

# Über verschiedene Methoden zur Bestimmung der mittleren Verschiebungsquadrate der Gitteratome am Beispiel des Eisens und Nickels

PHILIPP DÜNNER und NORBERT SCHMITZ-PRANGHE

Institut für Theoretische Physik der Universität Köln,  
Abteilung für Metallphysik

(Z. Naturforsch. 23 a, 1679—1681 [1968]; eingegangen am 16. August 1968)

Eine Möglichkeit, Aussagen über die Größe der mittleren Verschiebungsquadrate der im Kristallgitter schwingenden Atome zu gewinnen, besteht darin, den Einfluß der Gitterschwingungen auf die Intensität gebeugter Röntgen-Strahlen zu untersuchen. Der formale Zusammenhang zwischen dieser bei einem Beugungsexperiment gemessenen Streuintensität und den mittleren Verschiebungsquadraten ist für kubische Kristalle nach WALLER<sup>1</sup> durch die Beziehungen:

$$I_T = I_0 \cdot \exp \left\{ -2B \left( \frac{\sin \vartheta}{\lambda} \right)^2 \right\} \quad (1)$$

und  $B = 8 \pi^2 \cdot \overline{u_s^2}$  gegeben. (2)

Hierbei bedeuten:

$I_T$  = Intensität der gebeugten Röntgen-Strahlung bei der Temperatur  $T$ ,

$I_0$  = Intensität der gebeugten Röntgen-Strahlung bei  $T = 0^\circ \text{K}$ ,

$\vartheta$  = Glanzwinkel bei der Temperatur  $T$ ,

$\lambda$  = Wellenlänge der charakteristischen Primärstrahlung.

Der Zusammenhang zwischen  $\overline{u_s^2}$  und einem beliebigen Intensitätsverhältnis  $I_{T_1}/I_{T_2}$  (mit  $T_1$  variabel und  $T_2$  z. B. =  $295^\circ \text{K}$ ) wird, wie JAMES<sup>2</sup> im einzelnen ausführt, durch die Beziehungen:

$$\overline{u_s^2} = \beta T + \frac{\gamma}{T} + \frac{\delta}{T^3} + \dots \quad (3)$$

und

$$\frac{1}{2} \ln(I_{T_1}/I_{T_2}) = \beta(c_2 T_2 - c_1 T_1) + \gamma \left( \frac{c_2}{T_2} - \frac{c_1}{T_1} \right) + \delta \left( \frac{c_2}{T_2^3} - \frac{c_1}{T_1^3} \right) + \dots \quad (4)$$

mit

$$\gamma = \frac{1}{12} \cdot \left( \frac{h}{2\pi} \right)^2 \cdot \frac{1}{m_a k};$$

$$\delta = -\frac{1}{1200} \cdot \left( \frac{h}{2\pi} \right)^2 \cdot \frac{\Theta_m}{m_a k};$$

$$c_1 = 8 \pi^2 \left( \frac{\sin \vartheta_1}{\lambda} \right)^2 \quad \text{und} \quad c_2 = 8 \pi^2 \left( \frac{\sin \vartheta_2}{\lambda} \right)^2$$

gegeben, wobei  $\Theta_m$  eine mittlere charakteristische Temperatur,  $h$  das Plancksche Wirkungsquantum,  $k$  die Boltzmann-Konstante und  $m_a$  die Atommasse bedeuten.

Auf der Grundlage dieser Gln. (3) und (4) haben DÜNNER und KOHLHAAS<sup>3</sup> durch Messung der Tempera-

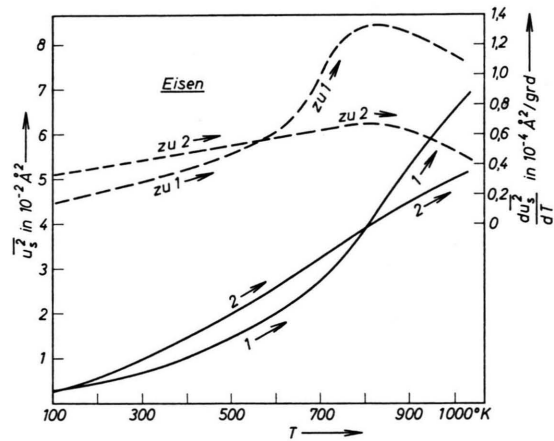


Abb. 1. Temperaturverlauf der mittleren Verschiebungsquadrate des Eisens. Kurve 1:  $\overline{u_s^2}$  berechnet aus Beugungsintensität und Gitterparameter; Kurve 2:  $\overline{u_s^2}$  berechnet aus dem Gitterparameter; gestrichelt gezeichnet: die Ableitungen zu den Kurven 1 und 2.

