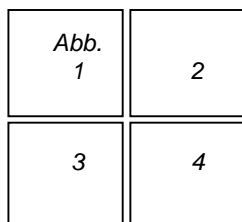


**Hahn-Meitner-Institut Berlin GmbH**

**Ergebnisbericht**  
Forschung & Entwicklung 2000

---

## Bildbeschreibungen Deckblatt



- Abb. 1:** Spindichtevertellung in der organischen Verbindung 4,5-dimethyl-1,2,4-triazol-nitronyl-nitroxid, gemessen am ILL (D3)  
(R. Feyerherm, A. Loose, Abt. SF2, E. Ressouche (CEA Grenoble), E. Lelievre-Berna (ILL Grenoble) und J. P. Sutter (ICMCB Bordeaux))
- Abb. 2:** TEM-Aufnahme von kleinen Ruthenium-Katalysatorteilchen, geträgert auf Ruß-Partikeln, für die Sauerstoffreduktion in Brennstoffzellen  
(M. Hilgendorff, U. Bloeck, M. Giersig, Abt. SE5)
- Abb. 3:** gerechnetes Dosisprofil mit CT-basierter Planung der Protonenstrahlung  
(C. Rethfeldt, J. Heese, H. Kluge, Abt. SF4)
- Abb. 4:** SEM-Aufnahme von ZnO, abgeschieden mit MOMBE auf Si (111) 7x7  
(U. Meier, I. Sieber, C. Pettenkofer, Abt. SE6)

Ergebnisbericht  
Forschung & Entwicklung 2000

Hahn-Meitner Institut Berlin GmbH  
Glienicker Str. 100  
D-14109 Berlin (Wannsee)

Koordinierung:  
Maren Achilles  
Telefon: (030) 8062 2668  
Telefax: (030) 8082 2047  
e-mail: [achilles@hmi.de](mailto:achilles@hmi.de)

# Inhaltsverzeichnis

<b>Vorwort</b>	<b>5</b>
<b>Einführung</b>	<b>6</b>
<b>SF STRUKTURFORSCHUNG</b>	<b>7</b>
<b>Großgeräte / Nutzerbetrieb</b>	<b>9</b>
<b>BENSC</b>	<b>11</b>
<b>NAA-Labor und Bestrahlungsdienst am BER II</b>	<b>15</b>
<b>ISL-Ionenstrahllabor Berlin</b>	<b>16</b>
<b>SF1 Methoden und Instrumente</b>	<b>19</b>
BENSC – Aktivitäten	21
BENSC-Instrumentbetreuung	21
Entwicklung neuer Methoden der Neutronenstreuung	21
Spallation	23
Softwareentwicklung von neuen Instrumentierungsansätzen, "Flugsimulator" für virtuelle Instrumente	23
Entwicklung von Instrument-Prototypen für zukünftige Neutronenquellen	24
Untersuchungen zur Targetstation einer Spallationsquelle	25
Kollektive Dynamik und Diffusion	26
Kollektive Dynamik in Materialien komplexer Struktur	26
Diffusion und Materialtransport in kondensierter Materie	28
Überstrukturen und konkurrierende Wechselwirkungen	30
<b>SF2 Magnetismus</b>	<b>31</b>
Volumenmagnetismus	33
Magnetische Modellsysteme und molekularer Magnetismus	33
Magnetismus von Kernspinsystemen	34
Magnetismus dünner Schichten	35
Neue magnetische Systeme: Übergangsmetallionen in Festkörpern und dünnen Schichtsystemen	35
Dünne magnetische Schichten und Nanostrukturen	36
Synchrotronexperimente an magnetischen Schichten	37
BENSC Aktivitäten	39
BENSC-Instrumentbetreuung	39
<sup>3</sup> He-Polarisationsfilter	39
BESSY Aktivitäten	40
Bau eines Undulators bei BESSY	40
Bau der PGM-Beamline am Undulator mit Meßplätzen für magnetische Nanostrukturen	41
Bau eines Meßplatzes am 7T-Wiggler für magnetische Untersuchungen	42
<b>SF3 Werkstoffe</b>	<b>43</b>
Mikrostruktur und Kinetik der Phasenumwandlungen in ausgewählten Legierungen und keramischen Materialien	45
Eigenspannungen in Werkstoffen und Bauteilen	48
BENSC Aktivitäten	50
<b>SF4 Struktur und Dynamik</b>	<b>51</b>
Atomare Dynamik, lokale Strukturen	53
Atomare Dynamik: Ionenimpakt	53
Atomare Dynamik: Diffusion und Phasenumwandlung	54
Atomistik der Bildung und Umwandlung lokaler Strukturen	55

Ionenstrahlanalytik	57
Augentumorthherapie	59
Technologie mit Ionenstrahlen	60
ISL - Beschleunigerentwicklung und -betrieb	61
Entwicklung	61
<b>SF5 Theoretische Physik</b>	<b>63</b>
Magnetische Systeme, Thermodynamik und atomare Stöße	65
Magnetische Systeme reduzierter Dimension	65
Mikrokanonische Thermodynamik	66
Atomare Stöße	66
Halbleiterphysik und Photovoltaik	67
<b>SF6 Spurenelemente</b>	<b>69</b>
Analyse von Spurenelementen und Metalloproteinen durch NAA und andere Methoden	71
Molekulare Spurenelementforschung: Seleno- und Metalloproteine	72
Klinische Anwendung und epidemiologische Studien	74
<b>SF7 Nukleare Messtechnik</b>	<b>77</b>
ERDA und Kernspektroskopie	79
ERDA-Messungen und Wechselwirkung von Ionen mit Materie	79
Kernspektroskopie	80
Entwicklung eines ortsabbildenden Detektors für Reaktorneutronen	83
<b>RE Forschungsreaktor</b>	<b>85</b>
<b>BEREICH SOLARENERGIEFORSCHUNG</b>	<b>89</b>
<b>SE1 Silizium-Photovoltaik</b>	<b>91</b>
Silizium Photovoltaik	93
Dünnschichtsolarzellen aus kristallinem Silizium	93
Grenzflächen und Passivierung	95
Silizium-Heterostrukturen	96
<b>SE2 Heterogene Materialsysteme</b>	<b>99</b>
Chalkopyrit Solarzellen	101
CSV - Closed-Spaced Vapour Transport	101
MOCVD - Metallorganic Chemical Vapour Phase Deposition	102
Chalkopyrit Solarzellen	103
Neue Materialien	104
Eta-Zelle	106
Pufferschichten, alternative Dünnschichttechnologie	106
Ionenstrahlanwendungen	108
Fullerene	109
<b>SE3 Technologie</b>	<b>111</b>
Technologie	113
Chalkopyrit-Solarzellen: Entwicklung sequentieller Prozesse auf Grundlage des CIS-Materialsystems	113
Chalkopyrit-Solarzellen: In-situ-Prozesskontrolle und Dotierung	113
Strahlungsbelastbarkeit von Dünnschicht-Solarzellen	114
<b>SE4 Dynamik von Grenzflächenreaktionen</b>	<b>117</b>
Injektionssolarzellen	119
Präparation von mesoskopisch strukturierten Oxidschichten	119
Präparation und Charakterisierung von III-V-Halbleitern und deren Grenzflächen in der Gasphase	119
Dynamik und Energetik von Licht-induziertem Ladungstransfer	121
Funktion und Charakterisierung von Injektionszellen	122
Elektronenmikroskopie von Solarzellen	122
Nasschemische Präparation von Heterokontakten	122

<b>SE5</b>	<b>Solare Energetik</b>	<b>123</b>
	Solare Energetik	125
	Charakterisierung und Optimierung von neuen Materialien und Heterostrukturen	125
	Photoelektrochemische und (photo)elektrokatalytische Prozesse	127
	Neue Energiesysteme	128
	Grenzflächenengineering	129
<b>SE6</b>	<b>Elektronische Struktur von Halbleitergrenzflächen</b>	<b>131</b>
	Halbleitergrenzflächen	133
<b>HAD</b>	<b>Informationstechnik</b>	<b>135</b>
	Informationstechnik	137
	Multimedia-Arbeitsplatz	137
	Elektronisches Laborbuch	137
	Glasfaserdosimeter für TTF	138
<b>Anhang</b>		<b>141</b>



## Vorwort des wissenschaftlichen Geschäftsführers

Das Jahr 2000 war ein erfolgreiches und in vieler Hinsicht bewegtes Jahr für das Hahn-Meitner-Institut. Es begann mit der Neustrukturierung der wissenschaftlichen Bereiche, durch die die programmatischen Ziele und Verantwortlichkeiten gestärkt werden sollen insbesondere auch im Hinblick auf die anstehende Programmorientierte Förderung der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft. Seit dem 1.1.2000 sind die wissenschaftlichen Abteilungen zu zwei Bereichen zusammengefasst worden, die den bisherigen Forschungsschwerpunkten entsprechen. Innerhalb der Bereiche definieren sich die Abteilungen durch ihr programmatisches Profil.

Im Bereich Strukturforschung sind die Abteilungen und ihre Aufgaben auch deshalb deutlich verändert worden, da die Nutzung der Synchrotronstrahlung in das Programm aufgenommen wurde. Weitere Impulse für die Profilierung unserer Strukturforschung erwarten wir im Jahr 2001 durch die anstehenden Neuberufungen: das Berufungsverfahren "Festkörper-/Vielteilchentheorie" konnte bereits abgeschlossen werden; Herr Prof. Dr. Erwin Frey wird zum 1. Juni 2001 seine Tätigkeit am HMI und der Freien Universität Berlin aufnehmen. Im Verfahren „Werkstoffwissenschaften“ ist der Ruf an den Erstplazierten ergangen, so dass auch hier mit einer Nachbesetzung noch im Jahr 2001 gerechnet werden kann. Das dritte Verfahren zur Nachbesetzung des Abteilungsleiters „Magnetismus“ befindet sich auf gutem Wege.

Im Bereich Solarenergieforschung konnte das in den letzten Jahren entwickelte Forschungsprogramm weiter konsolidiert werden. Im Hinblick auf die anstehende Begutachtung des Bereichs im Jahr 2002 und der Tatsache, dass in den nächsten Jahren mehrere leitende Wissenschaftler ausscheiden, sind intensive Diskussionen zur Entwicklung eines Langfriststrategie-Konzeptes der Solarenergieforschung am HMI begonnen worden.

Ein bereits unübersehbares und immer noch wachsendes Gewicht hat die Zusammenarbeit mit BESSY. Diese ist im Jahr 2000 durch den gemeinsamen Aufbau von Insertion Devices und Messinstrumenten voll angelaufen. Dabei wird das Programm der Strukturforschung die bisherige Nutzung des BESSY Rings erweitern.

Die Entwicklung eines gemeinsamen Konzepts zur Verzahnung der Nutzung der Berliner Großgeräte ist für HMI und BESSY eine der wichtigen Aufgaben der nächsten Jahre.

Auch der Bereich Solarenergie verstärkt seine Aktivitäten auf dem BESSY-Gebiet der Spektroskopie und elektronischen Struktur. Hier konnten im Berichtsjahr für den Aufbau einer „Synchrotron-Diagnostik zur Unterstützung der Material- und Technologie-Entwicklung von kostengünstigen Cu(In,Ga)(S,Se)<sub>2</sub>-Photovoltaik-Modulen“ erfolgreich

Projktgelder beim Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie (BMWi) eingeworben werden. Auch über den Vernetzungsfonds des Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) ist es dem Bereich gelungen, viele neue und interessante Projekte auf den Weg zu bringen.

Für die langfristige Zukunft des HMI nicht weniger bedeutend ist die Beteiligung an der Entwicklung neuer Großgeräte für die Forschung in Europa.

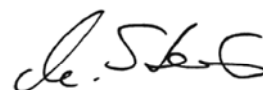
Das Institut hat sich auch im Berichtsjahr zusammen mit dem FZ Jülich intensiv den F&E-Arbeiten gewidmet, mit denen das Projekt "Europäische Spallationsneutronenquelle" (ESS) zur Entscheidungsreife gebracht werden soll. Darüber hinaus hat das HMI als „leitendes Laboratorium“ die Koordination einer breiten internationalen Zusammenarbeit zur Entwicklung von Spallationsquellen sowie daran angepasster Instrumentierungskonzepte übernommen.

Auch am TESLA Projekt bei DESY hat sich das HMI, allerdings vorerst nur in kleinem Umfang, beteiligt. Damit ist das HMI in die Planung und Entwicklung von zwei der wichtigsten zukunftsweisenden Großgeräte für die europäische Forschung eingebunden.

Neben der wissenschaftlichen Arbeit und ihrer erfolgreichen Präsentation in zahlreichen Veröffentlichungen und Konferenzbeiträgen sind auch die Anstrengungen, für Verständnis und Interesse an der Wissenschaft in einer breiteren Öffentlichkeit zu werben, weiter verstärkt worden, insbesondere die Bemühungen um potenziellen wissenschaftlichen Nachwuchs und die Schülerschaft. Neben einem im Berichtsjahr erstmalig durchgeführten Mädchen Technik Tag und den Wissenschaftsprojekttagen für Schüler sei insbesondere die Ausstellung „Lebendige Wissenschaft“ im Rahmen der HGF-Jahrestagung 2000 in München erwähnt. Hier stießen auch die Exponate des HMI auf eine ganz außerordentliche Resonanz bei den jugendlichen Besuchern.

Dies alles trägt zur Stärkung der Anerkennung bei, die das HMI national und international erfährt. Diese positive Entwicklung hätte ohne das große Engagement unserer Mitarbeiterinnen und Mitarbeiter nicht erreicht werden können. Dafür möchte die Geschäftsführung an dieser Stelle herzlich danken.

Berlin, Mai 2001



Prof. Dr. Michael Steiner

## Einführung

Mit dieser Broschüre berichtet das Hahn-Meitner-Institut über die Ergebnisse seiner Forschung und Entwicklung im Jahre 2000.

Zum 1. Januar 2000 ist am Hahn-Meitner-Institut der Übergang in eine neue Organisationsstruktur der wissenschaftlichen Bereiche und Abteilungen vollzogen worden. Die Überführung der bisherigen fünf in nur noch zwei wissenschaftliche Bereiche gibt auch die neue Berichtsstruktur vor. Entsprechend dem Bereich Strukturforschung mit seinen sechs Abteilungen und einer Arbeitsgruppe und dem Bereich Solarenergieforschung mit seinen fünf Abteilungen und einer Arbeitsgruppe werden die Ergebnisse in Forschung und Entwicklung 2000 detailliert dargestellt.

Der Abschnitt Strukturforschung enthält zudem eine zusammenfassende Darstellung des Nutzerbetriebs des HMI. Neben den eigenen Forschungsarbeiten ist es eine wesentliche Aufgabe des Hahn-Meitner-Instituts, die hier betriebenen Großgeräte, Forschungsreaktor und Beschleuniger, für die Nutzung durch Wissenschaftler der Universitäten und anderer Forschungseinrichtungen im In- und Ausland zur Verfügung zu halten, und den externen Nutzern eine optimale Betreuung zu gewährleisten.

Angaben u.a. zu Publikationen, Konferenzbeiträgen, Kooperationen und Gästen sowie die von Mitarbeitern des Hauses an den umliegenden Universitäten durchgeführten Lehrveranstaltungen und die fertiggestellten Examensarbeiten werden in einem separaten Anhang ausgewiesen, der bei der Presse- und Öffentlichkeitsarbeit des HMI auf Anforderung bereit gehalten wird. Darüber hinaus ist er auch als Download-Version im Internet unter (<http://www.hmi.de/pr/druckschriften.html>) verfügbar.

Als separate wissenschaftliche Jahresberichte werden außerdem vorgelegt

Scientific Report 1999 – 2000 Theoretical Physics  
Statusbericht Strukturforschung 1997 – 2000  
BENSC Experimental Reports 2000

HMI-B 573  
HMI-B 575  
HMI-B 576

Diese können bei den entsprechenden Bereichen oder über die Geschäftsführung des HMI angefordert werden.



Bereich

**SF Strukturforschung**

Den Bereich Strukturforschung bilden die wissenschaftlichen Abteilungen, deren Arbeit primär durch die Nutzung der Großgeräte BER II / BENSC und ISL, in Zukunft auch BESSY bestimmt ist.

Er widmet sich in erster Linie der Erforschung mikroskopischer Struktur und Dynamik in kondensierter Materie. Darüber hinaus werden die Großgeräte des HMI auch für spezifische Anwendungen auf den Gebieten Medizin, Gesundheit und Umweltschutz (Augentumorthérapie mit Protonenstrahlen, Aktivierungsanalyse mit Neutronenstrahlen) eingesetzt.

Das wissenschaftliche Programm umfaßt drei einander ergänzende Aufgaben: die Bereitstellung von erstklassigen Forschungsmöglichkeiten an den vorhandenen Instrumenten für eine breite nationale und internationale Nutzergemeinde im Rahmen von BENSC und ISL, - später auch bei BESSY II -, die Entwicklung neuer Methoden und Instrumente, und eigene Forschung mit den vom HMI aufgebauten und entwickelten Instrumenten und Methoden.

Dazu gehören eine große Anzahl von Anlagen zur Probencharakterisierung wie z. Bsp. Elektronenmikroskopie, Feldionenmikroskopie, Röntgenbeugung und hochauflösende Meßeinrichtungen, sowie die Realisierung extremer Probenumgebungen (Tiefe Temperaturen bis in den mK-Bereich, Magnetfelder bis 15 Tesla).

Neben der eigentlichen Strukturforschung umfasst die Arbeit des Bereichs auch die spezifische Nutzung der Großgeräte des HMI für Forschung im Dienste der Gesundheit (Hochenergetische Protonen für Augentumorthérapie mit Protonenstrahlen, Neutronenaktivierungsanalyse für Spurenelementforschung u. a.).

