbild des Frequenzspektrums im Kristall sein. Die van Hove-Singularitäten in der Zustandsdichte sind zu kleineren Energien verschoben. Die Korrektur für Mehrfachstreuung der Neutronen im Polykristall unterstützt die Mehrphononenkorrektur durch Herabsetzen der Intensitäten aus elastisch-inelastischen Streuprozessen in den Meßdaten. Das gemessene Streugesetz läßt sich in harmonischer Näherung mit einem Modell nur schlecht beschreiben, insbesondere für Energieüberträge oberhalb 6 meV.

Im Streugesetz des flüssigen Rubidiums bei 318 K sind kollektive Anregungen nur noch als schwache, breite Intensitäten bei Impulsüberträgen unterhalb und oberhalb der Lage des ersten Maximums des Strukturfaktors zu sehen. Diese strukturarmen Verteilungen lassen sich daher nur in der Wechselwirkung mit theoretischen Ansätzen sinnvoll diskutieren. Im Rahmen phänomenologischer Streugesetzmodelle können diese Intensitäten als lokale kollektive Anregungen gedeutet werden, die sich nicht ausbreiten. Die zugehörige Relaxationszeit hängt vom Impulsübertrag ab und ist von der Länge einer Schwingungsdauer der kollektiven Anregungen. Das vierte Frequenzmoment und auch einige Werte des sechsten Moments wurden aus den Streugesetzen bestimmt. Das Verhältnis des vierten zum zweiten Moment stimmt innerhalb der Fehler mit dem berechneten Momentverhältnis anderer Autoren überein und läßt sich im Rahmen einer einfachen Näherung für den Potentialanteil des vierten Moments recht gut beschreiben. Der Vergleich mit einigen Streugesetzmodellen zeigt, daß diese phänomenologischen Modelle das Streugesetz der Flüssigkeit nur unzureichend wiedergeben, insbesondere bei kleinen Energieüberträgen.

LITERATURVERZEICHNIS

- Abel W. (1974), KFK 2054, 86
Abel W., Suck J.-B. (1976), KFK 2187 (im Druck)
Ashcroft N.W., Lekner J. (1966), Phys. Rev. 145, 83
Bansal R. (1973 a), J. Phys. C. 6, 1204
Bansal R. (1973 b), J. Phys. C. 6, 3071
Bansal R., Pathak K.N. (1974), Phys. Rev. A9, 2773
Bansal R., Pathak K.N. (1975), Phys. Rev. A11, 724
Barron T.H.K., Berg W.T., Morrison J.A. (1957), Proc. Roy. Soc. (London) A 242, 478
Beckurts K.H. (1960), Habilitationsschrift, Karlsruhe
Berne B.J., Forster D., (1971), Ann. Rev. Phys. Chem. 22, 563
BNL 325 (1973), "Neutron Cross Sections", 3. Auflage
Bredov M.M., Kotov B.A., Okuneva N.M., Oskotskii V.S., Shakh-Budagov A.L. (1967), Sov. Phys. Solid St. 9, 214
Carvalho F. (1967), (unveröffentlicht)
Carvalho F., Ehret G., Gläser W. (1967), Nucl. Instr. and Meth. 49, 197
Cocking S.J. (1967), Adv. Phys. 16, 189
Copley J.R.D., Brockhouse B.N., Chen S.N. (1968), "Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids", IAEA: Wien, 209
Copley J.R.D., Brockhouse B.N. (1973), Canad. J. Phys. 51, 657
Copley J.R.D., Rowe J.M. (1974 a), Phys. Rev. A9, 1656
Copley J.R.D., Rowe J.M. (1974 b), Phys. Rev. Lett. 32, 49
Copley J.R.D., Lovesey S.W. (1975), Rep. Progr. Phys. 38, 461
Doob J.L. (1942), Ann. Math. 43, 351
Demichelis G.R., Tartaglia A. (1975), Nucl. Instr. and Meth. 124, 375
Egelstaff P.A. (1953), AERE N/R 1164
Egelstaff P.A., Schofield P. (1962), Nucl. Sci. Eng. 12, 260
Egelstaff P.A., Page D.I., Duffill D.C. (1972), Can. J. Phys. 50, 3062
Ehret G., Carvalho F. (1967), (unveröffentlicht)
Fermi E. (1936), Ricerca Scient. 7, 13
Filby J.D., Martin D.L. (1965), Proc. Roy. Soc. (London) A 284, 83
Forster D., Martin P.C., Yip S. (1968), Phys. Rev. 170, 155
de Gennes P.G. (1959), Physica 25, 825
Gilat G., Raubenheimer L.J. (1966), Phys. Rev. 144, 390
Gingrich N.S., Heaton L. (1961), J. Chem. Phys. 34, 873

- Gläser W., Hagen S., Löffler U., Suck J.-B. Schommers W. (1973)
"The Properties of Liquid Metals", Taylor and Francis
London, 111
- Gompf F., Lau H., Reichardt W., Salgado J. (1972), "Neutron Inelastic
Scattering", IAEA: Wien, 137
- Hagen S. (1973), KFK 1774
- van Hove (1953), Phys. Rev. 89, 1189
- van Hove (1954), Phys. Rev. 95, 249
- van Hove (1958), Physica 24, 404
- Hubbard J., Beeby J.L. (1969), J. Phys. C 2, 556
- Kadanoff L.P., Martin P.C. (1963), Ann. Phys. (N.Y.) 24, 419
- Kapulla H. (1972), KFK 1489
- Kim K., Nelkin M. (1971), Phys. Rev. A4, 2065
- Kroo N., Borgonovi G., Shöld K., Larsson K.E. (1964),
SAEC-Report (unveröffentlicht)
- Kubo R. (1966), Rep. Progr. Phys. 29, 255
- Kugler A.A. (1973), J. Statist. Phys. 8, 107
- Löffler U. (1973), KFK 1875
- Lovesey S.W. (1971), Phys. Lett. 36 A, 413 und J. Phys. C 4, 3057
- Marshall W., Lovesey S.W. (1971), "Theory of Thermal Neutron Scattering,"
Oxford UP : London
- Martin D.L. (1965), Phys. Rev. 139, A 150
- Mori H. (1965 a), Progr. Theor. Phys. 33, 423
- Mori H. (1965 b), Progr. Theor. Phys. 34, 399
- Murase C. (1970), J. Phys. Soc. (Jap.) 29, 549
- Pathak K.N., Singwi K.S. (1970), Phys. Rev. A2, 2427
- Percus J.K., Yevick G.J. (1958), Phys. Rev. 110, 1
- Placzek, G. (1952), Phys. Rev. 86, 377
- Price D.L., Singwi K.S., Tosi M.P. (1970), Phys. Rev. B2, 2983
- Rahman A., (1974 a), Phys. Rev. A 9, 1667
- Rahman A., (1974 b), Phys. Rev. Lett. 32, 52
- Rare Metals Handbook (1961), Reinhold Publishing Corporation,
Chapman and Hall, Ltd.: London
- Reichardt W. (1975), private Mitteilung
- Rowe J.M., Shöld K. (1972), "Neutron Inelastic Scattering,"
IAEA: Wien, 413

- Schofield P. (1960), Phys. Rev. Lett. 4, 239
- Schommers W. (1972), Z. Phys. 257, 78
- Schommers W. (1973), Phys. Lett. 43 A, 157
- Schommers W. (1975), Solid St. Comm. 16, 45
- Sears V.F. (1969), Can. J. Phys. 47, 199
- Sears V.F. (1970), Can. J. Phys. 48, 616
- Sjölander A. (1958), Arkiv Fysik 14, 315
- Squires G.L. (1963), "Inelastic Scattering of Thermal Neutrons in Solids and Liquids II", IAEA:Wien, 71
- Suck J.-B., Salgado J., Reichardt W., (1974), KFK 2054, 88
- Suck J.-B., Reichardt W. (1975), KFK 2183
- Thiele E.J. (1963), J. Chem. Phys. 38, 1959
- Turchin V.F. (1965), "Slow Neutrons", Sivan Press: Jerusalem
- Vineyard G.H. (1954), Phys. Rev. 96, 93
- Wertheim M.S. (1963), Phys. Rev. Lett. 10, 32
- de Wette F.W., Rahman A. (1968), Phys. Rev. 176, 784
- Wingfield B.F., Enderby J.E. (1972), AERE-Report EMR/1920
- Zernike F., Prins J.A. (1927), Z. Phys. 41, 184
- Zwanzig R., (1961), "Lectures in Theoretical Physics," III Interscience Publishers, Inc.: New York, 106
- Zwanzig R. (1967), Phys. Rev. 156, 190

DANKSAGUNG

Diese Arbeit wurde im Institut für Angewandte Kernphysik im Kernforschungszentrum Karlsruhe gemacht.

Herrn Prof. Dr. W. Gläser danke ich für die Themenstellung und seine ständige Förderung der Arbeit.

Den Herren Doktoren P.v. Blanckenhagen, S. Hagen, U. Löffler, J. Salgado, W. Schommers und P. Schweiß danke ich für ihre Unterstützung in zahlreichen Diskussionen.

Frau E. Maaß und Frau J. Saborosch bin ich dankbar für das Schreiben der Arbeit und Herrn H. John und FrI. M. Weick für das Beschriften der Zeichnungen.

Mein besonderer Dank aber gilt Herrn W. Abel für seine unermüdliche Arbeit an unserem Auswerteprogrammsystem und vor allen Herrn Dr. W. Reichardt für sehr viele hilfreiche und weiterführende Diskussionen.

ANHANG

Darstellung der Integranden der Frequenzmomente.

Abb. A1 a bis A1 f Streugesetze des Rubidiums bei drei Temperaturen und zwölf Impulsüberträgen. Vier Streugesetze sind in Abb. 4a und 4b gezeigt.

Abb. A2 a bis A2 d Die Integranden des zweiten Moments $\omega^2 S(Q, \omega)$.

