

Zur Bestimmung der Zwillingsstapelfehlerdichte in kubisch-flächenzentrierten Metallen

VON MANFRED WILKENS

Institut für Metallphysik am Max-Planck-Institut für Metallforschung, Stuttgart, Deutschland

(Eingegangen am 17. November 1960 und wiedereingegangen am 22. Februar 1961)

A better approximation in Warren's method for determining the density of twin stacking faults in cubic face-centred crystals is developed and discussed. One weak additional diffraction line close to the 111 reflexion is theoretically and experimentally analyzed. It may be explained in terms of stacking faults without assuming a tendency towards a hexagonal arrangement in the deformed metal crystals.

Einleitung

Seit den ersten Arbeiten von Hendricks & Teller (1942) und Wilson (1942) über die Röntgenstreuungseffekte von dichtesten Kugelpackungen mit Fehlern in der Stapelfolge der dichtest gepackten Ebenen sind eine grosse Anzahl weiterer Arbeiten erschienen, von denen hier nur die von Jagodzinski (1949*a, b*, 1954) und Gevers (1954) erwähnt seien, die das Problem bezüglich der Interferenzfunktion im reziproken Gitter zu einem gewissen Abschluss gebracht haben. Das von Paterson (1952) und Wagner (1957) speziell im Hinblick auf die Verhältnisse bei Debye-Scherrer-Aufnahmen behandelte kub. fl. zentr. Gitter mit statistisch regellos auf eine (111)-Ebenenschar verteilten Deformations- und Zwillings-Stapelfehlern ist als Spezialfall des von Jagodzinski bzw. Gevers behandelten allgemeinen Problems aufzufassen.* Während Deformations-Stapelfehler nach Paterson eine Verschiebung der Debye-Scherrer-Linien und eine symmetrische Verbreiterung der (002)- bzw. (004)-Linie bewirken,† ergeben Zwillings-Stapelfehler nach Wagner eine asymmetrische Verbreiterung dieser Linien, wie man schon bei Hendricks und Teller findet. Die von Wagner angewandte Methode, die Zwillings-Stapelfehlerdichte β aus den sinus-Fourierkoeffizienten des (002)-Linienprofils zu bestimmen, stösst aber bei verformten Metallen auf grosse Schwierigkeiten, da nur die Asymmetrie in den experimentell schwer erfassbaren Intensitätsschwänzen oder — anders ausgedrückt — nur die sinus-Koeffizienten niedriger Ordnung ein einigermaßen sicheres Mass für β ergeben. Störend ist vor allem die gegenseitige Überlagerung der Intensitäts-

schwänze benachbarter Linien, da es keine willkürfreie Methode gibt, eine solche Überlagerung zu trennen. Eine zweite Möglichkeit, β aus der effektiven Teilchengrößen-Verbreiterung zu bestimmen, ist noch unsicherer, da diese neben β noch die Deformations-Stapelfehlerdichte α und die wahre Teilchengrösse enthält.

Warren (1959) hat nun eine Methode zur Bestimmung von β vorgeschlagen, bei der weder eine Separation der sich überlagernden Intensitätsschwänze noch eine Fourieranalyse notwendig ist. Ausgehend von der Tatsache, dass die durch Zwillings-Stapelfehler erzeugte Asymmetrie der nahe benachbarten (111)- und (002)-Linien entgegengesetztes Vorzeichen haben, vergleicht Warren die Intensität im Sattelpunkt zwischen der (111)- und der (002)-Linie mit der Summe der Intensitäten an entsprechenden Positionen auf den äusseren Intensitätsschwänzen. Diese Methode vermeidet einige Nachteile der Wagnerschen Methode. Wie aber im Folgenden gezeigt wird, enthält die theoretische Grundlage in der von Warren gegebenen Form einige nicht gerechtfertigte Vernachlässigungen. Sie soll deswegen noch einmal abgeleitet werden und bezüglich ihrer Anwendbarkeit diskutiert werden. In Abschnitt 1 werden die Grundgleichungen und ihre für Debye-Scherrer-Aufnahmen gebräuchliche 1. Näherung in einer Weise angegeben, die den Näherungscharakter deutlich macht. In Abschnitt 2 wird die Warrensche Methode in der von ihm angegebenen Näherung kurz formuliert. In Abschnitt 3 wird eine Besonderheit der (111)-Debye-Scherrer-Linie, die mit der Fragestellung dieser Arbeit unmittelbar zusammenhängt, untersucht. In Abschnitt 4 wird die Warrensche Methode ohne Rückgriff auf die in 2 benützte Näherung neu formuliert und bezüglich einiger Fehlerquellen diskutiert. Abschnitt 5 enthält eine kurze Erörterung einiger weiterer systematischer Fehlerquellen.

