

# Untersuchungen über den Einfluß von Oberflächenbeschaffenheit und Gitterfehlern auf die Linienbreite der ferromagnetischen Resonanz von polykristallinen Metallen

Von E. BILLER \*

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität München

(Z. Naturforschg. 17 a, 559—569 [1962]; eingegangen am 15. März 1962)

Es wird über ferromagnetische Resonanzuntersuchungen vornehmlich an polykristallinem Nickel berichtet. Die gesamte Linienbreite  $\Delta H_g$  setzt sich aus verschiedenen Anteilen zusammen, von denen der auf die Oberflächenrauigkeiten zurückgehende Anteil  $\Delta H_{div}$  und der von den verschiedenen Gitterfehlern hervorgerufene  $\Delta H_{me}$  eingehend untersucht werden. Dabei wird festgestellt, daß sich  $\Delta H_g$  additiv aus den verschiedenen Linienbreiten zusammensetzt.

Oberflächenrauigkeiten werden durch Recken oder Ätzen des Metalles erhalten.

1. Während bei den gereckten Proben die Breite  $\Delta H_{div}$  gering ist, kann  $\Delta H_{div}$  beim Ätzen sehr große Werte annehmen.

Gitterfehler werden im Polykristall durch Zugverformung, inhomogene Oberflächenbearbeitung und Neutronenbestrahlung erzeugt und durch Glühbehandlung zum Verschwinden gebracht.

2. Bei den gereckten Proben wird eine lineare Änderung der Breite  $\Delta H_{me}$  mit der vorher angelegten Zugspannung  $\sigma_a$  gefunden. Bei Nickel mit einer Korngröße von etwa 0,12 mm beträgt die Zunahme der Linienbreite etwa 11 Oe/kg mm<sup>-2</sup>.

3. Bei der inhomogenen Oberflächenbearbeitung ergibt sich für  $\Delta H_{me}$  eine Abhängigkeit von der Größe und dem Vorzeichen der Magnetostraktionskonstanten  $\lambda_s$ .

4. Eine Neutronenbestrahlung von etwa 10<sup>18</sup> Neutronen/cm<sup>2</sup> bewirkt keine Linienverbreiterung.

5. Werden gewalzte Proben gegläht, so beobachtet man charakteristische Anlaufkurven von  $\Delta H_g$ . Die Linienbreite  $\Delta H_{me}$  verschwindet, das Verschwinden fällt zusammen mit der Rekristallisation des Materials.

Die Ergebnisse werden mit den Vorstellungen über den jeweiligen Materialzustand verglichen und zu deuten versucht. Die Linienbreiten  $\Delta H_{div}$  und  $\Delta H_{me}$  kommen durch scheinbare und echte Dämpfungen des Spinsystems zustande. Während die echte Dämpfung ihre Ursache in den verschiedenen Relaxationsprozessen hat, entsteht die scheinbare durch die Streuung der Resonanzfrequenzen des Materials.

Die ferromagnetische Resonanzabsorption (FMR) hat sich seit ihrer ersten Beobachtung im Jahre 1946 durch GRIFFITHS<sup>1</sup> als eine wertvolle Methode zur Erforschung grundlegender Fragen des Ferromagnetismus erwiesen. So kann man aus der Kenntnis der Resonanzfrequenz  $\omega_0$  den g-Faktor, die Sättigungsmagnetisierung  $M_s$ , die Austauschkonstante  $A$ , die Konstanten der Kristallanisotropie  $K_1$  und  $K_2$ , und der Magnetostraktion  $\lambda_s$  in Abhängigkeit von der Materialzusammensetzung, der Temperatur  $T$  und der Frequenz  $\omega$  oder der äußeren Feldstärke  $H_0$  ermitteln. Neben der Bestimmung der magnetischen Grundgrößen gilt das Hauptinteresse der Resonanzuntersuchungen der Breite der Absorptionslinie. Über die Linienbreite versucht man dann einen Einblick in die Relaxationsprozesse des Ferromagnetismus zu gewinnen<sup>2</sup>. Der Schwerpunkt der Arbeiten liegt derzeit auf dem Gebiete der nichtleitenden, ferrimagnetischen Werkstoffe, und die beobachteten Linienbreiten können theoretisch bereits verstanden

werden. Anders sieht es bei den Metallen aus. Hier bereitet die Deutung der beobachteten großen Linienbreiten noch Schwierigkeiten. Das liegt wesentlich daran, daß experimentelle Daten nur sehr spärlich vorliegen und Vergleiche mit der Theorie daher kaum möglich sind.

Wir haben es uns deshalb zur Aufgabe gemacht, systematisch alle die Größen zu untersuchen, die die Linienbreite der FMR von Metallen möglicherweise beeinflussen. In der vorliegenden Arbeit wird die Resonanzabsorption polykristalliner Materialien, vornehmlich Nickel, in Abhängigkeit von Gitterfehlern und Oberflächenform eingehend studiert.

## 1. Die Linienbreite eines polykristallinen Metalles

Ein polykristallines Material besteht im allgemeinen aus einer Anordnung von willkürlich orientierten Einzelkörnern. In einem Kristallit ist im außen

\* Dissertation München 1962.

<sup>1</sup> J. H. E. GRIFFITHS, Nature, Lond. **158**, 670 [1946].

<sup>2</sup> C. KITTEL u. E. ABRAHAMS, Rev. Mod. Phys. **25**, 233 [1953].



angelegten Felde  $H_0$  die ferromagnetische (fmg) Resonanzfrequenz  $\omega_0$

$$\omega_0 = \gamma [H_{\text{eff}} + H_{\text{dämpf}}] . \quad (1)$$

$\gamma$  ist das magnetomechanische Verhältnis.  $H_{\text{dämpf}} = (\Delta H_d/2)^2/2H_{\text{eff}}$  ist eine phänomenologisch eingeführte Feldgröße, die die echte Linienbreite  $\Delta H_d$  der FMR enthält und aus der Bewegungsgleichung des Spinsystems folgt. Die Linienbreite ist definiert als die Differenz der Feldstärken  $H_0$ , bei denen der Imaginärteil der komplexen Permeabilität  $\mu = \mu_1 - j\mu_2$  des Materials auf den halben Maximalwert abgesunken ist. Unter echter Linienbreite wollen wir die Größe  $\Delta H_d$  verstehen, die durch eine echte Bedämpfung der Spinpräzession hervorgerufen wird.

Das auf den einzelnen Spin wirkende effektive Feld  $H_{\text{eff}}$  läßt sich aus der freien Energie des magnetischen Systems berechnen<sup>3</sup> und hängt von einer Summe von Feldern ab, die den verschiedenen Energieanteilen zugeordnet sind<sup>4</sup>:

$$H_{\text{eff}} = F(H_0 + H_{\text{div}} + H_A + H_K + H_{\text{me}}) . \quad (2)$$

$H_0$  ist das außen angelegte Gleichfeld.  $H_{\text{div}}$  enthält alle Streufelder, das sind alle Felder, die durch die Divergenz der Magnetisierung hervorgerufen werden.  $H_A$  ist das Austauschfeld, das durch örtliche Änderungen in der Richtung der Magnetisierung entsteht.  $H_K$  ist das Anisotropiefeld, das aus der Wechselwirkung von Magnetisierung und Kristallgitter resultiert.  $H_{\text{me}}$  ist das magnetoelastische Feld, das die durch Gitterdeformation hervorgerufene Änderung der Anisotropie ausdrückt<sup>5</sup>.

Soll die Präzessionsfrequenz  $\omega_0$  mit der Frequenz  $\omega$  eines höchstfrequenten Magnetfeldes in Resonanz gebracht werden, so ist dazu ein ganz bestimmtes äußeres Feld  $H_0$  notwendig. Dieses Resonanzfeld  $H_R$  muß Gl. (1) erfüllen, wenn man Gl. (2) in (1) einsetzt, und kann sich nach dem magnetischen Zustand von Ort zu Ort ändern. Für einen Polykristall bedeutet das im allgemeinen, daß sein Resonanzverhalten durch ein ganzes Spektrum von  $H_R$ -Werten beschrie-

ben wird. Dadurch erscheint im Feldstärkemaßstab die echte Linienbreite vergrößert. Diese scheinbare, durch die Streuung der Resonanzfeldstärken hervorgerufene Dämpfungsänderung des Spinsystems sollte nach Gl. (1) die Resonanzfrequenz nicht verschieben und müßte auf diese Weise von einer echten Dämpfung, die sich in einer Änderung von  $H_{\text{dämpf}}$  ausdrückt, zu unterscheiden sein. In der Praxis ist wegen der Kleinheit des Effektes diese Trennung schwer möglich.