Abb. A3 a und A3 b Die Integranden des vierten Moments $\omega^4 S(Q, \omega)$

Abb. A4 Die Integranden des sechsten Moments $\omega^6 S(Q, \omega)$

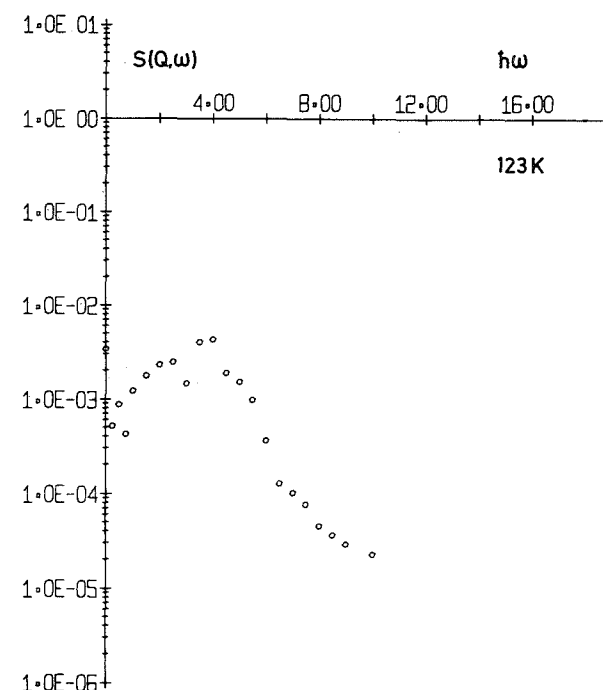
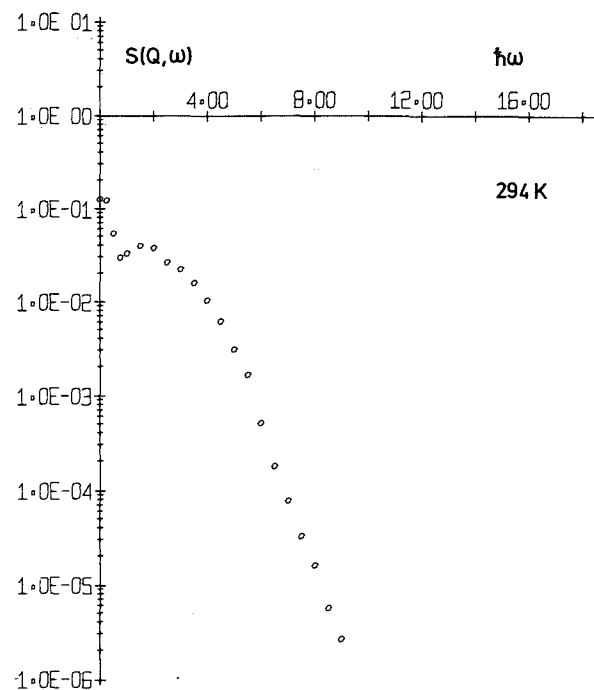
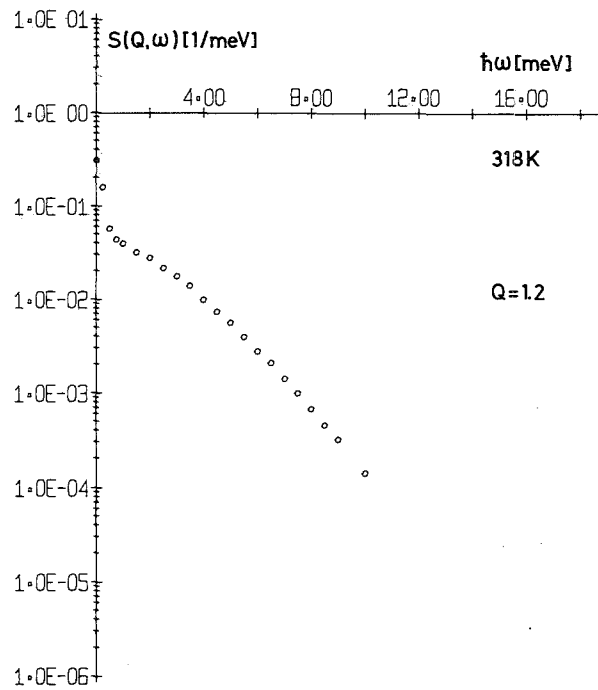
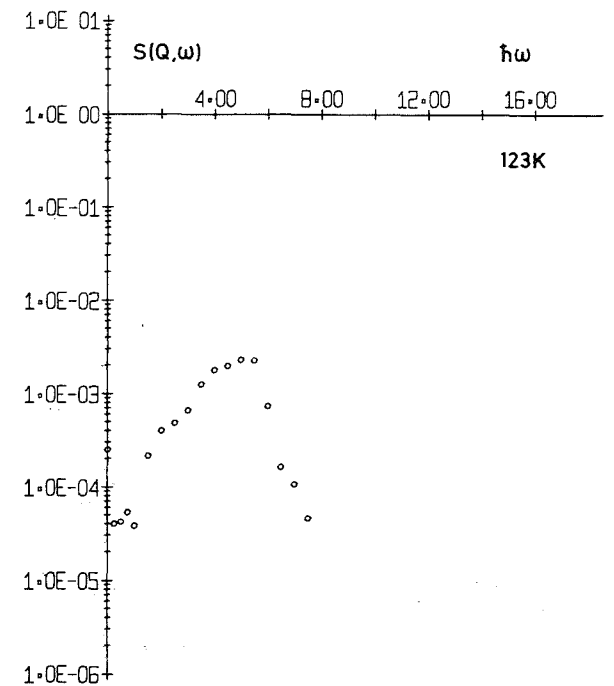
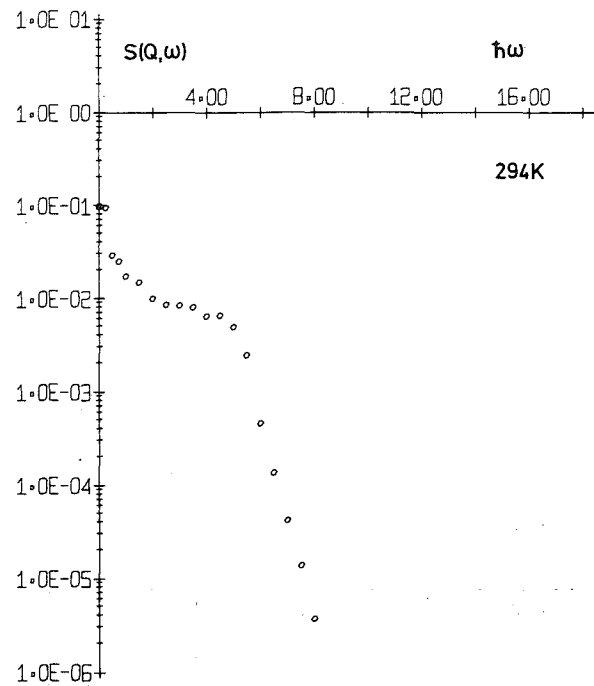
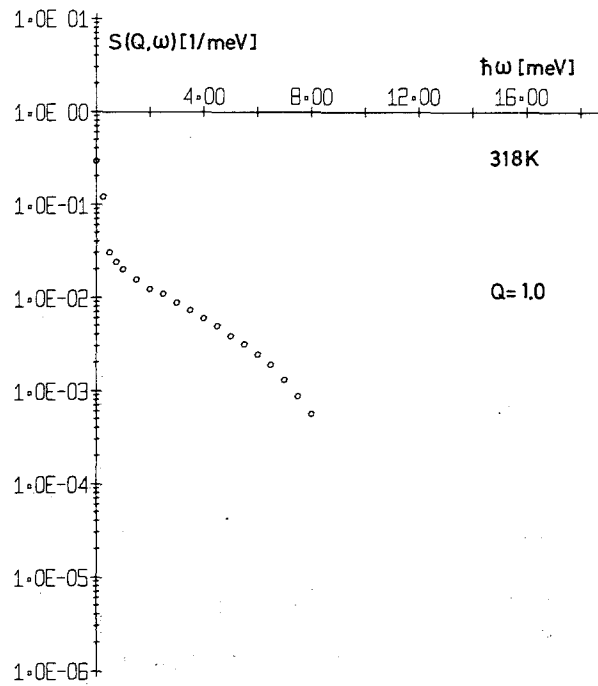