1. Die Grundgleichungen

Wir betrachten ein kub. fl. zentr. Gitter, dass in der (111)-Ebenenschar Deformations- und Zwillings-Sta-

* Bezeichnet man in bekannter Weise mit ...*ABC*... die Schichtfolge der (111)-Ebenen im ungestörten Gitter, so ist ein Deformations-Stapelfehler durch den Ausfall einer Ebene, ...*ABCBCA*..., und ein Zwillingsstapelfehler durch die Umkehr der Stapelrichtung, ...*ABCBA*..., gekennzeichnet.

† Da bei allen anderen erreichbaren Debye-Scherrer-Linien die einzelnen Komponenten der Linie in verschiedener Weise auf die Stapelfehler reagieren, sind die Profile dieser Linien schon im Rahmen der Patersonschen Näherung nicht mehr einfach zu behandeln.

pelfehler enthält. Wie üblich werden die Vektoren

$$a_1 = \frac{1}{2}[\bar{1}10]; a_2 = \frac{1}{2}[0\bar{1}1]; a_3 = [111]$$

als Basisvektoren einer dreiatomigen, hexagonalen Elementarzelle eingeführt. Es seien h_1, h_2, h_3 bzw. H_1, H_2, H_3 die laufenden Koordinaten im reziproken Gitter für die kubische bzw. hexagonale Aufstellung. Dann gilt folgende Transformation

$$\begin{aligned} H_1 &= \frac{1}{2}(-h_1 + h_2) \\ H_2 &= \frac{1}{2}(-h_2 + h_3) \\ H_3 &= \pm(h_1 + h_2 + h_3). \end{aligned} \quad (1)$$

Ganzzahlige h_i bzw. H_i werden mit hkl bzw. HKL bezeichnet. Das (+)-Zeichen in Gl. (1) bezieht sich auf den Kristall in der Ausgangsorientierung, das (-)-Zeichen gilt für die (111)-Zwillingsorientierung.

Um die geläufige kubische Indizierung der Debye-Scherrer-Linien beizubehalten, werden die Reflexe auch weiterhin mit ihren kubischen Indizes bezeichnet. Um Verwechslungen auszuschliessen, werden die rez. Gitter-Koordinaten der hexagonalen Aufstellung kursiv gedruckt. Der Einfachheit halber sollen im Folgenden nur Interferenzerscheinungen im Bereich der (111)- und (002)-Debye-Scherrer-Linie untersucht werden. Ferner sei angenommen, das der Kohärenzbereich des Gitters nach allen Richtungen hinreichend gross ist, sodass Teilchengrösseneffekte vernachlässigt werden können. Da die (111)-Ebene als Stapelfehler-ebene gewählt wurde, werden der (111)- bzw. der ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$)-Reflex von den Stapelfehlern nicht beeinflusst. Diese Reflexe scheiden deshalb vorerst aus der Betrachtung aus.

Die Interferenzfunktionen der ($11\bar{1}$)- und ($00\bar{2}$)-Reflexe* werden im reziproken Gitter parallel der Stapelfehlernormalen ($00H_3$) verschoben und symmetrisch ($\alpha \neq 0, \beta = 0$) oder unsymmetrisch verbreitert ($\beta \neq 0$). Da die Vektoren (hkl) aller Komponenten der ($11\bar{1}$)- bzw. der ($00\bar{2}$)-Reflexe jeweils den gleichen Winkel mit der Stapelfehlernormalen bilden oder — anders ausgedrückt — da die aus Gl. (1) folgenden Gitterstäbe (HKH_3), die durch die hier interessierenden Reflexe gehen, bezüglich des Abstandes vom Ursprung im reziproken Gitter gleichwertig sind, ist es für Pulveraufnahmen hinreichend, zwei Interferenzfunktionen $I_{11\bar{1}}(H_3)$ und $I_{00\bar{2}}(H_3)$ als Repräsentanten herauszugreifen und wegen der Vernachlässigung der Teilchengrössen-Verbreiterung auf eine explizite Darstellung der Abhängigkeit von H_1 und H_2 zu verzichten.

Für die Darstellung von $I_{11\bar{1}}$ und $I_{00\bar{2}}$ werden die Gleichungen von Wagner (1957) benützt und eine Aufsummierung der Fourierreihen angewandt, die schon Warren (1959) angibt. Man findet dann

* (hkl) steht für $\pm(hkl), \pm(hk\bar{l}), \pm(klh)$.

$$I_{hkl}(H_3) = \left\{ \frac{1-Q^2}{4Q} \frac{1}{\sin^2 \pi(\frac{1}{3}(H_3-L) \mp \varphi)} \pm \operatorname{tg} \mu \cdot \operatorname{cotg} \pi \left(\frac{H_3-L}{3} \mp \varphi \right) \right\} \frac{1}{1+p} \quad (2)$$

$$p = \frac{(1-Q)^2}{4Q \sin^2 \pi(\frac{1}{3}(H_3-L) \mp \varphi)}; \quad L \text{ nach Gl. (1);}$$

$$(hkl) = (11\bar{1}) \text{ oder } (002); \quad \pm \text{ für } L = \pm 1 \text{ mod } 3.$$

Dabei gilt in 1. Näherung in α und β

$$Q \cong 1 - (\frac{2}{3}\alpha + \beta); \quad \varphi \cong \sqrt{3} \cdot \alpha / 4\pi; \quad \operatorname{tg} \mu = \beta / \sqrt{3},$$

$p \ll 1$ für $(H_3-L)/3$ weitab von einer ganzen Zahl, wenn $\alpha, \beta \ll 1$.