Die beobachtete Linienbreite eines Polykristalls setzt sich aus verschiedenen Anteilen zusammen, die durch scheinbare und/oder echte Dämpfungen erzeugt werden. DÖRING und VIAL erhielten durch Betrachtung der  $H_R$ -Streuung quadratische Ausdrücke für die scheinbare Dämpfung<sup>6</sup>. Wir machen für die Linienbreite  $\Delta H_g^{\text{poly}}$  eines metallischen Vielkristalls den einfachen Ansatz

$$\Delta H_g^{\text{poly}} = \Delta H + \Delta H_{\text{div}} + \Delta H_K + \Delta H_{\text{me}} . \quad (3)$$

Eine ähnliche Beziehung wurde für Ferrite theoretisch angegeben<sup>7</sup> und auch experimentell bestätigt<sup>8</sup>. Da es sich in der vorliegenden Arbeit durchwegs um Untersuchungen an Polykristallen handelt, entfällt im folgenden die Silbe „poly“.

In Gl. (3) ist  $\Delta H$  die Linienbreite eines Ideal-kristalls, während die übrigen Größen den Real-kristall beschreiben.

$\Delta H$  wird bei fmg Metallen durch Relaxationsprozesse und Austauscheffekte hervorgerufen. Bei den Relaxationsmechanismen unterscheidet man Spin-Spin- und Spin-Gitter-Relaxation<sup>9</sup>. Die von einem Spinsystem absorbierte Energie wird durch Spin-Spin- und anschließend Spin-Gitter-Wechselwirkungen an das Gitter abgegeben<sup>10</sup>. Der zweite Übergang erfolgt sowohl direkt als auch unter Beteiligung der Leitungselektronen<sup>11</sup>. Die Austauschwechselwirkung liefert nur bei Metallen einen Beitrag zu  $\Delta H$ , da in der Skin-Tiefe die Mikrowellenkomponente der Magnetisierung nicht mehr homogen ist<sup>12</sup>. Bei Zimmertemperatur ist die Größe von  $\Delta H$  haupt-

<sup>3</sup> J. O. ARTMAN, Phys. Rev. **105**, 74 [1957]. — G. V. SKROTSKII u. L. V. KURBATOV, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **35**, 216 [1958]; Soviet Phys.-JETP **8**, 148 [1959].

<sup>4</sup> C. KITTEL, Rev. Mod. Phys. **21**, 541 [1949].

<sup>5</sup> C. P. BEAN u. J. J. BECKER, in L. MARTON, Methods of Experimental Physics **6**, Teil B, S. 225, Academic Press, New York 1959.

<sup>6</sup> W. DÖRING u. H. VIAL, Z. Naturforsch. **15a**, 434 [1960].

<sup>7</sup> E. SCHLÖMANN, Proc. Conf. Magnetism, Boston 1956.

<sup>8</sup> A. G. GUREVICH, I. E. GUBLER u. A. P. SAVANT'EVSKII, FTT **1**, 1862 [1959]; Soviet Phys.-Solid State **1**, 1706 [1960].

<sup>9</sup> E. ABRAHAMS, Adv. Electronics Electr. Phys. **6**, 47 [1954].

<sup>10</sup> N. BLOEMBERGEN u. S. WANG, Phys. Rev. **93**, 72 [1954].

<sup>11</sup> A. H. MITCHELL, Phys. Rev. **105**, 1493 [1957]. — W. G. BARJACHTAR u. S. W. PELETINSKI, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **39**, 651 [1960]; Soviet Phys.-JETP **12**, 457 [1961]; Phys. Abh. Sowjet. **4**, 111 [1961].

<sup>12</sup> J. R. MACDONALD, Phys. Rev. **103**, 280 [1956]. — G. T. RADO u. J. R. WEERTMAN, J. Phys. Chem. Solids **11**, 315 [1959].

sächlich durch die Spin-Spin-Relaxation bestimmt<sup>13</sup>. Der Spin-Gitter-Anteil ist gering<sup>10</sup>, wie auch die Anregungsversuche von stehenden Spinwellen durch höchstfrequente Schallwellen zeigen<sup>14</sup>. Mit abnehmender Temperatur nimmt der Austauschbeitrag zu, da er von der Größe der Eindringtiefe des Mikrowellenfeldes und damit von der Leitfähigkeit des Metalles abhängt<sup>15</sup>.

$\Delta H_K$  ist die Anisotropieverbreiterung, hervorgerufen durch die willkürliche Orientierung der verschiedenen Kristallite. Wird eine Wechselwirkung der Körner vernachlässigt, so findet man für  $\Delta H_K$  als scheinbare Dämpfung theoretisch etwa den Wert  $^7 K/M_s$ .  $K$  ist dabei die erste Anisotropiekonstante des Kristalls. Messungen an polykristallinen Ferriten mit Granatstruktur bestätigen diesen Wert und zeigen, daß in manchen Fällen die oben genannte Vernachlässigung der Wechselwirkungen erlaubt ist<sup>8</sup>. Vergleicht man die einzigen bekannten Werte von kompaktem poly- und einkristallinen Nickel<sup>16</sup>, so erhält man für  $\Delta H_K$  ebenfalls etwa den Wert  $K/M_s$ .

Die durch Störungen und Gitterfehler hervorgerufenen Größen  $\Delta H_{div}$  und  $\Delta H_{me}$  setzen sich aus zwei Anteilen zusammen, der echten und der scheinbaren Linienbreite. Die echte, durch eine Änderung der Relaxationsmechanismen erzeugte Linienverbreiterung kann verschiedene Ursachen haben. So können, in der Sprache der Spinwellen, Oberflächenrauigkeiten und Poren Streuzentren für die Spinwellen darstellen, wodurch die Spin-Spin-Relaxationszeit verkürzt und die Linienbreite erhöht wird (s. Anm. <sup>17</sup>). Ob dies auch für Gitterfehler der Fall ist, ist nicht bekannt und soll in unseren Arbeiten experimentell untersucht werden. Die scheinbare Dämpfungsänderung entsteht durch die Verteilungsbreite der Resonanzfeldstärken  $H_R$ . Dies ist bedingt durch Größe und Vorzeichen der durch Streufelder und Spannungen verursachten Felder  $H_{div}$  und  $H_{me}$ . Die scheinbare Linienverbreiterung kann durch Wechselwirkungseffekte verkleinert werden<sup>18</sup>. Ob die scheinbare oder echte Dämpfung überwiegt, hängt von der räumlichen Ausdehnung der Störungen ab und kann nur durch eine Änderung der

Frequenz oder der Magnetisierung festgestellt werden.

Ändert sich die Skin-Tiefe mit der Oberflächenbeschaffenheit oder den Gitterfehlern, so sollen die damit verbundenen Änderungen der Austauschwechselwirkungen in den den Realkristall beschreibenden Linienbreiten enthalten sein. Wegen der Kleinheit dieser Änderungen wird hierauf nicht weiter eingegangen.

## 2. Versuchsanordnung

Das Ausgangsmaterial für unsere Untersuchungen war gewalztes Blech aus sehr reinem Nickel (NiS; 0,5 mm stark), Nickel mit Manganzusatz (NiM; 0,5 mm), handelsübliches Nickel (NiT; 0,7 mm) und einer Eisen-Nickel-Legierung (Mumetall; 0,1 mm). Als Zusammensetzung der Werkstoffe gibt der Hersteller (Vakuum Schmelze Hanau) außer Ni folgende Bestandteile (Gew.-Proz.) an für NiS: Si und Cu Spur, Fe 0,007, Co 0, C 0,01, Mg < 0,02; NiM: Mn 0,28, Fe 0,04; Mumetall: Ni 76, Cr 2, Cu 5, Fe 17.

Die Formgebung des Materials erfolgte durch mechanische (Sägen, Drehen) oder elektrolytische Bearbeitung. Die Oberfläche wurde mit Schleifpapier mit 120 beginnend bis 6/0 auf der Drehscheibe oder mit der Hand mechanisch poliert.

Zum Erholen und Rekristallisieren der Werkstoffe stand ein Rohrofen mit Wasserstoffspülung (Abkühlfaktor  $\lambda \approx 0,22/\text{Std.}$ ) und ein Vakuum-Glühofen ( $p \approx 10^{-4} \dots 10^{-5}$  Torr) zur Verfügung.

Mit einer Speziallegierung CR 13 (Schmelzpunkt  $96^\circ \dots 104^\circ \text{C}$ ) wurden die scheibchenförmigen Proben mit einem Durchmesser von 21 mm vorsichtig auf zylindrische Messing-Klötzchen aufgelötet. Es wurde besondere Sorgfalt darauf verwendet, daß bei diesem Vorgang die Proben so wenig wie irgend möglich verändert oder beschädigt wurden. Um Sicherheit in diesem Punkt zu erhalten, wurden die aufgelöteten Proben mit aufgeklebten Proben verglichen. Bei der Messung ließ sich kein merklicher Unterschied der Resonanzeigenschaften feststellen.