Abb. A1 a

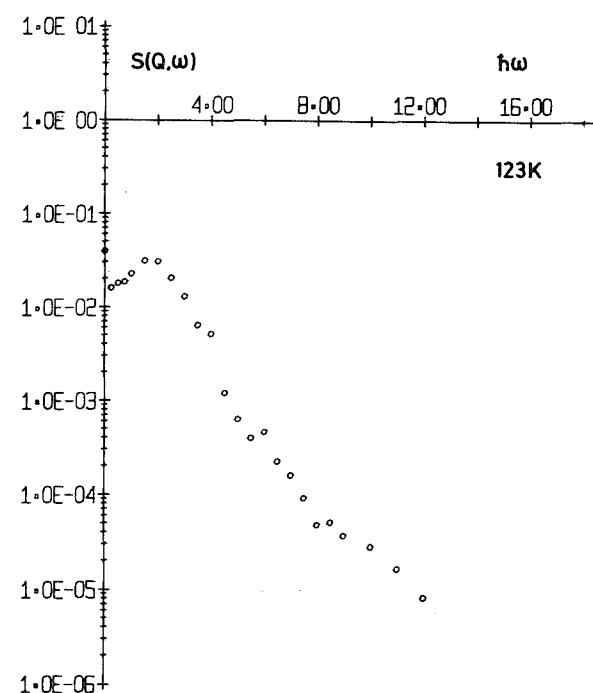
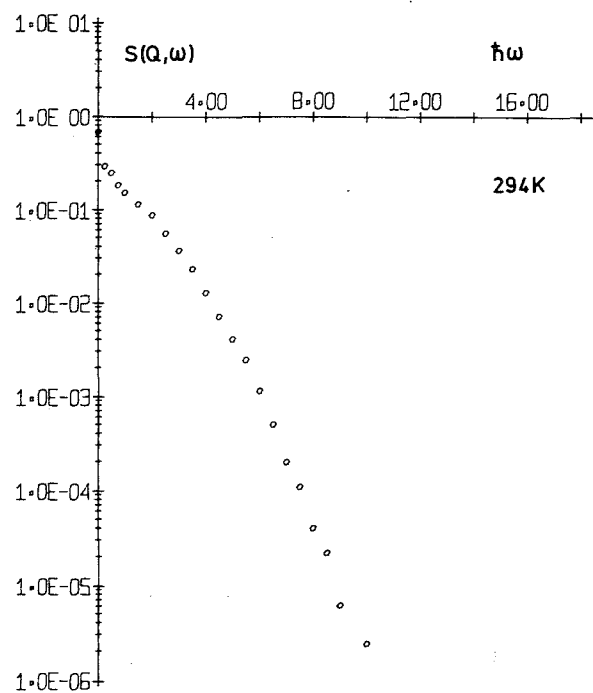
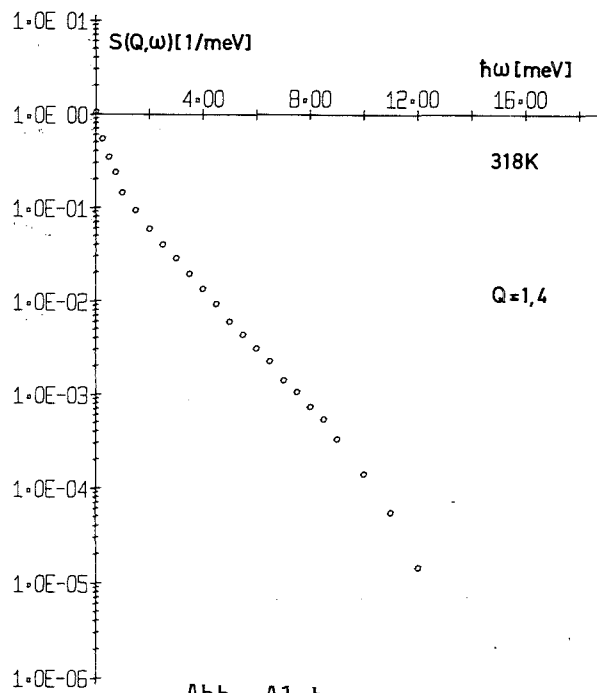
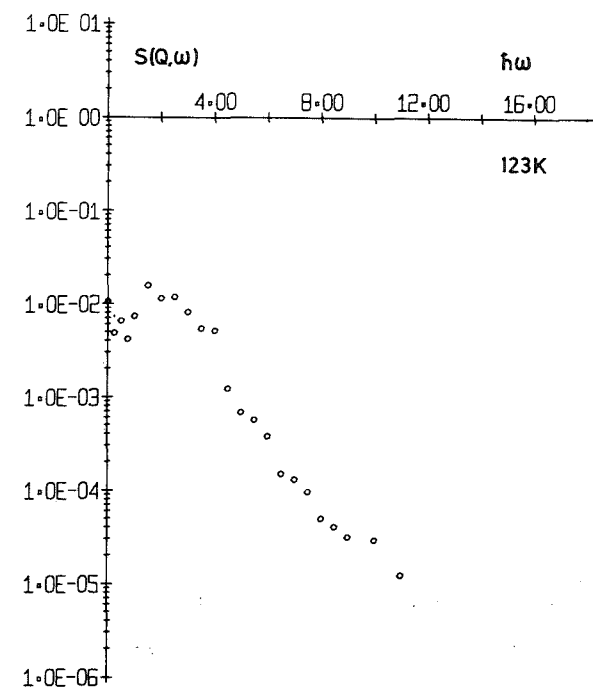
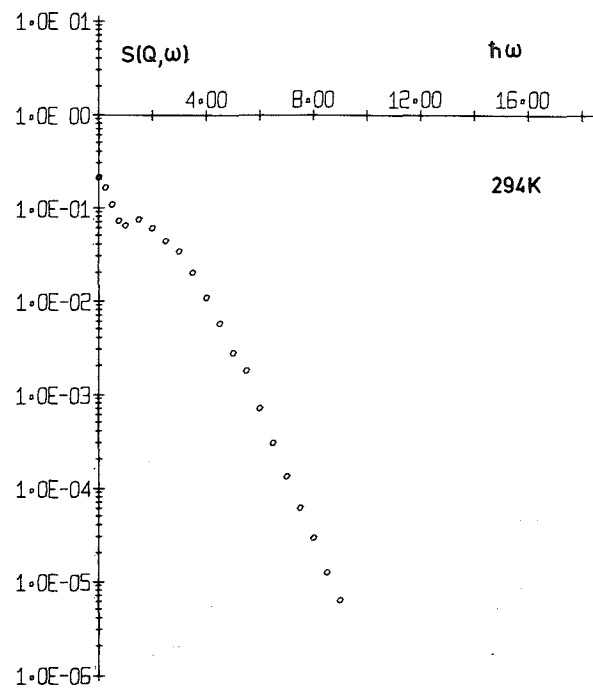
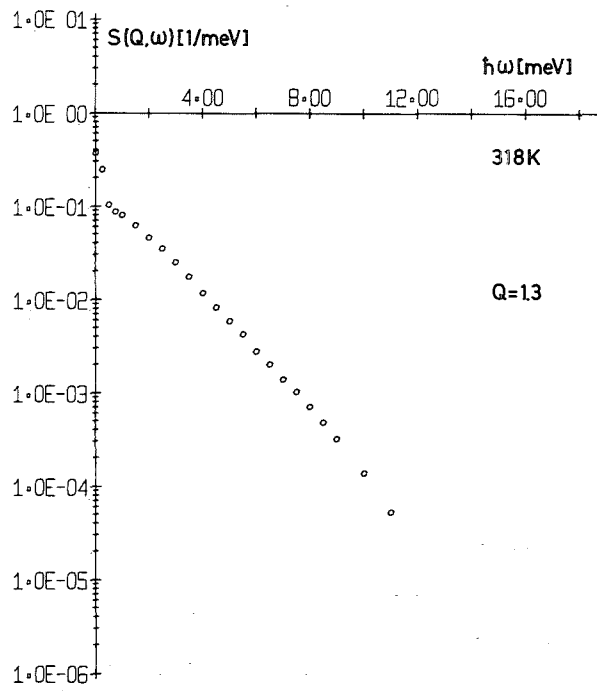


Abb. A1 b

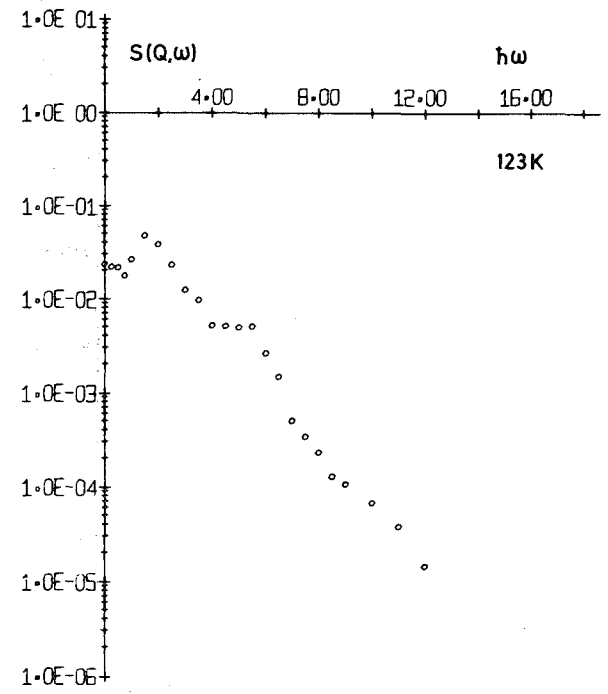
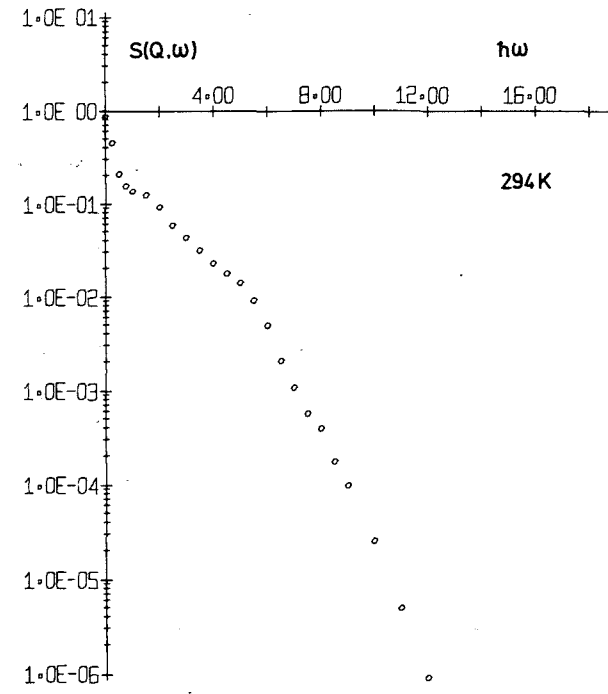
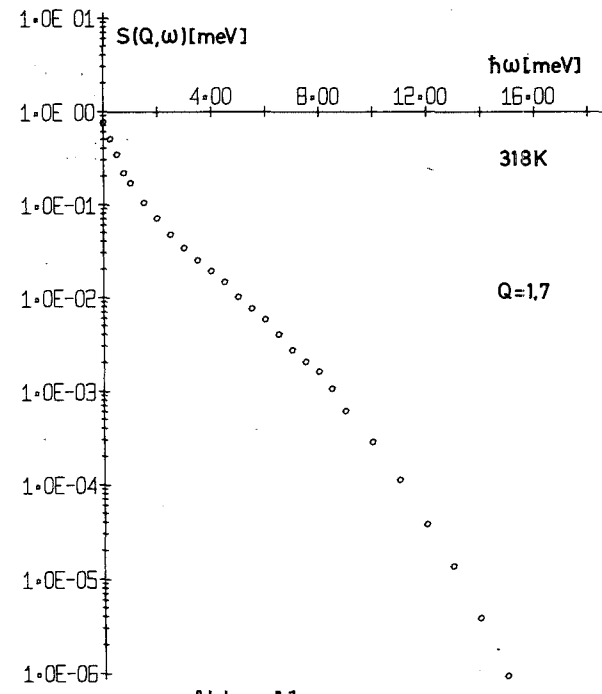
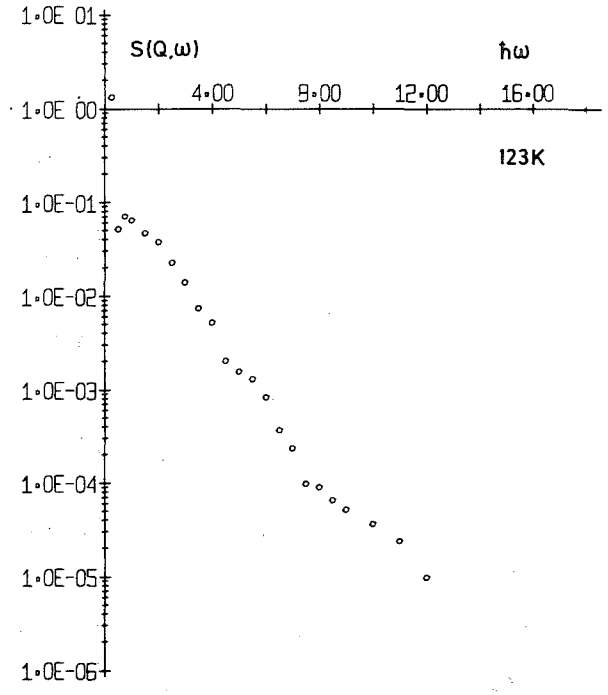
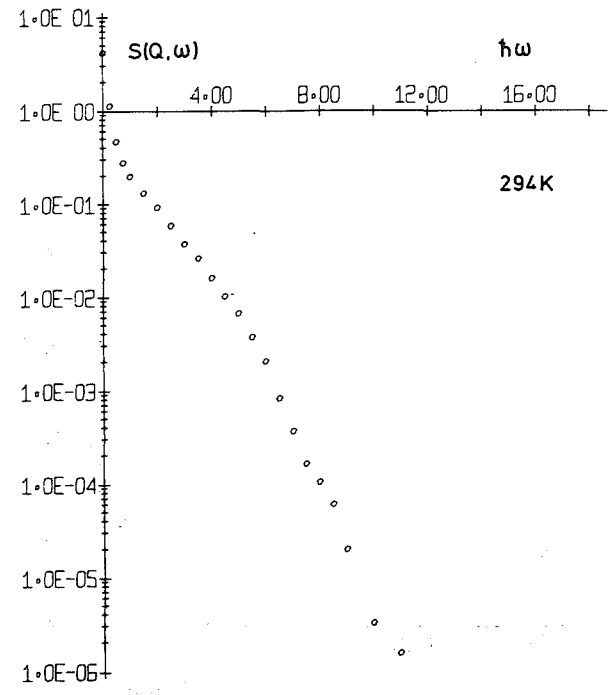
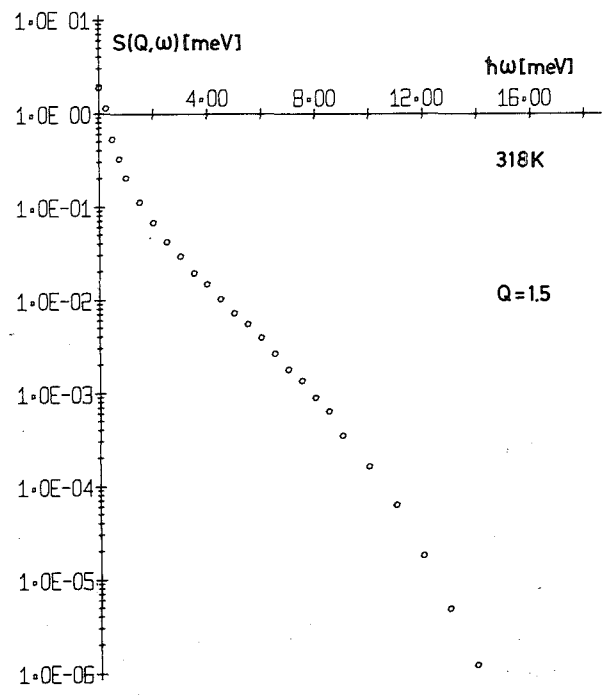