Für Debye-Scherrer-Aufnahmen ist aber nicht die Funktion $I_{hkl}(H_3)$,† sondern deren Projektion auf die Radialkoordinate $s = (h_1^2 + h_2^2 + h_3^2)^{\frac{1}{2}}$ des reziproken Gitter massgeblich. Diese Funktion sei mit $j(s)$ bezeichnet. Die Berechnung von $j(s)$ unter Einbeziehung der Teilchengrössen Verbreiterung in H_1 - und H_2 -Richtung ist ausführlich von Warren (1941) und von Brindley & Mering (1951) untersucht worden. Da wir hier aber eine streng eindimensionale Ausschmierung der Reflexe annehmen, kann $j_{hkl}(s)$ aus folgendem einfachen Ansatz bestimmt werden.

$$j_{hkl}(s)|ds| = (1/3)I_{hkl}(H_3)|dH_3|.$$

Der Faktor 1/3 wird eingeführt, weil $I_{hkl}(H_3)$ in $\Delta H_3 = 3$ periodisch ist. Anhand von Gl. (1) findet man für die hier infrage kommenden Reflexe ($11\bar{1}$) und ($00\bar{2}$)

$$s = (H_3^2 + 8)^{\frac{1}{2}} / \sqrt{3}, \quad (3)$$

sodass schliesslich folgt:

$$j(s) = j_{11\bar{1}}(s) + j_{00\bar{2}}(s) = [I_{11\bar{1}}(H_3) + I_{00\bar{2}}(H_3)] |s/H_3|. \quad (4)$$

Um eine 1. Näherung zu gewinnen, führt man jetzt für $I_{11\bar{1}}$ und $I_{00\bar{2}}$ jeweils getrennt eine neue Radialkoordinate $\sigma_{11\bar{1}}$ bzw. $\sigma_{00\bar{2}}$ ein.

$$\sigma_{hkl} = (s - s_{hkl}) / s_{hkl}; \quad s_{hkl} = (h^2 + k^2 + l^2)^{\frac{1}{2}}.$$

σ_{hkl} hängt mit H_3 in 1. Näherung wie folgt zusammen.

$$H_3 - L = 3 \cdot \frac{h^2 + k^2 + l^2}{h + k + l} \sigma_{hkl}. \quad (5)$$

Setzt man Gl. (5) in Gl. (4) bzw. in Gl. (2) ein und setzt als weitere Näherung

$$\left| \frac{s}{H_3} \right| \cong \left| \frac{s_{hkl}}{L} \right| = \frac{(h^2 + k^2 + l^2)^{\frac{1}{2}}}{|h + k + l|}. \quad (6)$$

so erhält man statt $j(s)$ eine 1. Näherung, die mit $j^*(s)$ bezeichnet werden soll. Diese Näherung liegt den

† $I_{11\bar{1}}$ und $I_{00\bar{2}}$ sind durch Spiegelung an $H_3 = 0 \text{ mod } \frac{3}{2}$ in einander überführbar.

bekanntesten Methoden von Paterson (1952), Warren & Warekois (1955) und Wagner (1957) zur Auswertung von Debye-Scherrer-Aufnahmen von verformten Metallpulvern bezüglich α und β zugrunde, da die übersichtliche Darstellung in Form von Fourierreihen erhalten bleibt.

2. Die Bestimmung von β nach Warren

Es werden jetzt drei Koordinaten s_1, s_2, s_3 eingeführt, die folgenden Bedingungen genügen mögen: s_2 liegt bezüglich der beobachteten Intensitätsfunktion $P(2\theta)$ in der Nähe des Intensitätsminimum zwischen der (111)- und der (002)-Linie, also:

$$\begin{aligned} s_2 &= \text{in der Nähe von } \frac{1}{2}(s'_{111} + s'_{002}) \cong 1,87; \\ s_1 &= s'_{111} - (s_2 - s'_{111}) \cong 1,60; \\ s_3 &= s'_{002} + (s'_{002} - s_2) \cong 2,13. \end{aligned} \quad (7)$$

s'_{hkl} bezieht sich auf die Lage des Maximums der betreffenden Debye-Scherrer-Linie, fällt also bei $\alpha \neq 0$, d.h. $\varphi \neq 0$, Gl. (2), nicht ganz mit $s_{hkl} = (h^2 + k^2 + l^2)^{\frac{1}{2}}$ zusammen.