Um für die Mikrowellen-Untersuchungen eine optimal glatte und saubere Oberfläche zu erhalten, wurden die Proben elektropoliert. Dazu dienten zwei Elektrolyte, verdünnte Schwefelsäure bei Raumtemperatur und heiße ( $T = 80^\circ \text{C}$ ) Chrom-Phosphorsäure. Die Zusammensetzung war  $575 \text{ cm}^3 \text{ H}_2\text{SO}_4$  konz. plus  $425 \text{ cm}^3 \text{ H}_2\text{O}$ , und  $100 \text{ g CrO}_3$  plus  $900 \text{ g o-H}_3\text{PO}_4$  konz.. Als

<sup>13</sup> Ju. A. ISJUMOW, FMM **8**, 807 [1959]; Soviet Phys.-Phys. Met. Metallogr. **8**, Heft 6, 6 [1959]; Phys. Abh. Sowjet. **2**, 463 [1960]. — J. MORKOWSKI, Acta Phys. Polon. **19**, 701 [1960].

<sup>14</sup> M. POMERANTZ, Phys. Rev. Letters **7**, 312 [1961].

<sup>15</sup> A. I. AKHIEZER, V. G. BARIKHTAR u. M. I. KAGANOV, FMM **6**, 932 [1958]; Soviet Phys.-Phys. Met. Metallogr. **6**, Heft 5, 156 [1958].

<sup>16</sup> N. BLOEMBERGEN, Phys. Rev. **78**, 572 [1950]. — K. H. REICH, Phys. Rev. **101**, 1647 [1956].

<sup>17</sup> M. SPARKS, R. LOUDON u. C. KITTEL, Phys. Rev. **122**, 791 [1961].

<sup>18</sup> S. GESCHWIND u. A. M. CLOGSTON, Phys. Rev. **108**, 49 [1957]. — A. M. CLOGSTON, J. Appl. Phys. **29**, 334 [1958].

Gegenelektrode diente in  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  Ni bei einer Stromdichte  $j \approx 0,5 \text{ A cm}^{-2}$  und Cu bei  $j \approx 3 \text{ A cm}^{-2}$  in  $\text{CrO}_3/\text{H}_3\text{PO}_4$ . Die Polierzeit betrug einige Minuten, je nach der abzutragenden Materialmenge. Nach einem ausreichenden Spülen mit destilliertem Wasser wurden die Proben im Trockenschrank getrocknet. Beim elektrolitischen Arbeiten bewährte sich als Abdecklack besonders der Schutzlack Lacomit.

Vor der eigentlichen magnetischen Untersuchung wurde die Oberflächenbeschaffenheit unter einem Metallmikroskop geprüft. Optisch beobachtete Abweichungen von der optimalen Oberflächengüte machten sich magnetisch durch eine Zunahme der Linienbreite um einige 10 Oe bemerkbar.

Um den Einfluß einer durch das Elektropolieren entstandenen Oberflächenschicht auf die Linienbreite zu untersuchen, wurden Proben anschließend im Vakuum gegläht. Dabei zeigte in bekannter Weise die Oberfläche durch das sog. thermische Ätzen eine Struktur. Gegenüber den ursprünglichen Werten wurde keine meßbare Abweichung festgestellt.

Zur Bestimmung der Linienbreite  $\Delta H_g$  und der Resonanzfeldstärke  $H_R$  der fmg Resonanz wurde ein die Resonanzabsorption selbsttätig aufzeichnendes Mikrowellen-Spektrometer entwickelt. Der Aufbau und die Arbeitsweise dieser Anordnung wurden bereits ausführlich beschrieben<sup>19</sup>. Die Arbeitsfrequenz  $\omega/2\pi$  beträgt 9030 MHz. Die Mikrowellenleistung liefert ein Reflexklystron der Type 2 K 25<sup>20</sup>. Die zu untersuchende scheibchenförmige Probe befindet sich in einem  $H_{112}$ -Durchgangsresonator am Orte maximalen magnetischen Wechselfeldes und kann um eine Achse senkrecht zur Oberfläche gedreht werden. Der Resonator mit einer Güte  $Q_L \approx 3000$  ist auf Zimmertemperatur und zwischen den Polschuhen eines Elektromagneten so angebracht, daß das äußere Gleichfeld  $H_0$  und das hochfrequente Magnetfeld in der Probenebene aufeinander senkrecht stehen. Die Feldstärke  $H_0$  wird mit einer kleinen rotierenden Spule gemessen.

Wird das äußere Gleichfeld bei konstanter Mikrowellenleistung geändert, so bewirkt die Probe eine Änderung der Güte des Resonators. Das rührt vom charakteristischen Verhalten der effektiven Permeabilität  $\mu_R = |\mu| + \mu_2$ , wobei  $\mu = \mu_1 - j\mu_2$  ist, des fmg Materials her<sup>21</sup>. Bei konstanter Mikrowellenleistung und quadratischer Kennlinie der Anzeigediode, was experimentell geprüft wurde, besteht zwischen  $\mu_R$  und der Gleichspannungsänderung  $\Delta U$  am Registriergerät des Spektrometers die Beziehung

$$(\mu_R^{1/2} - 1) = C([1 - u]^{-1/2} - 1). \quad (4)$$

Dabei sind  $C$  das Verhältnis der rein elektrischen Verluste des gesamten Resonators zu denen der Probe,  $u = \Delta U/U_1$  die relative Spannungsänderung und  $U_1$

die Gleichspannung am Schreiber im Falle  $\mu_R = 1$ . Das folgt aus Gl. (4) in Anm.<sup>19</sup>.

Die Linienbreite  $\Delta H_g$  der FMR ist definiert als die Differenz der Feldstärken  $H_0$ , bei denen die  $\mu_2$ -Kurve auf den halben Maximalwert abgefallen ist. Aus dem Zusammenhang zwischen  $\mu$  und  $\mu_R$  folgt für unser Probenmaterial, daß  $\Delta H_g$  in 75% der Gesamthöhe der  $(\mu_R^{1/2} - 1)$ -Kurve liegt (vgl. auch Anm.<sup>22</sup>). Das liefert zusammen mit Gl. (4) eine Beziehung für  $u_h$ , der relativen Spannungsänderung, bei der  $\Delta H_g$  zu messen ist. Zur Auswertung der  $\Delta U$ -Kurven wurde das Verhältnis  $u_h/u_m$  als Funktion von  $u_m$ , wobei  $u_m$  die maximale relative Spannungsänderung ist, tabelliert. Die Größen  $\Delta H_g$  und  $H_R$  wurden aus den Meßkurven geometrisch gewonnen. Durch Mittelung über mehrere Kurvenzüge ergab sich eine Genauigkeit von etwa  $\pm 15$  Oe.

### 3. Ergebnisse und Diskussionen

In Abschnitt 1 wurde eine Beziehung für die beobachtete Linienbreite aufgestellt, die besagt, daß  $\Delta H_g$  die Summe verschiedener Einzelbeiträge ist. Diese Aussage sollte geprüft und das Zustandekommen der verschiedenen Anteile von  $\Delta H_g$  untersucht werden. Ausgegangen wurde von gerecktem Nickelblech, da man annehmen kann, daß dessen Linienbreite aus mehreren Komponenten besteht.

Es mußten zuerst die gereckten Proben hergestellt werden. Als Material für die Verformungsversuche durch Zug wurde NiT verwendet. Das in Streifen von  $150 \times 27 \text{ mm}^2$  zerschnittene Blech wurde nach dem Abschleifen 2 Stunden bei  $1000^\circ \text{C}$  in einer  $\text{H}_2$ -Atmosphäre gegläht und langsam abgekühlt. Der mittlere Korndurchmesser betrug danach etwa 0,12 mm. Anschließend wurden die Streifen in  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  elektropoliert und mit je zwei links und rechts von der Mitte angebrachten Strichmarken versehen. Aus ihren Abständen, die mit einem Komparator auf einige  $\mu\text{m}$  genau gemessen wurden, wurde die relative Längenänderung  $\varepsilon = \Delta l/l_0$  als Verformungsgrad der Proben bestimmt. Die Streifen wurden in einer Zerreißmaschine bei Zimmertemperatur gereckt. Die freie Einspannlänge betrug 100 mm, die Verformungsgeschwindigkeit etwa  $8 \cdot 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$ . Das erhaltene Spannungs-Dehnungs-Diagramm zeigt Abb. 1. Aus dem verformten Material wurden dann durch Abdecken von kreisförmigen Flächen mit dem Schutzlack Lacomit Scheibchen mit einem Durchmesser von 21 mm elektrolytisch herauspoliert.

Nach dem Auflöten der Proben auf die Messingklötzchen wurde deren Resonanzverhalten bei Zimmertemperatur und einer Frequenz  $\omega/2\pi = 9030 \text{ MHz}$  untersucht<sup>23</sup>.

<sup>19</sup> E. BILLER, Z. Instrumentenke **69**, 67 [1961].

