

Bis auf den  $\gamma$ -Übergang von 1870 keV können die gefundenen Linien nicht in das gegenwärtige Zerfallsschema eingeordnet werden. Es müssen noch weitere Energiezustände vorhanden sein. Die Messungen deuten darüber hinaus darauf hin, daß auch über dem 2648 keV-Niveau noch weitere Energiezustände liegen müssen, die durch  $\beta$ -Übergänge vom  $^{82}\text{Br}$  aufgefüllt werden. Wenn man Energiezustände bei 1955, 2547, 2555, 2721 und 2829 keV einführt, lassen sich die meisten der gefundenen Linien einordnen. Abb. 7 zeigt das von uns vorgeschlagene Niveauschema. Die neu gefundenen Übergänge sind in der rechten Hälfte eingezzeichnet. Die Genauigkeit der Energieangabe beträgt im unteren Bereich etwa 2 keV, im Bereich zwischen 1 und 2 MeV dürfte sie unter 5 keV, im Bereich über 2 MeV unter 10 keV liegen. Schwierigkeiten bereitet die Einordnung je-

doch bei den Übergängen von 58, 84 und 320 keV.

Die angegebenen Häufigkeiten beziehen sich nur auf die Emission von  $\gamma$ -Quanten. Eventuell noch vorhandene Konversionselektronen wurden nicht berücksichtigt. Da die genaue Bestimmung der Photo-Effekt-Ausbeute des verwendeten Ge(Li)-Halbleiterzählers noch nicht abgeschlossen ist, sind die Intensitätsangaben im Bereich unter 300 keV und über 1500 keV nur als Richtwerte zu betrachten.

Nachträglich wurden uns Messungen von KENNEY und RAMAN<sup>11</sup> bekannt. Sie geben  $\gamma$ -Übergänge von 93, 144, 222, 275, 1010, 1648, 1777, 1870 und 1950 keV an.

Herrn Prof. Dr. W. HANLE danken wir für seine Unterstützung, dem Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung für die Bereitstellung von Forschungsmitteln.

<sup>11</sup> E. S. KENNEY u. S. RAMAN, Bull. Amer. Phys. Soc. **10**, 588 [1965]. — Vortrag Summer Meeting, New York, 24. 6. 65.

## Der Debye-Waller-Faktor in der dynamischen Theorie von Röntgen- und Elektroneninterferenzen an Kristallen

K. KAMBE

Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft,  
Berlin-Dahlem \*

(Z. Naturforschg. **20 a**, 1730—1732 [1965]; eingeg. am 19. Oktober 1965)

Bei der dynamischen Theorie der RÖNTGEN-Strahl- und Elektroneninterferenzen an Kristallen<sup>1</sup> ist es üblich, den Einfluß der Gitterschwingung auf die elastische Streuung in der Weise einzuführen, daß die FOURIER-Koeffizienten der Größe  $\chi(\mathbf{r})$  (l. c.<sup>2</sup>) in der mit dem DEBYE-WALLER-Faktor multiplizierten Form  $\chi_h \exp\{-M_h\}$  in die Rechnung eingesetzt werden. Dieses Verfahren bedeutet<sup>3</sup>, daß man an einer über die thermische Bewegung der Atome statistisch gemittelten Struktur  $\langle\chi\rangle$  die Interferenz berechnet. Es gilt nämlich

$$\langle\chi\rangle_h = \chi_h \exp\{-M_h\}. \quad (1)$$

\* Abteilung Prof. Dr. K. MOLIÈRE.

<sup>1</sup> M. VON LAUE, RÖNTGEN-Strahlinterferenzen, Akad. Verlagsges., Frankfurt/M. 1960, Kap. 5. — M. VON LAUE, Materiewellen und ihre Interferenzen, Akad. Verlagsges., Leipzig 1948, Kap. 5.