Abb. A1 c

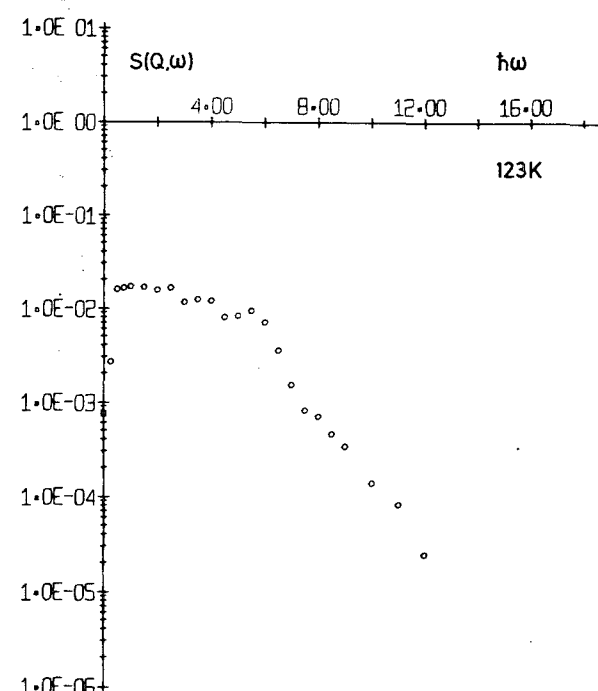
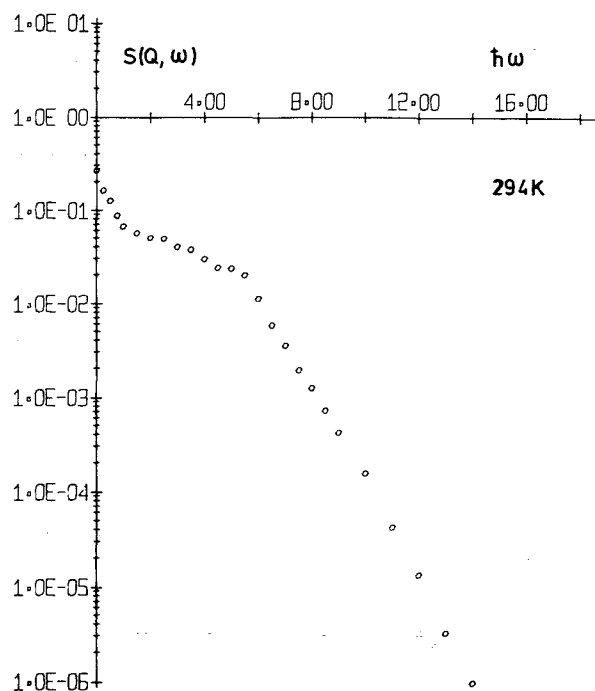
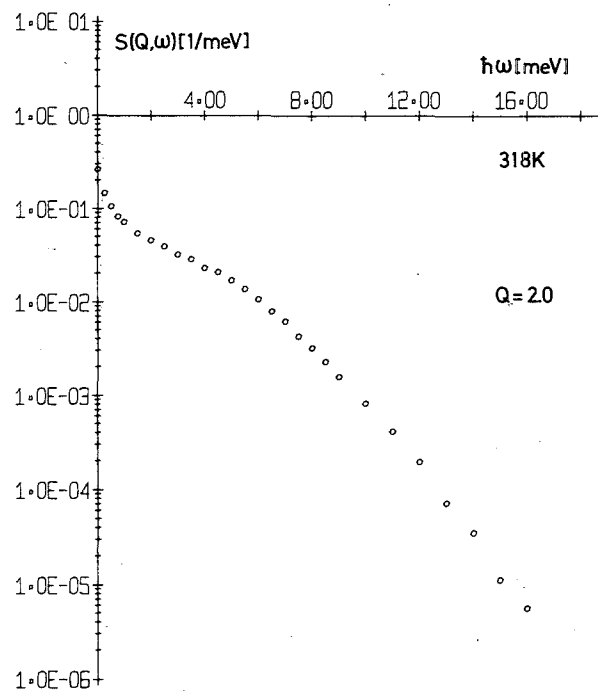
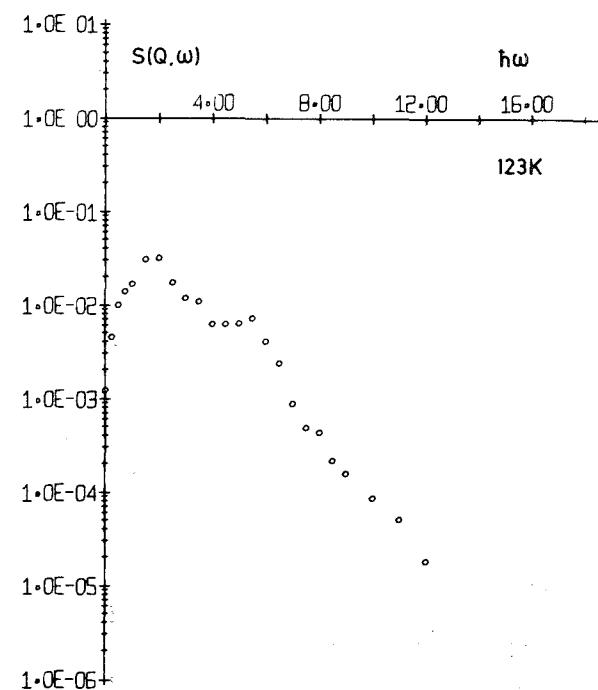
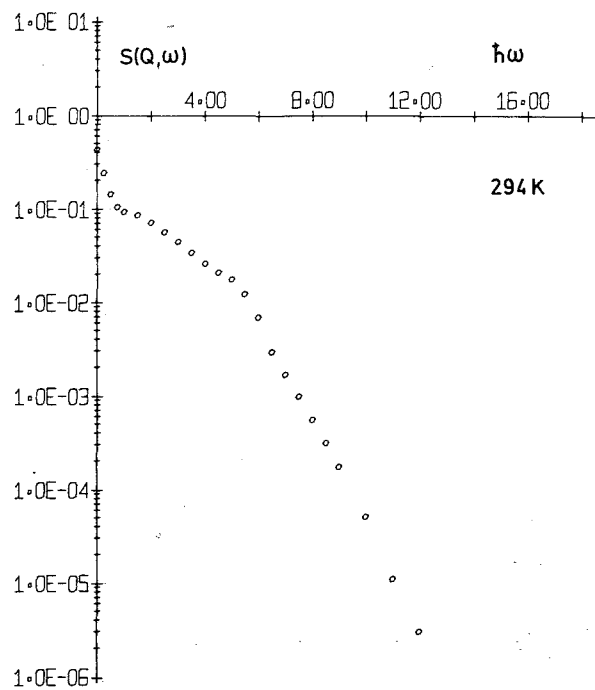
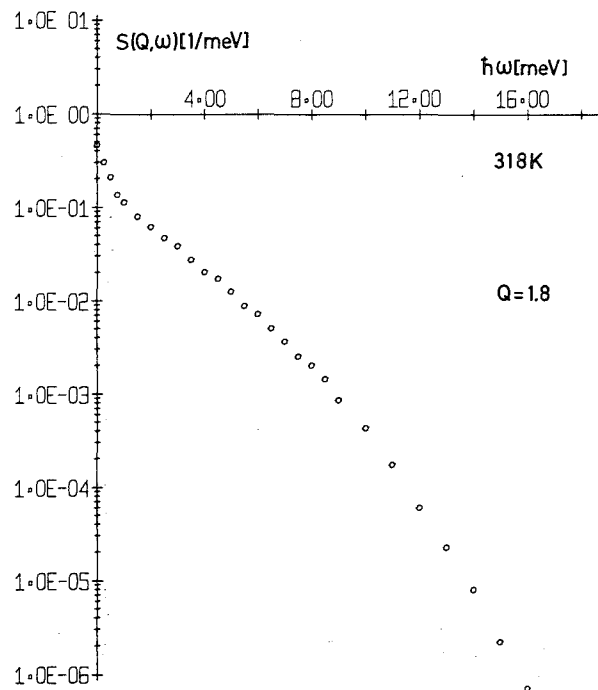