<sup>20</sup> Es ist darauf zu achten, daß Magnetfeldänderungen von den Elektronenröhren ferngehalten werden (vgl. auch M. E. BRODWIN u. J. W. DAVIS, Rev. Sci. Instrum. **32**, 223 [1961]). Dies gilt auch für Richtungsleitungen.

<sup>21</sup> J. A. YOUNG JR. u. E. A. UEHILING, Phys. Rev. **94**, 544 [1954].

<sup>22</sup> M. H. SEAVEY u. P. E. TANNENWALD, Techn. Rep. Nr. 143, Lincoln Lab., MIT 1957 (unveröffentlicht).

<sup>23</sup> E. BILLER u. CH. SCHWINK, Z. angew. Phys. **14**, 219 [1962].

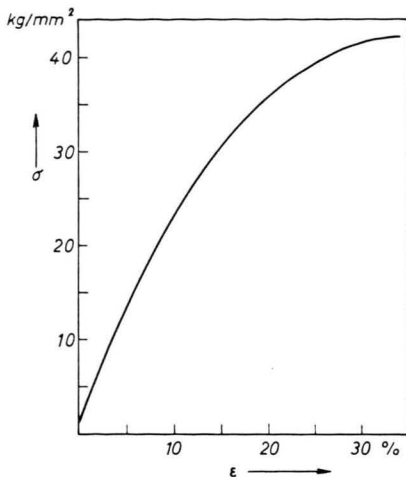


Abb. 1. Spannungs-Dehnungs-Diagramm polykristallinen Nickels mit einem mittleren Korndurchmesser von 0,12 mm.

Abb. 2 zeigt den Verlauf der Linienbreite  $\Delta H_g$  des polykristallinen Nickels in Abhängigkeit vom Verformungsgrad  $\epsilon$ . Die gesamte Linienbreite, durch das obere Kurvenpaar dargestellt, zeigt eine stetige Zunahme von einem Ausgangswert  $\Delta H_g \approx 400$  Oe bis zu etwa 900 Oe. Außerdem beobachtet man eine Anisotropie.  $\Delta H_g$  nimmt mit dem Winkel zwischen der ehemaligen Zugrichtung ZR und dem äußeren Feld  $H_0$  zu. Die in den verschiedenen Richtungen gemessenen Linienbreiten sind in Abb. 2 durch „ $\perp$  ZR“ und „ $\parallel$  ZR“ gekennzeichnet. Der in Richtung senkrecht zu ZR auftretende Maximalwert wird nach etwa 45° fast erreicht.

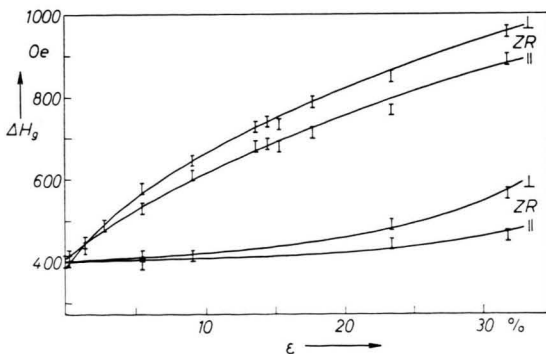


Abb. 2. Die Linienbreite  $\Delta H_g$  polykristallinen Nickels in Abhängigkeit vom Verformungsgrad  $\epsilon$ . Oberes Kurvenpaar nach dem Recken, unteres nach dem Recken und Glühen. ZR = Zugrichtung.

Wir wollen jetzt untersuchen, ob das Verhalten von  $\Delta H_g$  der gereckten Proben durch Gl. (3) beschrieben werden kann. Als Beiträge kommen Ober-

flächenrauigkeit, Gitterfehler im weitesten Sinne und Textur in Frage.

#### A. Einfluß der Oberflächenbeschaffenheit

In den folgenden Abschnitten wollen wir untersuchen, wie eine Änderung der Oberfläche die Linienbreite beeinflusst und ob dieser Anteil additiv ist.

##### 1. Oberflächenänderung durch Recken

Verformt man ein polykristallines Material mit vollkommen glatter Oberfläche durch Zug, so bietet sich unter dem Mikroskop folgendes Bild. Je nach Orientierung quellen die Kristallite verschieden stark aus der Oberfläche. Sie sind überzogen mit den stufenförmigen Gleitbändern der betätigten Gleitsysteme. Die Gleitbänder können sich über die Korngrenzen hinweg in Nachbarkristallite erstrecken. Mit zunehmendem äußeren Zug treten Quergleitungen und Mikrorisse auf. Die Kristallite werden in Zugrichtung immer länger und die Oberfläche erscheint von Furchen durchzogen.

Bei polykristallinem Nickel, mit einem mittleren Korndurchmesser von 0,12 mm, nahm beim Recken die Linienbreite  $\Delta H_g$  entsprechend dem oberen Kurvenpaar in Abb. 2 zu. Die vorher glattpolierte Oberfläche änderte sich in der beschriebenen Weise. Um allein den Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf die Zunahme von  $\Delta H_g$  festzustellen, kann man entweder den Oberflächenanteil  $\Delta H_{div}$  oder den Gitterfehleranteil  $\Delta H_{me}$  zum Verschwinden bringen. Wenn Gl. (3) gilt, muß aus beiden Verfahren etwa der gleiche Wert für die Linienbreite  $\Delta H_{div}$  folgen.

Um die Oberflächenrauigkeit zum Verschwinden zu bringen, wurden gereckte Proben vorsichtig mit der Hand bis 6/0 abgeschliffen und solange heiß elektropoliert, bis keine Änderung der Linienbreite mehr festzustellen war. Überraschenderweise war der Unterschied zwischen Proben mit rauher und mit glatter Oberfläche nicht sehr groß. Die  $\Delta H_g$ -Werte blieben bis  $\epsilon = 15\%$  nahezu gleich und wurden erst bei größten Verformungsgraden etwas kleiner (bei  $\epsilon = 32\%$  um etwa 100 Oe). Dagegen änderte sich die Anisotropie. Vergleiche hierzu Abschn. B 1.

Schlagen wir jetzt den zweiten Weg ein und versuchen den Einfluß der Oberflächenform allein zu erfassen. Dazu wurden verformte Proben mit bis 900 °C langsam steigender Temperatur im Vakuum geglüht. Bei dieser Glühung rekristallisieren die Proben (vgl. B 3) und zeigen neben den ursprünglichen Oberflächenunebenheiten die neuen Korngren-

zen. Da in unserem Falle das Produkt aus Glüh-temperatur und -dauer konstant war, werden die verschieden verformten Proben unterschiedliche Strukturen aufweisen. Dazu kommt, daß durch das Glühen auch die Oberflächenschichten etwas geändert werden. Die erhaltenen Linienbreiten  $\Delta H_g$  sind in Abb. 2 in Abhängigkeit von der früheren Verformung als unteres Kurvenpaar dargestellt. Es fällt auf, daß  $\Delta H_g$  nach dem Glühen nur bei größeren  $\varepsilon$ -Werten merklich vom Ausgangswert abweicht. Dort erkennt man auch stärker eine Anisotropie, bei der die Linienbreite mit dem Winkel zwischen der ehemaligen Zugrichtung ZR und  $H_0$  gleichmäßig zunimmt. Um zu prüfen, ob die verbleibende Verbreiterung der Resonanzlinie nur von der Oberflächenrauhigkeit verursacht wird, wurden die geglühten Proben vorsichtig mit der Hand abgeschliffen und ausreichend lange elektropoliert. Der danach gemessene Wert  $\Delta H_g$  ist identisch mit dem Ausgangswert von etwa 400 Oe, wodurch gezeigt wurde, daß der Verlauf des unteren Kurvenpaares in Abb. 2 nur durch die Oberflächenstörungen hervorgerufen wird.

Die Änderung der Linienbreite der FMR durch Oberflächenrauhigkeiten wurde bereits in verschiedenen Arbeiten, vor allem an Ferriten<sup>24, 25</sup>, experimentell und theoretisch untersucht, während von Metallen bisher nur eine Arbeit bekannt wurde<sup>26</sup>. Die Verbreiterung  $\Delta H_{div}$  kann zwei Ursachen haben. Die von den freien Ladungen ausgehenden Felder ändern entsprechend Gl. (1) und (2) die Resonanzfeldstärke  $H_R$  der Probe von Ort zu Ort und bewirken über die Streuung von  $H_R$  eine Verbreiterung der Linie. Dadurch wird scheinbar die Dämpfung der FMR geändert<sup>6</sup>. Eine echte Änderung der Spin-Spin-Relaxationszeit und damit des Dämpfungsmechanismus kann beim Auftreffen der Spinwellen auf die Störstellen in oder auf der Probe hervorgerufen werden. So nimmt man bei Ferriten an, daß bei der Streuung eine Spinwelle der homogenen Präzession ( $k=0$ ) in eine Spinwelle mit einer Wellenlänge in der Größenordnung der Störung übergeht<sup>24</sup> und dieser Prozeß eine bestimmte Relaxationszeit und damit Linienbreite besitzt<sup>17</sup>. Wie dieser Relaxationsprozeß bei Metallen abläuft, wenn man annimmt, daß durch das Mikrowellenfeld von vornherein Spinwellen mit  $k \approx 10^4 \dots 10^5 \text{ cm}^{-1}$  erzeugt werden<sup>13</sup>, ist nicht bekannt.