Bildet man jetzt als Mass für die Asymmetrie der nicht unmittelbar zugänglichen Funktion $I_{11\bar{1}}$ bzw. I_{002} mit diesen drei, von einander nicht unabhängigen Koordinaten den Ausdruck

$$\Delta j^*(s_2) = j^*(s_2) - \{j^*(s_1) + j^*(s_3)\} \quad (8)$$

und vernachlässigt dabei nach Warren die kleinen Glieder φ und p und ebenfalls die Glieder $j^*_{11\bar{1}}(s_3)$ und $j^*_{002}(s_1)$, so folgt

$$\begin{aligned} \Delta j^*(s_2) &= \beta \cdot B^*(s_2) \\ &= \beta \frac{2}{\sqrt{3}} \left\{ \sqrt{3} \cotg 3\pi \frac{s_2 - \sqrt{3}}{\sqrt{3}} + \cotg 2\pi \frac{2 - s_2}{2} \right\}, \end{aligned} \quad (9)$$

bezogen auf die Integralintensität des (002)-Reflexes

$$\int j^*_{002}(s) ds = \frac{2a}{\lambda} \int j^*_{002}(s) \cos \theta d\theta = 1; \quad a = \text{Kub. Gitterkonstante.} \quad (10)$$

$B^*(s_2)$ ist in Fig. 1 angegeben.

Es sei $j_b(s)$ die aus der beobachteten Intensitätsfunktion $P(2\theta)$ gemäss der Beziehung

$$j_b(s) \text{ prop. zu } P(2\theta) \sin^2 \theta / \{(1 + \cos^2 2\theta) f^2\}; \quad f = \text{Atomamplitude} \quad (11)$$

ableitbare 'beobachtete Interferenzfunktion'. Diese enthält auch die bislang nicht betrachteten Reflexe (111) und ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$), die von den Stapelfehlern nicht beeinflusst werden. $j_b(s)$ wird, abgesehen von der Stapelfehler-Verbreiterung und -verschiebung, auch noch durch eine symmetrische Teilchengrössen-Verbreiterung und eine näherungsweise symmetrische Gitterverzerrungs-Verbreiterung bestimmt, die bei verformten Metallpulvern sehr beträchtlich sein kann.

Definiert man nun analog zu Gl. (8) den experimentell bestimmbar Ausdruck $\Delta j_b(s_2)$ so geben die von den Stapelfehlern nicht beeinflussten Reflexe $\pm(111)$ näherungsweise keinen Beitrag zu $\Delta j_b(s_2)$, da sie nur symmetrisch verbreitert sind. Die antisymmetrischen Anteile von $I_{11\bar{1}}$ und I_{002} in Gl. (2) enthalten die Grösse Q nicht, wenn man p vernachlässigt. Im Rahmen der hier gegebenen Näherung kann angenommen werden, dass Teilchengrössen- und Verzerrungs-Verbreiterung ebenfalls keinen Beitrag zu $\Delta j_b(s_2)$ geben. Setzt man also $\Delta j_b = \Delta j^*$ und berücksichtigt die in Gl. (10) angegebene Normierung, ($j^*_{002}(s)$ ist durch $j_{b,002}(s)$ zu ersetzen), so ergibt sich die von Warren angegebene Methode zur Bestimmung von β .

3. Die Interferenzfunktion im Bereich der (111)-Linie

Es soll nun geprüft werden, welche Veränderungen sich ergeben, wenn die beiden grundlegenden Vereinfachungen der oben kurz skizzierten Methode fallen gelassen werden. Diese Vereinfachungen sind: 1) Die Ersetzung der korrekten Interferenzfunktion $j(s)$, Gl. (4), durch die 1. Näherung $j^*(s)$ ist für die drei Koordinaten s_1, s_2, s_3 hinreichend gültig. 2) Die in Gl. (9) vernachlässigten Glieder $j^*_{11\bar{1}}(s_3)$ und $j^*_{002}(s_1)$ können bei der Bildung von $\Delta j^*(s_2)$ vernachlässigt werden.

Lässt man z.B. Vereinfachung 2) fallen, was im Rahmen der 1. Näherung durchaus konsequent wäre, so fände man für $s_2 = \frac{1}{2}(s_{111} + s_{002}) = 1,866$

$$\Delta j^* = -2,8\alpha + 3,5\beta, \text{ statt } \Delta j^* = 4,8\beta \text{ nach Gl. (9),}$$

offensichtlich ein wesentlich anderes Ergebnis.