Der Bereich gliedert sich in 6 wissenschaftliche Abteilungen

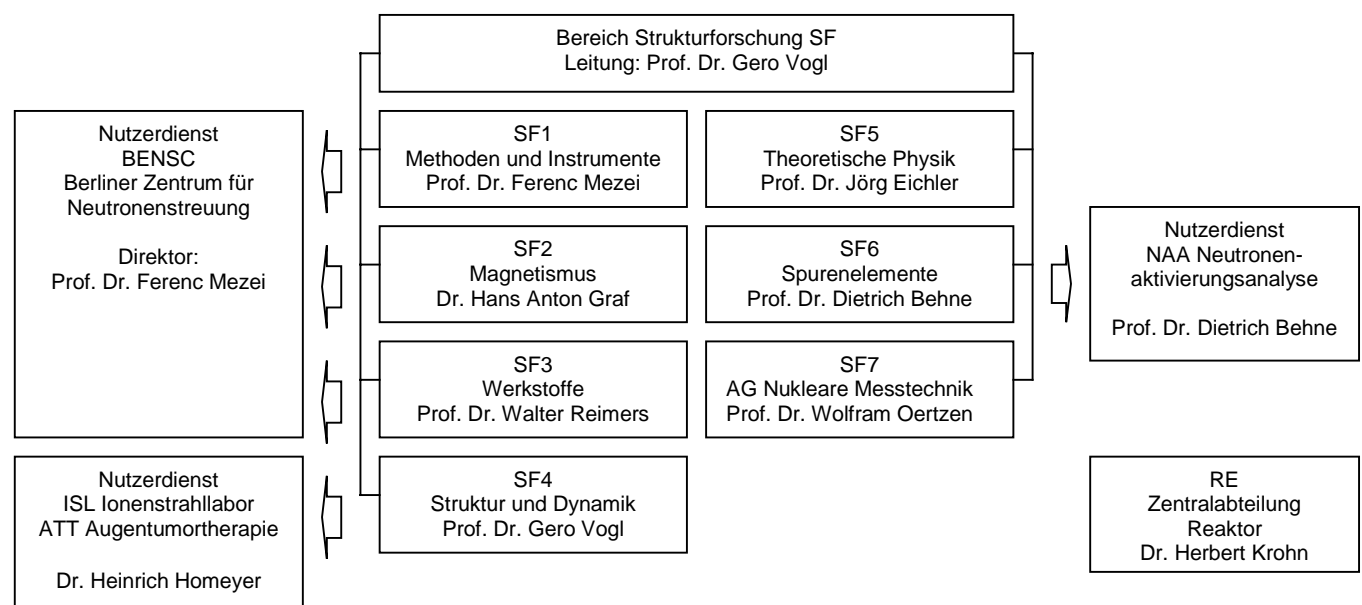
- SF1 Methoden und Instrumente**
- SF2 Magnetismus**
- SF3 Werkstoffe**
- SF4 Struktur und Dynamik**
- SF5 Theoretische Physik**
- SF6 Spurenelemente**

und die Arbeitsgruppe

#### **SF7 Nukleare Messtechnik.**

Die ersten drei Abteilungen tragen das Berliner Zentrum für Neutronenstreuung, **BENSC**, die vierte ist verantwortlich für Betrieb und Entwicklung des **Ionenstrahl Labors** sowie die **Augentumorthérapie** und die Abteilung SF6 stellt im Nutzerdienst die **Neutronenaktivierungsanalyse** zur Verfügung.

Die Zentralabteilung **Reaktor** ist zwar organisatorisch nicht dem Bereich Strukturforschung, wird aber, da sie zu 100% dem Bereich zuarbeitet, hier als Teil der Strukturforschung dargestellt.



## **Großgeräte / Nutzerbetrieb**



## BENSC

Direktor: Prof. Dr. Ferenc Mezei

Das *Berliner Zentrum für Neutronenstreuung* (BENSC) entwickelt und betreibt die wissenschaftlichen Instrumente am Forschungsreaktor BER II und stellt rund 70 % der Messzeit an den Hauptgeräten Gastgruppen aus dem In- und Ausland zur Verfügung.

Auf regionaler und nationaler Ebene erfüllt BENSC damit Großforschungs-spezifische Gemeinschaftsaufgaben der

- Unterstützung deutscher Universitäten und hochschulfreier Forschungsinstitute,
- in Hinblick auf ein breites Feld von Aufgaben von der Ausbildung bis hin zu herausragenden Projekten der Spitzenforschung. Eng damit verbunden ist die Aufgabe der
- Unterstützung industrieller Partner,
- die - überwiegend in Kooperationsprojekten - dabei in ähnlicher Weise von den einzigartigen messtechnischen Möglichkeiten von BENSC und dem hochspezialisiertem Know-how der Mitarbeiter profitieren wie die Forschungsinstitute.

Über den nationalen Rahmen hinausgehend hat BENSC sich auch eine starke Rolle im Reigen der Neutronenquellen als *Europäisches Forschungszentrum* errungen. Die weiterhin zunehmende internationale Ausrichtung wird dadurch unterstrichen, dass der Anteil der ausländischen Gastforscher inzwischen den der Gäste aus Deutschland übersteigt. Die international orientierte Nutzung von BENSC erhielt starke Impulse durch erhebliche und steigende jährliche finanzielle Zuwendungen durch die Europäische Kommission.

BENSC wird getragen von den Abteilungen SF1 und SF2, die jeweils rund 70 % der Arbeit ihrer planmäßigen wissenschaftlichen Mitarbeiter und die gesamte Kapazität der technischen Mitarbeiter einbringen, sowie von der Abteilung SF3, aus der etwa 20 % der Arbeit der planmäßigen wissenschaftlichen Mitarbeiter für BENSC erbracht wird. Entsprechend ist der Überlapp bei den Aufgaben, insbesondere bei instrumentellen Entwicklungen, sehr groß.

Die Serviceorientierung der Aufgaben bei BENSC erfordern - in höherem Maße als etwa in Gruppen der reinen Forschung - eine zuverlässige Bewahrung, Bereitstellung und Nutzbarmachung langfristig erarbeiteten Know-hows. Jedoch zwingen die derzeitigen personalwirtschaftlichen Randbedingungen mit ca. 70 % der dort anfallenden Arbeiten befristet beschäftigtes Personal zu beauftragen (s. Abb. 1).

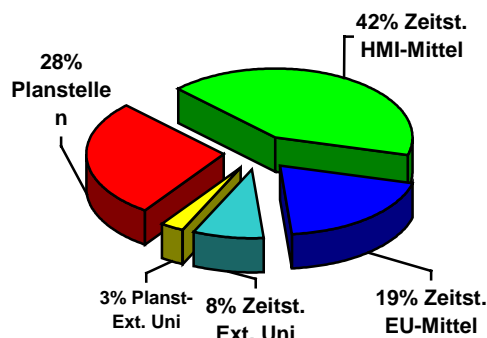


Abb. 1:  
Wissenschaftliches Personal an den wichtigsten 13 Hauptgeräten im Nutzerdienst.

### BENSC-Nutzerdienst

Die Dienstleistung von BENSC für Wissenschaftler von deutschen Universitäten und anderen nationalen und internationalen Forschungsinstituten und -abteilungen wird in zwei Formen erbracht:

- Vergabe von Messzeiten für *Einzelprojekte* externer Gruppen - wobei die Entscheidung im Einzelfall nach wissenschaftlicher Begutachtung durch den international besetzten Nutzausschuss getroffen wird - und intensive wissenschaftliche und technische Unterstützung bei Vorbereitung, Durchführung und Auswertung der Experimente.
- In Kooperationsverträge gefasste wissenschaftliche und technische *Langzeit-Kooperationen*, meist verbunden mit Zusammenarbeit bei der Betreuung einzelner Instrumente am Reaktor und, im Gegenzug, fest zugesagtem Messzeitkontingent für die jeweilige externe Gruppe.

Für die erstgenannten Einzelprojekte ist an den rund 14 Hauptinstrumenten von BENSC ein Anteil von mindestens 50 % der Messzeit reserviert. Weitere 20 % stehen für die genannten Kooperationen zur Verfügung. Für eigene Forschungsprojekte der HMI-Gruppen verbleiben 30 % der Messzeit.

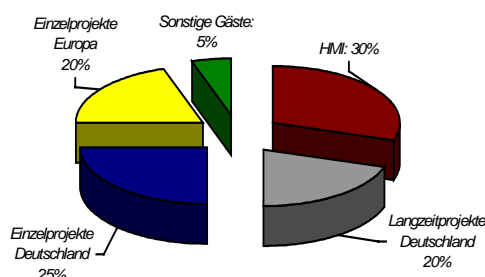


Abb. 2:  
Verteilung der Experimentzeiten bei BENSC auf die verschiedenen Nutzerklassen

### Kooperationen zum Nutzerdienst

Die enge Zusammenarbeit von BENSC mit vertraglichen Kooperationspartnern dient nicht allein den jeweiligen Partnern, sondern verstärkt zugleich die personellen Kapazitäten an den Instrumenten und erweitert die Möglichkeiten der wissenschaftlichen Betreuung aller Gäste. So hat BENSC auf dem wichtigen Zukunftsfeld der "Weichen Materie", das bislang nicht zu den erklärten eigenen Forschungsschwerpunkten des HMI gehörte, durch Kooperationen mit der TU Darmstadt (Prof. Dencher), dem I.-N.-Stranski Institut der TU Berlin (Prof. Findenegg) und dem Max-Planck-Institut für Kolloid und Grenzflächenforschung (Prof. Möhwald) die für eine angemessene Betreuung der Gastgruppen notwendige vor-Ort-Expertise verstärkt.

Die wichtigsten vertraglichen Langzeit-Kooperationspartner aus der Region Berlin-Brandenburg sind derzeit

- I.N.Stranski Inst. für Physikalische und Theoretische Chemie  
**Technische Universität Berlin**  
(Prof. G.H. Findenegg)
- **Max-Planck-Institut für Kolloid und Grenzflächenforschung, Golm/Potsdam**  
(Prof Dr. H. Möhwald)
- Inst. für Werkzeugmaschinen und Fertigungstechnik  
**Technische Universität Berlin**  
(Prof. E. Uhlmann)
- **Technische Fachhochschule Berlin.**  
(Prof. W. Treimer)

Weitere langzeitige nationale Vertragspartner von den Hochschulen sind

- Institut für Kristallographie,  
**Universität Tübingen**  
(Prof. W. Prandl)
- Institut für Biochemie  
**Technische Univ. Darmstadt**  
(Prof. N. Dencher)
- Institut für Physikalische Biologie  
**Universität Düsseldorf**  
(Prof. G. Büldt)
- FB Materialwissenschaften  
**Technische Universität Darmstadt**  
(Prof. H. Hahn)
- Institut für Festkörperphysik  
**Technische Universität Darmstadt**  
(Prof. H. Wipf)
- Lehrstuhl für Experimentalphysik  
**Universität Augsburg**  
(Prof. A. Loidl)

Zwei weitere bisherige vertragliche Kooperationen, die mit der **TU Dresden** und die mit der **Universität Hannover**, ruhen derzeit (Probleme der Personalrekrutierung).

### Einzelprojekte von Gastgruppen

Der Schwerpunkt des BENSC-Nutzerdienstes ist die Bereitstellung von Messzeiten für *Einzelprojekte* externer Gruppen - nach Begutachtung der jeweiligen Projekte durch den international besetzten Nutzerausschuss - und die intensive technische und wissenschaftliche Betreuung der Gastgruppen. Das Service-Angebot richtet sich nicht nur an deutsche Gruppen, sondern an die gesamte internationale Nutzergemeinde der Neutronenstreuer.

<b>Jahr 2000</b>	<b>Deutschland</b>	<b>Westeuropa</b> EU und EU-assoziierte in Mittelost-Europa	<b>Sonstige, NIS</b> Japan, USA, Australien Indien, China
<b>Projekte</b>	<b>100</b>	<b>105</b>	<b>25</b>
<b>Besuche</b>	<b>140</b>	<b>195</b>	<b>35</b>
<b>Namen</b>	<b>100</b>	<b>155</b>	<b>35</b>

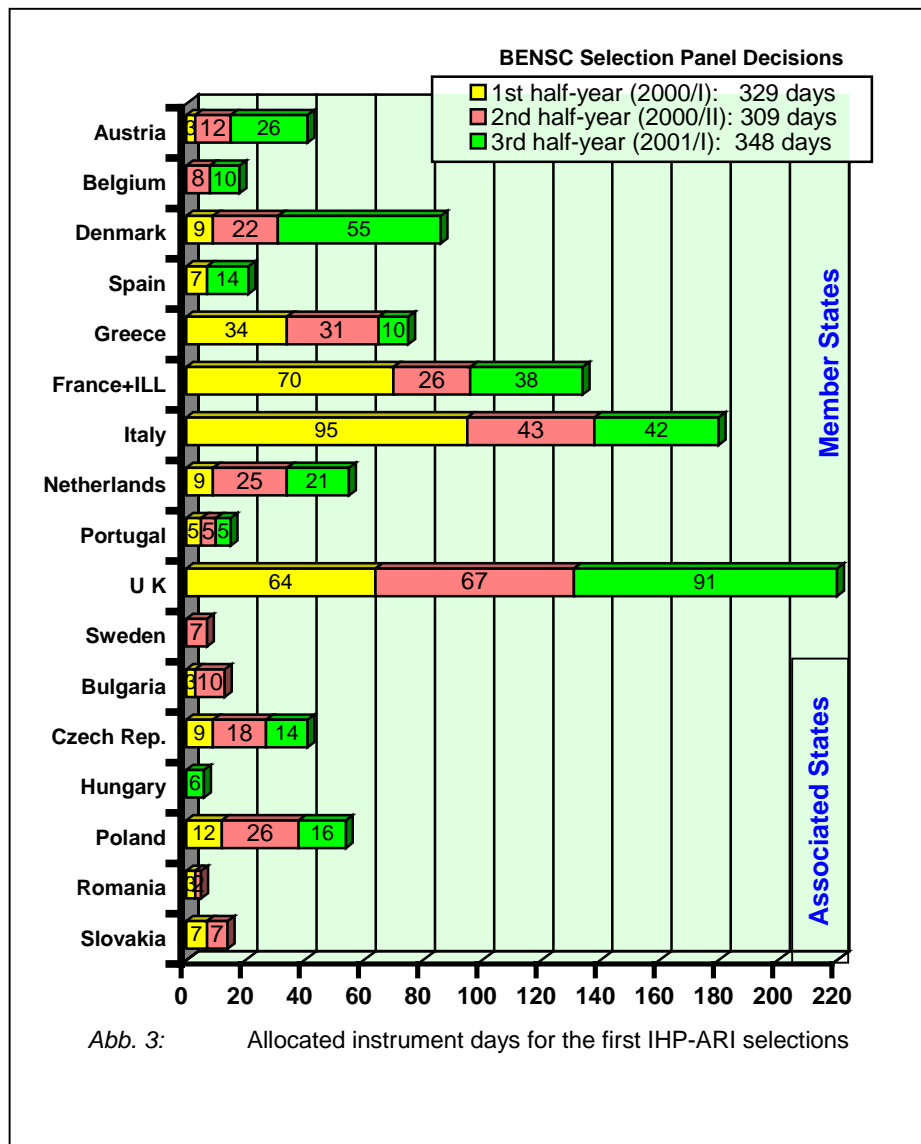
\*NIS: New Independence States

*Tabelle 1:  
Anzahl der einzelnen Projekte im Jahr 2000 und der für diese Experimente verzeichneten Besuche von externen Nutzern.*

Die BENSC Nutzerstatistik verzeichnete im Jahr 2000 etwa 230 verschiedene Einzelprojekte mit 370 Besuchen durch insgesamt rund 300 individuelle Wissenschaftler. Der Anteil der Gäste von deutschen Instituten, der in den letzten Jahren immer um 45% gelegen hatte, ist relativ auf unter 40% gesunken, während die Zahl der Gäste aus Europa weiter stieg. Die deutschen Gastnutzer kamen in 2000 wieder von über 30 verschiedenen Universitäten und 10 hochschulfreien Instituten.

### BENSC als Europäische Neutronenquelle, Drittmittel der Europäischen Kommission

Die bemerkenswert hohen Zahlen für die europäischen Gäste bei BENSC sind stimuliert durch erfolgreiche Einwerbung von EU-Mitteln aus den Programmen der Europäischen Kommission zur Unterstützung des transnationalen Zugangs zu Großforschungsanlagen. Die BENSC und den BENSC-Gästen hieraus jährlich zur Verfügung stehenden Mittel stiegen mit dem aktuellen seit Februar 2000 bis ins Jahr 2003 laufendem Vertrag auf jährlich 500.000 Euro.



Die experimentellen Ergebnisse aller Projekte der Gastgruppen werden als "Interim Reports" in jährlichen HMI-Berichten zusammengefasst veröffentlicht. Die **"BENSC Experimental Reports 2000"**, HMI-B 576, enthalten wieder 220 Einzelberichte, an denen insgesamt rund 450 Autoren beteiligt sind.

#### Liste der Veröffentlichungen

Die Anzahl der BENSC-Veröffentlichungen in anerkannten referierten Zeitschriften hat einen hohen Stand von **jährlich über 160 Publikationen** erreicht. Bei diesen Publikationen treten in der Regel sowohl die Gäste als auch die mit ihnen kooperierenden HMI-Mitarbeiter gemeinsam als Autoren auf; bei 2/3 bis 3/4 der Arbeiten sind jedoch die Gäste federführend.

Eine komplette Veröffentlichungsstatistik 2000 für BENSC wird im oben genannten HMI-Bericht **HMI-B 576** abgedruckt und füllt dort 40 Seiten. Da der größte Teil dieser Veröffentlichungen ohne-

Eine Analyse der Verteilung der Messzeiten für die Gäste auf die einzelnen Länder zeigt, dass nicht nur Länder ohne geeignete Neutronenquellen wie Italien, Griechenland und Spanien recht hoch vertreten sind; sondern auch England und Frankreich starke Kontingente stellen, da von dort viele potente Gruppen zu BENSC kommen, um von Geräten und Optionen zu profitieren, die ihre nationalen Neutronenquellen oder das ILL Grenoble nicht bieten. Der deutliche Zuwachs bei den Projekten aus Dänemark und England ist zudem korreliert mit der unerwarteten Schließung des Reaktors in Risoe.

#### Wissenschaftliche Ergebnisse der Gastgruppen

Die wissenschaftlichen Ergebnisse aus den BENSC-Experimenten der Gastgruppen schlagen sich nieder in Diplom- und Doktorarbeiten, sowie in Konferenzbeiträgen und Veröffentlichungen.