Bei Betrachtung des unteren Kurvenpaares in Abb. 2 fällt auf, daß die Zunahme von  $\Delta H_g$  überraschend gering ist. Man kann sagen, daß die mit dem Verformen verbundene Rauigkeit der Oberfläche die ursprüngliche Linienbreite nur sehr wenig ändert. Die bei der Vielkristallplastizität bereits bei kleinen Verformungsgraden auftretenden Gleitlinien und -bänder scheinen zu  $\Delta H_{div}$  nur einen geringen Beitrag zu liefern. Erst die Streufelder größerer Rauigkeiten verbreitern  $\Delta H_g$ . So hat die beobachtete Anisotropie ihre Ursache in der zunehmenden Furchenbildung auf der Oberfläche parallel zur ehemaligen Zugrichtung. Die Streufelder sind senkrecht zur Furche größer als parallel.

Wenden wir uns der Verringerung von  $\Delta H_g$  des oberen Kurvenpaares in Abb. 2 durch das Abschleifen und Glattpolieren zu. Die auftretende  $\Delta H_g$ -Differenz zwischen Proben mit rauher und mit glatter Oberfläche ist etwa nach Größe und Anisotropie dem unteren Kurvenpaar in Abb. 2 gleich. Es war zu erwarten, daß sich beim Glätten der Oberfläche die Linienbreite verkleinert. Die Tatsache, daß der Differenzbetrag dieser Verkleinerung in etwa mit dem durch das Ausglühen gefundenen  $\Delta H_{div}$ -Wert übereinstimmt, scheint die Richtigkeit von Gl. (3) zu bestätigen.

Aus dem bisherigen Versuch können wir ableiten, daß die Oberflächenrauhigkeit durch eine Größe  $\Delta H_{div}$  beschrieben werden kann, die zur bereits vorhandenen Linienbreite zu addieren ist. Entstehen und Größe von  $\Delta H_{div}$  hängen von Art und Form der Oberflächenrauhigkeiten ab.

## 2. Oberflächenänderung durch Ätzen

Um die Additivität und Größe von  $\Delta H_{div}$  genauer zu untersuchen, wurde von fünf Proben mit verschiedenen  $\Delta H_g$ -Werten die Oberfläche verändert.

Der Werkstoff war NiT, die Ausgangszustände folgende: Probe 1 war 2 Stdn. bei 1000 °C in  $H_2$  geglüht und langsam abgekühlt worden, die Proben 2, 3 und 4 stammten aus dem oben beschriebenen Reckversuch und waren um 13,5%, 31,8% und 15,3% verformt worden, und Probe 5 war walzhart und aus dem Blech elektrolitisch herauspoliert worden. Der mittlere Korndurchmesser der ersten vier Proben betrug etwa 0,12 mm, während Probe 5 noch sehr feinkörnig war (etwa 0,03 mm). Nach dem Auflöten wurden die Proben 1, 2, 3 und 5 vorsichtig mit der Hand bis 6/0 abgeschliffen

<sup>24</sup> R. C. FLETCHER, R. C. LECRAW u. E. G. SPENCER, Phys. Rev. **117**, 955 [1960]. — C. R. BUFFLER, J. Appl. Phys. **31**, 222 S [1960].

<sup>25</sup> A. G. GUREVICH, I. E. GUBLER u. A. G. TITOVA, FTT **3**, 19 [1961]; Soviet Phys.-Solid State **3**, 13 [1961].

<sup>26</sup> V. ZEHLE, Z. Naturforsch. **12a**, 437 [1957].

und ausreichend lange elektropoliert. Bei Probe 4 wurde die ursprüngliche Oberfläche beibehalten. Die Linienbreite  $\Delta H_g$  wurde wegen der vorhandenen Anisotropien immer unter  $45^\circ$  zur ursprünglichen Verformungsrichtung gemessen und betrug im Ausgangszustand ( $\Delta H_{gA}$ ) für die einzelnen Proben in Oersted: 410, 720, 880, 710 und 540. Anschließend wurden die Proben eine bestimmte Zeit unter leichtem Bewegen in kalte konzentrierte Salpetersäure getaucht, abgespült und getrocknet.

In Abb. 3 sind für die verschiedenen Proben nurmehr die Zunahme der Linienbreiten  $\Delta H_g$  in Abhängigkeit von der Ätzeit  $t_A$  aufgetragen.

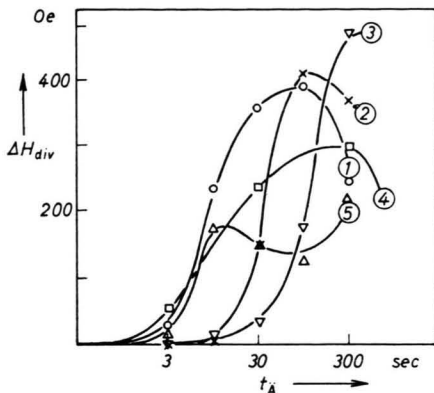


Abb. 3. Zunahme der Linienbreite  $\Delta H_g$  polykristallinen Nickels in Abhängigkeit von der Ätzeit  $t_A$ . Ätzmittel konz.  $\text{HNO}_3$  kalt.  $\Delta H_{gA}$  Linienbreite im Ausgangszustand.

Probe	1	2	3	4	5
Zustand des NiT	geglüht bei 1000 °C	gereckt um 13,5%	gereckt um 31,8%	gereckt um 15,3%	walzhart
$\Delta H_{gA}$	410 Oe	720 Oe	880 Oe	710 Oe	540 Oe

Läßt man konzentrierte Salpetersäure auf Nickel einwirken, so stellt man an der Gasentwicklung und dem grünlichen Verfärben der Säure fest, daß das Metall angegriffen wird und in Lösung geht. Die Wirkung von  $\text{HNO}_3$  als Ätzmittel kann man unter dem Mikroskop verfolgen. Dabei beobachtet man, nach „Verunreinigung“ und Vorgeschichte, ein sehr unterschiedliches Verhalten der einzelnen Proben. So wird bei weichem NiS und NiT sofort die ganze Kristallitoberfläche angegriffen, während bei NiM am Anfang eine Korngrenzenätzung erfolgt. Je härter das Metall ist, um so langsamer greift die Säure an. Während bei den Proben 1 und 5 die einzelnen Kristallite je nach ihrer Orientierung stufenweise abgetragen und bei Probe 4 die verformte Oberflächenschicht abgebaut wurden, zeigten sich auf den Oberflächen der stärker gereckten Proben erst nach eini-

ger Zeit hauptsächlich Ätzgrübchen. Das deutet aber auf eine Oberflächentextur hin.

Die Zunahme der Linienbreite der verschiedenen Proben ist die Differenz zwischen der nach dem Ätzen beobachteten Linienbreite  $\Delta H_g$  und deren Ausgangswert  $\Delta H_{gA}$ . Dieser Differenzbetrag wird durch die Oberflächenrauigkeiten hervorgerufen und entspricht damit der Linienbreite  $\Delta H_{div}$ . Vergleichen wir den in Abb. 3 dargestellten zeitlichen Verlauf von  $\Delta H_{div}$  mit den Beobachtungen unter dem Metallmikroskop, so können wir eine eindeutige Zuordnung treffen. Der Beginn und der Anstieg von  $\Delta H_{div}$  decken sich genau mit dem optischen Bild. Je härter das Metall, um so langsamer wird die Oberfläche verändert und um so später nimmt  $\Delta H_{gA}$  zu; je länger die Ätzeit, um so ausgeprägter wird das Oberflächenprofil und um so größer wird  $\Delta H_{div}$ . Auf den übrigen Kurvenverlauf soll in dieser Arbeit nicht weiter eingegangen werden.

Als Ursache für die durch das Ätzen erzeugte Linienbreite  $\Delta H_{div}$  kommen scheinbare und echte Dämpfungsänderungen in Frage. Während die scheinbare Dämpfung durch die von den Streufeldern hervorgerufene Verteilung der Resonanzfeldstärken erzeugt wird, kann die echte durch eine Streuung der Spinwellen an den scharfen Oberflächenrauigkeiten entstehen.