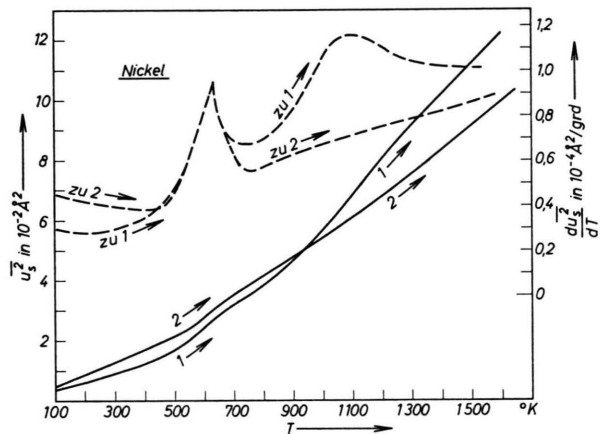


Abb. 2. Temperaturverlauf der mittleren Verschiebungsquadrate des Nickels. Kurve 1:  $\overline{u_s^2}$  berechnet aus Beugungsintensität und Gitterparameter; Kurve 2:  $\overline{u_s^2}$  berechnet aus dem Gitterparameter; gestrichelt gezeichnet: die Ableitungen zu den Kurven 1 und 2.

turabhängigkeit der Intensität von Röntgen-Interferenzlinien sowie der temperaturbedingten Änderung der Glanzwinkel  $\vartheta$  (und damit des Gitterparameters) den Temperaturverlauf der mittleren Schwingungsamplituden bzw. der Verschiebungsquadrate  $\overline{u_s^2}$  an Eisen- und Nickeleinkristallen ermittelt. Die Ergebnisse sind aus Abb. 1 und 2 (jeweils Kurve 1) zu ersehen und in Tab. 1 zahlenmäßig aufgeführt.

Einen anderen Weg, aus röntgenographischen Messungen die mittleren Verschiebungsquadrate der Gitteratome zu ermitteln, geben HOUSKA und STEIN<sup>4</sup> an. Da-

<sup>1</sup> J. WALLER, Z. Phys. 17, 398 [1923].

<sup>2</sup> R. W. JAMES, Optical Principles of the Diffraction of X-Rays, Vol. II, Capetown 1954.

<sup>3</sup> PH. DÜNNER u. R. KOHLHAAS, Z. Metallk. 59, 567 [1968].

<sup>4</sup> C. R. HOUSKA u. B. A. STEIN, Acta Cryst. 21, 611 [1966].



Temperatur in °K	$\overline{u_s^2}$ in $10^{-2} \text{ \AA}^2$ berechnet aus Intensitäts- und Gitterparameterwerten	$\overline{u_s^2}$ in $10^{-2} \text{ \AA}^2$ berechnet aus Gitterparameterwerten
Eisen		
100	0,27	0,24
200	0,46	0,58
300	0,67	1,02
430	1,15	1,52
550	1,69	2,30
650	2,31	2,92
725	2,98	3,40
800	3,92	3,88
900	5,29	4,49
1000	6,55	5,04
Nickel		
100	0,36	0,42
300	0,92	1,29
500	1,69	2,16
600	2,40	2,69
650	2,92	3,15
700	3,20	3,58
750	3,53	3,87
800	3,92	4,17
900	4,62	4,81
1000	5,66	5,47
1100	6,86	6,17
1200	8,18	6,89
1300	9,25	7,63
1400	10,24	8,39
1600	12,39	9,95

Tab. 1. Die mittleren Verschiebungsquadrate von Eisen und Nickel.