<sup>2</sup> Für die Definition von  $\chi(\mathbf{r})$  bei RÖNTGEN-Strahlen siehe von LAUE<sup>1</sup>. Für die Elektronenbeugung ist die potentielle Energie  $V(\mathbf{r})$  statt  $\chi(\mathbf{r})$  einzusetzen.

<sup>3</sup> S. TAKAGI, J. Phys. Soc. Japan **13**, 278 [1958].

<sup>4</sup> Y. H. OHTSUKI, J. Phys. Soc. Japan **19**, 2285 [1964].

Bei Vorhandensein der Absorption, wobei  $\chi(\mathbf{r})$  komplex wird, wurde von OHTSUKI<sup>4</sup> besonders im Fall von RÖNTGEN-Strahlen gezeigt, daß Gl. (1) ihre Form behält (abgesehen von der von ihm berücksichtigten anharmonischen Korrektur).

Die Benutzung der gemittelten Struktur für die Rechnung ist durchaus plausibel, und die Richtigkeit dieses Verfahrens ist durch Vergleich mit Experimenten wiederholt bestätigt worden<sup>5, 6</sup>. Es bedarf jedoch einer theoretischen Begründung. Denn das, was wir beobachten, ist der statistische Mittelwert der Streuintensität und nicht die Intensität der Streuung an der gemittelten Struktur. Die Frage ist also, ob die Gleichung

$$\langle I(\chi) \rangle = I(\langle\chi\rangle) \quad (2)$$

besteht. PARTHASARATHY<sup>7</sup> hat (2) für einen sehr speziellen Fall bewiesen. Wir wollen hier zeigen, daß (2) für viel allgemeinere Fälle gültig bleibt.

<sup>5</sup> B. W. BATTERMAN, Phys. Rev. **127**, 686 [1962]. — M. HORSTMANN, Z. Phys. **183**, 375 [1965]. — H. HATTORI, H. KURIYAMA, T. KATAGAWA u. N. KATO, J. Phys. Soc. Japan **20**, 988 [1965].

<sup>6</sup> B. OKKERSE, Philips Res. Rep. **17**, 464 [1962]. — G. HILDEBRANDT u. H. WAGENFELD, Acta Cryst. **16**, Suppl. A 160 [1963]. — B. W. BATTERMAN, Phys. Rev. **134 A**, 1354 [1964]. — D. LING u. H. WAGENFELD, Phys. Letters **15**, 8 [1965].

<sup>7</sup> R. PARTHASARATHY, Acta Cryst. **13**, 802 [1960].



Der statistische Mittelwert der Intensität ist mit Hilfe der kanonischen Gesamtheit der Quantenzustände der Gitterschwingungen zu berechnen:

$$\langle I \rangle = \sum_l w_l I^{(l)}. \quad (3)$$

Hierbei ist  $w_l$  die Wahrscheinlichkeit des Zustandes  $l$ :

$$w_l = \frac{1}{Z} \exp\{-\varepsilon_l/(kT)\}, \quad (4)$$

wobei  $\varepsilon_l$  die Energie des Zustandes  $l$  und  $Z$  ein Normierungsfaktor ist. Die Streuintensität  $I^{(l)}$  soll für jeden Zustand  $l$  durch die Lösung der Wellengleichung mit Benutzung des Erwartungswertes von  $\chi(\mathbf{r})$  im Zustand  $l$ ,

$$\chi^{(l)}(\mathbf{r}) = \langle l | \chi(\mathbf{r}) | l \rangle,$$

berechnet werden. Dazu kann man die gewöhnliche dynamische Theorie für Idealkristalle benutzen, weil nach dem üblichen Modell der Gitterschwingungen mit zyklischer Randbedingung<sup>8</sup> die Funktion  $\chi^{(l)}(\mathbf{r})$  stets *periodisch* wird.