Abb. A1 d

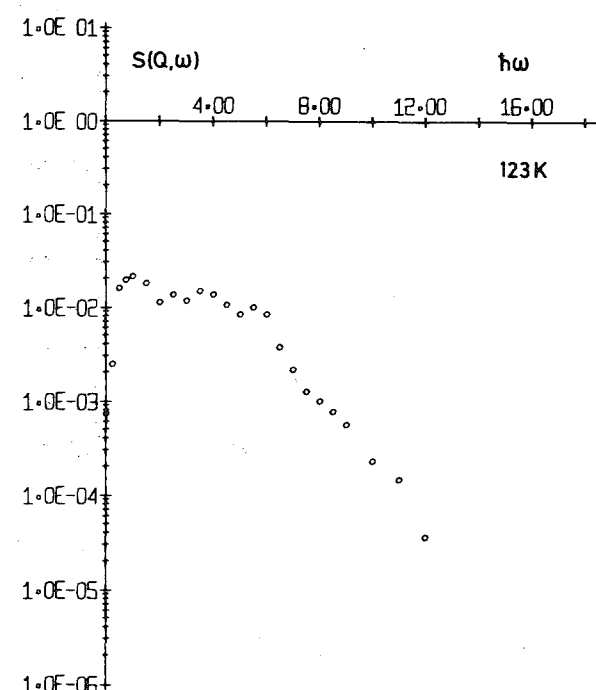
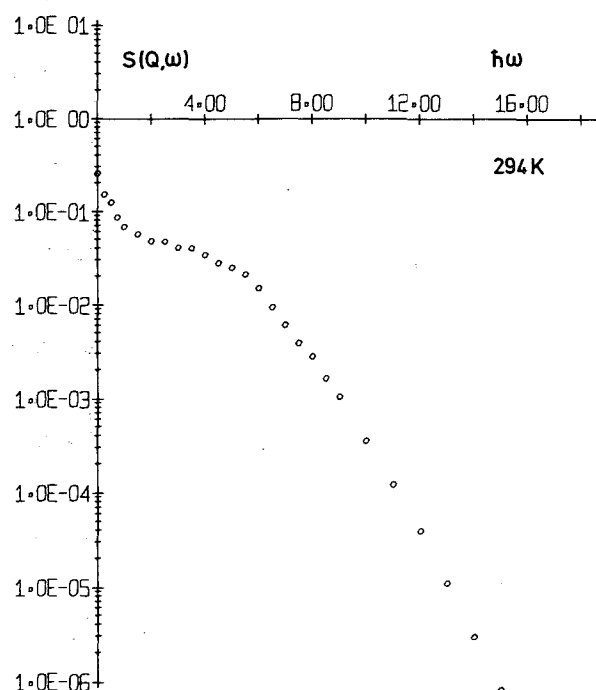
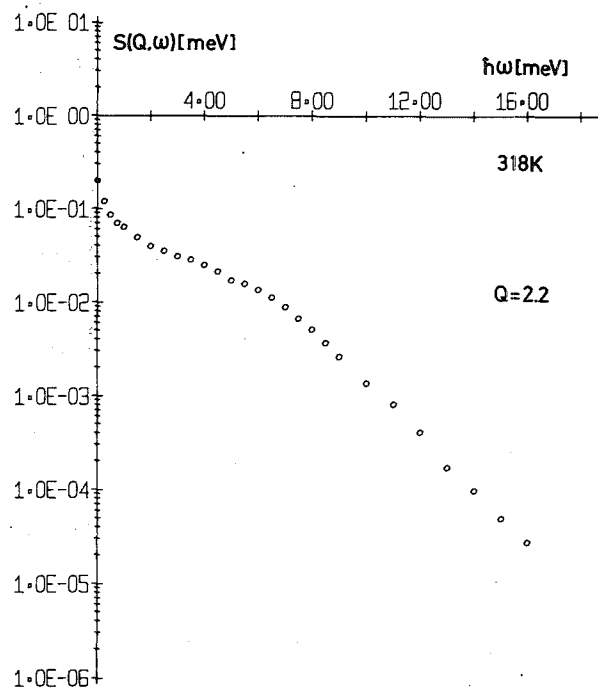
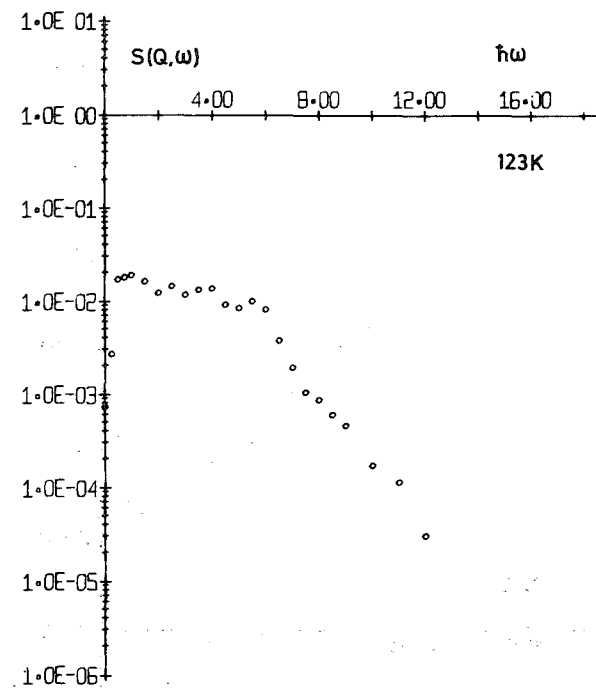
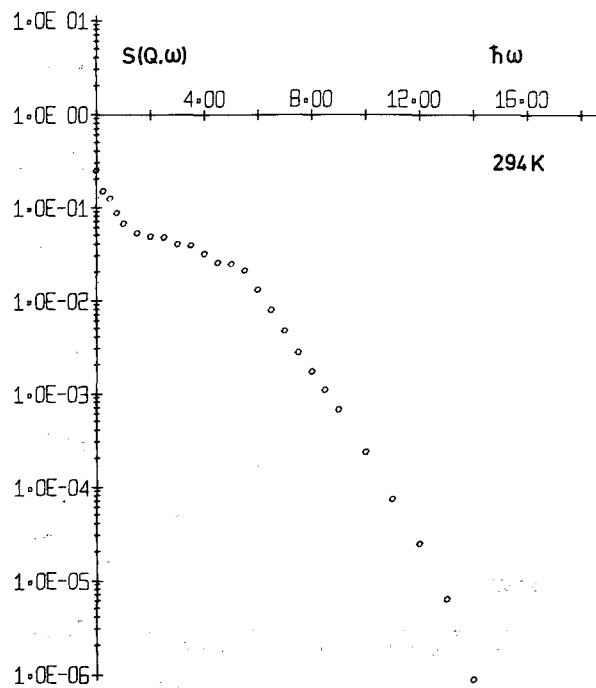
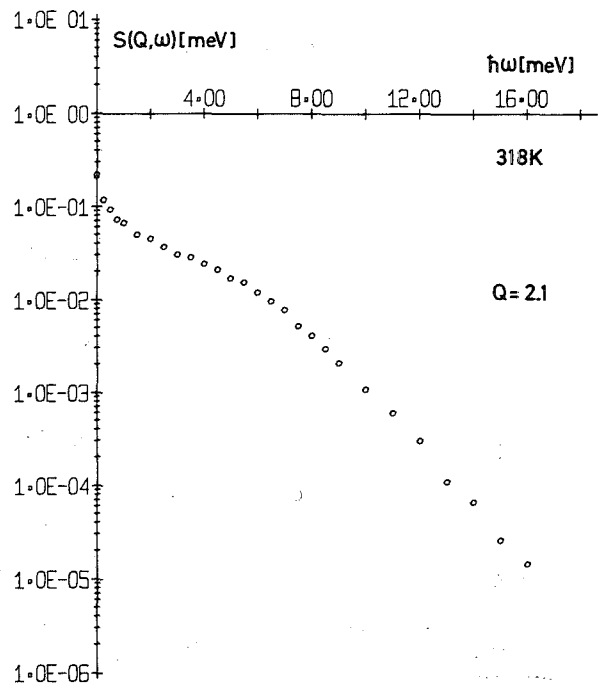


Abb. A1 e

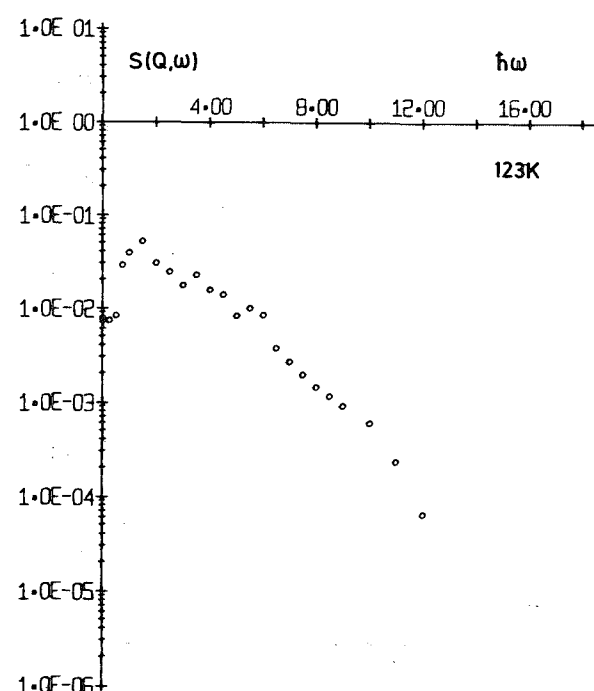
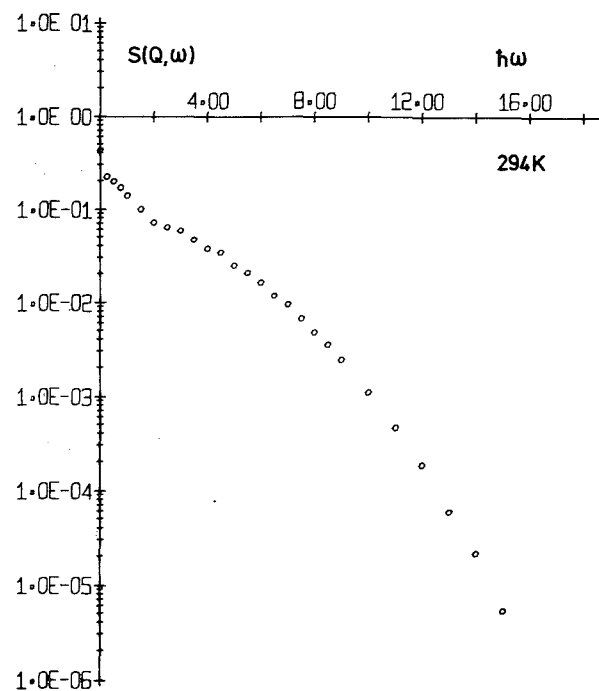
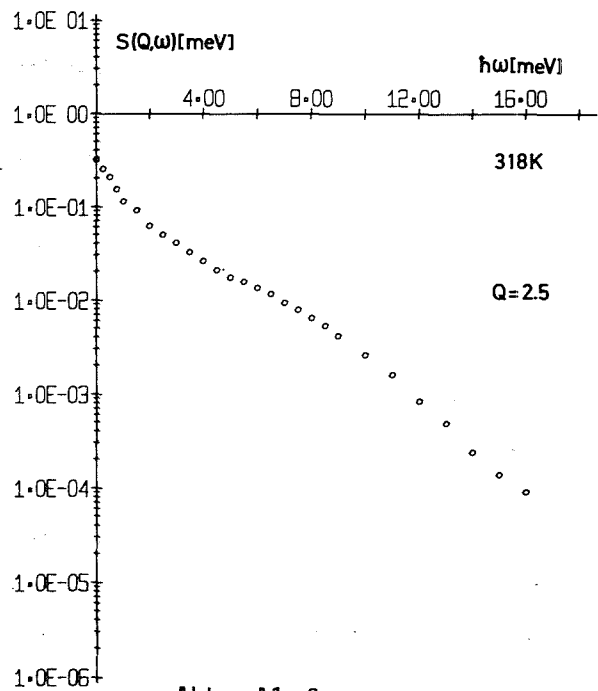
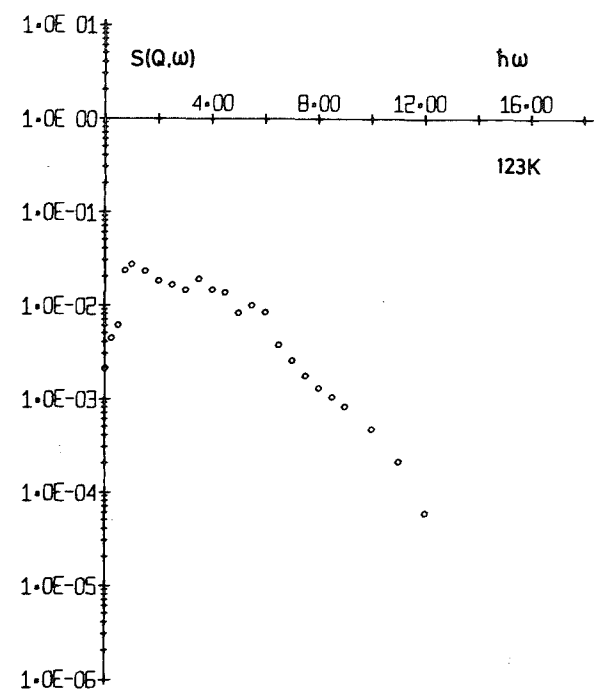
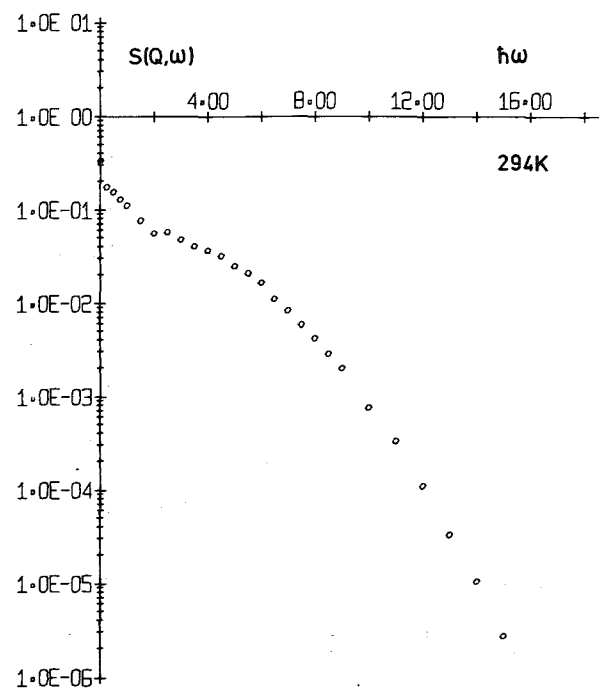
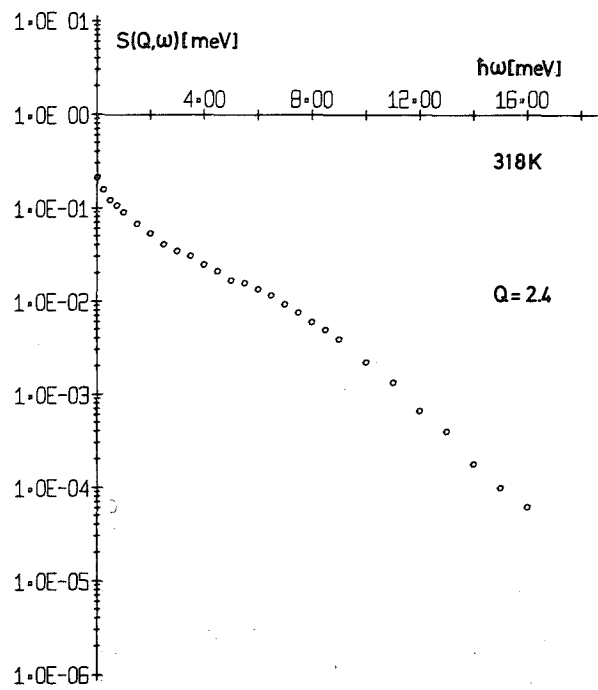