Aus Gl. (3) entnimmt man, dass wegen des Zusammenhanges zwischen s und H_3

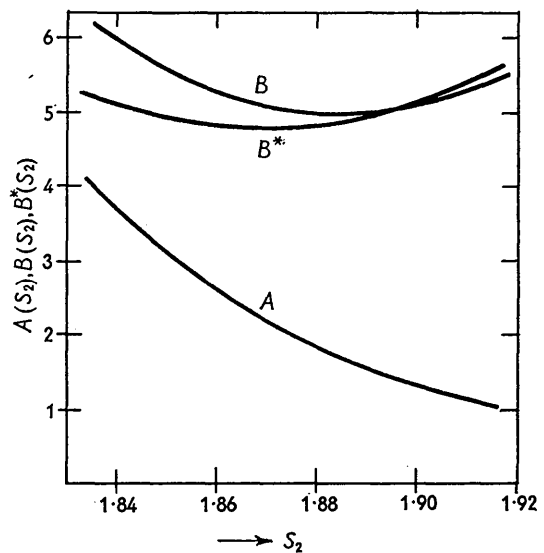


Fig. 1. $\Delta j^*(s_2) = \beta \cdot B^*(s_2)$ und $\Delta j(s_2) = \alpha \cdot A(s_2) + \beta \cdot B(s_2)$.

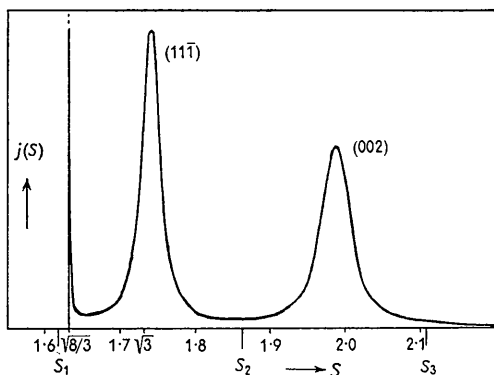


Fig. 2. Die Interferenzfunktion $j(s)$ berechnet für $\alpha=0,08$, $\beta=0$.

$$j(s) = 0 \text{ für } s < s_{\min.} = (8/3)^{\frac{1}{2}} = 1,633.$$

Da andererseits s_1 nach Gl. (7) in der Nähe von 1,60 liegt, ergibt sich, dass dort die 1. Näherung nicht ausreicht. Auf die Interferenzerscheinung im Bereich von $s_{\min.}$ soll deshalb etwas näher eingegangen werden.

Gibt man der Einfachheit halber einen Wert $\alpha \neq 0$, $\beta = 0$ vor und berechnet $j(s)$ nach Gl. (2) und (4) ohne Vernachlässigung von φ und p , so ergibt sich Fig. 2. Charakteristisch ist der steile Anstieg von $j(s)$ proportional zu $(s - s_{\min.})^{-\frac{1}{2}}$ für $s \rightarrow s_{\min.}$, der von den nicht verschwindenden Intensitätsbrücken auf den hier interessierenden Gitterstäben (HKH_3) im Bereich von $H_3 = 0$ herrührt. Die Singularität bei $s_{\min.}$ ist natürlich nur eine Folge der Vernachlässigung der Teilchengrößen-Verbreiterung in der H_1 - und der H_2 -Richtung

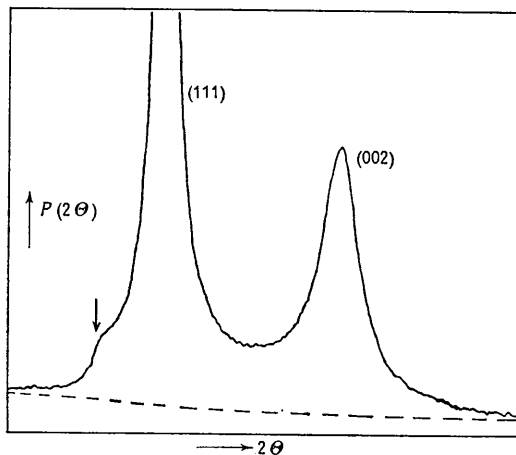


Fig. 3. Photometerkurve einer streng monochromatischen Guinieraufnahme von Feilspänen einer $Au_{80}Cd_{20}$ -Legierung. Der Lage des Pfeiles entspricht $s_{\min.}$. Die gestrichelte Linie gibt ungefähr die Höhe des Streuuntergrundes an. Die mit einem Pfeil gekennzeichnete Intensitätsstufe ist sicher nicht einer Absorptionskante oder ähnlichen Einflüssen zuzuschreiben. Die Verwendung streng monochromatischer Strahlung und die Filmphotometrierung schliessen solche Effekte aus. Ausserdem ist die Lage der Stufe durch den senkrechten Abstand des diffusen Gitterstabes vom Ursprung des reziproken Gitters theoretisch vorausgesagt.

im reziproken Gitter. In Wirklichkeit hängt $j(s)$ in unmittelbarer Nähe von $s_{\min.}$ entscheidend von der Breite der Intensitätsbrücken ab, v. Laue (1932), Warren (1941), Wilson (1949), Brindley & Méring (1951).