nach läßt sich mit Hilfe der aus der Grüneisenschen Theorie über den Zusammenhang zwischen Schwingungsamplituden und thermischer Ausdehnung gefolgerten Beziehung

$$\overline{u_s^2} = \frac{9 r_0^2}{8 \pi^2 \gamma Z^2} \cdot \frac{\alpha_T - \alpha_0}{\alpha_0} \quad (5)$$

das mittlere Verschiebungsquadrat allein aus Messungen der Temperaturabhängigkeit des Gitterparameters ermitteln. In Gl. (5) bedeuten:  $\alpha_T$  der Gitterparameter bei einer beliebigen Temperatur  $T$ ,  $\alpha_0$  der Gitterparameter bei 0 °K,  $r_0^2$  ein Maß für die vom Atom eingenommene Fläche (dieser Wert läßt sich aus dem Atomvolumen berechnen) und  $\gamma Z^2$  eine charakteristische Konstante, die nach HOUSKA und STEIN<sup>4</sup> für kubische Stoffe im Mittel mit 0,145 gegeben ist.

Um einen Vergleich zwischen den nach Beziehung (3) und (4) aus  $I(T)$  und  $a(T)$  gewonnenen Werten für die mittleren Verschiebungsquadrate und den nach Gl. (5) lediglich aus  $a(T)$  errechneten  $\overline{u_s^2}$ -Werten durchzuführen, wurden die von DÜNNER und KOHLHAAS<sup>3</sup> an Eisen- und Nickeleinkristallen gemessenen Gitterpara-

meterwerte in Gl. (5) eingesetzt. Mit  $\alpha_0 = 2,8602$  (extrapoliert),  $r_0^2 = 5,71 \text{ \AA}^2$  für Eisen und  $\alpha_0 = 3,5130 \text{ \AA}^2$  (extrapoliert),  $r_0^2 = 4,83 \text{ \AA}^2$  für Nickel ergibt sich der in Abb. 1 und 2 eingezeichnete Verlauf (jeweils Kurve 2) der mittleren Verschiebungsquadrate. Die genauen Zahlenwerte sind aus Tab. 1 zu ersehen.

Ein Vergleich der aus Intensitäts- und Gitterparametermessungen gewonnenen  $\overline{u_s^2}(T)$ -Werte mit den ausschließlich aus Gitterparameterdaten nach Gl. (5) ermittelten Werten zeigt gemäß Tab. 1 bei Eisen bis etwa 900 °K, bei Nickel bis etwa 1100 °K eine zahlenmäßig recht befriedigende Übereinstimmung.

Der Temperaturverlauf zeigt zunächst, wie aus den Ableitungen der Kurven 1 und 2 in Abb. 1 und 2 zu ersehen ist, eine Übereinstimmung in seinen charakteristischen Merkmalen, wie sie vor allem an den Curie-Punkten zum Ausdruck kommen. So strebt die Ableitung der  $\overline{u_s^2}(T)$ -Kurve des Eisens am Curie-Punkt bei etwa 1040 °K in beiden Fällen einem Minimalwert zu (mit vorhergehendem Maximum), während am Curie-Punkt des Nickels bei etwa 630 °K ein Maximum auftritt. Ein gleichartiger Temperaturverlauf in der Umgebung der Curie-Punkte wurde von KOHLHAAS, DÜNNER und SCHMITZ-PRANGHE<sup>5</sup> für die Gitterparameter bzw. die daraus ermittelten Ausdehnungskoeffizienten *polykristalliner* Eisen- und Nickelproben gefunden und mit den magnetostriktiven Eigenschaften dieser beiden Ferromagnetica erklärt.

Da als Variable in Gl. (5) ausschließlich Gitterparameterwerte eingehen, ist eine Übereinstimmung im Temperaturverlauf des Gitterparameters und dem hieraus berechneten  $\overline{u_s^2}(T)$ -Verlauf in diesem Fall zwingend. Der aus den  $I(T)$ -,  $a(T)$ -Messungen nach Gln. (3) und (4) für Nickel ermittelte Temperaturverlauf von  $\overline{u_s^2}$  (Abb. 2, Kurve 1) zeigt ab 1100 °K eine merkbare Abnahme im Anstieg der Kurve, wie aus einem breiten, aber ausgeprägten Maximum der Ableitung deutlich hervorgeht. Eine derartige Erscheinung konnte im Gitterparameterverlauf nicht gefunden werden und zeigt sich folglich auch nicht in dem nach Gl. (5) errechneten Temperaturverlauf von  $\overline{u_s^2}$  (Kurve 2 in Abb. 2).