Unsere Listen für die Gäste verzeichnen für 2000 bislang **8 Diplom- und Studienarbeiten**, davon 5 an ausländischen (Athen (2), Cadiz, Moskau (2)) und **13 Doktorarbeiten**, davon auch wieder die Mehrzahl (9) im Ausland (Athen(2), Edinburgh (2), Krakau, Leuven, London, Madrid, Prag).

hin bei den wissenschaftlichen Abteilungen der beteiligten HMI-Autoren angegeben ist, wird hier auf eine separate Einzelaufzählung verzichtet. Genannt seien nur die Gesamtzahlen der aufgelisteten BENSC-Veröffentlichungen:

BENSC-Veröffentlichungen in referierten Journalen und Büchern	Gesamt (Gastgruppen + HMI)
Nachtrag für 1998/1999	10
Erscheinungsdatum 2000	280

Anzahl der Beiträge 2000 auf Konferenzen und in Seminaren	390
davon	
- Eingeladene Vorträge	90
- Sonstige Vorträge	130
- Posterbeiträge	170

### Drittmittel für Gästebetrieb BENSC

- Europäische Kommission  
Human Potential Programme, TMR-LSF  
(contract ERB FMGE CT950060):  
European Access to BENSC,  
(4/1996-4/2000), (Gesamtbetrag über 4 Jahre:  
1638 000 Euro)
- Europäische Kommission  
Human Potential Programme, Transnational  
Access to Research Infrastructures, IHP-ARI  
(contract HPRI-1999-00020):  
European Access to BENSC-BER2,  
(2/2000-1/2003), (Gesamtbetrag über 3 Jahre:  
1500 000 Euro)
- Europäische Kommission  
TMR-Concerted Action (ERB FMGE CT970091)  
"Neutron Round Table"  
(Mittelabrechnung über Risø National Lab.)
- Verbundforschung  
(über die Universitäten Tübingen und Darm-  
stadt)  
Betrieb der Instrumente E2 und V1  
Personalmittel für ½ Techniker und je einen  
Wissenschaftler.

### Experimente der Bestrahlungsanlage B8

Im Berichtsjahr wurde die Bestrahlungsanlage B8, die für Bestrahlungen von Gemälden mit kalten Neutronen optimiert ist, organisatorisch und inhaltlich BENSC angegliedert. Die Verantwortung für das Instrument und die Betreuung der Projekte/Kooperationen wurden nach dem Ausscheiden von Dr. C.O. Fischer von Frau Dr. Schröder-Smeibidl übernommen.

Die Langzeitkooperation (C. Laurenze-Landsberg, C. Schmidt, Prof. Kelch) mit den Staatlichen Museen zu Berlin, der Gemäldegalerie Berlin wurde weitergeführt. Im abgelaufenen Jahr wurden erfolgreich zwei neutronenautoradiographische Bestrahlungen mit anschließender Analyse durchgeführt. Bestrahlt wurden die Gemälde "Das Konzert" des niederländischen Genremalers Gerard ter Borch (1617 – 1681), entstanden um 1675, und das Gemälde „Raub der Proserpina“ von Harmensz van Rijn Rembrandt (1606 – 1669), entstanden um 1630. In beiden Fällen dienten die Bestrahlungen der Unterstützung und Dokumentation des Prozesses der Restaurierung. Die Interpretation der Autoradiographien ist noch nicht abgeschlossen. Fortgesetzt wurde auch die Kooperation mit dem Geoforschungszentrum Potsdam (Prof. Römer). Auch hier wurden mehrere Bestrahlungen an Bohrkernen durchgeführt. Es konnte der Bor-Gehalt in Gesteinsmaterial, das von Fluiden durchzogen ist, bestimmt werden. Aus der Bor-Konzentration erhält man Aussagen über die Entstehungsgeschichte der Gesteine.

In einem weiteren Projekt mit dem Beschleunigerlabor der LMU/TU München wurden hochreine Kupferfolien mit kalten Neutronen bestrahlt, um eine experimentelle Obergrenze für den Wirkungsquerschnitt der Reaktion  $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$  zu erhalten. Im

Rahmen einer Doktorarbeit des strahlenbiologischen Instituts der LMU München (G. Rugel, Prof. Kellerer) soll in einer Retrospektive die Neutronendosis der Atombombenüberlebenden von Hiroshima ermittelt werden. Der Wirkungsquerschnitt der  $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ -Reaktion wird nach der Bestrahlung durch die direkte Messung des Anteils an entstandenem  $^{63}\text{Ni}$  mit Beschleunigermassenspektrometrie am Beschleunigerlabor in Garching bestimmt. Die Auswertungen dauern noch an. Hintergrund der Untersuchungen ist die Vermutung, daß die Neutronendosis in Hiroshima stark unterschätzt worden sein könnte. Wegen seiner Halbwertszeit ( $^{63}\text{Ni}$ ,  $\tau \sim 100$  a) kann auch heute noch in damals der Bombe ausgesetzten Cu-Teilen das durch schnelle Neutronen erzeugte Ni-Isotop nachgewiesen werden. Sollte die Vermutung sich bestätigen lassen, müßten die gegenwärtigen Risikoabschätzungen im Strahlenschutz neu überdacht werden.

### Ertüchtigung von Komponenten der Bestrahlungsanlage B8

Durch technische Verbesserungen konnte die Abschirmung der Anlage deutlich verbessert werden, so daß der Einfluß auf benachbarte Experimente verringert werden konnte. Außerdem wurde im Berichtsjahr eine grundlegende Modernisierung des Instruments begonnen. Schrittweise werden Komponenten insbesondere bei der Gammaspektroskopie erneuert und den Erfordernissen, die wertvolle Gemälde an das experimentelle Umfeld stellen, angepasst.

---

Die wissenschaftlichen Ergebnisse des Jahres 2000 aus den BENSC-Aktivitäten der Abteilungen SF1 – SF3 befinden sich in den entsprechenden Abschnitten SF1 – SF3 des Berichtes.



# NAA-Labor und Bestrahlungsdienst am BER II

Verantwortlich: Prof. Dr. D. Behne

Der Bestrahlungsdienst am BER II und das Labor für Neutronen-Aktivierungsanalyse (NAAL) stellen Experimentiertechniken zur Verfügung, bei denen kernchemische Reaktionen mit Neutronen ausgenutzt werden.

Anwendungsgebiete sind:

- Neutronen-Aktivierungsanalyse (NAA) zur Spurenelementanalytik in Medizin, Umwelt und Reinstoff-Forschung.
- Erzeugung von radioaktiven Quellen und Tracern für Mößbauer-Spektrometrie, gestörte Winkelkorrelation und verschiedene Tracertechniken.
- Elementumwandlung in Festkörpern und Erzeugung von Strahlenschäden für die Halbleiterforschung.

**Externe Nutzergruppen insgesamt 20**

## Anwendungsgebiete

NAA	13 (65 %)
Quellen/Tracer/Strahlenschäden	7 (35 %)

**Zahl der Einzelprojekte 10**

(Anzahl der neuen Bestrahlungsanträge, in denen jeweils eine bestimmte Matrix charakterisiert wird und die Grenzwerte für die Bestrahlungsparameter definiert werden)

## Anwendungsgebiete

NAA	3 (30 %)
Quellen/Tracer/Strahlenschäden	7 (70 %)
Herkunft der Nutzer	
HMI (Abt. SF6)	4 (40 %)
externe Nutzer	6 (60 %)
(incl. anderer HMI-Gruppen)	

**Ausgeführte Bestrahlungsexperimente 219**

(Bei Langzeitbestrahlungen werden in einem Experiment simultan bis zu 24 Einzelproben bestrahlt. Bei der Verwendung der beiden Kurzzeit-Bestrahlungsvorrichtungen umfaßt ein Experiment die sequenzielle Bestrahlung von bis zu 50 Proben)

## Anwendungsgebiete

NAA	190 (87 %)
Quellen/Tracer/Strahlenschäden	29 (13 %)
Herkunft der Nutzer	
HMI (Abt. SF6)	51 (23 %)
externe Nutzer	168 (77 %)
(incl. anderer HMI-Gruppen)	

**Langzeitbestrahlung biologischer Proben für die NAA (1140 Einzelproben) 56**

Herkunft der Nutzer	
HMI (Abt. SF6)	42 (75 %)
externe Nutzer	14 (25 %)

## Liste der Gäste des NAA-Labors 2000 und bearbeitete Themen

Artinger, R.:

FZK, Karlsruhe

**Aktivierung von FE**

Berger, A.:

Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung, BAM, Fachgruppe I.4

**Antimon in Silizium**

**Spurenelemente in Wolfram**

**Kupfer**

Hafner, S., Stanek, J.:

Universität Marburg, Institut für Mineralogie

**Aktivierung von Mg<sub>3</sub>TeO<sub>6</sub>**

Hans, M.:

Universität Marburg Fachbereich Mikrobiologie

**W und Mo in Enzymen**

Henkelmann, R.; Lin, X.:

TU München, Institut für Radiochemie

**Flusssonden (Bestimmung des Neutronenspektrums in der DBVK)**

**Spurenelementbestimmung in Haaren**

**Spurenelemente in NaCl-Lösungen, nach Auslaugversuchen**

Jentsch, T.:

TU Dresden, Institut für Strahlenschutzphysik

**Spurenelemente in Glasmaterial**

Mayer, O.:

Universität Bayreuth, Mikrobiologie

**Se, Mo, Fe in Enzymen (Kohlenmonoxid-Dehydrogenase)**

Nopitsch, K.:

Siemens, Erlangen, Abt. NT2

**Aktivierung von Argon**

Ortega, R., Deves, G.:

CNRS, Bordeaux

**Spurenelemente in Reis und Bodenproben**

Pich, A.:

Universität Halle, Institut für Mikrobiologie

**Metalle in Enzymen (AOR)**

Pomper, B.:

MPI Marburg

**Mo, W in Enzymen**

Popa, I.; Riederer, I.:

Rathgen Forschungslabor, Berlin

**Spurenelementanalyse von Ockerpigmenten**

Rätzke, K.:

Universität Kiel

**Aktivierung Silber**

Rittweger, J.:

FU Berlin, Inst. für Physiologie

**Spurenelemente in Primatenknochen**

**Rösch, F.:**  
Universität Mainz; Institut für Kernchemie  
**Aktivierung von Yb**  
**Aktivierung von Wolfram**  
**Aktivierung von Zr-Granulat**

**Seher, A.:**  
BASF, Ludwigshafen  
**Aktivierung von Argon und Natrium für Trace-**  
**untersuchungen**

**Tröger, W.:**  
Universität Leipzig  
**Aktivierung von Zirkonwolframat**

**Vivoli, G.:**  
Universität Modena  
**Spurenelemente in Fußnägeln ALS-Studie (A-**  
**myotrophic Lateral Sclerosis)**

**Voitsch, A.:**  
Schott Glas, Jena  
**Bestimmung des Chlorgehaltes in Quarzglas**  
**Spurenelemente in Quarzglas**

**Vorholt, J.:**  
Universität Marburg  
**Mo, W in Enzymen (Nitrogenasen)**

Die wissenschaftlichen Ergebnisse des Jahres 2000 der Abteilung SF6 befinden sich in dem entsprechenden Abschnitt des Berichtes.

- Hochenergie- $\gamma$ -Meßplatz für PIXE (Proton Induced X-Ray Emission),

für die Materialmodifikation

- Folienbestrahlungsplatz,
- Hoch- und Tieftemperaturplatz,
- $\mu$ -Metallkammer mit Elektronenspektrometer,

für die Arbeiten mit nuklearen Sonden

- $\beta$ -NMR Platz,
- Mößbauerspektroskopie,
- Meßplatz für PAD (Perturbed Angular Distribution),
- Aktivierungsplatz für PAC Isotope (Perturbed Angular Correlation),

für medizinische Anwendungen

- Protonentherapie von Augentumoren,

außerdem

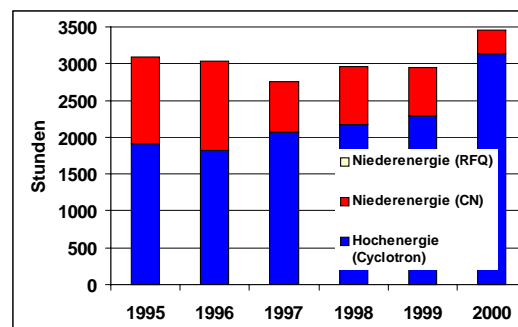
- Senkrechtstrahlplatz und
- große Streukammer

Zusätzlich sind an der ECRIS4 noch 4 Targetplätze für extrem langsame Ionen vorhanden.

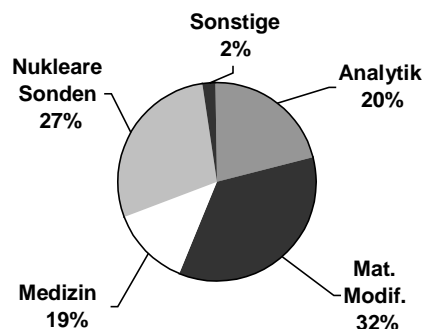
### Nutzung im Berichtszeitraum

Rund 3200 Stunden Strahl am Target wurden im Jahre 2000 abgeliefert, davon mehr als 750 mit dem neuen RFQ Injektor.

### Anteil der Nieder- und Hochenergiestrahlen an der Strahlzeit



### Nutzungen nach Sachgebieten



## ISL

## Ionenstrahllabor Berlin

Verantwortlich: Dr. H. Homeyer

Das Ionenstrahllabor ISL bietet Gästen deutscher und ausländischer Forschungsinstitute sowie industriellen Forschungsgruppen die Nutzung seiner Beschleuniger und experimentellen Einrichtungen an. Es ist ein Großgerät der Verbundforschung.

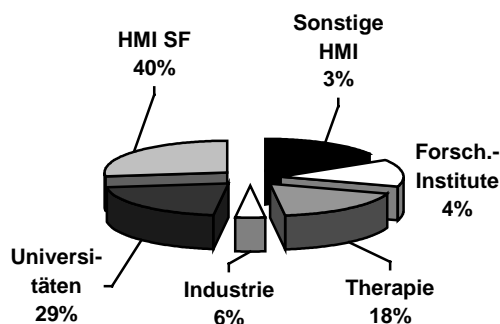
Den Zugang regelt ein mit externen und internen Gutachtern besetzter Nutzerausschuss. Er genehmigt Anträge auf Strahlzeit in Höhe der Kapazität von derzeit 3600 Strahlzeitstunden pro Jahr unter Berücksichtigung der wissenschaftlichen Qualität der Experimentenvorschläge.

Nutzern werden die Strahlen vom ISL-Personal entsprechend der vom Experiment festgelegten Spezifikation angeliefert. Zur Zeit sind 15 Experimentierplätze betriebsbereit und zwar

für die Ionenstrahlanalytik

- Flugzeitspektrometer für ERDA (Elastic-Recoil-Detection-Analysis),
- Magnetspektrometer (Q3D) für ERDA an extrem dünnen Schichten,
- Streukammer für RBS (Rutherford-Back-Scattering) ,
- Niederenergie- $\gamma$ -Meßplatz für die Wasserstoff-Profilanalyse

## Aufteilung nach Nutzern



21 Forschungsgruppen erhielten Strahlzeit für 40 verschiedene Experimente an den 15 verschiedenen Targetplätzen. Die Aufteilung der Strahlzeit nach Sachgebieten und Herkunft der Nutzer zeigen die nebenstehenden Graphiken: Es wird deutlich, dass die Schwerpunkte der Anwendungen von hochenergetischen Ionenstrahlen, die **Analytik**, die **Materialmodifikation**, die **Therapie** und die **Forschung mit nuklearen Sonden** fast gleiche Anteile an der Strahlzeit erhalten. Bei der Analytik sind besonders die **Hochenergie-ERDA** und die **charakteristische Röntgenemission** induziert durch **hochenergetische Protonen** wegen der spezifischen Ergebnisse besonders interessant.

Nach der Eigennutzung (gesamter HMI Anteil 43%) haben Universitätsgruppen und die Therapie den größten Anteil an Strahlzeit.

Bei den Forschungsgruppen der Universitäten wiederum haben Forschungsthemen zur Materialmodifikation und zur Ion-Festkörper-Wechselwirkung an Bedeutung gewonnen. Der Anteil der Gäste beträgt jetzt nahezu 60%. Hier zeigt sich die weiterhin zunehmende Attraktivität der Anlage für externe Nutzer, wobei die Nachfrage nach Hochenergiestrahlen bei weitem überwiegt. Für einen Großteil der Nutzer werden Analysen und Bestrahlungen vom ISL Personal erbracht.

Im Rahmen der Therapie wurden in den bisher 2.5 Betriebsjahren 166 Patienten bestrahlt.

FuE Vorhaben in Zusammenarbeit mit der Industrie konzentrieren sich weiterhin auf die Bestrahlungen von Polymerfolien zur Produktion von Mikrofiltern einmaliger Qualität. Die neuen Anwendungsgebiete erfordern spezifische Bestrahlungstechniken, die hier erstmalig erprobt werden.

### Veröffentlichungen der ISL-Gastgruppen

Zur Drucklegung lagen die Beiträge noch nicht vor.

Die wissenschaftlichen Ergebnisse des Jahres 2000 der Abteilung SF4 befinden sich in dem entsprechenden Abschnitt des Berichtes.



**Abteilung**

**SF1 Methoden und Instrumente**



Die Wissenschaftler der Abteilung betreuen einen wesentlichen Teil des Nutzerbetriebs bei BENSC. Hierzu gehören der Aufbau, Betrieb und die laufende Modernisierung etwa der Hälfte des Instrumentenparks am Reaktor BER II. Mit besonderem Nachdruck wird dabei die Erweiterung der Leistungsfähigkeit von BENSC auf dem Gebiet der Untersuchung komplexer und nanostrukturierter Materialien und unter extremen Bedingungen, wie sehr hohe Magnetfelder und sehr niedriger Temperaturen verfolgt.

Schwerpunkt der Forschungstätigkeit ist die Entwicklung neuer Methoden der Neutronenstreuung für Neutronenquellen der Zukunft. Dabei liegt ein besonderer Akzent auf der Entwicklung von Spallationsquellen sowie daran angepasster Instrumentierungskonzepte. Dieser Schwerpunkt wird in einer breiten internationalen Zusammenarbeit verfolgt, wobei das HMI diese Zusammenarbeit als „leitendes Laboratorium“ im Rahmen des Projektes „European Spallation Source (ESS)“ koordiniert. Diese Arbeiten werden ergänzt durch kernphysikalische Untersuchungen zum Spallationsprozess mit hochenergetischen Protonen und sind eingebunden in ein HGF-Strategiefondsprojekt, das gemeinsam mit dem FZJ durchgeführt wird.

Andere wichtige Themenkreise bei der Erforschung neuer Methoden der Neutronenstreuung sind die Entwicklung leistungsfähigerer Neutronenpolarisatoren und neuartiger Polarisatorsysteme, die Erweiterung der Anwendungsmöglichkeiten von höchstauflösender Neutronenspektroskopie, insbesondere zur Untersuchung elementarer Anregungen und sehr langsamer, bisher nur optischer Spektroskopie zugänglicher atomarer Prozesse, die Anwendung von Neutronenreflektometrie in der Untersuchung von Oberflächen und Grenzflächen, insbesondere in Schichtsystemen.

Neue Aspekte dieser Entwicklungen sind Ansätze und Techniken für die Anwendung von Röntgenstrahlung in der Erforschung kondensierter Materie. Dabei werden hauptsächlich die Übertragung der Methoden inelastischer Neutronenstreuung auf Röntgenstreuung im Hinblick auf zukünftige Quellen mit erhöhter Luminosität untersucht.