Die in diesem Versuch verwendeten NiT-Proben besitzen sehr unterschiedliche Linienbreiten  $\Delta H_{gA}$ . Verändert man die Probenoberfläche, so nehmen die  $\Delta H_g$ -Werte, abgesehen vom zeitlichen Verlauf, immer um etwa den gleichen Betrag  $\Delta H_{div}$  zu. Werden die Oberflächenrauigkeiten durch Abschleifen und Glattpolieren wieder zum Verschwinden gebracht, so erhält man die ursprünglichen Werte  $\Delta H_{gA}$ .

Die beobachtete Linienbreite  $\Delta H_g$  setzt sich aus verschiedenen Anteilen zusammen. Diese werden durch verschiedene Dämpfungsprozesse verursacht und tragen voneinander unabhängig zur gesamten Linienbreite bei. Da der durch Oberflächenrauigkeiten hervorgerufene Anteil  $\Delta H_{div}$  die Breite  $\Delta H_g$  immer um den gleichen Betrag ändert, gleichgültig wie groß  $\Delta H_g$  ist, folgt daraus: Die gesamte Linienbreite  $\Delta H_g$  setzt sich aus den verschiedenen Anteilen linear zusammen. Damit ist Gl. (3) bestätigt.

### B. Einfluß der Gitterfehler

Im Abschnitt A wurden Versuche an gereckten Proben beschrieben. Dabei zeigte sich, daß nach Abzug der Linienbreite  $\Delta H_{div}$  ein noch wesentlich grö-

ßerer Anteil  $\Delta H_{me}$  übrig blieb. Das Entstehen dieser Linienverbreiterung soll in den folgenden Abschnitten genauer studiert werden.

### 1. Plastische Verformung durch Zug

Im folgenden Versuch sollte untersucht werden, wie eine plastische Zugverformung die Linienbreite eines Polykristalls ändert. Es wurden, wie in Abschnitt A beschrieben, Streifen aus NiT um verschiedene Beträge  $\varepsilon = \Delta l/l_0$  gereckt. Die mit der Verformung zunehmenden Oberflächenunebenheiten wurden durch Abschleifen und Glattpolieren der aus den Streifen elektrolytisch herausgearbeiteten Scheibchen entfernt. Die Linienbreite  $\Delta H_g$  der aufgelöteten Proben zeigt den in Abb. 4 dargestellten Verlauf.

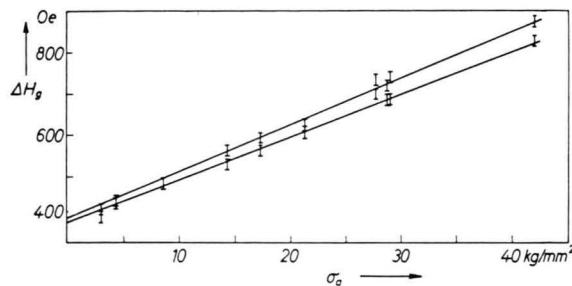


Abb. 4. Die Linienbreite  $\Delta H_g$  polykristallinen Nickels in Abhängigkeit von der vorher angelegten Zugspannung  $\sigma_a$ . Die obere Kurve beginnt bei  $\Delta H_g = 400$  Oe für  $\sigma_a = 0$ .

Er rührt von der Größe  $\Delta H_{me}$  her. Im Rahmen der Meßgenauigkeit findet man eine lineare Zunahme der Linienbreite mit der vorher angelegten Zugspannung  $\sigma_a$ . Die mittlere Steigung beträgt etwa  $11 \text{ Oe/kg mm}^{-2}$ . Man beobachtet eine Anisotropie derart, daß der Maximalwert von  $\Delta H_g$  etwa unter einem Winkel von  $45^\circ$  zur ehemaligen Zugrichtung ZR auftritt. Die Werte senkrecht zu ZR sind am kleinsten und stimmen mit den Werten parallel zu ZR fast überein. Die Streuung der Meßwerte ist weniger durch die Genauigkeit der  $\Delta H_g$ -Werte bedingt als vielmehr durch die Unsicherheit der  $\sigma_a$ -Werte. Das zeigte sich auch bei der Aufnahme des Spannungs-Dehnungs-Diagramms und hat seine Ursache in der inhomogenen Querschnittsminderung durch das elektrolytische Polieren vor dem Recken.

Das plastische Verhalten eines kfz Einkristalles kann durch das Entstehen und Wandern von Versetzungen und deren Wechselwirkungen vollständig beschrieben werden<sup>27</sup>. Wird ein polykristallines Material durch Zug verformt, so entstehen und laufen ebenfalls Versetzungen in den einzelnen Körnern, wodurch sich ein Eigenspannungszustand ausbildet. Gegenüber dem Einkristall hat man beim Vielkristall noch zusätzlich die Wechselwirkung zwischen den einzelnen Körnern zu betrachten. Hierzu gibt es bisher zwei Vorstellungen. Geht man von der Vorstellung der Streckgrenzanisotropie der einzelnen Körner aus, so hat man nach der Verformung einen Spannungszustand 2. Art zu erwarten. Über die einzelnen Kristallite erstrecken sich homogene Spannungen verschiedener Größe, Richtung und Vorzeichen<sup>28</sup>. Die zweite Auffassung, welche die erste in gewisser Weise ergänzt, erklärt dagegen den Eigenspannungszustand nach Zugverformung als Folge eines pauschalen Streckgrenzenunterschiedes zwischen Kern- und Oberflächenbereichen der Vielkristallprobe. Als Folge davon bildet sich in der Oberfläche ein Druckeigenspannungszustand 1. Art aus<sup>29</sup>. Welche von beiden Vorstellungen unsere aus den gereckten Streifen herauspolierten Proben besser beschreibt, soll nicht weiter untersucht werden. Für unsere Überlegungen ist nur wichtig, daß durch das Verformen im Polykristall sowohl innere Spannungen 1. und 2. Art, die sich über größere Bereiche oder von Korn zu Korn ändern können, als auch Spannungen kürzerer Reichweite erzeugt werden und daß alle mit der Verformung zunehmen.

Da die Ursache für alle inneren Spannungen Gitterfehler sind, kommen somit zur Beschreibung der Zunahme  $\Delta H_{me}$  der gesamten Linienbreite eines Polykristalls nur Gitterfehler in Betracht.

Liegt an einer fmg Probe eine Zug- oder Druckspannung, so ändert sich nach Gl. (1) und (2) die Resonanzfeldstärke  $H_R$ ; die Änderung ist etwa proportional  $3 \lambda_s \sigma / M_s$ <sup>30</sup>. Das wurde experimentell bestätigt und zur Bestimmung der Magnetostraktionskonstanten  $\lambda_s$  verwendet<sup>31</sup>. Umgekehrt kann man aus dem Verhalten von  $H_R$ , wenn die übrigen Feldanteile bekannt sind, auf vorhandene Spannungen

<sup>27</sup> A. SEEGER, Handbuch der Physik VII, Teil 2, S. 1, Verlag Springer, Berlin 1958.

<sup>28</sup> L. REIMER in W. KÖSTER, Beiträge zur Theorie des Ferromagnetismus, Verlag Springer, Berlin 1956, S. 141.

<sup>29</sup> C.-O. LEIBER u. E. MACHERAUCH, Z. Metallkde. **52**, 196 [1961]. — K. KOLB u. E. MACHERAUCH, Z. Metallkde. **53**, 108 [1962].

<sup>30</sup> J. R. MACDONALD, Phys. Rev. **106**, 890 [1957]. — D. FRATTOVÁ, Czech. J. Phys. B **11**, 500 [1961].

<sup>31</sup> V. ZEHLER, Z. Naturforsch. **12 a**, 441 [1957].

schließen<sup>32</sup>. Betrachten wir jetzt ein Material, das sich in einem Eigenspannungszustand 1. oder 2. Art befindet, so folgt aus der  $\sigma$ -Abhängigkeit von  $H_R$ , daß eine gereckte polykristalline Probe ein ganzes Spektrum von Resonanzfeldstärken aufweisen muß. Die Streuung von  $H_R$  bewirkt aber eine Linienverbreiterung. Dieser Anteil der Linienbreite müßte somit von der Größe  $S = 3 \lambda_s / M_s$  abhängen. Für Nickel bei Zimmertemperatur ist der Betrag von  $S$  etwa  $21 \text{ Oe/kg mm}^{-2}$ . Nehmen die inneren Spannungen  $\sigma_i$  linear mit den vorher angelegten äußeren  $\sigma_a$  zu (s. Anm. <sup>28, 29</sup>), so müßte analog der Kristallanisotropieverbreiterung  $\Delta H_K = K / M_s$ , die Linienbreite linear mit  $\sigma_a$  zunehmen, wenn  $\Delta H_{me}$  hauptsächlich durch die Streuung der Resonanzfeldstärken  $H_R$  bedingt ist. Eine Wechselwirkung der verschiedenen verspannten Kristallbereiche bleibt dabei unberücksichtigt. Zu dieser indirekten Wirkung der inneren Spannungen auf die Linienbreite der FMR kommt noch der unmittelbare Einfluß der Gitterfehler auf die Relaxationsprozesse. So wäre es möglich, daß Versetzungsanordnungen als Streuzentren für die Spinwellen wirken und so die Einstellzeit des Gleichgewichtszustandes des Spinsystems verkürzen. Hierüber ist bisher weder theoretisch noch experimentell etwas bekannt geworden.