Abb. A1 f

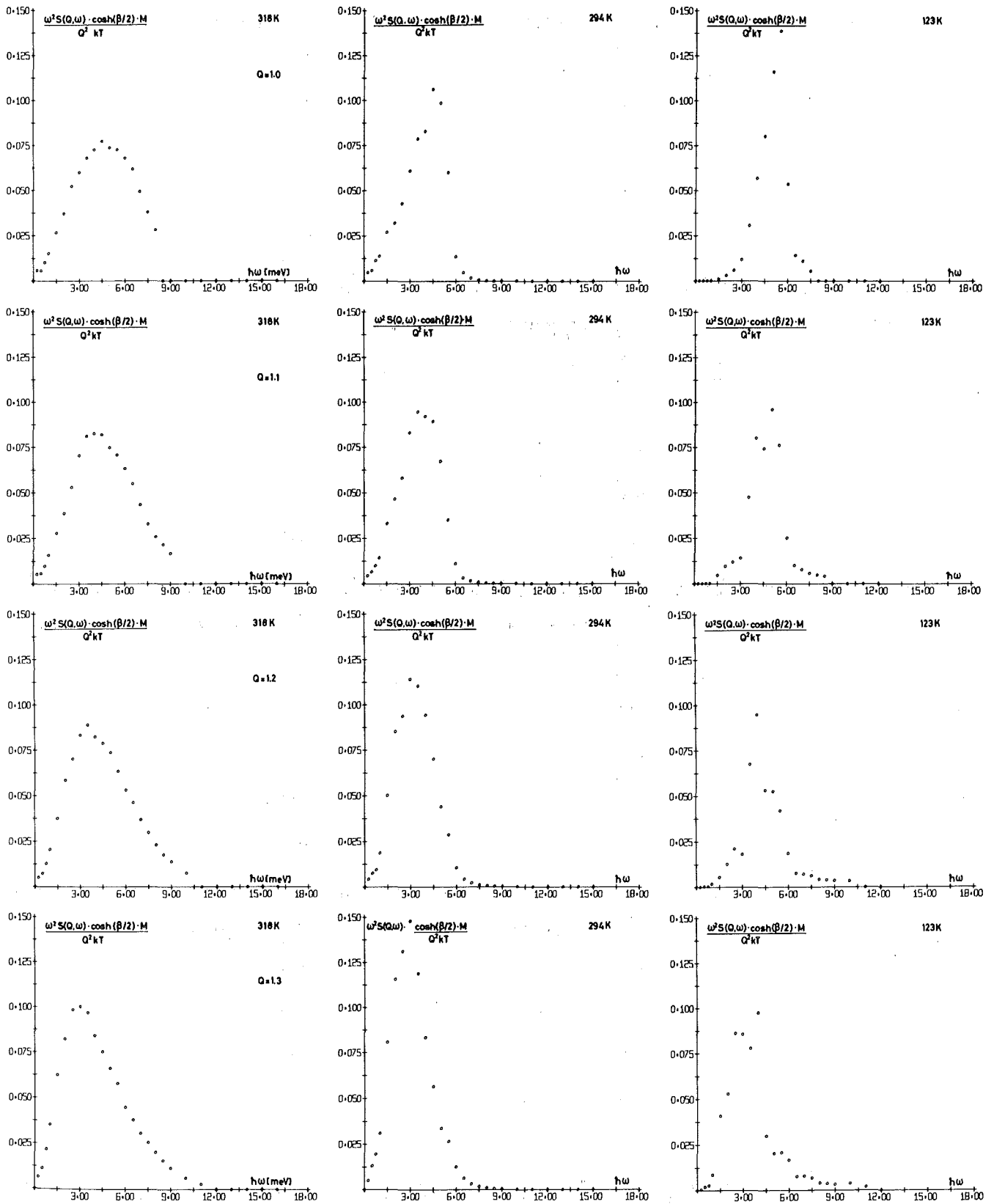


Abb. A2 a

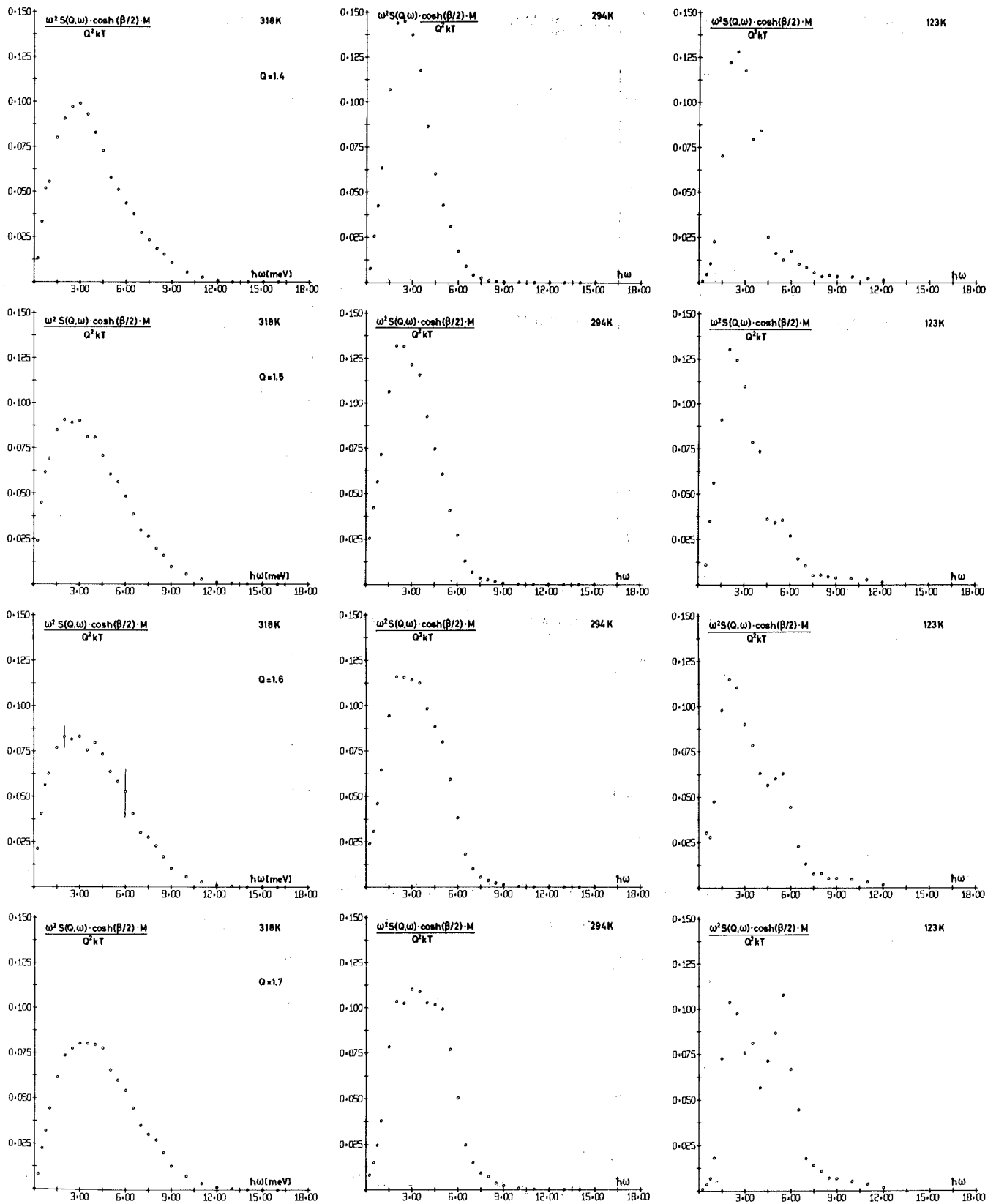


Abb. A2 b

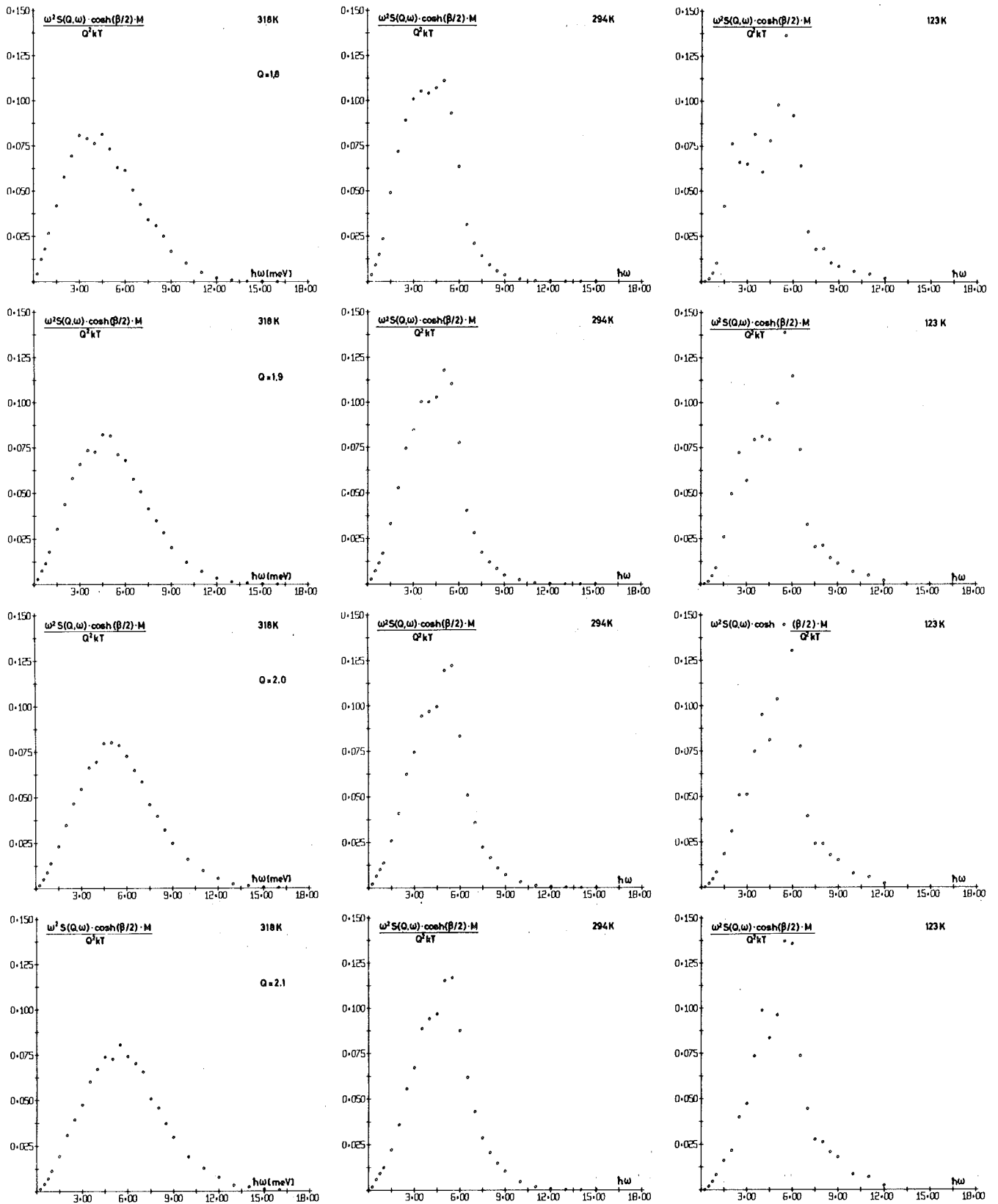


Abb. A2 c

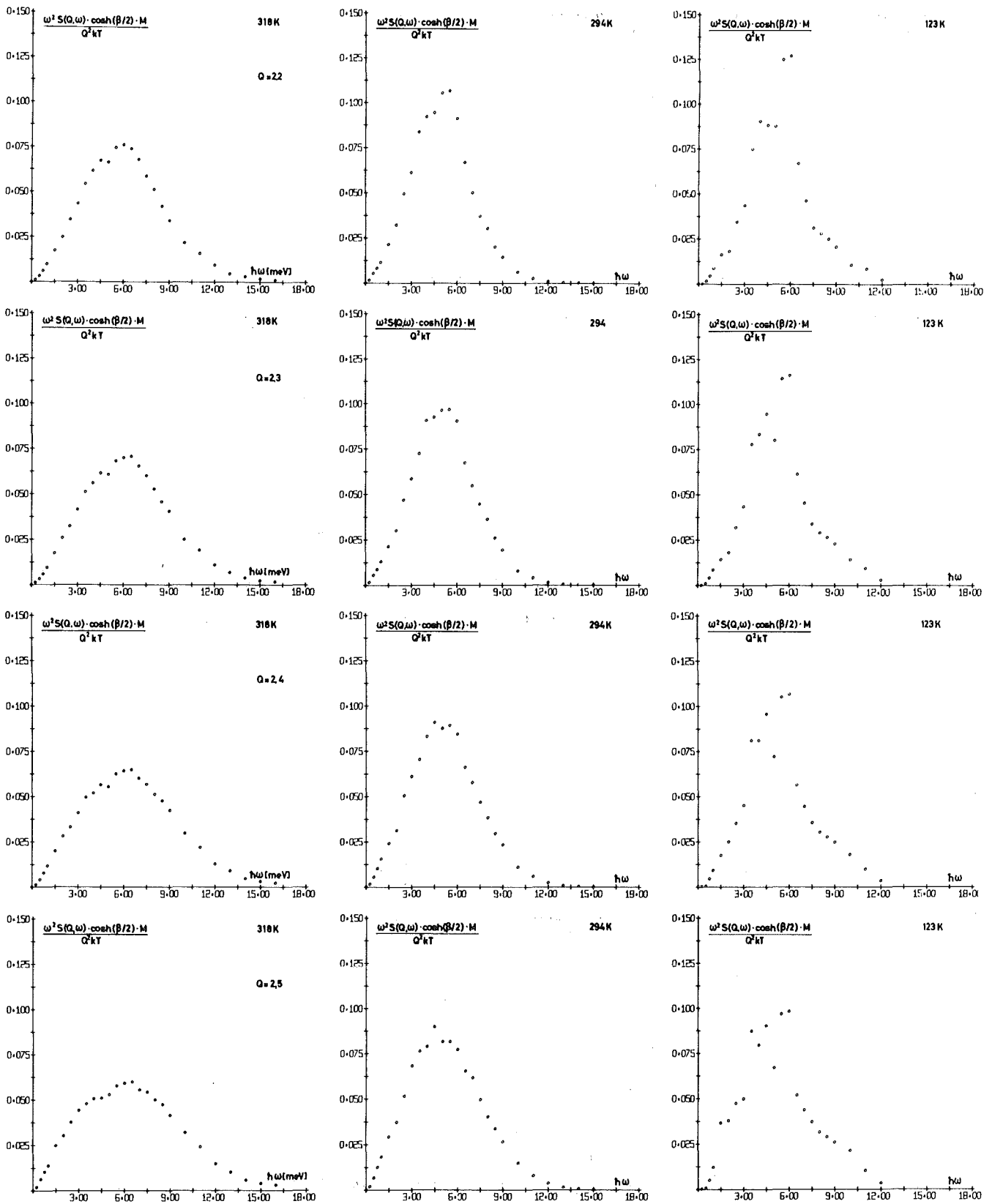


Abb. A2 d

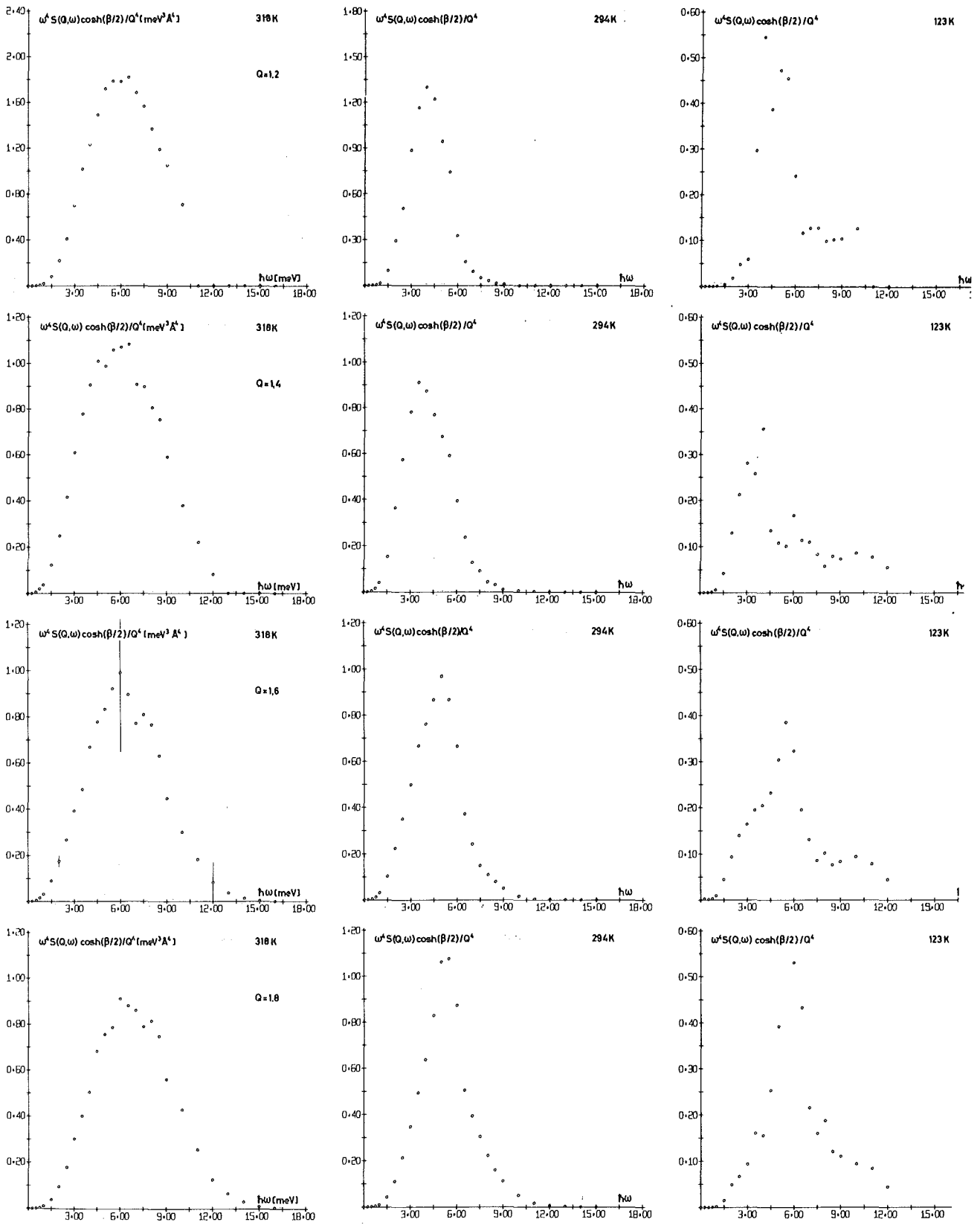


Abb. A3 a

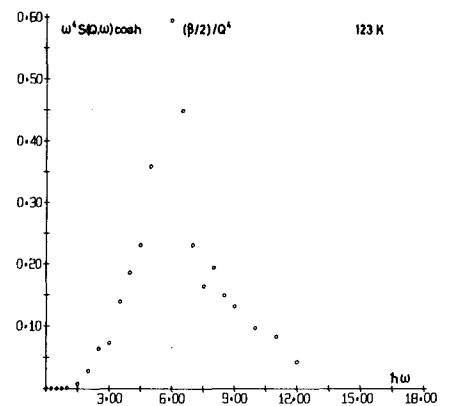
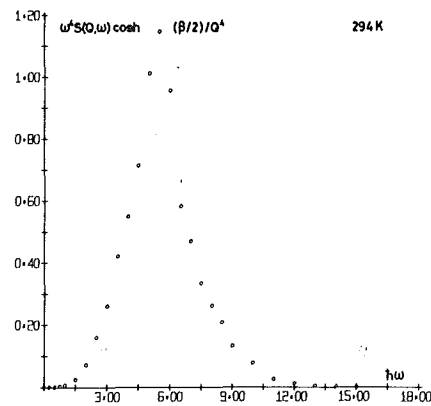