Im Rahmen der Eigenforschung auf dem Gebiet der Physik der kondensierten Materie werden mit Nachdruck kollektive Phänomene in komplexen, stark ungeordneten und mesoskopisch strukturierten Materialien untersucht. Dabei werden kollektive Anregungen und Relaxation in Spingläsern und anderen komplexen Strukturen ebenso studiert wie Diffusion und Materialtransport in biologisch relevanten Systemen und Prozesse von Selbstorganisation in komplexen Flüssigkeiten.

## BENSC – Aktivitäten

### BENSC-Instrumentbetreuung

Die Abteilung SF1 betreut im Rahmen des BENSC-Nutzerbetriebs folgende Instrumente:

(E8 )	Einkristalldiffraktometer, TFH Berlin
V2	3-Achsenspektrometer FLEX
V3	Flugzeitspektrometer NEAT
V5	Spinecho-Spektrometer SPAN
V6	Reflektometer
V9	Perfect Crystal Neutron Interferometer
V11	$\beta$ -NMR, Uni Hannover
V12a	Doppel-Kristall-Diffraktometer
V12b	„-“, TFH Berlin
V13	Meßplatz Grundlagen-Physik
V14	Meßplatz Neutronenspiegel

sowie der Standard-Probenumgebungen, Neutronenleiter und Entwicklung der Superspiegel.

### Entwicklung neuer Methoden der Neutronenstreuung

Der Anspruch, die Untersuchung kondensierter Materie mit Neutronenstreuung im HMI auf hohem Niveau zu halten und den Nutzern gleichzeitig hochwertige Meßmöglichkeiten anzubieten, setzt ständige, vielseitige Forschungstätigkeit auf methodisch-instrumenteller Ebene voraus. Tradition haben in der Abteilung vor allem Entwicklungen auf dem Gebiet polarisierter Neutronen (Neutronen-Spin-Echo-Spektroskopie, Neutronen-Superspiegel, fortgeschrittene Neutronenoptische Systeme), die Weiterentwicklung eines Neutronenstrahls für Anwendungen in der Grundlagenphysik (elektrisches Dipolmoment und Lebensdauer von Neutronen) sowie zur Untersuchung der Dynamik von  $\text{He}^3$  in schwach konzentrierten Lösungen. Die Weiterentwicklung der Neutronen-Spin-Echo-Spektroskopie umfasst sowohl Methoden zur Erhöhung der Strahlintensität und Erweiterung des Wellenbereichs, als auch die Erweiterungen der Anwendungen auf die Untersuchung von langlebigen angeregten Zuständen in Isolatoren und Halbleitern.

Weiterentwicklung des Neutronen-Spin-Echo-Spektrometers SPAN (V5)

Im Jahr 2000 wurde die Zahl der mit remanenten Superspiegel ausgestatteten Detektoren von 18 auf 34 erhöht, so daß Anfang 2001 eine dritte Detektorbank für NSE Messungen in Betrieb genommen werden kann. Dadurch werden zum ersten Mal NSE Messungen simultan um drei unabhängige Streuwinkel möglich.

Durch den Einbau eines neuartigen Neutronen Geschwindigkeitselektors wurde auch der Wellenlängenbereich zwischen 2.5 Å und 3.8 Å für Messungen zugänglich. Damit kann jetzt die gesamte Wellenlängebreite des Neutronenleiters NL4a ( $2.5 \leq \lambda \leq 10$  Å) für NSE und TOF Messungen benutzt werden. Bei  $\lambda_{\min}=2.5$  Å können Messungen bis zu  $Q_{\max} = 5 \text{ Å}^{-1}$  durchgeführt werden. Die aktuelle Magnetfeldkonfiguration von SPAN erlaubt NSE-Messungen in einem Energiebereich von

$1.2 \text{ meV} \geq \omega \geq 2.4 \text{ } \mu\text{eV}$  bei  $\lambda = 2.5 \text{ } \text{\AA}$  und  
 $29 \text{ } \mu\text{eV} \geq \omega \geq 58 \text{ neV}$  bei  $\lambda = 10 \text{ } \text{\AA}$ .

#### Weiterentwicklung des Reflektometers

Für Festkörper-Proben steht nun ein amagnetischer Drehtisch zur Verfügung. Hiermit kann der Azimutwinkel der Probe zwischen  $0^\circ$  und  $360^\circ$  mit einer Genauigkeit von ca.  $0.1^\circ$  eingestellt werden. Mögliche Anwendungen sind hier die Bestimmung von magnetischen oder strukturellen in-plane-Anisotropien.

Für magnetische Untersuchungen wurde ein Gaussmeter installiert, mit dem auch während der Messungen das äußere Magnetfeld kontrolliert werden kann. Dies ist z. B. für Experimente an Proben wichtig, die einen sogenannten „exchange-bias“-Effekt zeigen. Bei diesen Proben müssen relativ kleine Magnetfelder (ca. 20 Gauss) genau eingestellt und kontrolliert werden. Das Gaussmeter kann mit der Steuer-Software CARESS ausgelesen werden.

Sämtliche Motoren zur Steuerung des Monochromators wurden in die Steuer-Software CARESS eingebunden und können nun automatisch gefahren werden.

Die alten Graphit-Monochromator-Kristalle mit einer Mosaizität entsprechend  $\Delta\lambda/\lambda = 8\%$  wurden durch solche mit einer Mosaizität von  $\Delta\lambda/\lambda = 2\%$  ersetzt und so die Intensität um 20% erhöht. Die Schwierigkeit bestand dabei darin, die einzelnen Kristalle auf  $0.1^\circ$  genau zu justieren. Dies konnte durch eine spezielle Montagehilfe für das Aufkleben der Kristalle erreicht werden. Die Kontrolle erfolgte optisch mittels Laser-Reflektometrie.

#### Dreiachsenspektrometer FLEX 2)

Die mit der NRSE-Option durchgeführten Experimente zeigten, daß einige Komponenten Potential zur instrumentellen Weiterentwicklung besitzen.

Wird FLEX mit der NRSE-Option ausgestattet, werden die Spinecho-Arme als unabhängige Elemente zwischen Monochromator und Probe sowie Probe und Analysator eingefügt. Die Positioniergenauigkeit des Dreiachsenspektrometers FLEX bleibt dabei voll erhalten. Optimierungsbedarf bestand hinsichtlich der Anpassung der Pneumatiksteuerung der Spinecho-Arme. Mit Abschluß der Arbeiten im ersten Halbjahr 2001 ist die NRSE-Option voll durch die Pneumatik von FLEX ansteuerbar. Die Luftfüße werden dann nur für die Dauer einer Spektrometerbewegung unter Druckluft gesetzt.

Mit der Umstellung der Spulen Kühlung von hausinternem  $20^\circ$ -Kühlwasser auf einen eigenen Sekundärkühlkreislauf wurde begonnen. Es wird erwartet, daß eine Steigerung des maximalen Spinecho-Felds (technisch durch Kühlung begrenzt) möglich wird.

Zur Erweiterung der nutzbaren Strahlintensität wird derzeit in Zusammenarbeit mit dem Max-Planck-Institut Stuttgart ein neuer Satz von Hochfrequenz-Spinflippern entwickelt, der den Strahlquerschnitt von  $30 \times 30 \text{ mm}^2$  (bei  $45^\circ$  Kippwinkel) auf  $35 \times 50 \text{ mm}^2$  erweitern wird. Die Konstruktion lag hierbei beim MPI für Festkörperphysik, Stuttgart. Sie ist abgeschlossen, sodass der Beginn der Fertigung in der HMI-Zentralwerkstatt im Januar 2001 mit der Herstellung eines Prototypen beginnt, anhand dessen Fragen zu konstruktiven Details und Materi-

alfragen beantwortet werden können, bevor die endgültige Fertigung der vollen Stückzahlen erfolgt. Teil dieses Projekts ist die Fertigung von Leistungs-HF-Elektronik zur Impedanzanpassung an die neuen HF-Spinflipper-Spulen, die weitestgehend abgeschlossen ist.

In Zusammenarbeit mit T.M. Rekvelde und W. Bowman von der TU-Delft konnten durch Spinecho erweiterte Kleinwinkelstreuung (SESANS) und durch Spinecho erweiterte Reflektometrie mit dem bestehenden NRSE-Aufbau experimentell getestet werden, ebenso wie die Larmor-Diffraktionsmethode für Problemstellungen der Materialforschung. Das Interesse galt hier der Verteilung von Gitterkonstanten einer mechanisch deformierten und anschließend thermisch behandelten Al-Legierung. Die Ergebnisse lassen Rückschlüsse auf mikroskopische Prozesse zu, an denen zwei koexistierende Gitterverteilungen beteiligt sind.

Mit der Larmor-Diffraktion wurde ferner eine Problemstellung aus der Strukturforschung, nämlich die Existenz einer trigonalen Gitterdeformation in CoO experimentell untersucht.

Die Verteilung von Gitterkonstanten einer Probe von interkaliertem Graphit - ein vielversprechendes Monochromatormaterial wurde ebenfalls in Larmordiffraktionsexperimenten untersucht. Bei großer Mosaizität ( $\eta \approx 3.5^\circ$ ) besaß die untersuchte Probe eine unerwartet scharfe Gitterkonstantenverteilung im Bereich  $\Delta d/d = 2 \times 10^{-3}$ .

#### Flugzeitspektrometer NEAT (V3)

Im Rahmen der Weiterentwicklung der Flugzeitmethode wurde ein Teil der Strahlzeit für Test und Inbetriebnahme bis dahin ungenutzter Möglichkeiten des Spektrometers verwendet, und zwar Flugzeitdiffraktion mit 140 Einzeldetektorbänken, sowie inelastische Streuexperimente unter Verwendung des zweidimensionalen Multidetektors bei kleinen und bei großen Streuwinkeln.

Flugzeitdiffraktion: Es konnte gezeigt werden, daß mit einem breiten einfallenden Wellenlängenband (ca. 1.8 bis  $20 \text{ } \text{\AA}$ ) Strukturen mit großen Gitterkonstanten sehr gut untersucht werden können, was insbesondere für die 'in situ' Struktur-Analyse biologischer Membranen, im Rahmen inelastischer Streuexperimente unter identischen Bedingungen von Interesse ist.

Multidetektor bei großen Streuwinkeln: Dieser Detektor erlaubt die Verwendung höherer Energieauflösung, gleichzeitig (auf Grund der 4096 Detektorelemente) mit besserer Auflösung im Q-Raum. Dies konnte durch die Untersuchung der kritischen inelastischen Streuung im Zusammenhang mit einem kommensurabel-inkommensurablen Phasenübergang, in der Umgebung eines Satelliten Peaks demonstriert werden. Dabei gelang erstmalig die Zerlegung eines 'zentralen' Peaks in eine elastische und eine nicht-elastische Komponente.

Multidetektor bei kleinen Streuwinkeln: Im Kleinwinkelbereich konnte zunächst die Meßbarkeit zweier bekannter Strukturen (ein poröses Glas und ein Protein) bestätigt werden. Bei der inelastischen Streuung stehen wegen der hohen Anforderungen an den Untergrund noch Entwicklungsarbeiten an.



F. Mezei, W. Jauch, Th. Krist, R. E. Lechner, C. Pappas, P. Vorderwisch, K. Habicht, J. Peters, M. Strobl, A. Triolo, H.-J. Peschke, R. Kischnik, H. Fritzsche; G. Steiner, K.H. Degenhardt, Y. Liu, J.

Ollivier, B. Rufflé, J. Pieper, A. Desmedt, J. Hauschild, R. Gatty, E. Hoinkis

## Spallation

*Dieses Projekt wird im wesentlichen im Rahmen des HGF-Strategiefonds Projektes "Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zum Bau der gepulsten Europäischen Spallations-Neutronenquelle ESS", Teilprojekt Instrumente, durchgeführt.*

### Softwareentwicklung von neuen Instrumentierungsansätzen, "Flugsimulator" für virtuelle Instrumente

*Ziel des Vorhabens ist die Verbesserung und Erweiterung der Leistungsfähigkeit der Instrumente für Spallationsquellen auf allen Gebieten der Forschung mit Neutronenstrahlen, insbesondere für Anwendungen, die heute noch an Reaktorquellen weitaus besser bedient werden. Für die Konzeption und den Bau effizienter Instrumente sollen Computerprogramme entwickelt werden, die es erlauben, den Neutronenflug vom Target/Moderator bis zum Detektor zu simulieren. Durch solche "Flugsimulatoren" sollen verschiedene experimentelle Anforderungen und Quellenparameter untersucht werden. Diese Arbeiten werden*

VITESS wurde für das ESS-Projekt weiterentwickelt. Es wurde eingesetzt, um z.B. die Kombination Moderator-Instrument zu optimieren. Daher wurden verschiedene Target-Stationen angewendet, um den Vorschlag für den gleichzeitigen Betrieb zweier Target-Stationen, z.B. eine mit kurzen Pulsen (SPSS) und eine mit langen Pulsen (LPSS), zu bewerten.

Das Programm simuliert das Verhalten eines Neutronenstrahls mit der Monte-Carlo-Methode (MC). VITESS hat eine praktische modulare Struktur. Es besteht aus unabhängigen ausführbaren Programmen (Neutronenleiter, Chopper, Probe etc.). Jedes Modul ändert die Orts- und Geschwindigkeitskoordinaten der eingehenden Neutronen in Abhängigkeit der für dieses Modul eingestellten Parameter und gibt sie (für das Folgemodul) wieder aus. Diese Daten können an jeder Stelle des Instruments ausgegeben (und statistisch bearbeitet) werden.

Das Programm wurde - wie auch während seiner mehrjährigen Entwicklungszeit - durch Simulation einiger Neutronenstreu-Instrumente getestet:

- hochauflösende Kristall-Analysatoren,
- Rückstreu-Spektrometer,
- Spektrometer für Kleinwinkelstreuung (SANS),
- Flugzeit-Instrumente (TOF),
- Pulver-Diffraktometer,
- Neutron-Spin-Echo-Instrumente (NSE),
- Reflektometer.

Beispielsweise konnte aus MC-Simulationen eines Kristall-Analysators oder -Monochromators mit VITESS die genaue Auflösungsfunktion eines Rückstreu-Spektrometers berechnet werden.

Der Vergleich von Moderatoreigenschaften war ein wichtiges Anwendungsgebiet der Instrument-Modellierungen. Das HERMES Projekt am LANSCE in Los Alamos wurde durch MC-Modellrechnungen unterstützt, die zuerst für Experimente an der IRIS am ISIS eingesetzt wurden.

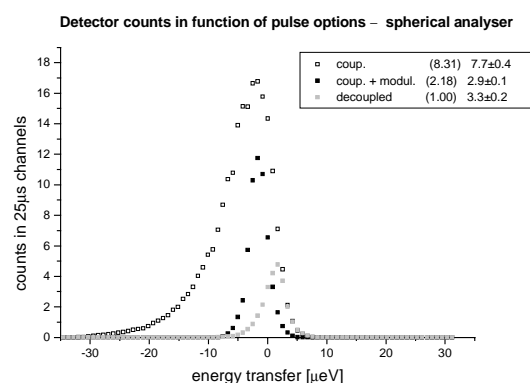


Abb. 1: Pulsformen von 3 Varianten eines LH2-Moderators (entkoppelt-vergiftet, gekoppelt, gekoppelt mit Chopper) wurden zur Bestimmung von Auflösung und Intensitätsverhältnissen simuliert:

Bestehende und geplante SANS-Spektrometer wurden für 3 verschiedene Quellen - kontinuierlich (CW), SPSS, LPSS - miteinander verglichen, um die Leistungsfähigkeit zu erhöhen. Die Simulation des SANS-Instrument V4 am HMI erbrachte hervorragende Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen.

Eines der Ziele des VITESS-Projekts ist es, eine umfassende Studie zu NSE und Instrumenten mit polarisierten Neutronen vorzulegen, denn MC-Rechnungen liefern Informationen, die experimenteller Beobachtung oft nicht leicht zugänglich sind, z.B. die Wellenlängenabhängigkeit der Wirksamkeit von Spin-Flippern, bestimmte Korrelationen im gesamten Instrument oder Details der Wirkung von Streufeldern. Begonnen wurde 2000 mit der Simulation des TOF-NSE-Instrument (IN15), des IN11 und SPAN am HMI.

MC-Simulationen sind für ein TOF-Pulver-Diffraktometer an einer CW- und einer LPSS-Quelle durchgeführt worden. Danach ist ein solches Instrument am KFKI in Budapest gebaut worden. Die Ergebnisse der ersten Messungen sind in hervorragender Übereinstimmung mit der für dieses Instrument berechneten Auflösung.

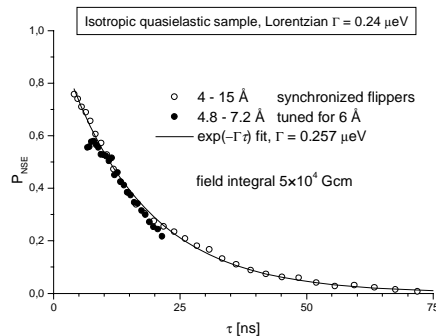


Abb. 2: Ein Vergleich der synchronisierten und abgestimmten Spin-Flipper lässt Schlüsse auf den Wellenlängenbereich zu, in dem NSE-Experimente noch eine gute Annäherung an die Fouriertransformierte  $\exp(-\Gamma\tau)$  der Lorentzlinie liefern.

MC-Simulationen zu den Bedingungen für eine verbesserte Intensität und Auflösung des Reflektometers am HMI wurden 2000 begonnen.

F. Mezei, K.Lieutenant, F.Streffer, D. Wechsler, G. Zsigmond

## Entwicklung von Instrument-Prototypen für zukünftige Neutronenquellen

Die Technik der Spallation ist die einzige Möglichkeit, um wesentlich über der Leistung existierender Neutronenquellen hinauszugehen. Bisher sind Instrumentierungseinsätze nur für einen Teil der Neutronenstreuexperimente für Spallationquellen konkurrenzfähig ausgearbeitet, getestet und implementiert worden. Ziel des Vorhabens ist es, die Instrumentierungskonzepte für den Einsatz an Spallationquellen experimentell auszuarbeiten und zu testen, um sie später auf Gebieten anzuwenden, auf denen vorher nur Reaktoren benutzt wurden.

