

Druckbedingte Frequenzverschiebung von Phononen in Natrium, gemessen durch inelastische Neutronenstreuung*

Von

G. Ernst

Reaktorzentrum Seibersdorf, Physikinstitut

Mit 5 Abbildungen

(Eingegangen am 18. Oktober 1970)

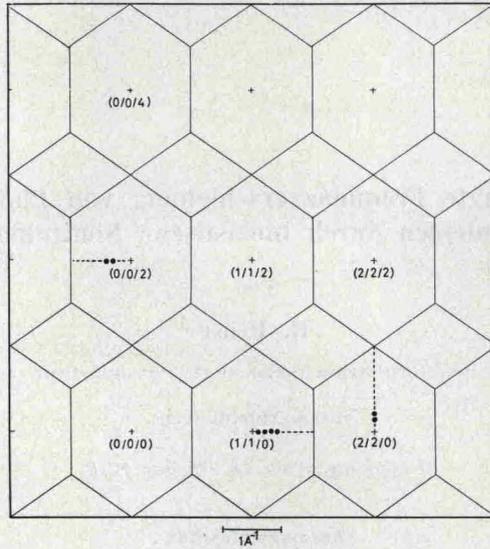
Zusammenfassung

Abweichungen des Gitterpotentials von der harmonischen Näherung können durch Verringerung des Gitterabstandes und der daher rührenden Verschiebung der Gitterschwingungsfrequenzen ermittelt werden. Im vorliegenden Fall wurde ein Natriumkristall einem hydrostatischen Druck von 42000 psi ausgesetzt und die auftretenden Verschiebungen der Frequenzen mit einem Dreiachsenneutronenspektrometer gemessen. Die Art der Messung und die Position der betrachteten Phononen werden beschrieben (mit Hinweisen auf die Auswertung). Die Ergebnisse in der Form der mikroskopischen Grüneisenparameter werden vorgelegt und mit den makroskopischen Parametern von GRÜNEISEN und SLATER, sowie mit Werten von DANIELS, abgeleitet aus der Druckabhängigkeit der elastischen Konstanten, verglichen.

Die Methode der inelastischen Streuung thermischer Neutronen gestattet die direkte Messung der Frequenz von Normalschwingungen in einkristallinen Proben als Funktion der Wellenzahl. Wenn man berücksichtigt, daß das Gitterpotential nicht harmonisch ist, kann man erwarten, daß sich diese Frequenzen bei einer Kompression des Kristalls verändern. In den Arbeiten von QUITNER, LECHNER und VUKOVICH [1], [2], [3], [5] wurde die Messung dieser Verschiebungen an Blei und Natriumjodid ausgeführt.

Bei der vorliegenden Untersuchung wurde ein Natrium-Einkristall (Durchmesser 20 mm, Länge 50 mm, Achse parallel zur (110)-Richtung) in einer speziell für diesen Zweck gebauten Druckkammer [4] einem hydrostatischen Druck von 42000 psi ausgesetzt. Die Frequenzver-

* Vorgetragen auf der Herbsttagung der Österreichischen Physikalischen Gesellschaft, 1970.



REZIPROKES GITTER (KUB. RAUMZ.)
EBENE $(1\bar{1}0)$

Abb. 1. Reziprokes Gitter von Natrium mit Grenzen der 1. Brillouin-Zone. Die Punkte geben die Koordinaten der gemessenen Phononen an

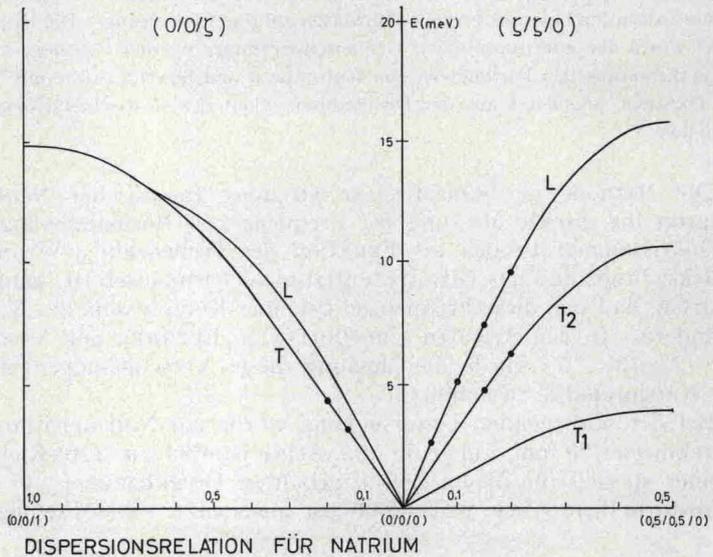


Abb. 2. Dispersionsrelation für Natrium in Hauptsymmetrierichtungen. Punkte: gemessene Phononen

schiebung unter diesem Druck wurde an 8 Phononen gemessen, u. z. auf einem Dreiachsenspektrometer in der Konstant- Q und Konstant-Energie-Betriebsart, d. h. es werden während der Messung entweder der übertragene Impuls (Konstant- Q) oder die übertragene Energie (Konstant- E) festgehalten und die andere Größe jeweils variiert. Die Phononspitze kommt bei der Erfüllung von Energie- und Impulssatz zustande.