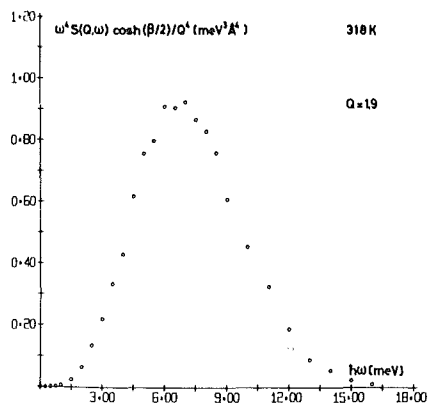
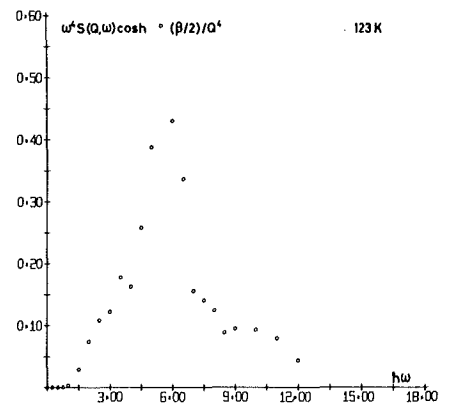
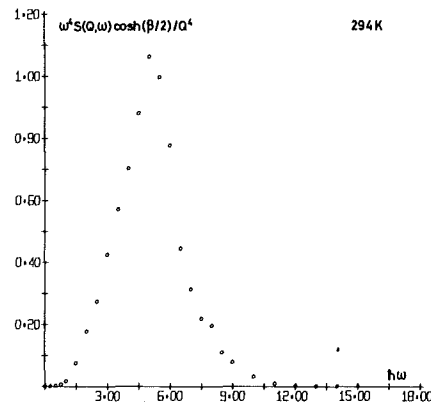
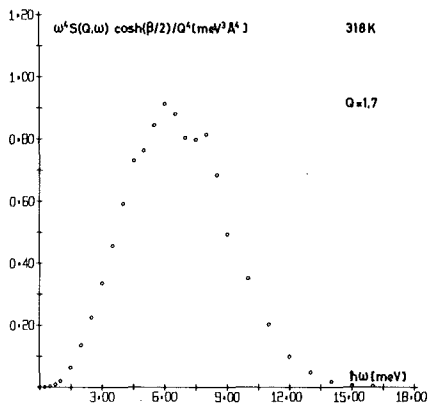
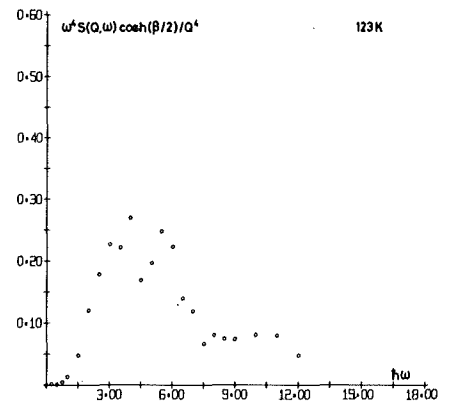
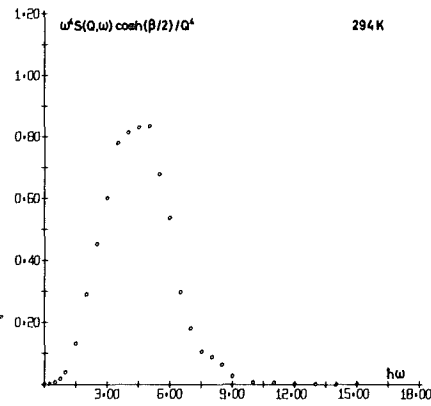
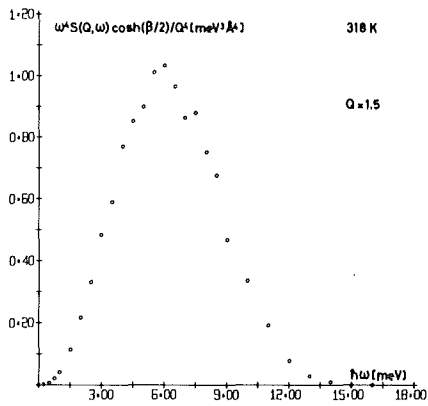
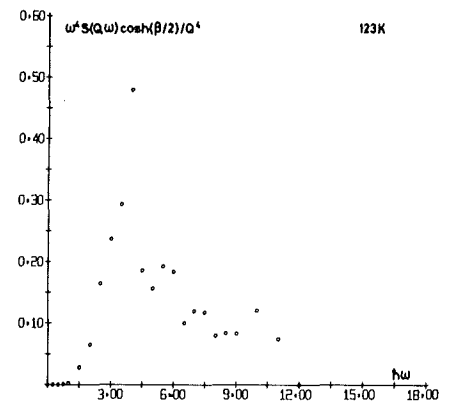