### Flugzeitdiffraktometer

Die Arbeiten zur Erprobung des Flugzeitmonochromatorkonzepts für hochauflösende Pulverdiffraktion konnten erfolgreich abgeschlossen werden. Hohe Auflösung wurde durch die Anordnung der Detektoren in Rückstreugeometrie erreicht. Neutronen unterhalb von 0.8 Å wurden durch eine geeignete Krümmung des Neutronenleiters eliminiert, da die Gd-Beschichtung der Chopperscheiben für solche Wellenlängen etwas durchlässig wird. Als Testsubstanz wurde eine Probe aus gesintertem Korund gewählt. Zum Vergleich wurde dieselbe Probe auch an dem Standard Pulverdiffraktometer E9 am HMI gemessen. Die Extrapolation der Flugzeit Spektren von der Testinstallation auf ein voll ausgebautes Instrument mit großer Detektorfläche und optimiertem Neutronenleiter liefert einen 8-fachen Intensitätsgewinn zugunsten des Flugzeitdiffraktometers. Dies zeigt klar, daß auch an einem Reaktor Flugzeitmethoden günstiger sein können als monochromatische Methoden. Der Ausbau des Testinstrumentes zu einem vollwertigen Pulverdiffraktometer erfordert in erster Linie eine Optimierung für die Verwendung geringer

Probenmengen. Das bedeutet einen großflächigen Detektor und eine verbesserte Abschirmung.

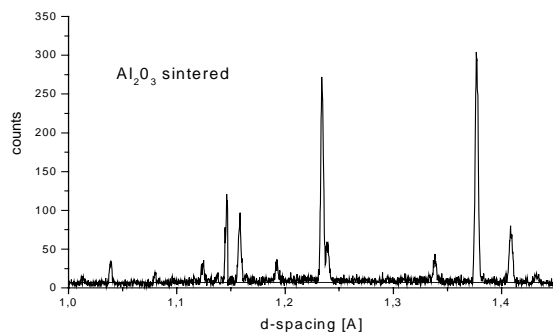


Abb. 3: Pulverspektrum einer  $\text{Al}_2\text{O}_3$  Probe

### Hochauflösendes Flugzeitspektrometer für quasi-elastische Neutronenstreuung an Spallationsquellen

Überlegungen zur Instrumentierung im Rahmen der AUSTRON-Spallationsquellen-Projektstudie (1998), sowie zum ICANS-XV Meeting (2000) führten zur Entwicklung eines Konzepts für hoch-auflösende quasielastische Neutronenstreuung an Spallationsquellen unter Verwendung von Multichopper-Kaskaden vom NEAT-Typ. Wegen der inhärenten Zeitstruktur des Flugzeitspektrometers ist diese Technik für die Anwendung an Spallationsquellen geradezu prädestiniert. Die Parameter der Kaskade müssen natürlich an die Gegebenheiten der Quelle angepaßt werden. Dafür gibt es in Abhängigkeit von der Wahl des instrumentellen Arbeitsbereichs viele Möglichkeiten. Eine Analyse auf der Basis des Kriteriums, daß der gleiche oder ein ähnlicher Auflösungsbereich erzielt werden soll wie am Spektrometer NEAT, zeigte erstens die Machbarkeit. Zweitens wurde dabei die Möglichkeit eines enormen Intensitätsgewinns gegenüber existierenden Instrumenten dieses Typs sichtbar, welcher an jeder der zur Zeit geplanten zukünftigen Spallationsquellen einem Gewinnfaktor von wenigstens drei Größenordnungen entspricht, der zum Teil aus der Leistungsfähigkeit der Quelle und zum Teil aus anderen Fortschritten bei der Instrumententwicklung resultiert. Zwei neue Instrumentierungsansätze, die Repetition Rate Multiplication, die die Effizienz der Ausbeute an gepulsten Quellen erhöht, sowie ballistische Neutronenleiter zur Strahlführung, die Verluste entscheidend reduzieren, werden in Zusammenarbeit mit Los Alamos National Laboratory an der weltweit leistungsfähigsten Spallationsquelle am LANL experimentell untersucht. Es ist klar, daß solche Gewinnfaktoren die Leistungsfähigkeit dieses differentiellen Spektromertyps auf ein Niveau heben werden, wie es bisher nur bei integralen Meßmethoden der Diffraktion und Kleinwinkelstreuung bekannt war. Ebenso klar ist, daß dieses Niveau auf dem Gebiet der dynamischen Strukturen dringend benötigt wird, insbesondere dann, wenn es um komplexe biologische Systeme oder solche aus dem Bereich der 'weichen' Materie geht.

F. Mezei, H.J. Bleif, D. Wechsler, R.E. Lechner

## Untersuchungen zur Targetstation einer Spallationsquelle

Derzeitige Spallationsquellen werden mit einer Protonenenergie von maximal 0,8 GeV betrieben. Zur Optimierung und Entwicklung von Hochstromtargets, die nach der ESS-Studie bei deutlich höheren Strahlenergien und Leistungen eingesetzt werden sollen, müssen die derzeitigen Simulationsmodelle überprüft und weiterentwickelt werden. Ziel und Motivation des Projektes ist es, hierfür präzise Daten für protoneninduzierte Spallationsreaktionen zu messen und existierende theoretische Modelle bzw. Rechencodes so zu verbessern, daß verlässliche Vorhersagen für die Optimierung, Planung und Konstruktion von Spallations-Neutronen-Quellen gemacht werden können. Hierzu sind vor allem in dem bisher nur sehr fragmentarisch untersuchtem Energiebereich von Protonen oberhalb von 1 GeV systematische experimentelle Daten notwendig. Zur Bestimmung von Materialschädigungsparametern und damit Lebensdauer von Fenster- und Strukturmaterialien der Targetstation ist zum Beispiel eine detaillierte Kenntnis der Produktionsquerschnitte von H und He notwendig.

Die Ergebnisse dieses Projektes sind nicht nur für die geplante ESS Spallationsneutronenquelle von Bedeutung sondern auch für mögliche Anlagen zur Transmutation von radioaktivem Abfall sowie beschleunigergetriebene unterkritische Reaktoren zur Energiegewinnung.

Die Forschungsarbeiten am HMI sind Teil einer Zusammenarbeit und Arbeitsteilung auf nationaler und internationaler Ebene, insbesondere im Rahmen eines gemeinsamen HGF-Strategiefonds-Projektes mit dem FZ Jülich.

Die 1998/99 von der NESSI-Kollaboration (HMI, FZJ, GANIL, Rochester, Warschau) am COSY-Beschleuniger in Jülich durchgeführten Experimente zur Messung von Neutronen in dicken und dünnen Targets sowie von geladenen Teilchen in dünnen Targets wurden ausgewertet und mit verschiedenen theoretischen Modellen verglichen.

Die Auswertung der Neutronen-Multiplizitätsverteilungen und Produktionsquerschnitte an einer Großzahl (160) verschiedener Targetgrößen (0.2-35cm lange Zylinder mit 8-15cm Durchmesser) aus W, Hg und Pb für 0.4, 0.8, 1.2, 1.8 und 2.5 GeV Protonen ist abgeschlossen und die Ergebnisse sind publiziert. Damit steht den Entwicklern von Hochenergie Transport Codes (HETC) ein einmalig detaillierter Datensatz für Benchmark-Tests zur Verfügung. Das besondere der NESSI-Daten ist, dass nicht nur –wie bisher üblich– der Mittelwert der Neutronenmultiplizität bestimmt wurde sondern die Wahrscheinlichkeitsverteilung in einer Spallationsreaktion  $x$  Neutronen zu emittieren. Erste Vergleiche der Ergebnisse von HETC-Programmsystemen wie z.B. LAHET, HERMES, FLUKA ergaben bei einigen Codes relativ gute Übereinstimmung für dicke Targets während für dünne Targets wesentliche Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment existieren.

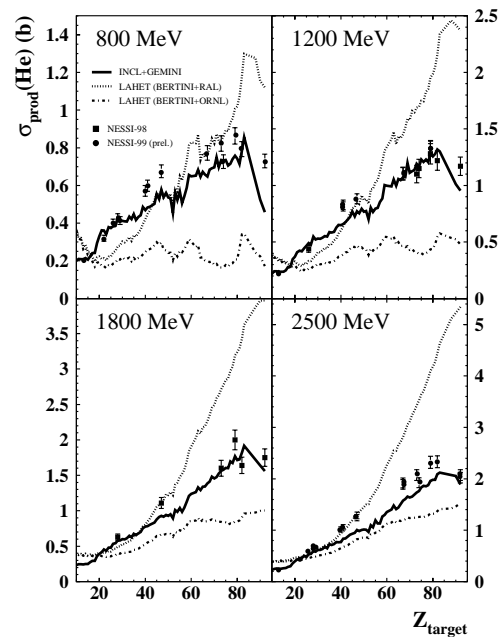


Abb. 4: Vergleich von gemessenen und gerechneten Helium Produktionsquerschnitten für einen großen Bereich von Targetkernen ( $Z_{\text{target}}$ ) und Protonenenergien von 800 – 2500 MeV

Die 1999 gemessenen Produktionsquerschnitte von H und He in 0.8, 1.2 und 2.5 GeV protoneninduzierten Spallationsreaktionen an Targets von Aluminium bis Uran sind im wesentlichen auch ausgewertet. Die experimentellen Daten wurden im Detail mit den Ergebnissen von intranuklearen Kaskaden (INC) Rechnungen mit anschließender Verdampfung im Rahmen des statistischen Modells verglichen. Hierzu wurden zunächst die beiden Programmsysteme LAHET und INCL benutzt. Der LAHET code wurde bisher intensiv für die Abschätzung von Strahlenschäden und die Spezifikationen von Targetstationen für Spallationsneutronenquellen benutzt. Der INCL Code ist eine Kombination des INC-Code von Liege und dem Verdampfungscode GEMINI. Die experimentellen Daten für die Helium Produktion sind in Abb. 4 den Ergebnissen dieser Codes gegenübergestellt. Die LAHET Ergebnisse wurden mit (RAL) bzw. ohne (ORNL) Annahme von anregungsenergieabhängigen Coulombbarrieren im Verdampfungscode berechnet. Beide Optionen des LAHET Codes zeigen eine grosse Diskrepanz zu den experimentellen Ergebnissen. Der neuere INCL Code ist dagegen in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Ähnliche Ergebnisse wurden auch für die Produktionsquerschnitte von H beobachtet.

Da mit den beiden  $4\pi$ -Zählern des NESSI-Detektors auch weitere Observable bestimmt werden können wie z.B. die Anregungsenergieverteilung in Spallationsreaktionen, konnten auch die Ursachen für die Diskrepanzen mit den experimentellen Daten aufgezeigt werden. Allerdings gibt es hier noch experimentelle Probleme bei der Untergrundbestimmung von peripheren Reaktionen. Dies soll in weiteren Experimenten geklärt werden. Ebenfalls sollen auch die Produktionsquerschnitte von einzelnen H- und He-Istopen sowie von Li, Be und B

bestimmt werden wie dies bisher nur für die Reaktion  $p(2.5\text{ GeV}) + \text{Au}$  möglich war.

Neutronen können auch mit Hilfe der Fusionsreaktion  $D(d,n)^3\text{He}$  durch Laserlicht erzeugt werden. Hiermit können im Prinzip extrem kurze intensive Neutronenpulse im Subpikosekundenbereich erzeugt werden und würden somit die zeitliche Untersuchung von Stoßkaskaden im Festkörper mit Hilfe von Puls-Probe Verfahren ermöglichen. Wir haben zusammen mit dem MBI-Berlin die D-d Reaktion zum Studium der Beschleunigungsfelder in laserinduzierten Plasmen in deuterierten Polyäthylen Targets untersucht. Die unter verschiedenen Winkeln relativ zum Laserstrahl gemessenen Neutronenenergiespektren (Abb.5) ermöglichen Aussagen über die Größe und Richtung der elektrischen Felder.

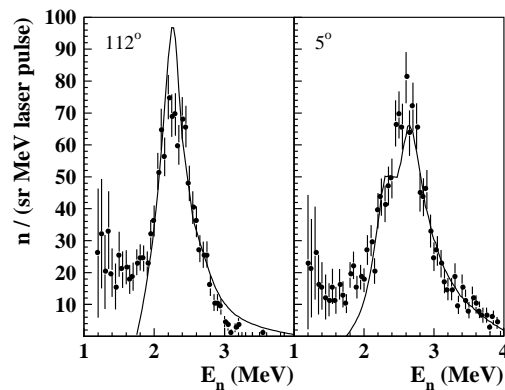


Abb. 5: Neutronenenergiespektren der laserinduzierten  $D(d,n)$  Reaktion in festen Targets im Vergleich mit einer Simulation unter Annahme einer isotropen Beschleunigung der Deuteronen bis zu Energien von 1 MeV.

F. Mezei, D. Hilscher, U. Jahnke, V. Tishchenko, C.-M. Herbach

## Kollektive Dynamik und Diffusion

### Kollektive Dynamik in Materialien komplexer Struktur

*Einsatz der Spektrometer für inelastische Neutronenstreuung zur Messung kollektiver Anregungen und Relaxationen, insbesondere zur Aufklärung folgender Phänomene:*

- Natur des Übergangs in eine magnetische bzw. in eine strukturelle oder dynamische Ordnung unter dem Einfluß starker Unordnung (echte und vermutete Phasenübergänge).
- Martensitischer Phasenübergang (Einfluß einer magneto-elastischen Wechselwirkung).
- Aktuelle Fragen zum Verhalten von Elementaranregungen in kondensierter Materie.

#### Untersuchung der Dynamik in fehlgeordneten magnetischen Systemen

Im Berichtsjahr wurden die Untersuchungen der Spinglass Dynamik mit Neutronen-Spinecho (NSE) fortgesetzt. Das Spinglasssystem  $\text{Au}_{0.86}\text{Fe}_{0.14}$  wurde mit NSE am BENSC Spektrometer SPAN untersucht. Diese Messungen haben Ergebnisse ergänzt, die am ILL-HMI-FZJ Spektrometer IN15 erzielt wurden. Die Kombination beider Experimente erlaubt die Spindynamik in einem Fourierzeit-Bereich vom 4 Größenordnungen zwischen 3 ps und 30 ns zu untersuchen. Dadurch können eindeutige Aussagen zu theoretischen Erwartungen gemacht werden.

Oberhalb der Spinglastemperatur ( $T > T_g$ ) kann die Spin Autokorrelationsfunktion  $q(t)$  durch das Gesetz  $q(t) = t^{-x} \exp(-(t/t)^\beta)$  beschrieben werden. Am  $T_g$  dagegen folgt  $q(t)$  einem einfachen Potenzgesetz:  $q(t) = t^{-x}$  mit  $x=0.12$ . Dieses steht in exzellenter Übereinstimmung mit Erwartungen aus Simulationen und mit Hilfe einer speziellen numerischen

Methode (finite size scaling) konnte auch gezeigt werden, daß der Exponent  $x$  mit den statischen und dynamischen kritischen Exponenten verbunden ist:  $x = (d - 2 + \eta)/2z$ . Die Exponentenwerte, die für Systeme wie  $\text{Au}_{0.86}\text{Fe}_{0.14}$  mit Hilfe von Suszeptibilitätsmessungen ermittelt wurden, ergeben  $x=0.12$ , ebenso wie die NSE Daten. Diese Ergebnisse sind die erste direkte Bestätigung der theoretisch vorhergesagten kritischen Dynamik von Spingläsern. Der Vergleich der Ergebnisse, die mit Hilfe von NSE,  $\mu\text{SR}$  und ac Suszeptibilität an ähnlichen Systemen ermittelt wurden, zeigt, daß sich das kritische Verhalten über einen besonders breiten dynamischen Bereich von Picosekunden bis zu Sekunden ausdehnt, d.h. von der mikroskopischen bis zur makroskopischen Zeitskala.

Die Dynamik des Ising Spinglasssystems  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  wurde an den NSE Spektrometern SPAN und IN15 weiter untersucht. Die Ergebnisse bestätigen die allerersten NSE Messungen an einem Ising Spinglasssystem, die 1999 am SPAN durchgeführt wurden und eine quantitative Analyse der Dynamik ermöglicht haben. Die Dynamik des Ising Spinglasssystems unterscheidet sich stark von der Dynamik der Heisenberg Systeme. In dem Ising System ist die Dynamik sehr langsam und bei der Glastemperatur ( $T_g$ ) fast vollständig eingefroren, wie durch folgenden Vergleich illustriert wird: Analog zu dem vermuteten Heisenberg System  $\text{Au}_{0.86}\text{Fe}_{0.14}$ , konnte die Spin Autokorrelationsfunktion  $q(t)$  von  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  bei  $T_g$  durch ein einfaches Potenzgesetz be-

schrieben werden:  $q(t) = t^{-x}$ . Der Exponent beträgt jedoch  $x \approx 0.005$  und ist damit mehr als zwanzigmal kleiner als der Exponent des Heisenberg Systems. Diese Ergebnisse sind in Einklang mit  $\mu\text{SR}$  Messungen, die an denselben Proben durchgeführt wurden.

### Dynamische Prozesse beim Glasübergang

Im vergangenen Jahr gelang uns erstmals, die Natur schneller Relaxationsprozesse am Glasübergang in einem Glassystem der sogenannten fragilen Klasse zu erkennen. Ziel der Arbeiten im Berichtsjahr war es, die Untersuchungen auf andere Typen von Gläsern zu erweitern, insbesondere auf starke Gläser, für die  $\text{ZnCl}_2$  ein typischer Vertreter ist. Gläser dieser Klasse sind dadurch charakterisiert, daß eine stark vernetzte Struktur sowohl in der Glasphase, wie auch in der unterkühlten Flüssigphase beibehalten wird. Die ersten Ergebnisse haben zu der neuen Erkenntnis geführt, daß die Stärke der schnellen Relaxationsprozesse viel kleiner ist, als in fragilen Gläsern. Diese Beobachtung widerspricht der landläufigen theoretischen Annahme über die Verknüpfung schneller Relaxationsprozesse und des sogenannten Boson Peaks.

Die inkohärente Dynamik von ataktischem Polypropylen (aPP) wurde mit Hilfe inelastischer Neutronenstreuung an den Spektrometern IN10 (ILL), IRIS (ISIS) und NEAT (BENS) untersucht. Die Ergebnisse haben zu einer vollständigen Charakterisierung a) der Seitengruppen-Relaxation unterhalb des Glasübergangs und b) der Segment-Relaxation in der flüssigen Phase, also oberhalb des Glasübergangs geführt.

Die Relaxation der Seitengruppen in der Glasphase folgt einem Arrhenius Gesetz ist aber nicht exponentiell. Die Daten weisen auf einer Distribution von Rotations-Relaxationsraten hin, dessen Breite mit zunehmender Temperatur zunimmt.