Die Position der gemessenen Phononen im reziproken Gitter gibt Abb. 1 und ihre Lage auf der Dispersionsrelation [8] die Abb. 2.

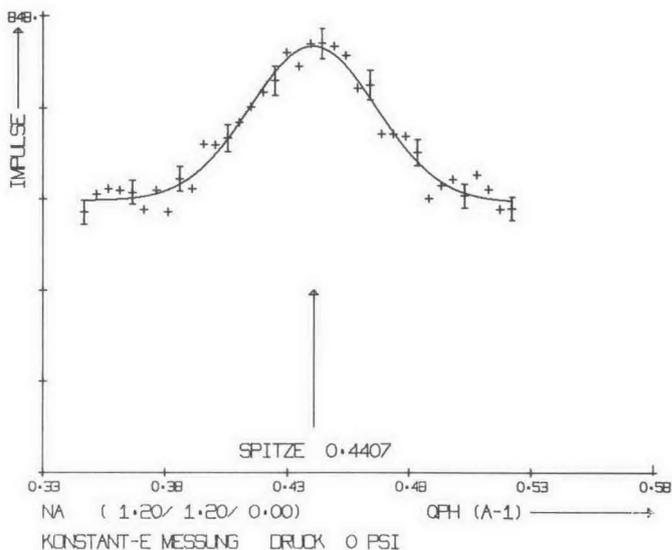


Abb. 3. Longitudinales Phonon, Konstant- E -Messung

Als Art der Messung wurde für die longitudinalen Phononen die Konstant- E , für die transversalen Phononen die Konstant- Q -Methode gewählt (der Grund liegt in der Kinematik der Messungen und in der mechanischen Genauigkeitsbegrenzung des Spektrometers). Die Auflösungsfunktion des Spektrometers [6], [7] wurde in den hier interessanten Zonen (110), (220), (002) gemessen und berechnet und ihre Form bei der Durchführung der Messungen berücksichtigt (Fokussierung).

Die Auswertung wurde im wesentlichen durch einen Fit nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate vorgenommen, und zwar wurde als Spitzenform sowohl eine Gauß- als auch eine Lorentzkurve gewählt. Besonderes Augenmerk wurde dabei auf die Berücksichtigung des inkohärenten inelastischen Untergrundes und der Einstreuungen der Braggspitze, hervorgerufen durch die endliche Auflösung des Spektrometers, gelegt. Als typische Beispiele für die Ergebnisse dieses Auswertungsvorganges dienen die Abb. 3 und 4.

Die Frequenzverschiebungen werden in der Form des mikroskopischen Grüneisenparameters γ_{qj} angegeben, der definiert ist als