Magnetische Messungen u. a. von ARAJS und COLVIN<sup>6</sup> sowie KOHLHAAS<sup>7</sup> an Nickel erbrachten um 1100 °K ebenfalls ein anomales Verhalten der magnetischen Suszeptibilität. Die hierbei vermuteten magnetischen Umwandlungen und damit verbundenen Auswirkungen auf die Bindungskräfte der Gitteratome spiegeln sich im Verlauf der Beugungsintensität als unmittelbar beeinflusster Meßgröße und nicht im Verlauf des Gitterparameters als mehr indirekter Größe wieder. Der Temperaturverlauf von  $\overline{u_s^2}$  ergibt folglich nur dann ein tatsächliches Bild der im Kristall herrschenden Bindungsverhältnisse und ihrer temperaturbedingten Änderung, wenn zur Berechnung der mittleren Verschiebungsquadrate neben dem Gitterparameter bzw. Glanzwinkel auch die Beugungsintensität [nach Gln. (3) und (4)]

<sup>5</sup> R. KOHLHAAS, PH. DÜNNER u. N. SCHMITZ-PRANGHE, Z. Angew. Phys. **23**, 245 [1967].

<sup>6</sup> S. ARAJS u. R. V. COLVIN, J. Phys. Chem. Solids **24**, 1233 [1963].

<sup>7</sup> R. KOHLHAAS, Arch. Eisenhüttenwes. **36**, 437 [1965].

herangezogen wird. Daraus ist zu ersehen, daß nach dem Vorschlag von HOUSKA und STEIN<sup>4</sup> Gitterparametermessungen allein zwar durchaus brauchbare Werte für die mittleren Verschiebungsquadrate erbringen, andererseits aber Intensitäts- und Gitterparametermessungen zusammen, wie sie von DÜNNER und KOHLHAAS<sup>3</sup> durch-

geführt wurden, umfassendere Aussagen über den Temperaturverlauf von  $u_s^2$  zulassen.

Für sein Interesse und die Förderung dieser Arbeit möchten wir Herrn Priv.-Doz. Dr. RUDOLF KOHLHAAS herzlich danken.

## Bruchfrontbegradigung nach Störung durch eingelagerte Teilchen und Blasen im Glas

K. PETER

Physikalisches Laboratorium Mosbach \*

(Z. Naturforsch. 23 a, 1681—1682 [1968]; eingeg. am 5. September 1968)

Schallfraktographie<sup>1</sup> ermöglicht Sichtbarmachung von Fronten eines spröden Bruches durch schwache periodische Ablenkungen aus der Bruchrichtung. Bruchfronten sind dabei Linien gleicher Beschallungsphasen, die bis zu einem Abstand von einigen hundert Å herab aufgelöst werden konnten<sup>2</sup>. Die Experimente sind so durchführbar, daß keine wesentlichen Störungen des Bruchverlaufes durch diesen Eingriff erfolgen<sup>3</sup>.

Im einachsigen Zugversuch, dem ein homogenes Material mit seitlichem Anriß unterworfen wird, sind die Bruchfronten im genügenden Abstand vom Rand Geraden. Das stimmt um so besser, je kleiner der beobachtete Bereich im Vergleich zur Probe ist. Die Bruchfront wird durch eingelagerte Teilchen oder auch leere Zwischenräume beeinflusst<sup>4</sup>, doch stellt sich unabhängig von Größe und Art der Störung nach kurzer Laufstrecke die Geradlinigkeit der Bruchfront wieder her. Abb. 1 \*\* zeigt den Bruchdurchgang durch ein größeres Fluoridteilchen in Glas, die kleineren brauchen nicht beachtet zu werden. Hinter dem Teilchen ist der Bruch gegenüber dem Nachbarbereich etwas weiter vorangekommen, läuft nun aber langsamer, so daß nach wenigen  $\mu\text{sec}$  (ein Linienabstand  $\cong 1 \mu\text{sec}$ ) wieder eine gerade Front entstanden ist: Der Bruch hat die Störung „vergessen“. In Abb. 2 bewirkt eine Vielzahl von Kieselglasparkeln in Glasmatrix Abweichungen von der Art, daß hinter jedem Teilchen der Bruch gegenüber dem Nachbarbereich zurückbleibt, danach aber den Rückstand durch erhöhte Geschwindigkeit einholt. An diesem Verhalten ändert sich nichts, wenn ein bisher spontaner Bruch auf Grund der Nichterfüllung der Griffith-Bedingung<sup>5</sup> kurzzeitig in einen thermisch bedingten Bruch übergeht. Dieser Bereich ist in Abb. 3 am Verschwinden der regelmäßigen Modulation erkennbar. Die Wirkung der hier gezeigten „Störstellen“ erstreckt sich nur wenig in Richtung der Bruchausbrei-