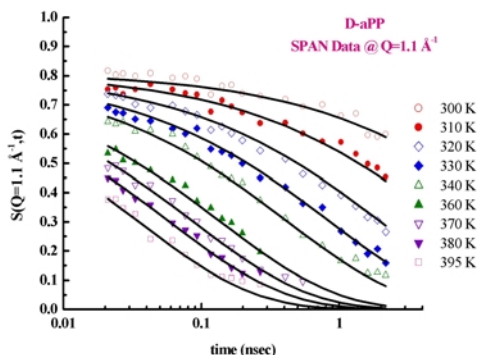


Abb. 6 : NSE Spektren vom deuterierten ataktischen Polypropylen (aPP) gemessen bei  $Q = 1.1 \text{ Å}^{-1}$ , dem ersten Maximum des statischen Strukturfaktors  $S(Q)$ .

Die Relaxation oberhalb des Glasübergangs wurde durch eine Kohlrauschfunktion (stretched exponential) beschrieben. Die Temperaturabhängigkeit und die Form der Relaxation stimmen sehr gut mit Ergebnissen von Berechnungen der Molekulardynamik überein.

Die kohärente Dynamik von flüssigem aPP wurde an einer vollständig deuterierten Probe am Neutronen-Spin-Echo-Spektrometer SPAN (BENS) untersucht. Die Spektren wurden oberhalb des Glasübergangs ( $T_g = 237 \text{ K}$ ) aufgenommen und zeigen einen nicht-exponentiellen Abfall, der durch eine Kohlrauschfunktion (stretched exponential) beschrieben wird. Die Relaxation wird deutlich langsamer, wenn die Temperatur sich der Glas temperatur annähert (Abb.6) und diese Temperaturab-

hängigkeit skaliert mit der makroskopischen Viskosität.

Die NSE Spektren wurden durch TOF Messungen mit Polarisationsanalyse, die auch am SPAN durchgeführt worden sind, ergänzt. Dadurch konnte die Dynamik von aPP über einen dynamischen Bereich von 5 Größenordnungen untersucht werden. Die Meßdaten werden zur Zeit noch ausgewertet. Vorläufige Ergebnisse weisen auf der Existenz eines dynamischen Prozesses im psec Zeitbereich hin, der schneller ist, als die klassische Relaxation (s. Abb. 6).

Die Dynamik von Polyethylenoxid (PEO)-Salz Mischungen wurde mit Hilfe inelastischer Neutronenstreuung am Spektrometer NEAT (BENS) untersucht. Damit konnte erstmals mit Hilfe von Neutronen nachgewiesen werden, daß ein zusätzlicher dynamischer Prozess auftritt sobald Salz reinem Polymer hinzugefügt wird. Diese Ergebnisse stimmen mit Modellrechnungen zur molkularen Dynamik überein, die auf die Existenz von zwei unterschiedlichen Mikrodomänen aus PEO Komplexen mit Salz und aus reinem PEO hingewiesen haben.

### Lebensdauer von Phononen in anharmonischen Festkörpern

Abgesehen von einigen Ausnahmefällen erlaubt die Auflösung konventioneller Neutronenspektrometer es nicht, die Lebensdauer und damit auch die Wechselwirkungen elementarer Anregungen zu untersuchen. Dieses wurde jetzt durch Kombination einer Variante des Neutronen-Spin-Echo-Verfahrens, der NRSE-Methode und Dreiachsenspektroskopie möglich.

Am kalten Dreiachsenspektrometer V2 (FLEX) wird bei Verwendung der NRSE-Option eine Steigerung der Energieauflösung um mehr als eine Größenordnung erreicht. Unter dem Stichwort "Phononenfokussierung" wurden die grundlegenden Ideen zu dieser Methode bereits Mitte der siebziger Jahre formuliert, aber erst die in den vergangenen Jahren in Zusammenarbeit zwischen dem HMI und der TU-München entwickelte NRSE-Technik ermöglichte, die Methode der Phononenfokussierung für disperse Anregungen erstmals und bisher weltweit einzigartig bei BENS experimentell zu realisieren. Die instrumentelle Entwicklung ist bereits soweit vorangeschritten, daß es jetzt gilt, mit dem zuverlässig arbeitenden NRSE-Gerät weitere physikalische Fragestellungen aus dem Bereich der elementaren, dispersiven Anregungen zu bearbeiten. BENS bietet die NRSE-Option nunmehr im regulären Nutzerbetrieb auch externen Gästen an.

Jüngste Untersuchungen mit dem spinechoerweiterten Spektrometer konzentrierten sich auf Lebensdauern von Phononen in Blei. Diesem Klassiker der Phononenspektroskopie gilt seit kurzem wieder aktuelles Interesse, da es inzwischen möglich ist, in ab-initio Rechnungen Lebensdauern von Phononen vorherzusagen. Blei ist von besonderem Interesse, da hier die Gitteranharmonizität und somit der (temperaturabhängige) Beitrag der Phonon-Phonon-Wechselwirkung zur Lebensdauer stark ausgeprägt ist. Bei transversal akustischen Phononen mit Wellenvektoren in  $[\zeta\zeta 0]$ -Richtung konnte in einem ersten Experiment die Temperaturabhängigkeit der gemessenen Linienbreiten gezeigt werden. In diesem Fall zwingt die Steigung der

Dispersionskurve für die gewählten Anregungen Spin-Echo-Präzessionsfelder um  $30^\circ$  zu kippen. Klassische NSE-Spektrometer, die Solenoidspulen zur Erzeugung der Präzessionsfelder verwenden können diese Kippwinkel auch unter Einsatz von Korrekturspulen nicht erreichen.

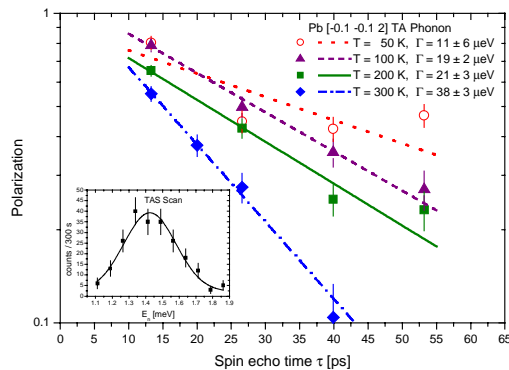


Abb. 7: Linienbreiten von TA Phononen in Pb für unterschiedliche Proben Temperaturen. Die Daten der NRSE-Messung wurden mit einem Modell gefittet, das lineare Dispersion und Lorentzförmige Linien voraussetzt.  $\Gamma$  ist die HWHM der Lorentzlinien. Das Dreiachsenspektrometer ohne Spin-Echo-Aufsatz hat in diesem Fall eine Energieauflösung von  $365 \mu\text{eV}$ .

#### Martensitischer Phasenübergang in $\text{Ni}_2\text{MnGa}$

Bei der martensitischen Transformation von der kubischen Austenit- zur tetragonalen Martensitphase werden Martensitvarianten unterschiedlicher Orientierung gebildet, die eine Bestimmung der Phonondispersion in der Martensitphase nicht zulassen. Es konnte nun erfolgreich nachgewiesen werden, daß (bedingt durch die magneto-elastische Wechselwirkung) das Anlegen eines ausreichend starken Magnetfelds (1,5 T) die Bildung von Varianten einer bestimmten Orientierung bevorzugt. Somit konnte erstmals die Phonondispersion in der Martensitphase dieses Systems gemessen werden. Besonders untersucht wurden transversal-akustische Phononen und ihre Temperaturabhängigkeit längs [110]- und [101]-Richtungen, die im vertikalen bzw. horizontalen Magnetfeld möglich waren. Während in [101]-Richtung keine Phononanomalie gefunden wurde, zeigte sich in [110]-Richtung eine ähnliche Anomalie, wie sie schon in der kubischen Austenitphase bei Annäherung an die Transformationstemperatur gefunden wurde.

F. Mezei, C. Pappas, M. Russina, O. Russina, G. Ehlers, I. Campbell, E. Hoinkis, P. Vorderwisch, K. Habicht, A. Triolo, G. Kali

## Diffusion und Materialtransport in kondensierter Materie

Bei unseren Untersuchungen zur Aufklärung der Mechanismen von Diffusion und "Materialtransport" in anorganischen Ionenleitern, und zum Studium der funktionsrelevanten Dynamik in biologischen Makromolekülen wird neben der Neutronendiffraktion die Technik der quasielastischen Neutronenstreuung (QENS) eingesetzt. Diese Arbeiten sind beispielsweise von Bedeutung für Ionensensoren, Feststoffbatterien, Brennstoffzellen, Wasserstoffspeicher, sowie für das Verständnis der Funktionsweise von biologischen Membranen und Membranproteinen (z.B. "Protonenpumpen").

Die in situ SANS Methode zur Untersuchung der Adsorption und Kondensation von Gasen in porösen Festkörpern wurde zur Anwendung bei 78 K weiterentwickelt. Diese Methode gibt es weltweit bisher nur am HMI. Damit können nun auch die Modelle zum Status von Stickstoff in bestimmten porösen Stoffen überprüft werden. Die am häufigsten angewandten Standardmethoden zur Charakterisierung poröser Festkörper beruhen auf den Adsorptionsdaten von Stickstoff. Diese Fragestellungen sind wichtig für Adsorptionsmittel, Katalysatoren und Wasserstoffspeicher.

#### Mechanismen von schnellen Ionenleitern

Zur Interpretation der Experimente quasielastischer (QENS) und inelastischer inkohärenter Neutronenstreuung (IINS), ergänzt durch Fourier-Transform-Infrarot-Untersuchungen (Kooperation mit K. Langer, Inst. f. Angewandte Geowissenschaften I, TU Berlin), wurde ein neues theoretisches Modell entwickelt. Damit konnte der Mechanismus der mit der Ionenleitung verknüpften langreichweitigen Diffusions-Bewegung der Protonen im Kristallgitter von  $\text{Rb}_3\text{H}(\text{SeO}_4)_2$  im Detail aufgeklärt werden. Entscheidend für den Erfolg der Untersuchung war der in den Experimenten zur Verfügung stehende große Energiebereich (1  $\mu\text{eV}$  bis 100 meV), sowie die verwendete variable Energieauflösung (5  $\mu\text{eV}$  bis 1000  $\mu\text{eV}$ ).

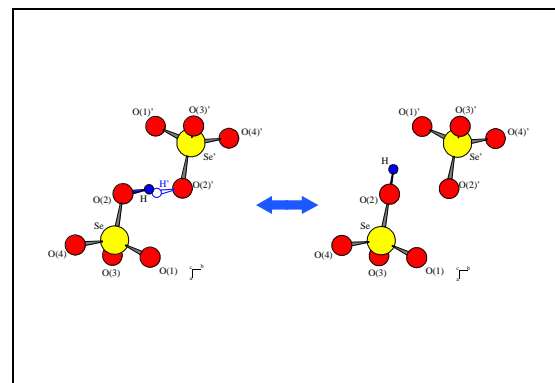


Abb. 8: Reaktionsgleichgewicht  $[\text{H}(\text{SeO}_4)_2]^{2-} \rightleftharpoons [\text{SeO}_4]^{2-} + [\text{H}(\text{SeO}_4)]^{1-}$

Es konnte gezeigt werden, daß die in der Hochtemperatur-Phase vorliegende dynamische Fehlordnung mit einer intrakristallinen chemischen Gleichgewichtsreaktion beschrieben werden kann. Sie besteht in einem ständigen Alternieren zwischen der Assoziation der beiden Monomere  $[\text{HSeO}_4]^{1-}$



und  $[\text{SeO}_4]^{2-}$  zu dem Dimer  $[\text{H}(\text{SeO}_4)_2]^{3-}$  (Bildung einer Wasserstoffbrücke) und der Dissoziation des letzteren in die beiden Monomere (Aufbrechen der Wasserstoffbrücke); s. die schematische Darstellung des Reaktionsgleichgewichts in der Abb. 8.

Die Untersuchung des Zusammenhangs zwischen den Rotationsbewegungen anionischer Moleküleinheiten und der Diffusion alkalischer Kationen wurde von  $\text{Na}_3\text{PO}_4$  auf  $\text{Li}_2\text{SO}_4$  und  $\text{LiNaSO}_4$  ausgedehnt. In der letztgenannten Verbindung wurden Hinweise auf die mögliche Existenz eines 'Schaufelradmechanismus' gefunden. (Kooperation mit D. Wilmer, K. Funke et al., Institut f. Physikal. Chemie u. SFB 458, Universität Münster)

#### Biomembranen und Membranproteine

Es wurde weiterhin an der Frage der Korrelation der biologischen Funktion von Bacteriorhodopsin mit den strukturellen und dynamischen Eigenschaften dieses Proteins gearbeitet. Ein erfolgversprechender Lösungsansatz, der auf einer differenzierteren Energieanalyse beruht, wird verfolgt. Im Zusammenhang mit dem Hydratisierungs- / Dehydratisierungs-Verhalten der Pupurmembran wurde ein verbessertes Modell der Dynamik des reinen Wassers entwickelt (Kooperation mit S. Longeville, LLB Saclay). Dieses wird dringend zur Beschreibung der Wasserkomponente in biologischen Systemen benötigt. Es wird zunächst auf die Beschreibung von Systemen biologisch relevanter mittelgroßer Moleküle (Cyclodextrine) in Wasserlösung angewandt.

Permethylierte Cyclodextrine (CD) haben einen negativen Löslichkeitskoeffizienten in Wasser, im Gegensatz zum (ganz normalen) Verhalten der nicht methylierten Cyclodextrine. Der negative Löslichkeitskoeffizient ist ein Beispiel für den hydrophoben Effects, welcher für biologische Makromoleküle von großer Bedeutung ist. Zur Untersuchung dieses Phänomens wurden quasielastische Neutronenstreuexperimente (NEAT / V3) an drei Verbindungen in Wasserlösung durchgeführt, und zwar an unmethyliertem  $\gamma$ -CD, per-dimethyliertem  $\beta$ -CD (DIMEB) und an per-trimethyliertem  $\gamma$ -CD (TRIMEG). Aus den Spektren sollen die Zeitkonstanten für Molekülrotation, Translationsdiffusion, sowie die Hydratisierungszahlen bestimmt werden. (Kooperation mit N. A. Dencher, Inst. f. Biochemie, TU Darmstadt und J. Fitter, IBI-2, Biologische Strukturforschung, FZ Jülich und W. Saenger, Institut f. Kristallographie, FU Berlin)

#### Transport und Adsorption von Gläsern in porösen Substanzen

Im Berichtszeitraum wurde die Adsorption und Kondensation von Stickstoff bei Temperaturen nahe 78 K in vier porösen Stoffen bestehend aus Silizium und Sauerstoff mit Porengrößen von  $\approx 2.5$  bis 5 nm mittels in situ Neutronenkleinwinkelstreuung (SANS) untersucht. Dabei wurde der Druck des Stickstoffs schrittweise erhöht und jeweils die Streukurve gemessen. Diese Stoffe waren: ein poröses  $\text{SiO}_2$  - Glas in Form einer Scheibe von 2 mm Dicke und 5 mm Durchmesser („monolithische Probe“) mit einer mittleren Porengröße von  $\sim 7$  nm sowie drei hochgeordnete pulverförmige synthetische Silicagele (TU Berlin und MPI Gölz).

Die Entwicklung der 3D-Modelle aus SANS Daten wurde erfolgreich weitergeführt und numerische Methoden zur Berechnung der inneren Oberfläche

chen, der mittleren Porengröße, der mittleren Wandstärke und der Segmentlängenverteilung aus SANS Daten entwickelt.

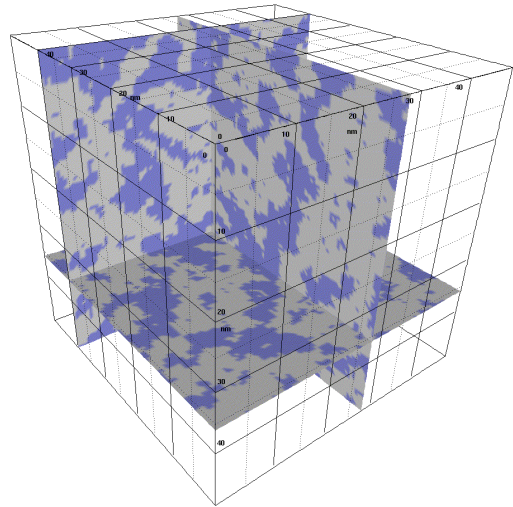


Abb. 9 Materialmodell Gelsil 50, Kantenlänge 50

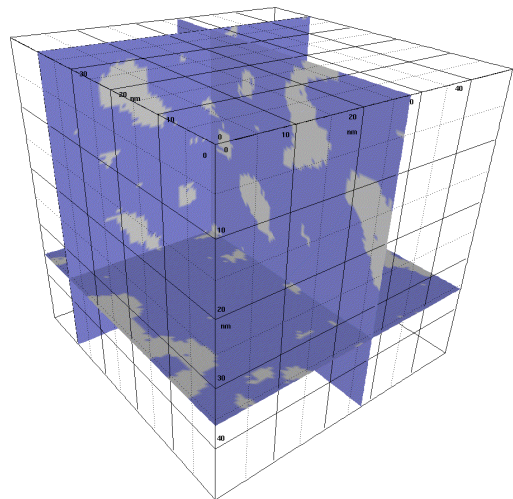


Abb. 10: Materialmodell Gelsil 50, die Hälfte des Porenvolumens ist mit  $\text{N}_2\text{liq}$  gefüllt ( $\text{SiO}_2$  und  $\text{N}_2\text{liq}$  blau, Poren weiß).

Die Abbildungen zeigen ein Modell der Mikrostruktur von Gelsil 50 vor und nach der Füllung von ca. 50 % des Porenvolumens mit flüssigem Stickstoff. Da die Streulängendichte von  $\text{SiO}_2$  und  $\text{N}_2\text{liq}$  annähernd gleich ist, „sehen“ Neutronen keinen Unterschied zwischen der festen und der flüssigen Phase.