Nun wurde von Massalski & Barrett (1957) und von Warren (1959) an verformten Messingpulvern bei dem Glanzwinkel θ , der der kritischen Koordinate $s_{\min.}$ entspricht, eine schwache, zusätzliche Interferenz gefunden, die die Autoren versuchsweise als $(10\bar{1}0)$ -Linie eines kleinen Anteils hexagonal dichtester Kugelpackung im verformten α -Messing deuten.* Fig. 3 zeigt die Photometerkurve eines zur Verdeutlichung überbelichteten Debye-Scherrer-Filmes von Feilpulver einer $Au_{80}Cd_{20}$ -Legierung, auf der die Zusatzinterferenz deutlich zu erkennen ist. (Aufnahme in einer Guinierkammer, $Cu K\alpha_1$ -Strahlung, Herstellung des Pulvers und Aufnahme bei Raumtemperatur. Die Deformations-Stapelfehlerdichte α ergab sich aus der Veränderung der Linienabstände (111) und (002) bzw. (002) und (022) gegenüber den entsprechenden Abständen auf einer Aufnahme von rekristallisiertem Pulver zu $\alpha \cong 0,08$. Als Position einer Linie wurde der Mittelpunkt des Intensitätsprofils in 2/3 der Maximalhöhe gewählt.) Da andererseits Hirsch, Kelly & Menter (1955) auf Elektronenbeugungsaufnahmen an gehämmertem Blattgold neben den zu erwartenden Reflexen auch einige weitere Reflexe fanden, die sie hexagonal indizieren konnten, ohne dass eine Abschätzung des Mengenanteils möglich war, ergibt sich die Frage, ob die beobachtete Zusatzinterferenz vor der (111)-Linie wenigstens halbquantitativ auf den für reine Stapelfehlerverbreiterung berechneten Steilanstieg der Interferenzfunktion im Bereich von $s_{\min.}$ zurückgeführt werden kann.

Über die dreidimensionale Verteilung der Interferenzfunktion bei stark verformten Metallen ist wenig bekannt. Wir nehmen deshalb der Einfachheit halber eine symmetrische Funktion $F(s)$ an, die die Teilchengrößen- und Verzerrungsverbreiterung der $\{111\}$ -Reflexe beschreiben soll. In $F(s)$ ist auch der bei Guinieraufnahmen in Subtraktionsstellung sehr kleine Anteil der Instrumentalverbreiterung enthalten. Ausserdem müssen jetzt die bislang nicht betrachteten, von den Stapelfehlern nicht beeinflussten Reflexe $\pm(111)$ in die Rechnung mit einbezogen werden. Man kommt deshalb zu folgendem, nur als grobe Näherung gültigen Ansatz für die berechnete Interferenzfunktion $j_v(s)$, die mit der beobachteten Funktion $j_b(s)$, Gl. (11) verglichen werden soll:

$$j_v(s) = \{3j(s) * F(s) + \delta(s - s_{111}) * F(s)\},$$

$$\delta(s) = \text{Deltafunktion in } s=0; * = \text{Faltungssymbol}.$$

Die Funktion $F(s)$ wurde empirisch so ermittelt, dass sich möglichst gute Übereinstimmung zwischen

* Ein solcher Anteil erzeugt in der hexagonalen Indizierung Gl. (1) Reflexe bei $H-K=0 \pmod{3}$; $H_3=0 \pmod{3}$ und bei $H-K=\pm 1 \pmod{3}$; $H_3=0 \pmod{3}$, also auch bei $s_{\min.}$

$j_b(s)$ und $j_v(s)$ ergab. Das Ergebnis zeigt Fig. 4. Eine Analyse der Funktion $F(s)$ wurde nicht vorgenommen, da sie dafür viel zu ungenau ist. Ausserdem kommt es hier nur darauf an, ob die Stärke der Zusatzinterferenz allein aus der speziellen Form von $j(s)$ erklärt werden kann. Die Übereinstimmung der berechneten und der beobachteten Werte in Fig. 4 ist

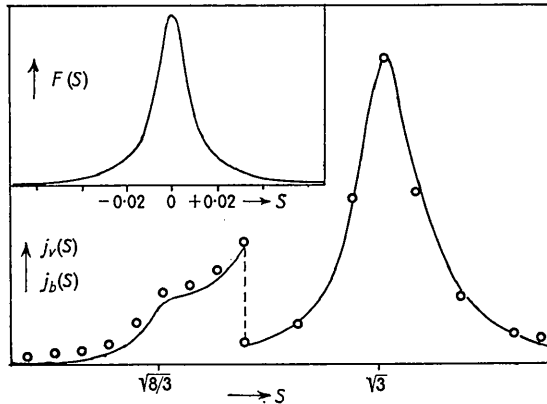


Fig. 4. Vergleich der berechneten (—) und der beobachteten (o) Interferenzfunktion im Bereich der (111)-Linie. Der Ordinatenmassstab ist im linken Teil gegenüber dem rechten 6-fach überhöht.

befriedigend im Hinblick auf die starke Vereinfachung der Rechnung und auf die Schwierigkeit, bei Filmaufnahmen den Streuuntergrund festzulegen. Die beobachtete Zusatzinterferenz ist jedenfalls nicht stärker als die berechnete. Dieser Schluss wird noch verstärkt, wenn man berücksichtigt, dass in $j_v(s)$ der Einfachheit halber $\beta=0$ gesetzt wurde. Nach den Messungen von Wagner (1957, 1960) hat man aber mit Werten für β in der Grössenordnung von α zu rechnen. Eine Einbeziehung von $\beta \approx \alpha$ in $j_v(s)$ würde die Stärke der berechneten Zusatzinterferenz etwa verdoppeln. Man kann also schliessen, dass ein Anteil mit hexagonaler Struktur jedenfalls sehr viel kleiner ist, als der beobachteten Stärke der Zusatzinterferenz, interpretiert als hexagonaler (10 $\bar{1}0$)-Reflex, entspricht.