Nach FUJIWARA<sup>9</sup> und FENGLER<sup>10</sup> kann man die dynamische Theorie als eine höhere BORNsche Näherung auffassen und  $I^{(l)}$  ganz allgemein schreiben:

$$I^{(l)} = \left| \sum_h \chi_h^{(l)} x_h + \sum_{h_1 h_2} \chi_{h_1}^{(l)} \chi_{h_2}^{(l)} x_{h_1 h_2} + \dots \right|^2. \quad (5)$$

$\chi_h^{(l)}$  sind hierbei die FOURIER-Koeffizienten von  $\chi^{(l)}(\mathbf{r})$ .  $x_h, x_{h_1 h_2} \dots$  sind Integrale, die durch die Kristallform, die Einstrahlungsbedingung usw., kurz, durch die Geometrie der Interferenz bestimmt werden. Diese ursprünglich für Elektronenbeugung entwickelte Formel kann ohne weiteres auch auf RÖNTGEN-Strahlen angewendet werden.

Die Schnelligkeit der Konvergenz der Reihe (5) hängt sehr empfindlich von der Einstrahlungsbedingung ab. Es kommt aber hier nur darauf an, daß diese Reihe irgendwo abgebrochen werden kann, um die Intensität mit ausreichender Genauigkeit zu liefern. Dann wird  $I^{(l)}$  näherungsweise als ein Polynom der FOURIER-Koeffizienten  $\chi_h^{(l)}$  dargestellt. Um den Mittelwert nach (3) zu berechnen, berechnen wir den Mittelwert jedes Gliedes dieses Polynoms. Wir haben es also mit der Berechnung des Mittelwertes z. B. der  $p$ -ten Potenz von  $\chi_h$

$$\langle \chi_h^p \rangle = \sum_l w_l \chi_h^{(l)p} \quad (6)$$

<sup>8</sup> Zum Beispiel L. LEIBFRIED, Handbuch der Physik VII/1, Springer, Berlin 1955, S. 162.—M. BLACKMAN, ibid., S. 338.

<sup>9</sup> K. FUJIWARA, J. Phys. Soc. Japan 14, 1513 [1959].

<sup>10</sup> H. FENGLER, Z. Naturforschg. 16 a, 1205 [1961].

zu tun. Der Fall  $p=1$  ist mit  $\langle \chi_h \rangle = \langle \chi \rangle_h$  durch (1) gegeben. Der Fall  $p=2$  entspricht der kinematischen Theorie und wurde von OTT<sup>11</sup> behandelt. Sein Resultat ist im unsrigen als Spezialfall enthalten.

Wir benutzen das übliche Modell der harmonischen Gitterschwingungen<sup>12</sup> und der starren Ionen nach NORDHEIM<sup>13</sup>. Wir beschränken uns außerdem auf Gitter mit *einem* Basis-Atom (z. B. f.c.c., b.c.c.) oder höchstens zwei Atomen gleicher Art (z. B. h.c.p., Diamantgitter) in einer *echten* Einheitszelle. Dann können wir durch eine Rechnung etwa nach der Art von OTT<sup>11</sup> zeigen, daß  $\chi_h^{(l)}$ , der FOURIER-Koeffizient des Ausdrucks  $\langle l | \chi(\mathbf{r}) | l \rangle$ , gegeben ist durch

$$\begin{aligned} \chi^{(l)} &= \chi_h \prod_s \exp\{-|\eta_s|^2/2\} L_{ls}(|\eta_s|^2) \\ &= \chi_h \prod_s \exp\{-|\eta_s|^2/2\} [1 - l_s |\eta_s|^2 + \dots]. \end{aligned} \quad (7)$$

Hierbei ist  $\chi_h$  der FOURIER-Koeffizient von  $\chi(\mathbf{r})$  für das Gitter ohne thermische Bewegung der Atome,  $s$  der Index der Eigenschwingungen,  $l_s$  die Quantenzahl für die Eigenschwingung  $s$  im Zustand  $l$ ,  $L_{ls}$  das LAGUERREsche Polynom. Sein Argument  $|\eta_s|^2$  ist gegeben durch

$$|\eta_s|^2 = \frac{\hbar}{2 N m \nu_s} (\mathbf{b}_h \cdot \mathbf{e}_s)^2. \quad (8)$$

Hierbei ist  $N$  die Atomzahl im Kristall,  $m$  die Atommasse,  $\nu_s$  bzw.  $\mathbf{e}_s$  die Schwingungszahl bzw. der Einheitsvektor in der Atombewegungsrichtung für die Eigenschwingung  $s$ ,  $\hbar$  die PLANCKSche Konstante,  $\mathbf{b}_h$  der reziproke Gittervektor der  $h$ -ten FOURIER-Komponente.