F. Mezei, E. Hoinkis, F. Mädler (DV), N. Eschricht (DV), R.E. Lechner, A. Desmedt, J. Pieper

## Überstrukturen und konkurrierende Wechselwirkungen

*Konkurrierende Wechselwirkungen führen zu Überlagerungen von verschiedenen Strukturen auf verschiedenen Längenskalen in einer breiten Auswahl von Materialien, z.B. in komplexen Flüssigkeiten ebenso wie in den hoch geordneten Strukturen von Einkristallen. Dieses Feld schließt unter anderem die Untersuchung von Ordnungs- und Vorordnungsphänomenen in komplexen Flüssigkeiten an Fest/Flüssig-Grenzflächen ein. Neutronenreflexion eignet sich sehr gut für diese Studien, da die Methode auf einer molekularen Längenskala oberflächensensitiv ist und die ausgewählten festen Silizium-Substrate nur für Neutronen transparent sind.*

*Am HMI wurde eine hochempfindliche Methode zur präzisen Untersuchung von Einkristallen unter Anwendung von 396 kW Röntgenstrahlung unter Einbeziehung komplementärer Neutronenbeugung entwickelt. Mit Hilfe dieser Methode können elektronische Strukturen in magnetischen Materialien untersucht werden.*

Die Neutronenreflexionsstudien zu den Adsorbatstrukturen eines Tensids, C<sub>10</sub>E<sub>4</sub>, an (h)-PS – und (h)-PMMA-Substraten wurden abgeschlossen. Dabei zeigte sich, dass an beiden untersuchten Substraten kondensierte Tensidmonolagen bereits unterhalb der cmc der Tensidlösungen ausgebildet werden. Stabile Adsorptionsschichten gleicher Dicke und gleicher Packungsdichte, aber unterschiedlichem Adhäsionsverhalten wurden gefunden oberhalb der cmc: An PS-Oberflächen adsorbiert C<sub>10</sub>E<sub>4</sub> irreversibel, an PMMA-Oberflächen dagegen reversibel.

Erste Experimente wurden durchgeführt zur Erhöhung der Sensitivität der Neutronensonden auf die Streulängen-Dichtegradienten an den Polymer/Flüssig-Grenzflächen. Diese Experimente zeigten, dass das gesteckte Ziel durch den Einsatz deuterierter Substrate erreicht werden kann. Sie zeigten jedoch auch, dass die (d)-Polymer/Flüssig-Grenzflächen bereits vorab durch protonierte Substanzen kontaminiert waren. Die Ursache dieser Kontaminationen ist unklar. Sie muss aufgeklärt und in zukünftigen Experimenten vermieden werden.

Intensive Arbeiten wurden durchgeführt zur Präparation und Stabilität der als Substrate eingesetzten polymeren Filme auf Silizium-Einkristallen mittels Röntgenreflexion, Raster-Kraftmikroskopie und ortsaufgelöster Ellipsometrie. Das wichtigste Ergebnis dieser Untersuchungen ist, dass nach dem Schleuderverfahren (spin-coating) homogene Polymerbeschichtungen mit Dicken im Bereich von 10 – 90 nm über laterale Dimensionen von 50 mm X 80 mm reproduzierbar hergestellt werden können. Erhöhte Stabilität dieser Beschichtungen auf den Siliziumkristallen gegen wässrige Lösungen wird erreicht durch tempern oberhalb der Glastemperatur der Polymerfilme. Diese Arbeiten bilden die Grundlage für die temperaturabhängigen Untersuchungen an den ausgewählten Tensidsystemen, als auch der Untersuchungen an komplexeren adsorbierten Lipiddoppelschichten mit einfachen Peptiden und Proteinen.

Es wurden erste Experimente zur Enzymadsorption und Penetration in Lipid-Bischichten auf Polyelektrolyt-Unterlagen durchgeführt. Der erste Schritt war die Untersuchung des Quellverhaltens der Polyelektrolyten Schichten als Funktion des Molekulargewichts der Komponenten und der Probenpräparation. Dabei wurde festgestellt, dass als Funktion des Aufbaus, i.e. der Abfolge der Monolagen der polymeren Komponenten, zeitlich stabile Polyelektrolyt-Schichten als auch über Tage quellende Polymerschichten hergestellt werden können.

Im zweiten Schritt wurden Untersuchungen durchgeführt zur sukzessiven Adsorption von Lipid-Beschichten und Peptiden ( $\beta$ -Amyloid) auf den Polyelektrolyt-Schichten. Diese Experimente zeigten, dass Lipid-Bischichten auf den Polyelektrolytkissen aufgebaut werden können über Lipid-Vesikel in Pufferlösung. An die so präparierten, polymeregestützten Lipidschichten adsorbierte das ausgewählte  $\beta$ -Amyloid als stark wasserhaltige Monolage. Zusätzliche Methoden (CD und IR) wurden benutzt um Information über die Konformation der Peptide zu erhalten. Es zeigte sich, dass das  $\beta$ -Amyloid unter den hier eingestellten Randbedingungen in seiner  $\beta$ -Faltblattstruktur vorlag.

## Elektronische Strukturen und feine Kristallverzerrungen

Mit der am HMI etablierten Methode der Gamma-beugung können elektronische Strukturparameter mit einer Genauigkeit bis zu 0.1% bestimmt werden, was mit Synchrotronstrahlung derzeit nicht möglich ist. Der auf methodischen Vorteilen basierende hohe Genauigkeitsstandard wird vor allem eingesetzt zur experimentellen Bestimmung der Elektronendichteverteilung in prototypischen Antiferromagneten. Präzisionsmessungen von Debye-Waller Faktoren ermöglichten den direkten Nachweis erhöhter Nullpunktsschwingungen in SrTiO<sub>3</sub>, die den ferroelektrischen Übergang unterdrücken.

Der Mott-Isolator CoO wurde eingehend untersucht (Gammabeugung am Einkristall, Röntgen-, Neutronenbeugung am Pulver). Dabei ergab die Ladungsdichte für die paramagnetische Phase eine Verteilung der 3d-Elektronen auf ein Dublett und ein Triplett, die der Erwartung für perfekte Oktaeder-Symmetrie des Kristallfelds entspricht. Anhand von ESRF-Pulveruntersuchungen konnte die seit langem kontrovers diskutierte kristallographische Symmetrie von CoO geklärt werden: der magnetische Phasenübergang bei 290 K ist mit einer Symmetrierniedrigung vom kubischen NaCl-Typ nach monoklin verknüpft, wobei ein Achsenwinkel der deformierten flächenzentrierten Elementarzelle um maximal 0.04° von 90° abweicht. Die Kenntnis dieser geringen Verzerrung erlaubt die eindeutige Bestimmung der magnetischen Struktur bereits aus einem Neutronen-Pulverdiagramm. Die Untersuchung von MnO und NiO ist in Planung. Die Arbeiten zur Elektronendichte sollen auf Systeme mit Metall-Isolator Übergang ausgedehnt werden.

F. Mezei, G. Findenegg (TUB), H. Möhwald (MPI-KGF Golm), R. Steitz, I. Estrela-Lopez, J. Howse, W. Jauch, R. Reehuis



**Abteilung**

**SF2    Magnetismus**



Die Forschung der Abteilung Magnetismus steht unter der zentralen Zielsetzung, Beiträge zum fundamentalen Verständnis des Wechselspiels zwischen der Struktur und den magnetischen Eigenschaften und Wechselwirkungen in verschiedenen Arten von Materialien zu leisten. Die Forschungsarbeiten sind in zwei Gebiete, **Volumenmagnetismus** und **Magnetismus dünner Schichten**, gegliedert. Der Bogen der untersuchten Systeme ist dabei weit gespannt: er erstreckt sich von magnetischen Modellsystemen über den Magnetismus von implantierten Übergangsmetall-Ionen in Festkörpern bis hin zu den auch technologisch interessanten molekularen Magneten und den dünnen magnetischen Schichten. Eine Spezialität der Abteilung ist die Untersuchung des Kernmagnetismus in Metallen und festem  $^3\text{He}$  bei Temperaturen im sub-mK-Bereich. An Methoden werden hauptsächlich eingesetzt:

- Neutronenstreuung am Forschungsreaktor BER II
- Nukleare Sondenmethoden am Ionenbeschleunigerlabor ISL
- Streuung von Synchrotronstrahlung am Speicherring BESSY

Jede der drei Sonden – Neutronen-, Ionen- und Synchrotronstrahlen – bietet einen zu den jeweils anderen Sonden komplementären Zugang zur Erforschung des Magnetismus.

Neben der Forschung mit diesen Sonden betreiben die Mitarbeiter der Abteilung in starkem Maße auch methodische und instrumentelle Entwicklungen zur Nutzung der Sonden. Insbesondere sind sie in Weiterentwicklung und Bau von Neutronenstreugeräten am BER II und in die Betreuung von Meßgästen an diesen Instrumenten eingebunden. Diese Aufgaben werden im Rahmen des Berliner Neutronenstreuencentrums (BENSCH) durchgeführt. Neu hinzugekommen ist der Bau von Meßplätzen für Synchrotronstrahlung am Speicherring BESSY, an denen in Zukunft ebenfalls Gäste betreut werden. Diese **BENSCH-Aktivitäten** und **BESSY-Aktivitäten** nehmen den überwiegenden Teil der Arbeitskraft der Mitarbeiter der Abteilung Magnetismus in Anspruch.

## Volumenmagnetismus

### Magnetische Modellsysteme und molekularer Magnetismus

*Untersuchungen von räumlichen und zeitlichen Fluktuationen in magnetischen Systemen durch elastische und inelastische Neutronenstreuung und zukünftig auch durch magnetische Röntgenstreuung bei BESSY. Bearbeitet werden u.a. frustrierte magnetische Spinstrukturen, magnetische Phasenübergänge und im Hinblick auf die ausgeprägte resonante Streuung der Röntgenstrahlung magnetische Strukturen von Lanthanid- und Uranverbindungen. Stärkeres Gewicht erhält in Zukunft die Untersuchung molekularer Magnete. Sie bestehen durch eine Vielfalt von Eigenschaften, die durch chemische Modifikation beeinflussbar sind. Dabei nehmen die rein organischen, magnetisch ordnenden Systeme – die keine Übergangsmetalle enthalten – eine Sonderrolle ein. Begleitende kristallographische Untersuchungen (Strukturbestimmungen, strukturelle Phasenübergänge und Anregungen) werden mit Neutronenstreuung, Laborröntgenmethoden und in Zukunft auch mit Synchrotronstrahlung an BESSY durchgeführt.*

Der Mischkristall  $\text{Mn}_{0.88}\text{Fe}_{0.12}\text{WO}_4$  zeigt eine sehr interessante, ungewöhnliche magnetische Ordnung, die durch die Konkurrenz der unterschiedlichen magnetischen Strukturen der reinen Substanzen  $\text{MnWO}_4$  und  $\text{FeWO}_4$  geprägt ist. Es gelang der Nachweis, daß in der „Hochtemperaturphase“ die dominante inkommensurable magnetische Struktur von  $\text{MnWO}_4$  homogen von  $\text{FeWO}_4$ -artigen magnetischen Clustern großer Korrelationslänge auf einem verdünnten 3-dimensionalen Gitter der (Mn,Fe)-Plätze durchwachsen ist. In der magnetischen „Tief-temperaturphase“ dominiert die kommensurable

$\text{MnWO}_4$ -artige Struktur. Wiederum werden Reflexe beobachtet, die mit der magnetischen Zelle der  $\text{FeWO}_4$  Struktur indizierbar, in ihren Intensitäten jedoch nicht mit einer Beugung an einer geordneten Struktur von lokalen Momenten an den (Mn,Fe)-Plätzen erklärbar sind.

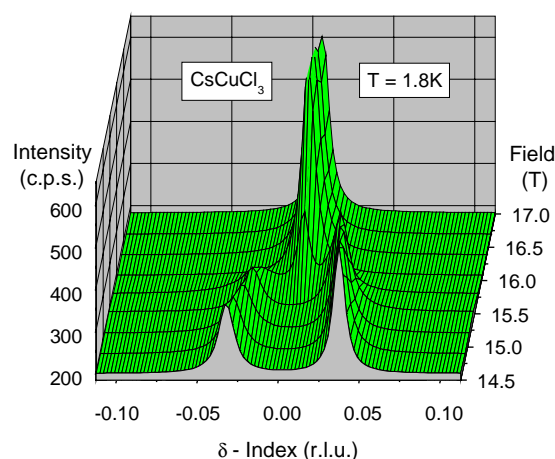


Abb. 1: Phasenübergang von einer inkommensurablen zu einer kommensurablen magnetischen Struktur für  $B > 16 \text{ T}$  (!) in  $\text{CsCuCl}_3$ , verdeutlicht am Verschwinden der Aufspaltung des magnetischen  $(1/3 \ 1/3 \ 0 \pm \delta)$ -Reflexes.

Der hexagonale Antiferromagnet  $\text{CsCuCl}_3$  zeigt ein außergewöhnlich stark durch Quanten- und thermische Fluktuationen bestimmtes magnetisches Verhalten. Durch die Verfügbarkeit des Hochfeld-Kryomagneten mit Dy-Booster konnten die Untersuchungen an der feldabhängigen magnetischen Struktur bei tiefen Temperaturen auf 17 T ausge-

dehnt werden. Hierbei wurde ein theoretisch vorhergesagter Phasenübergang des Typs inkommensurabel – kommensurabel identifiziert (siehe Abb. 1). Zur Erweiterung dieser Thematik durch vergleichende Messungen an strukturell ähnlichen Substanzen wurde vorbereitend die magnetische Struktur von  $\text{RbCuCl}_3$  durch Neutronendiffraktion bestimmt.

Die Spindichteverteilung eines organischen Systems, basierend auf dem Nitronyl-Nitroxid-Radikal wurde mit polarisierten Neutronen kartiert (siehe Abb. 2, Messung am ILL). Allerdings ergab die Auswertung keine eindeutigen Aussagen über die mikroskopische Ursache des ferromagnetischen Wechselwirkungspfad. Das Studium der magnetisch geordneten Struktur unterhalb 0.3 K wurden am E4 durch Messungen im Magnetfeld abgeschlossen.

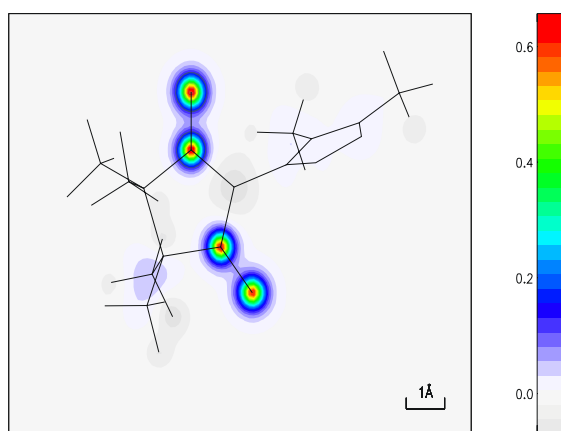


Abb. 2: Spindichteverteilung in der organischen Verbindung 4,5-dimethyl-1,2,4-triazol-nitronyl-nitroxid, gemessen am ILL (D3).

#### Weitere Ergebnisse

Bei den Übergangsmetallkomplexen wurde eine neue Kooperation mit Chemikern begonnen (J. Li, Rutgers Univ.). Damit wurden die Untersuchungen erfolgreich auf neue Liganden (oxalat, bipyridin) und zweidimensionale Netzwerke erweitert. Für die Verbindungen  $\text{Co(ox)(bpy)}$  und  $\text{Co/NiCl}_2(\text{bpy})$  wurden die Kristallstrukturen und magnetischen Strukturen bestimmt. Erstere zeigt einen kristallographischen Phasenübergang bei 290 K, der eingehend studiert wurde.

Mit der Bestimmung der magnetischen Strukturen von  $\text{PrFe}_2\text{P}_2$ ,  $\text{TbFe}_2\text{Al}_{10}$ ,  $\text{DyFe}_2\text{Al}_{12}$ ,  $\text{HoMoC}_2$  und  $\text{ErMoC}_2$  wurden die Forschungen zum magnetischen Verhalten ternärer intermetallischer Phosphide, Carbide und Aluminide fortgesetzt.

Die magnetische Ordnung von  $\text{UNiGe}$  wurde durch Neutronendiffraktion in hohen Magnetfeldern untersucht. Es konnte nachgewiesen werden, daß in der erzwungenen ferromagnetischen Phase (metamagnetisches Verhalten) eine ungewöhnliche verkantete magnetische Struktur mit antiferromagnetischer Komponente vorliegt. (Prokeš)

Für die Verbindungsreihe  $\text{La}_{1-x}\text{Y}_x\text{Mn}_2\text{Si}_2$  wurde das magnetische  $x$ - $T$ -Phasendiagramm bestimmt. In diesem System ist die Gitterkonstante eine Funktion des Yttriumgehaltes  $x$ , der damit einen „chemischen Druck“ darstellt. In Abhängigkeit von  $x$  sind diese Verbindungen entweder antiferro- ( $x > 0.25$ ) oder -

ferromagnetisch ( $x < 0.15$ ). Wir konnten auch erstmals eine Umwandlung von Ferro- nach Antiferromagnetismus an reinem  $\text{LaMn}_2\text{Si}_2$  durch Anlegen von hydrostatischem Druck nachweisen.

Ein Ni-haltiger Zeolith wurde synthetisiert und mit Röntgenbeugung und SQUID-Magnetometrie charakterisiert. Die SQUID-Messungen weisen auf magnetische Ordnung hin.

N. Stüßer, R. Feyerherm, F. Kubanek, K. Prokeš, J. Klenke, D. Toebeens, A. Loose, S. Danilkin, M. Hofmann, U. Schotte, M. Meschke, A. Hoser, K.D. Schotte

## Magnetismus von Kernspinsystemen

*Untersuchung der Kernspinordnung bei tiefsten Temperaturen durch Neutronenbeugung.*

Das kondensierte Isotop  $^3\text{He}$  ist ein System aus Fermionen mit Spin  $I = 1/2$ , an dem abhängig von Druck und Temperatur eine Vielzahl physikalischer Phänomene beobachtet wird. Eingebettet in ein komplexes Zustandsdiagramm aus Flüssigkeit und Festkörper finden sich weitere kooperative Ordnungsphänomene. Sie reichen von den suprafluiden flüssigen Phasen bis zur Beobachtung magnetischer Ordnung im festen  $^3\text{He}$ . Die geringe Masse des  $^3\text{He}$  führt zu großen Nullpunktschwingungen. Eine Konsequenz ist, daß die Flüssigkeit erst unter hohem Druck die feste bcc - Phase bildet, bei weiterer Erhöhung des Druckes findet ein Übergang in die hcp - Struktur statt. Die hohe Delokalisierung der Kerne hat zur Folge, daß die Atome mit hoher Wahrscheinlichkeit ihre Plätze tauschen. Diese Prozesse, an denen 2, 3, und auch mehr Teilchen teilnehmen können, dominieren auch das magnetische Verhalten: Sie führen zu einer direkten, magnetischen Austauschwechselwirkung die bei etwa 1 mk auch magnetische Ordnung hervorruft. Das feste  $^3\text{He}$  ist das einzige System mit solch einem direkten Austausch und deswegen ein magnetisches Modellsystem mit zentraler Bedeutung.