In einem Polykristall ist es nicht möglich, durch plastisches Verformen Gitterfehler allein, ohne den damit verbundenen Eigenspannungszustand 1. oder 2. Art, zu erzeugen. Man kann deshalb die scheinbare und echte Änderung des Relaxationsterms nicht trennen. Während innere Spannungen die Resonanzfrequenz der Probe von Ort zu Ort ändern und damit die Linie verbreitern, können Gitterfehler die Dämpfung unmittelbar beeinflussen. Eine Trennung dieser Anteile ist nur bei Einkristallen möglich. Dort kennt man auch die Änderung der Versetzungsdichte mit der Verformung ziemlich genau<sup>27</sup>. Es sind deshalb Arbeiten in Vorbereitung, die die Linienbreiten von Einkristallen untersuchen sollen.

Die in Abb. 4 auftretende Anisotropie von  $\Delta H_g$  ist entweder eine Anisotropie von  $\Delta H_{me}$  oder stammt von einer Zugtextur (vgl. A 2). Letztere könnte über eine Abnahme von  $\Delta H_K$  die gesamte Linienbreite verändern. Der Verlauf der  $\Delta H_g$ , wie der zugehöri-

gen  $H_R$ -Anisotropie muß noch genauer untersucht werden.

## 2. Inhomogene Verformung der Oberfläche

Im folgenden Versuch sollte festgestellt werden, wie bei einer Verformung die Linienbreite von der Magnetostruktionskonstanten  $\lambda_s$  abhängt.

Proben aus NiT ( $\lambda_s = -34 \cdot 10^{-6}$ ) und Mumetall ( $\lambda_s = +1 \cdot 10^{-6}$ ) wurden 2 Stunden bei  $1000^\circ\text{C}$  im Rohrofen mit  $\text{H}_2$ -Atmosphäre geglüht, langsam abgekühlt und nach dem Auflöten heiß elektropoliert. Dann wurden mit einem Glaspinsel parallele Furchen in die Probenoberfläche geritzt<sup>23</sup>. Dadurch entsteht in der Oberfläche ein inhomogener Eigenspannungszustand 1. Art. In den Furchen wird das Material bis über die Zerreißgrenze beansprucht. Die durch das „Pflügen“ in der Oberfläche erzeugten Gitterfehler und damit verbundenen Spannungsfelder sind im einzelnen nicht mehr zu übersehen. Eine ausgezeichnete Richtung stellt nur die Furchenrichtung dar.

Nach dieser Oberflächenbearbeitung zeigen die beiden Metalle ein sehr unterschiedliches fmg Resonanzverhalten. Bei NiT nimmt mit der Furchenzahl die Linienbreite  $\Delta H_g$  stark zu und die Resonanzfeldstärke  $H_R$  ändert sich merklich. Beide Größen weisen eine starke Anisotropie auf.  $\Delta H_g$  ist parallel zur Furchenrichtung FR am größten, während  $H_R$  parallel zu FR größer und senkrecht zu FR kleiner als der Ausgangswert ist. Im Gegensatz dazu ist die Änderung von  $\Delta H_g$  und  $H_R$  bei Mumetall nicht nur wesentlich geringer — so nimmt bei NiT die Linienbreite mit der Furchenzahl etwa dreizehn Mal so stark zu —, sie ist insbesondere den entsprechenden Änderungen bei NiT entgegengesetzt:  $\Delta H_g$  ist senkrecht zu FR am größten, während  $H_R$  parallel zu FR kleiner und senkrecht zu FR größer als der Ausgangswert ist.

Als Ursache für dieses unterschiedliche Resonanzverhalten der beiden Metalle nach einer inhomogenen Verformung der Probenoberfläche kann nach dem in B 2 Gesagten nur die Magnetostruktionskonstante  $\lambda_s$  in Frage kommen. Der Absolutbetrag von  $\lambda_s$  bestimmt die Größe der Zunahme von  $\Delta H_g$  und  $H_R$  mit der Furchenzahl, und das Vorzeichen von  $\lambda_s$  ist für den Verlauf der Anisotropien verantwortlich. Die Oberflächenrauigkeit spielt eine geringere Rolle. Das zu wissen ist sehr wichtig, wenn z. B. Proben nur mechanisch poliert werden, ohne daß die zerstörte Oberflächenschicht anschließend elektrolytisch abgetragen wird. In solchen Fällen ist es möglich, daß

<sup>32</sup> M. KURIYAMA, H. YAMANOUCHI u. S. HOSOYA, J. Phys. Soc., Japan **16**, 701 [1961]. — M. ONDRIS u. Z. FRAIT, Czech. J. Phys. B **11**, 883 [1961]. — H. NOSÉ, J. Phys. Soc., Japan **16**, 2475 [1961].

Spannungseffekte die übrigen  $\Delta H$ -bestimmenden Größen überdecken. Eine ähnliche Vermutung wurde bereits bei Untersuchungen an Ferriten geäußert<sup>33</sup>. Aus dem Anisotropieverhalten von  $H_R$  folgt (Abschnitt B 1), daß senkrecht zur Furchenrichtung ein Druck oder parallel zur Furche ein Zug besteht.

Die für die Linienverbreiterung in Frage kommenden Mechanismen wurden bereits in Abschn. B 1 diskutiert. Bei NiT ist in Furchenrichtung die Zunahme von  $\Delta H_g$  am größten. Das anscheinend abweichende Verhalten der  $\Delta H_g$ -Anisotropie des Mumetalls ist durch die zusätzliche Oberflächenrauigkeit bedingt.  $\Delta H_{div}$  nimmt mit der Furchenzahl senkrecht zu den Furchen wegen der damit verbundenen Streufelder zu. Da die Zunahme und die Anisotropie von  $\Delta H_{me}$  bei Mumetall nicht sehr groß ist, zeigt bei Addition von  $\Delta H_{div}$  zu  $\Delta H_{me}$  die Anisotropie von  $\Delta H_g$  den beobachteten Verlauf.

### 3. Erholung und Rekristallisation

Einen wesentlichen Einblick in das Zustandekommen der Linienbreite  $\Delta H_g$  liefern Anlaßversuche. Das führt gleichzeitig zu einer Prüfung unserer bisherigen Annahmen.

Es wurden Scheibchen von 21 mm Durchmesser aus den walzharten NiS-, NiM- und NiT-Blechen herausgearbeitet und abgeschliffen. Die so vorbereiteten Proben wurden in den Rohrofen mit  $H_2$ -Atmosphäre gebracht und die Ofentemperatur auf einen bestimmten Wert  $T_A$  eingestellt. Auf dieser Temperatur wurden die Scheibchen 2 Stdn. gehalten und anschließend langsam abgekühlt.

Die nach dem Auflöten und heißen Elektropolieren gemessenen  $\Delta H_g$ -Werte sind in Abhängigkeit von den Glühtemperaturen  $T_A$  in Abb. 5 dargestellt. Die Meßpunkte stellen wegen der vorhandenen Anisotropien Mittelwerte über die Proben dar. In der Abbildung fällt am meisten die steile Abnahme der Linienbreite von NiS und NiM bei bestimmten Temperaturen auf. NiT zeigt dagegen ein langsames Absinken von  $\Delta H_g$ . Nach dem Abfall zeigen die Kurven ein Minimum und nehmen dann nach Durchlaufen eines schwachen Maximums langsam ab.

Bei der Glühbehandlung eines verformten Polykristalls unterscheidet man drei Temperaturgebiete: Erholung, Rekristallisation und Kornwachstum<sup>34</sup>.

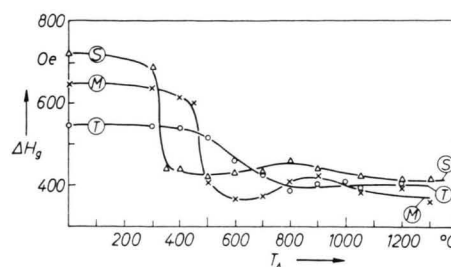


Abb. 5. Die Linienbreite  $\Delta H_g$  gewalzter Nickelbleche, NiS, NiM und NiT, in Abhängigkeit von der Anlaßtemperatur  $T_A$ . Glühdauer 2 Stunden.