In diesem Zusammenhang sei noch auf Untersuchungen von Flörke (1957) hingewiesen, der auf Pulveraufnahmen von Cristobalit die hier beschriebene zusätzliche Interferenzlinie sehr ausgeprägt findet und ebenfalls als Folge der eindimensionalen Fehlordnung deutet.

4. Die Bestimmung von β in besserer Näherung

Bildet man analog zu Gl. (8) aus $j(s)$ den Ausdruck

$$\Delta j(s_2) = j(s_2) - \{j(s_1) + j(s_3)\}; \quad (j(s_1) \equiv 0) \quad (12)$$

und vernachlässigt dabei nur der einfachen Darstellung halber alle Glieder in höherer als 1. Potenz in α und β , so erhält man

$$\Delta j(s_2) = \alpha \cdot A(s_2) + \beta \cdot B(s_2) \quad (13)$$

mit A und B in Fig. 1. Man erkennt, dass scheinbar $A \neq 0$ der einzig wesentliche Unterschied zwischen Gl. (9) und (13) ist, und da α aus der Linienverschiebung hinreichend genau bekannt ist, scheint dieser Umstand keine Komplikation zu bedeuten.

Während aber in Abschnitt 3 begründet werden konnte, dass die (symmetrische) Teilchengrössen- und Verzerrungs-Verbreiterung im Rahmen der dort angegebenen Näherung keinen wesentlichen Beitrag zu $\Delta j_b(s_2)$ gibt, gilt dies jetzt nicht mehr. Man erkennt das daran, dass Gl. (13) auch von α abhängt, d.h. auch der symmetrische Anteil der Stapelfehler-Verbreiterung und damit auch die Teilchengrössen- und Verzerrungs-Verbreiterung tragen zu $\Delta j_b(s_2)$ bei. Eine Gleichsetzung von Δj_b und Δj gibt also, besonders bei Präparaten mit relativ kleinem α und β , zu hohe Werte für β . Weiterhin ist zu berücksichtigen, dass $s_1 < s_{\min}$. jedenfalls in der Nähe der Zusatzinterferenz liegt. $j_b(s_1)$ entsteht aber, wie in Abschnitt 3 untersucht wurde, durch ein kompliziertes Zusammenspiel aller Verbreiterungseinflüsse, sodass sich nur schwer abschätzen lässt, welcher Fehler in der Bestimmung von β dadurch verursacht wird. Vermutlich gibt dieser Umstand aber eher zu niedrige als zu hohe Werte für β . Man erkennt also, dass eine Anwendung von Gl. (13) mit grosser Unsicherheit nach beiden Seiten hin verbunden ist.

5. Schlussbemerkungen

Asymmetrische Intensitätsprofile im gleichen Sinne, wie sie Zwillingsstapelfehler bewirken, hat man auch zu erwarten, wenn entgegen den Voraussetzungen von Gl. (2) die Deformationsstapelfehler nicht statistisch unabhängig, sondern — entsprechend der Inhomogenität des Verformungsvorganges — inhomogen über das Probenvolumen verteilt sind.

In diesem Zusammenhang muss auch diskutiert werden, ob ein merklicher Einfluss der seitlichen Begrenzungen (Halbversetzungen) von Stapelfehlerbändern auf das Intensitätsprofil besteht, wenn die Stapelfehlerbänder nicht hinreichend breit sind. Darauf haben Christian & Spreadborough (1957) hingewiesen.* Qualitativ lassen sich die Verhältnisse vielleicht wie folgt beschreiben. Das Verschiebungsfeld der das Stapelfehlerband begrenzenden Halbversetzungen bewirkt, dass oberhalb und unterhalb der Stapelfehlerebene die Fehlstapelung etwa in Abständen, die der Breite des Stapelfehlerbandes vergleichbar sind, wieder verschwindet. Für die grossen Abstandsvektoren im Atomgitter, die die Fourierkoeffizienten hoher Ordnung und damit das Verhalten der Interferenzfunktion im Bereich des Maximums bestimmen, ist das Stapelfehlerband dann näherungsweise nicht vorhanden. Andererseits ist das Verschiebungsfeld der Halbver-