$$\gamma_{qj} = - \frac{d \ln \omega_{qj}}{d \ln V}, \quad (1)$$

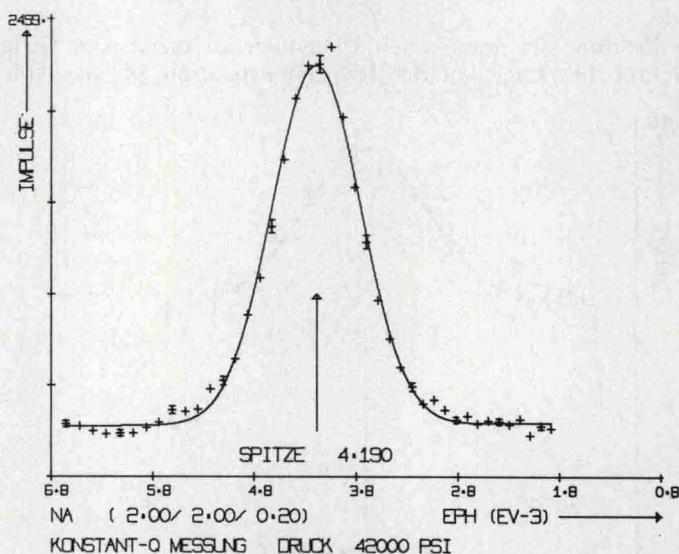


Abb. 4. Transversales Phonon, Konstant-Q-Messung

Fortpfl. Richt.	Phonon Polar.	q_{RED}	Ergebnisse			
			Fit nach Gaußkurve		Fit nach Lorentzkurve	
			$\Delta E_{qj}/E_{qj}$	γ_{qj}	$\Delta E_{qj}/E_{qj}$	γ_{qj}
$\zeta\zeta 0$	L	0,05	$0,046 \pm 0,012$	$1,21 \pm 0,34$	$0,050 \pm 0,009$	$1,32 \pm 0,27$
$\zeta\zeta 0$	L	0,10	$0,058 \pm 0,007$	$1,51 \pm 0,24$	$0,059 \pm 0,006$	$1,55 \pm 0,25$
$\zeta\zeta 0$	L	0,15	$0,045 \pm 0,005$	$1,17 \pm 0,18$	$0,047 \pm 0,005$	$1,24 \pm 0,19$
$\zeta\zeta 0$	L	0,20	$0,052 \pm 0,005$	$1,37 \pm 0,21$	$0,054 \pm 0,006$	$1,42 \pm 0,23$
$\zeta\zeta 0$	T_2	0,15	$0,063 \pm 0,012$	$1,64 \pm 0,42$	$0,066 \pm 0,014$	$1,72 \pm 0,46$
$\zeta\zeta 0$	T_2	0,20	$0,067 \pm 0,007$	$1,74 \pm 0,34$	$0,070 \pm 0,008$	$1,82 \pm 0,37$
00ζ	T	0,15	$0,050 \pm 0,006$	$1,31 \pm 0,26$	$0,050 \pm 0,006$	$1,31 \pm 0,27$
00ζ	T	0,20	$0,030 \pm 0,004$	$0,79 \pm 0,17$	$0,031 \pm 0,004$	$0,81 \pm 0,17$

Abb. 5. Tabelle der relativen Frequenzänderung ($E_{qj} = \hbar\omega_{qj}$; $\Delta E_{qj} = E_{qj}(42000 \text{ psi}) - E_{qj}(0 \text{ psi})$; q_{REL} = reduzierte Wellenvektorkoordinate) und der mikroskopischen Grüneisenparameter γ_{qj}

wo ω_{qj} die Frequenz des Schwingungsmodes (q, j), V das Kristallvolumen bedeuten. Diese Werte zeigt Abb. 5, u. z. werden die Ergebnisse der Fits nach Gauß- und Lorentzkurven gegenübergestellt. Innerhalb der Fehlergrenzen kann kein Unterschied festgestellt werden, und da außerdem die Minima der Quadratsumme der Abweichungen fast gleich sind bei beiden Kurvenformen, kann über die Halbwertsbreite und ihre Änderung nichts ausgesagt werden.

Der makroskopische Grüneisenparameter

$$\gamma_G = \alpha B_T \frac{V}{C_v}, \quad (2)$$

wo α den thermischen Ausdehnungskoeffizienten, B_T den Kompressionsmodul und C_v/V die spezifische Wärme pro Einheitsvolumen bedeuten, ist in dem hier vorliegenden Fall hoher Temperatur der Mittelwert über alle γ_{qj} (1). Für Natrium ist $\gamma_G = 1,14$ [9], [10]. Aus den Messungen von BRIDGEMAN an Natrium, Volumen in Abhängigkeit vom Druck, ermittelte SLATER aus dem Kompressionsmodul und dessen Druckabhängigkeit den Wert 1,5 [9]. DANIELS [9], [10] berechnete aus seinen Messungen der Druckabhängigkeit der elastischen Konstanten folgende Werte:

Fortpflanzungsrichtung	γ_L	γ_{T1}	γ_{T2}
00 ζ	1,51	1,06	1,06
$\zeta\zeta 0$	1,36	1,06	1,06

Da die vorliegenden Messungen eher im nicht dispersiven Bereich angestellt wurden, können die Ergebnisse mit diesen Werten direkt verglichen werden. Es zeigt sich innerhalb der Fehlergrenzen eine gute Übereinstimmung.

Der Verfasser dankt Herrn Dr. QUITTNER für seine wertvollen Anregungen und Herrn VUKOVICH für seine Mithilfe bei der Durchführung der Messungen.

Literatur

1. R. LECHNER, Dissertation, Univ. Wien.
2. S. VUKOVICH, Dissertation, Univ. Wien.
3. R. LECHNER and G. QUITTNER, Phys. Rev. Lett. **17**, 1259 (1966).
4. R. LECHNER, Rev. Sci. Inst. **37**, 1534 (1966).
5. G. QUITTNER, S. VUKOVICH und G. ERNST, Neutron Inelastic Scattering (Proc. Symp. Copenhagen, 1968), Vol. I, p. 367. IAEA Vienna, 1968.
6. H. BJERRUM-MØLLER, Risø-Report 178, 1968.
7. G. QUITTNER, The (\mathbf{Q}, ω) Transmission Function of a Triple-Axis Neutron Spectrometer. (Eingereicht von Acta Cryst.)

32 G. ERNST: Druckbedingte Frequenzverschiebung von Phononen in Natrium

8. A. D. B. WOODS et al., Phys. Rev. **128**, 1112 (1962).
9. W. B. DANIELS, in: Lattice Dynamics, p. 273 (R. F. WALLIS, ed.). New York: Pergamon Press. 1965.
10. W. B. DANIELS, Phys. Rev. **119**, 1246 (1960).