tung, wohl aber weit senkrecht dazu. Die Bruchfronten haben eine gewisse Steifigkeit.

Zum Verständnis dieser Erscheinungen können Überlegungen zur spezifischen Bruchenergie (= „Rißausbreitungskraft“)  $\mathcal{G}$  bzw. zum Spannungsverstärkungsfaktor  $\mathcal{K}$  bei gekrümmter Bruchfront in einem sich unendlich erstreckenden Körper unter einachsiger Zugspannung herangezogen werden, wobei  $\mathcal{G} \sim \mathcal{K}^2$  ist. Nach<sup>6</sup> muß dann ein elliptischer Innenriß in einen Kreis übergehen, d. h.  $\mathcal{G}$  und damit auch die Bruchgeschwindigkeit<sup>3</sup> ist um so größer, je schwächer die Bruchfrontkrümmung ist.  $\mathcal{G}$  als Funktion der Krümmung allein darzustellen, ist allerdings selbst in diesem einfachen Modell nicht möglich, doch läßt sich das Bruchverhalten nun qualitativ verstehen. Für negative Krümmungen wie in Abb. 2 ist das Modell eines ringsum angekerb-

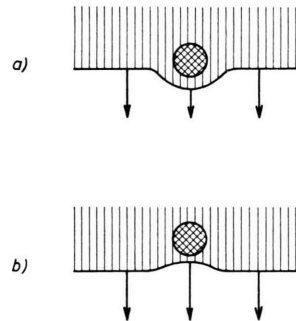


Abb. 4. Schema der Bruchfronten nach Durchgang durch eine Störung. Die Größe der Pfeile ist ein Maß für die Rißausbreitungskraft an dieser Stelle. a) entspricht Abb. 1; b) entspricht Abb. 2 (und Abb. 3).

ten Stabes brauchbar (vgl. Abb. 4). In<sup>7</sup> ist für den reduzierten Spannungsverstärkungsfaktor

$$\chi = \mathcal{K}/\sigma \sqrt{a}$$

( $\sigma$  = äußere Zugspannung,  $a$  = Kerblänge) eine Formel zu entnehmen, die in Abb. 5 (Kurve I) aufgetragen ist.  $\chi = 1$  bedeutet geradlinige Bruchfront. Mit wachsendem  $a$  (stärkere negative Krümmung) nimmt somit die Bruchgeschwindigkeit zu, was analog den Verhältnissen in Abb. 2 bzw. Abb. 4 b ist. Der Einfluß des lokalen zu-

\* Angeschlossen der Arbeitsgemeinschaft Industrieller Forschungsvereinigungen (AIF) und der Universität Karlsruhe (V 124/68).

<sup>1</sup> F. KERKHOF, Tagungsbuch über die mechanischen Eigenschaften des Glases, Symposium Florenz 1961, S. 799.

<sup>2</sup> K. PETER, Z. Naturforsch. 20 a, 168 [1965].

<sup>3</sup> H. KÜPPERS, Wiss. Ber. Nr. 4/66 d. Ernst-Mach-Institutes Freiburg i. Br. 1966.

<sup>4</sup> K. PETER, Z. Angew. Phys., im Druck.

\*\* Abb. 1 bis 3 auf Tafel S. 1682 a.

<sup>5</sup> A. A. GRIFFITH, Phil. Trans. Roy. Soc. London A 221, 163 [1920].

<sup>6</sup> G. R. IRWIN, Trans. ASME 29 E, 651 [1962].

<sup>7</sup> P. C. PARIS u. G. C. SIH, ASTM Spec. Techn. Publ. No. 381, 30 [1965].