* Für hexagonal dichteste Kugelpackungen, wo die Verhältnisse bezüglich dieser Frage etwas einfacher liegen, wurde der Einfluss von Stapelfehlerbändern ausführlich von Houska & Averbach (1958) untersucht.

setzungen für die kleinen Abstandsvektoren, die die Fourierkoeffizienten niedriger Ordnung und damit im wesentlichen das Verhalten der Interferenzfunktion in den Schwänzen bestimmen, wenig wirksam, sodass die Schwerpunktsverschiebung des Interferenzprofils entsprechend der Breite des Stapelfehlerbandes etwa unverändert bleibt. Man kann deshalb schliessen, dass derartige Stapelfehlerbänder, sofern sie hinreichend schmal und hinreichend häufig sind, eine unsymmetrische Verbreiterung bewirken. Es ist aber anzunehmen, dass dieser Asymmetrieeffekt nur bei relativ kleinen Deformationsstapelfehlerdichten von Bedeutung ist.

Schliesslich sei darauf hingewiesen, dass nach Willis (1959) asymmetrische Linienverbreiterungen der gleichen Art, wie sie Zwillingstapelfehler erzeugen — allerdings nach der einen oder der anderen Seite — auftreten, wenn in Legierungen eine röntgenographisch wirksame Segregation der einen Atomart an den Stapelfehlern stattfindet.

Der Einfluss einer nichtstatistischen Verteilung der Stapelfehler auf die Interferenzfunktion lässt sich zumindest prinzipiell behandeln, Jagodzinski (1949b, 1954), Gevers (1954), Wilkens (1960), obgleich eine quantitative Anwendung auf Debye-Scherrer-Linienprofile von verformten Metallpulvern wenig aussichtsreich erscheint, weil die Verzerrungsverbreiterung nach dem Verfahren von Warren & Averbach (1952) nicht mit der notwendigen Genauigkeit eliminiert werden kann. Quantitative Rechnungen für Stapelfehlerbänder liegen noch nicht vor. Es ist aber leicht einzusehen, dass diese beiden zusätzlichen Asymmetrieeffekte um so unwesentlicher sind, je weiter entfernt von der Lage des Maximums einer Linie die entscheidenden Messungen zur Festlegung der Asymmetrie liegen. Daraus ergibt sich der eingangs erwähnte, nicht nur experimentell begründete Vorteil der Warrenschen Methode vor der Wagnerschen

Methode zur Bestimmung von β , und die experimentelle Erfahrung wird zeigen müssen, ob sich die Warrensche Methode trotz der in Abschnitt 4 diskutierten Unsicherheit bewährt.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft sei auch an dieser Stelle für die Unterstützung im Rahmen des Schwerpunktsprogrammes 'Kristallstrukturforschung' gedankt.

Literatur

- BRINDLEY, G. W. & MÉRING, J. (1951). *Acta Cryst.* **4**, 441.
 CHRISTIAN, J. W. & SPREADBOROUGH, J. (1957). *Proc. Phys. Soc. B*, **70**, 1151.
 FLÖRKE, O. W. (1957). *Ber. dtsh. keram. Ges.* **34**, 343.
 GEVERS, R. (1954). *Acta Cryst.* **7**, 740.
 HENDRICKS, S. B. & TELLER, E. (1942). *J. Chem. Phys.* **10**, 147.
 HIRSCH, P. B., KELLY, A. & MENTER, J. W. (1955). *Proc. Phys. Soc. B*, **68**, 1132.
 HOUSKA, C. R. & AVERBACH, B. L. (1958). *Acta Cryst.* **11**, 139.
 JAGODZINSKI, H. (1949a). *Acta Cryst.* **2**, 201.
 JAGODZINSKI, H. (1949b). *Acta Cryst.* **2**, 208.
 JAGODZINSKI, H. (1954). *Acta Cryst.* **7**, 17.
 LAUE, M. VON (1932). *Z. Kristallogr.* **82**, 127.
 MASSALSKI, T. B. & BARRETT, C. S. (1957). *Trans. AIME* **209**, 455.
 PATERSON, M. S. (1952). *J. Appl. Phys.* **23**, 805.
 WAGNER, C. N. J. (1957). *Acta Met.* **5**, 427.
 WAGNER, C. N. J. (1960). *Z. Metallk.* **51**, 261.
 WARREN, B. E. (1941). *Phys. Rev.* **59**, 693.
 WARREN, B. E. & AVERBACH, B. L. (1952). *J. Appl. Phys.* **23**, 497.
 WARREN, B. E. & WAREKOIS, E. P. (1955). *Acta Met.* **3**, 473.
 WARREN, B. E. (1959). *Progr. Metal Phys.* **8**, 147.
 WILKENS, M. (1960). *Z. Phys.* **158**, 483.
 WILLIS, B. T. M. (1959). *Acta Cryst.* **12**, 683.
 WILSON, A. J. C. (1942). *Proc. Roy. Soc. A*, **180**, 277.
 WILSON, A. J. C. (1949). *Acta Cryst.* **2**, 245.