Die Erholung setzt bereits bei sehr tiefen Temperaturen ein und kann im allgemeinen in mehrere Bereiche eingeteilt werden. Diese sind gekennzeichnet durch das Wandern und Verschwinden bestimmter Gitterfehler und der damit verbundenen Spannungsfelder<sup>35</sup>. So heilen in einem Bereich die Leerstellen aus, während im nächsthöheren die Versetzungen sich umordnen und verschwinden. Durch deren Verschwinden ist wesentlich die Rekristallisation bestimmt<sup>36</sup>. Als Rekristallisation bezeichnet man die Entstehung und Bewegung von Großwinkelkorn-grenzen. Mit Beginn der Rekristallisation werden die Eigenspannungen abgebaut und ein neues spannungsfreies Gefüge entsteht. Man hat festgestellt, daß die Temperatur, bei der die Rekristallisation einsetzt, von verschiedenen Parametern abhängt. So ist z. B. bei gegebener Glühdauer die Rekristallisationstemperatur um so niedriger, je größer der Verformungsgrad und je höher die Reinheit des Materials ist<sup>37</sup>. „Verunreinigungen“ hemmen die Rekristallisation. Nach Beendigung der Rekristallisation, d. h. wenn die neu gebildeten Kristallite aneinanderstoßen, erfolgt mit zunehmender Glühdauer oder -temperatur das Kornwachstum. Dabei nehmen größere Kristallite auf Kosten kleinerer zu, was bis zu einem Rekristallisationseinkristall führen kann.

Betrachtet man die Kurven in Abb. 5, so erkennt man, daß bei NiS mit dem größten Reinheitsgrad die Erholungstemperatur der Linienbreite am niedrigsten ist. Mit zunehmender „Verunreinigung“ steigt die Temperatur an. Über den Verformungsgrad der verschiedenen Nickelsorten ist nichts bekannt. Nimmt man an, da die Blechstärken von NiS und NiM 0,5 mm gegenüber 0,7 mm von NiT betra-

<sup>33</sup> J. F. DILLON JR., J. Appl. Phys. **31**, 1605 [1960].

<sup>34</sup> J. E. BURKE u. D. TURNBULL, Progr. Met. Phys. **3**, 220 [1952].

<sup>35</sup> A. SEEGER, Handbuch der Physik VII, Teil 1, S. 383, Verlag Springer, Berlin 1955. — A. SEEGER, Proc. 2. Int. Conf.

on Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf 1958, Bd. 6, S. 250, United Nations, New York 1958.

<sup>36</sup> U. DEHLINGER, Z. Metallkde. **52**, 44 [1961].

<sup>37</sup> L. M. CLAREBROUGH, M. E. HARGREAVES, M. H. LORETTO u. G. W. WEST, Acta Met. **8**, 797 [1961].

gen, daß die beiden ersten Nickelarten stärker aus-  
gewalzt sind als NiT, so würde das genau dem Kur-  
venverlauf entsprechen und auch die größeren An-  
fangswerte  $\Delta H_g$  von NiS und NiM gegenüber NiT  
erklären. Zusammen mit optischen Beobachtungen  
ist damit gezeigt, daß die starke Erholung der Li-  
nienbreite mit der Rekristallisation zusammenfällt.  
Daraus folgt, daß die starke Änderung von  $\Delta H_g$   
durch das Verschwinden von  $\Delta H_{me}$  verursacht wird.  
Nach dem über die Rekristallisation Gesagten be-  
steht im Polykristall  $\Delta H_{me}$  aus dem Eigenspannungs-  
anteil und der Versetzungsdämpfung. Damit wur-  
den die bisherigen Annahmen bestätigt. Die Frage,  
ob atomare Gitterfehler die Linienbreite verändern,  
kann hier noch nicht beantwortet werden.

Betrachten wir die  $\Delta H_g$ -Werte bei  $T_A > 1200^\circ\text{C}$ .  
Die Differenz zwischen den Linienbreiten von  
NiS und NiM hat ihre Ursache wahrscheinlich in  
den Stoffkonstanten. Während Zusätze von Fe und  
Mn die Sättigungsmagnetisierung und den Wider-  
stand erhöhen, erniedrigt ein Fe-Gehalt die Sätti-  
gungsmagnetostraktion und die Kristallanisotropie  
dem Betrage nach<sup>38</sup>. Deshalb ist der Beitrag von  
 $\Delta H_K = K/M_s$  und der Austauschwechselwirkungen  
zur Linienbreite  $\Delta H_g$  bei NiM am kleinsten und bei  
NiS am größten. Das ist auch der Grund, warum  
die Linien bestimmter Fe-Ni-Legierungen so schmal  
sind. Ob eine vorhandene Versetzungsgrundstruktur  
die Linienbreite verändert, muß erst untersucht wer-  
den. Ebenso ist es möglich, daß die in der Ober-  
fläche unserer Proben beobachteten kleinen Löcher  
oder Poren den Wert  $\Delta H_g$  um einen Anteil  $\Delta H_{div}$   
erhöhen. Der längs der Erholungskurven beobach-  
tete Anisotropieverlauf von  $\Delta H_g$  und  $H_R$  bedarf  
noch genauerer Untersuchungen. So wurde festge-  
stellt, daß die vom Walzen stammende Anisotropie  
verschwindet, wenn die  $\Delta H_g$ -Kurve das Minimum  
durchläuft, was beweist, daß erst bei dieser Tempe-  
ratur die Probe ein vollständig neues Gefüge besitzt.

#### 4. Neutronenbestrahlung

Da im vorhergehenden Abschnitt nicht entschieden  
werden konnte, ob atomare Gitterfehler die Linien-

breite  $\Delta H_g$  beeinflussen, wurden Nickelproben einer  
Neutronenbestrahlung ausgesetzt.

Vor der Bestrahlung am FRM (Reaktorstation Gar-  
ching bei München) wurden die scheibchenförmigen Pro-  
ben aus NiS, NiM und NiT 2,5 Stdn. bei  $1100^\circ\text{C}$  im  
Vakuum geglüht. Anschließend wurden in Quarzwolle  
verpackt je 2 Scheibchen in Reinst-Al-Röhrchen einge-  
geschweißt. Die Bestrahlungszeit betrug etwa 46 Stdn.  
(Reaktorleistung 1 MW), was einer Gesamtdosis von  
 $0,92 \cdot 10^{18} \text{ n cm}^{-2} \pm 20\%$  für  $E_n > 0,1 \text{ MeV}$  entspricht<sup>39</sup>.  
Die Proben temperatur war dabei kleiner als  $95^\circ\text{C}$ . Aus  
der gemessenen Abnahme der Aktivität, die für die drei  
Materialien nahezu gleich war, wurde die Reaktion  
 $\text{Ni}^{58}(\text{n}, \text{p})\text{Co}^{58}$  mit einer Halbwertszeit<sup>40</sup> von 72 d als  
aktivitätsbestimmend ermittelt.

Nach dem Auflöten und heißen Elektropolieren  
konnte bei keiner der bestrahlten Proben eine Än-  
derung der Linienbreite  $\Delta H_g$  gegenüber den unbe-  
strahlten Proben festgestellt werden.

Durch die Neutronenbestrahlung wurden in den  
Metallen atomare Fehlstellen erzeugt, von denen nach  
dem Auflöten gewiß noch Leerstellen und SEGER-  
Zonen vorhanden sind<sup>35</sup>. Da keine Änderung der  
Linienbreite zu beobachten ist, bedeutet das, daß  
obige Gitterfehler die Spinrelaxationszeit nicht be-  
einflussen. Der Streuquerschnitt dieser Einzelfehler  
und Fehleranhäufungen ist für die durch das Mikro-  
wellenfeld erzeugten Spinwellen ( $k \approx 10^4 \dots 10^5$   
 $\text{cm}^{-1}$ ) zu klein.

Durch diesen Versuch konnte gezeigt werden, daß  
atomare Gitterfehler und Anhäufungen von diesen  
die Linienbreite nicht verändern. Die mit den Feh-  
lern verbundenen Spannungsfelder sind zu klein,  
um einen merklichen Effekt hervorzurufen.

Meinem hochverehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. W.  
ROLLWAGEN, bin ich für die Überlassung des Themas  
außerordentlich dankbar und danke ihm für sein stetes  
Entgegenkommen und reges Interesse während der  
Durchführung der Arbeit aufrichtig. — Herrn Dr. CH.  
SCHWINK habe ich für die Anregung dieser Arbeit und  
die zahlreichen wertvollen Diskussionen besonders zu  
danken. — Für die Gewährung apparativer und finan-  
zieller Unterstützung gilt mein Dank der Deutschen  
Forschungsgemeinschaft sowie dem Bundesministerium  
für Atomkernenergie, nicht zuletzt auch den Herren  
vom FRM an der Reaktorstation in Garching.

<sup>38</sup> R. M. BOZORTH, Ferromagnetism, D. Van Nostrand, New  
York 1951.

<sup>39</sup> J. FISCHER, Dissertation München 1962, Z. Naturforsch.  
17 a, 603 [1962].

<sup>40</sup> W. KÖHLER, F.R.M.-Bericht 30, Dez. 1960.