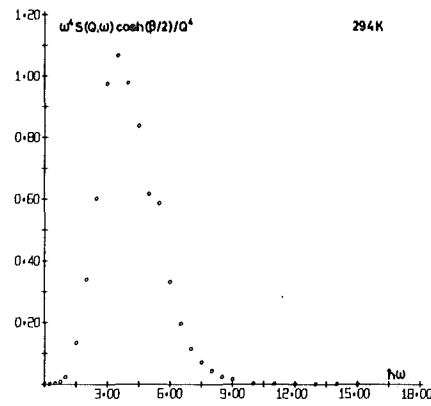
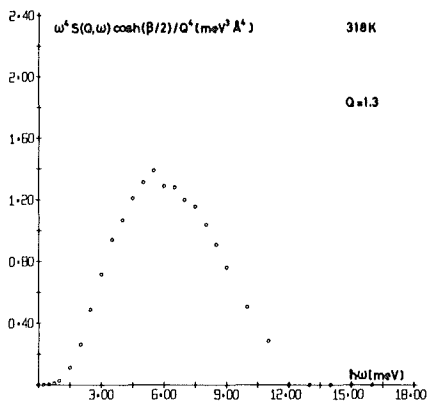


Abb. A3 b

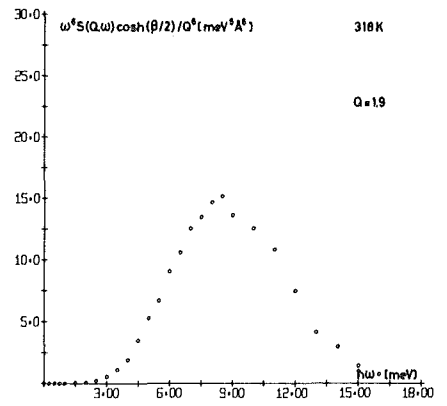
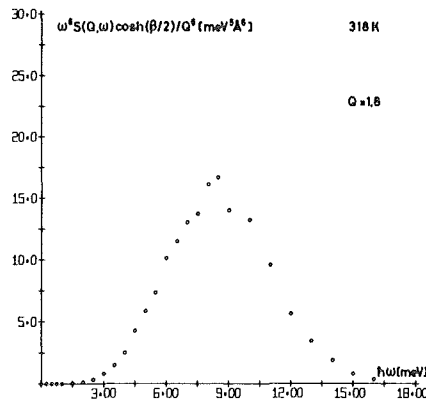
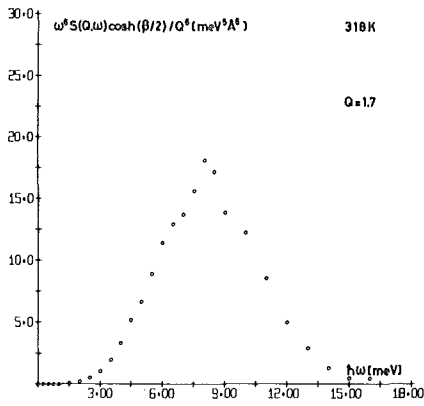
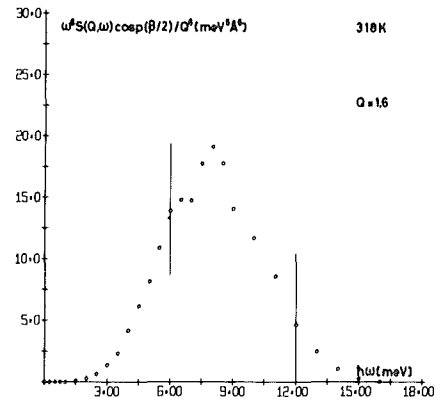
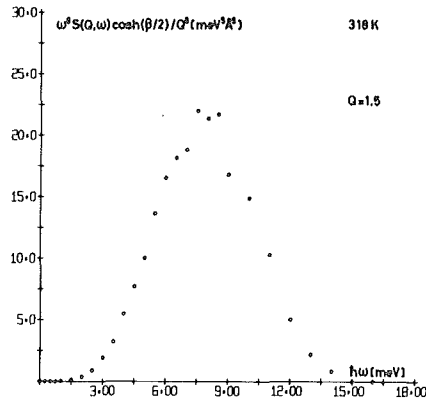
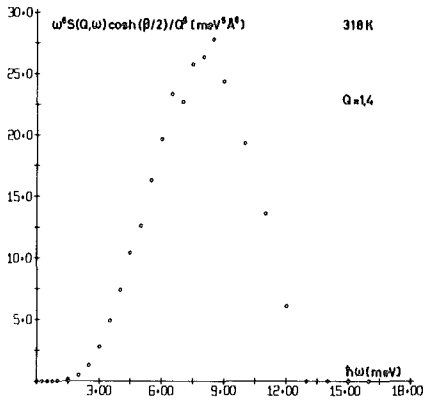


Abb. A4