Wenn man typische Werte für die Größen in (8) einsetzt, findet man ganz grob

$$|\eta_s|^2 \approx 1/N. \quad (9)$$

Ausgenommen werden hierbei einige langwellige akustische Eigenschwingungen, deren Beiträge im DEBYE-WALLER-Faktor jedoch wegen ihrer prozentual geringen Zahl normalerweise vernachlässigbar sind.

Nach (7) und (4) wird der Mittelwert (6)

$$\begin{aligned} \langle \chi_h^p \rangle &= \chi_h^p \frac{1}{Z} \prod_s \exp\{-p |\eta_s|^2/2\} \\ &\quad \cdot \sum_l \exp\{-l_s \hbar \nu_s/(kT)\} [1 - l_s p |\eta_s|^2 + \dots]. \end{aligned} \quad (10)$$

<sup>11</sup> H. OTT, Ann. Phys. (5) 23, 169 [1935].

<sup>12</sup> Zum Beispiel L. LEIBFRIED<sup>8</sup>, S. 156 ff.

<sup>13</sup> L. NORDHEIM, Ann. Phys. (5) 9, 607 [1931]. — Vgl. S. TAKAGI<sup>8</sup> und J. M. ZIMAN, Electrons and Phonons, Oxford University Press, London 1960, S. 183 ff.

Es gilt normalerweise ganz grob

$$h \nu_s / (k T) \approx 1. \quad (11)$$

Wenn  $p |\eta_s|^2 \ll h \nu_s / (k T)$ , d. h. mit (9) und (11), wenn  $p \ll N$ , kann man die höheren Glieder der Reihe in der letzten Klammer von (10) neben den beiden ersten Gliedern vernachlässigen. Dann ergibt sich durch einfache Rechnung

$$\langle \chi_h^p \rangle \approx \chi_h^p \exp\{-p M_h\} = \langle \chi_h \rangle^p, \quad (12)$$

wobei  $M_h = \sum_s \coth[h \nu_s / (2 k T)] |\eta_s|^2 / 2$ .

Die Relation (12) gilt für alle Glieder des Polynoms (5) von  $I^{(l)}$ , wenn der Exponent  $p_{\max}$  der höchsten Potenz für alle Zustände  $l$  die Bedingung

$$p_{\max} \ll N \quad (13)$$

erfüllt. Es folgt dann die gesuchte Relation (2).

Man kann annehmen, daß (13) unter normalen experimentellen Bedingungen stets erfüllt ist. Denn die nötige Zahl der Glieder der Bornschen Reihe (5) wird durch die Vielfachheit der elastischen Streuprozesse bestimmt, die im Kristall höchstens berücksichtigt werden muß. Zum Beispiel hat HORSTMANN<sup>5</sup> gezeigt, daß für seinen Fall die zweite Bornsche Näherung, d. h. die Berücksichtigung der zweifachen Streuung ausreicht.

Bei Vorhandensein von Absorption bleibt unser Resultat auch gültig, wenn das oben erwähnte Modell der starren Ionen für die Berechnung der nunmehr als komplex zu betrachtenden Größe  $\chi(\mathbf{r})$  zugrunde gelegt werden kann.

Im Fall der RÖNTGEN-Strahlen ist diese Forderung erfüllt, weil die Absorption normalerweise durch Anregung von Elektronen der innersten Schalen der Atome verursacht wird. Daß die Intensität auch für die komplexe Funktion  $\chi(\mathbf{r})$  in Form eines Polynoms wie Gl. (5) geschrieben werden kann und die Bedingung (13) erfüllt ist, sieht man z. B. an der Formel von KATO<sup>14</sup>, die für dicke Kristalle lautet

$$R_H^\vartheta = \text{const} \exp\{-\mu_0 t_0 / \cos \vartheta_B\} |\psi_H'| I_0(2 k A).$$

Für die Bedeutung der Symbole siehe KATO<sup>14</sup>. Es geht hier darum, die modifizierte BESSELSCHE Funktion  $I_0(2 k A)$  in eine Potenzreihe zu entwickeln und irgendwo abzubrechen. Da unter normalen experimentellen Bedingungen<sup>6</sup>  $2 k A \approx \mu_0 t_0 < 100$  ist, kann man abschätzen, daß die Annahme  $p_{\max} = 200$  vollkommen ausreicht. (13) wird also eindeutig erfüllt.

Damit ist die experimentell<sup>6</sup> festgestellte Tatsache bewiesen, daß (2) auch für komplexe Funktionen  $\chi(\mathbf{r})$  gilt, d. h., daß sich die anomale Absorption durch den Ansatz

$$\mu = (\mu_0 / \cos \vartheta_B) [1 \pm (\chi_{ih} / \chi_{i0}) \exp\{-M_h\}]$$

gut erklären läßt.

Es sei hier bemerkt, daß unser Resultat für eine beliebige Kristallform und auch für den Mehrstrahlfall gültig ist. Eine Abweichung von der Formel (2) kann, wenn überhaupt, nur bei komplizierten Gitterstrukturen oder bei sehr tiefen Temperaturen erwartet werden.

<sup>14</sup> N. KATO, J. Phys. Soc. Japan **10**, 46 [1955].

NaJ wurde in der Meßapparatur<sup>2</sup> auf dünne Kohleunterlagen bei Zimmertemperatur aufgedampft und danach untersucht. Die Dicke der Schichten wurde zu  $1000 - 2000 \text{ \AA}$  abgeschätzt.

Das Energieverlustspektrum von NaJ, s. Abb. 1 a, wurde sogleich nach dem Aufdampfen, d. h. ohne vorhergehende Elektronenbestrahlung, aufgenommen. Bestrahlt man die Folie längere Zeit mit einer für normale Registrierung notwendigen Intensität ( $10^{-6} - 10^{-5} \text{ A/cm}^2$ , Strahldurchmesser  $0,1 \text{ mm}$ ), so beginnen sich bei  $5,7 \text{ eV}$  und  $2,2 \text{ eV}$  zusätzliche Maxima zu bilden. Bei Fortsetzung der Bestrahlung wird insbesondere das Maximum bei  $5,7 \text{ eV}$  immer intensiver, bis sich eine Höchstintensität einstellt.

### Bildung von Alkalimetallen aus Alkalihalogeniden bei Bestrahlung mit 50 keV-Elektronen

M. CREUZBURG

Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg  
(Z. Naturforsch. **20 a**, 1732—1733 [1965]; eingeg. am 18. November 1965)

Im Rahmen unserer Untersuchungen der Alkalihalogenide<sup>1</sup> zeigte sich, daß bei der Elektronen-Bestrahlung von dünnen NaJ-Schichten zusätzliche Maxima im Energieverlustspektrum der durch die Schichten hindurchgegangenen Elektronen entstehen. Ihre Intensität hängt von der Stärke und der Dauer der Bestrahlung ab.

<sup>1</sup> M. CREUZBURG u. H. RAETHER, Solid State Comm. **2**, 175 [1964]; 345 [1964]; Physics Letters **18**, 231 [1965].

<sup>2</sup> J. LOHFF, Z. Physik **171**, 442 [1963], s. auch: H. RAETHER, Springer Tracts in Modern Physics, Vol. **38**, pp. 83—157.