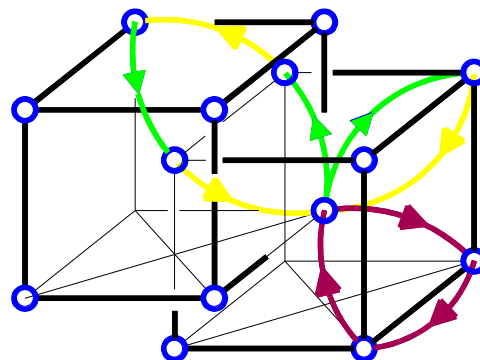


Abb. 1: Platzwechsel mit gerader Teilchenzahl führen zu antiferromagnetischer, ungerade Teilchenzahl zu ferromagnetischer Kopplung. Dominant sind Austauschprozesse mit 3 und 4 Teilchen.

In der bcc-Struktur werden 2 antiferromagnetische Phasen erwartet. In der hcp-Modifikation sollte der

Platzwechsel von drei Teilchen dominieren und zu ferromagnetischer Ordnung führen.

Trotz der extrem hohen Neutronenabsorption von  $^3\text{He}$  sollten Diffraktionsexperimente durchführbar sein und analog zu den bisher durchgeführten Kernordnungsexperimenten an Cu und Ag neue, grundlegende Erkenntnisse ergeben. Um dies zu erreichen, wird am ehemaligen Meßplatz E7 ein neues Spektrometer installiert. Das neue Gerät konnte im Berichtsjahr weitgehend fertiggestellt werden und wird bei einer Wellenlänge von 1.5 Å arbeiten. Es ist nach unserer Machbarkeitsstudie optimiert für die Messungen an  $^3\text{He}$  und die kombinierten Anforderungen aus der Neutronenstreuung, der Kryo- und Hochdrucktechnik in diesem Experiment. Für die Druckzelle wurde ein neuartiger Wärmetauscher entwickelt, der aus Pt – nano Teilchen besteht.

An dem frustrierten Antiferromagneten  $\text{K}_2\text{IrCl}_6$  konnten die mit Polarisationsanalyse gewonnenen Neutronendaten interpretiert werden: Die antiferromagnetische Struktur der Nullfeldphase erfährt durch ein externes Feld eine Strukturänderung. Erstaunlich ist, daß diese Phasenumwandlung nicht mit den bekannten Wechselwirkungen in dieser Substanz verstanden werden kann. Dagegen wird der Phasenübergang verständlich, wenn eine bi-quadratische Austauschwechselwirkung angenommen wird. Ursache einer solchen Wechselwirkung können in dieser Substanz nur thermische oder

Quantenfluktuationen sein. Die Interpretation wird gestützt durch unsere Monte Carlo Rechnungen, die auch im Einklang mit vorhandenen, aber experimentell bisher nicht verifizierten theoretischen Überlegungen sind.

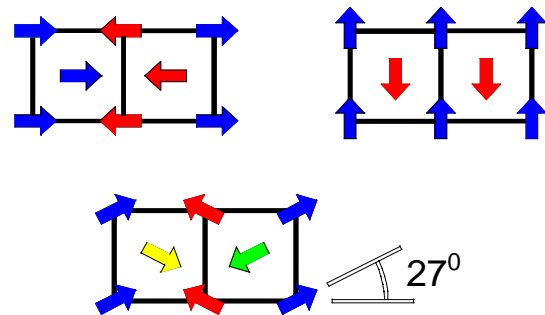


Abb. 2: Die experimentellen Daten lassen einmal die Interpretation zu, dass die Nullfeldstruktur (schematisch im linken, oberen Bild) durch das senkrecht anliegende Feld in die rechts gezeigte Anordnung der Momente übergeht. Unsere Daten zeigen aber, daß die unten abgebildete gezeigte Struktur auftritt, die eine Mischung der vorhergehenden Strukturen ist.

K. Siemensmeyer, P. Smeibidl, I. Batko, V. Boyko, S. Matas, M. Meschke, S. Schöttl

## Magnetismus dünner Schichten

### Neue magnetische Systeme: Übergangsmetallionen in Festkörpern und dünnen Schichtsystemen

Das Projekt gliedert sich in zwei komplementäre Teile, die beide in Kooperation mit der Gruppe Prof. Brewer et al. (FU Berlin) durchgeführt werden.

- Studium magnetischer Wechselwirkungen und lokaler Gitterstrukturen in verdünnten Legierungen und Spinglassystemen mit nuklearen Sondenmethoden am Schwerionenbeschleuniger des ISL und mittels SQUID-Magnetometrie.
- Untersuchung magnetischer und struktureller Eigenschaften von ultradünnen Schichtsystemen, insbesondere Exchange-Bias-Systemen, mittels Neutronenreflektometrie, SQUID, LEED, Auger, Tieftemperatur-Kernorientierung, Röntgenbeugung und Rastertunnel-Mikroskopie.

#### a1) Magnetismus und Gitterplatzbesetzung auf Zwischengitterplätzen

Unter Anwendung der zeitaufgelösten gestörten Winkelverteilung (TDPAD) und des In-Beam Mössbauer-effektes, beide nach Rückstoss-Implantation, konnte Magnetismus von Fe-Ionen auf Zwischengitterplätzen in Ca, Sr, Ba, Hg, Yb und Eu beobachtet werden. Sogar das 4d Ion, Mo, zeigt Magnetismus auf interstitiellen (und substitutionellen) Plätzen in Ca, Sr, Ba, Eu und Yb. Die parallel dazu durchgeführten (in Zusammenarbeit mit S. Frota-Pessoa et al.) theoretischen Berechnungen über

das Vorkommen lokaler magnetischer Momente mit lokalen Spindichte-Methoden stimmen für fast alle Fälle mit den experimentellen Befunden überein. Diese neuen magnetischen Systeme mit ihren extremen Bedingungen stellen einen kritischen Test theoretischer Ansätze dar. Derartige Experimente erbringen Aussagen über Magnetismus, über lokale elektronische und Gitterstrukturen und über die Amplituden der Besetzung der Sondenatome auf interstitiellen und substitutionellen Gitterplätzen als Funktion der Wirte und der Art des Sondenatoms.

Gleichermassen unerwartet und interessant ist die Beobachtung temperaturgetriebener Gitterplatz-Wechsel zwischen interstitiellen Plätzen für Fe und Mo in Ba und in Eu und zwischen interstitiellen und substitutionellen Plätzen für Sc in Cs.

#### a2) Existenz und Stabilität spingekoppelter Paare in Au basierten Spingläsern

Mit Hilfe der mikroskopischen TDPAD Methode wurde beobachtet, dass implantierte Fe Ionen in  $\text{Au}_{1-x}\text{Cr}_x$  und  $\text{Au}_{1-x}\text{V}_x$  Spinglassystemen bei niedrigen Cr bzw. V Konzentrationen zwei klar aufgelöste Frequenzen zeigen. Konsistent mit theoretischen Rechnungen führt die Interpretation auf die Existenz von quantenmechanisch stark antiferromagnetisch gekoppelten Fe-Cr bzw. Fe-V Paaren, die in beiden Fällen bis mindestens 400 K stabil bleiben. Durch einen Fe Nachbar wird die Kondotemperatur von V Fremdatomen im Au drastisch reduziert.

### b1) Kopplung an ferro-/antiferromagnetischen Grenzflächen, Exchange Bias Systeme

Fortgesetzt wurden die Arbeiten über magnetische Kopplungen und Anisotropien in den technologisch interessanten Exchange-Bias-Systemen, bestehend aus ferromagn. und angrenzenden antiferromagn. Schichten. Mit speziell präparierten, auf wasserstoffpassivierten Si(111) Substraten aufgewachsenen Co/CoO Schichten gelang es, ein System mit Modellcharakter für Exchange Bias Systeme zu entwickeln und umfassend zu charakterisieren. Im magnetischen Verhalten zeichnet sich das System durch einen sehr starken Exchange Bias Effekt (Verschiebung der Hysteresekurve aus dem Nullfeld), durch eine fast ideal rechteckige Form der Hysteresekurven und modellhafter Abhängigkeit von der Co Schichtdicke aus. Untersuchungen von Struktur und Wachstum mittels LEED, AUGER und STM ergeben, dass diese Eigenschaften auf Wechselwirkungen zwischen einkristallinen, eindomänen Co und CoO Partikeln basieren.

Mit dem Ziel einer verbesserten Deutung der Grenzflächenkopplung wurde begonnen, den Ersatz der Co bzw. CoO Schichten durch andere ferromagn. (z.B. Fe, Ni) bzw. andere antiferromagnetische (FeO, NiO) Schichten zu untersuchen.

### b2) Kopplung und Spinpolarisation über und in nichtmagnetischen Au Zwischenschichten

Wie Experimente mit dem SQUID Magnetometer ergaben ist die magnetische Kopplung zwischen antiferromagn. CoO und ferromagn. Co Schichten über Au Zwischenschichten relativ langreichweitig. Es wurde festgestellt, dass bei  $T=10$  K eine Kopplung bis zu einer Au Zwischenschichtdicke von über 20 Å erhalten bleibt.

Erfolgreich verlief die erstmalige Anwendung der Methode der Kernorientierung im mK-Bereich auf Exchange Bias Systeme. Es gelang, den Exchange Bias über die am Au Ort induzierte Spinpolarisation in z.B. CoO/Au/Co Schichten nachzuweisen. Derartige mikroskopische Messungen sind empfindlich auf die lokal an der Grenzfläche induzierte Spinpolarisation in der wenige Monolagen dicken Au Schicht. Die n-Aktivierung am HMI Reaktor liefert gleichzeitig geeignete Au und Co Sonden, so dass die Co Schichten und die Au Grenzfläche gesondert untersucht werden konnte.

D. Riegel, M. Gruyters, M. Gierlings, M. Prandolini, R. Kirsch

## **Dünne magnetische Schichten und Nanostrukturen**

*Mit dünnen metallischen Schichten und durch ihre künstliche Strukturierung und Stapelung werden maßgeschneiderte Systeme präpariert, in denen faszinierende und neuartige Phänomene des Magnetismus studiert werden können, die auch für technologische Anwendungen interessant sind. Einzelheiten der Struktur haben einen entscheidenden Einfluß auf das mikro- und makroskopische magnetische Verhalten. Als wichtigste Untersuchungsmethode wird die Reflektometrie polarisierter Neutronen eingesetzt. Im darauffolgenden Projekt werden diese Untersuchungen durch Synchrotronexperimente an denselben Proben erweitert. Wir konzentrieren uns auf magnetische Kopplungseffekte und Spinstrukturen und auf den Reorientierungsübergang zur senkrechten Magnetisierung, wobei am Übergang u.a. die magnetischen Anisotropien und die Ausbildung magnetischer Domänen in dünnen Schichten interessieren. Außerdem wird der Magnetismus extrem dünner Einzelschichten mit und ohne Deckschicht untersucht. Dazu müssen Einflüsse durch Wachstum der Schicht, Struktur der Grenzflächen und Polarisation von sonst unmagnetischen Schichten studiert werden.*

### Magnetisierung in dünnen Chrom(110)-Schichten

Die Untersuchungen der antiferromagnetischen Struktur dünner Cr-Schichten in Fe/Cr-Vielfachschichten mit Neutronendiffraktion wurden fortgesetzt. Bisherige Messungen der  $\text{Cr}\langle 100 \rangle$ -Reflexe belegen bei Raumtemperatur die Existenz einer kommensurablen antiferromagnetischen Ordnung. Sie lassen jedoch keine Unterscheidung zwischen einem eindomänen Zustand der Polarisation in  $[110]$  und einem mehrdomänen Zustand mit verschiedenen Polarisationsrichtungen zu. Diese Unterscheidung ermöglichte die Untersuchung der  $\text{Cr}\langle 111 \rangle$ -Reflexe. Es konnte nachgewiesen werden, daß die magnetische Ordnung der Cr-Schichten in Domänen mit unterschiedlichen Polarisationsvektoren vorliegt, wobei nur Domänen mit Cr-Polarisation in  $[010]$  und  $[100]$  existieren, im Gegensatz zu Cr-Volumenproben, bei denen alle drei  $\langle 100 \rangle$ -Richtungen mit der gleichen Wahrscheinlichkeit auftreten.

### Reorientierungsübergang zur senkrechten Magnetisierung in dünnen epitaktischen Co- Schichten

In den Systemen  $\text{W}(110)/\text{Co}/\text{Au}$  und  $\text{Au}(111)/\text{Co}/\text{X}$  mit  $\text{X} = \text{W}, \text{Au}$  oder ohne Deckschicht (=UHV) wurde der Spin-Reorientierungsübergang (SRT) studiert, bei dem die Magnetisierung für dicke Co-Schichten in der Schichtebene und für dünne senkrecht dazu liegt. Den Übergang als Funktion der Co-Schichtdicke untersuchten wir mittels longitudinale und polare magneto-optischen Kerreffekt (MOKE) an Proben mit kontrolliert variierter Co-Schichtdicke (Keilschicht). Parallel dazu wurde der Übergang als Funktion der Temperatur studiert, auch durch Experimente am Neutronenreflektometer (Abb.1) und durch SQUID-Magnetometrie. Die Konkurrenz verschiedener Beiträge zur magnetischen Anisotropie (in Abhängigkeit von der Schichtdicke und der Temperatur) führt zum SRT- Übergang.



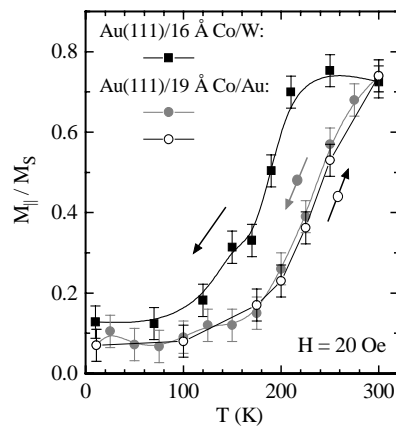


Abb. 1: Aus Reflektometriemessungen mit polarisierten Neutronen gewonnene Magnetisierung (Komponente in der Schichtebene) dünner Co-Schichten in zwei Schichtsystemen in Abhängigkeit von der Temperatur. Es werden „kontinuierliche“ SRT-Phasenübergänge beobachtet.

Der Co-Schichtdickenbereich mit dominierender senkrechter Anisotropie ist für Au/Co/Au beträchtlich größer als für Au/Co/W: Der Unterschied ist  $\Delta = 1.7 \text{ \AA}$  bei 300K (Abb.2) und sogar  $\Delta = 10 \text{ \AA}$  bei 10K. Bei unbedecktem Au(111)/Co wird eine kritische Schichtdicke  $d^* = 9.6 \text{ \AA}$  gemessen. Im Vergleich dazu finden wir  $d^* = 8 \text{ \AA}$  in W(110)/Co/Au, aber keinen SRT-Übergang beim unbedeckten W(110)/Co/UHV. Somit kommt von der Co/Au- Grenzfläche der größte Beitrag zur senkrechten Anisotropie. Ein kleinerer kommt von der Co/W-Grenzfläche, der aber im W(110)/Co/UHV nicht zur senkrechten Magnetisierung führt.

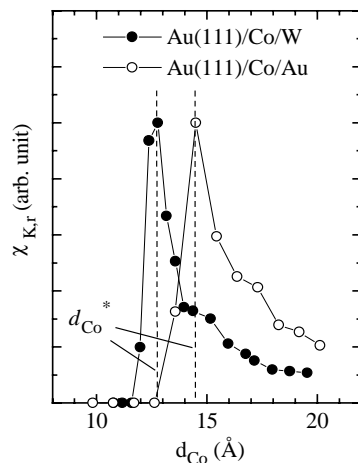


Abb. 2: Schichtdickenabhängigkeit der Suszeptibilität aus MOKE-Messungen bei 300K. Das Maximum markiert die kritische Co-Schichtdicke  $d^*$  für den SRT-Übergang.

#### Magnetisierung lateral strukturierter Co-Schichten

Am Neutronenreflektometer V6 wurde ein zweidimensionaler Detektor (PSD) installiert und erfolgreich in Betrieb genommen. Somit kann jetzt die nicht-spekuläre Reflektivität systematisch studiert werden. In Zusammenarbeit mit der Universität in Leuven/Belgien (K. Temst, M. van Bael) wurde damit das erste Experiment mit einer Co-Schicht

durchgeführt, die durch UV-Lithografie in  $4 \text{ \mu m}$  große Scheiben in periodischen Abständen von  $10 \text{ \mu m}$  lateral strukturiert war (Abb.3). Die nicht-spekuläre Neutronenreflektivität zeigte Intensitätsmaxima und Intensitätsminima aufgrund der Periodizität der lateralen Anordnung der Co-Scheiben. Durch Spinanalyse der reflektierten Neutronen konnte das Ummagnetisierungsverhalten der kleinen Co-Scheiben studiert werden.

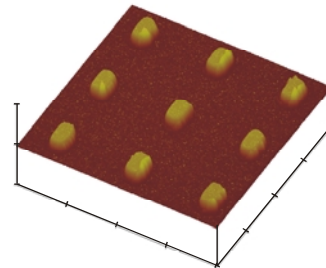


Abb. 3: 3-dimensionale Ansicht (mit AFM) der lateral strukturierten Co-Schichtprobe aus Leuven.

H. Maletta, H. Fritzsche, J. Hauschild, J. Langer, S. Bonn, J. Klenke, K. Prokeš, R. Sellmann, Th. Wilpert

#### Synchrotronexperimente an magnetischen Schichten

Die Röntgenabsorptionsspektroskopie an modernen Synchrotronstrahlungsquellen bietet einzigartige Möglichkeiten für Untersuchungen zur Struktur und zum Magnetismus von dünnen metallischen Schichten und Schichtsystemen. Im kantennahen Energiebereich (NEXAFS) werden elementspezifische Informationen über das chemische Potential des absorbierenden Atoms gewonnen, während im kanntenfernen Energiebereich (EXAFS) Bindungslängen und Koordination bestimmt werden. Wichtige magnetische Informationen erhält man durch Einsatz von zirkular polarisiertem Röntgenlicht über den magnetischen Zirkular-Dichroismus (X-MCD). Diese Meßmethode ist hochempfindlich, elementspezifisch, und erlaubt die Bestimmung des Bahnanteils zum magnetischen Moment.

#### Änderung der strukturellen Eigenschaften von dünnen Nb-Schichten bei Beladung mit Wasserstoff

Zu den strukturellen Untersuchungen bei Absorption von Wasserstoff in dünnen Nb-Schichten in [Fe/Nb]- und [W/Nb]-Schichtsystemen wurden ergänzende EXAFS-Messungen an der K- Kante des Nb unter in-situ H-Beladung beider Systeme im HASYLAB durchgeführt. Durch X-Strahleinfall senkrecht zur Schichtebene konnte dabei die laterale Nb-Gitteraufweitung (=in der Schichtebene) bestimmt werden (Abb. 1). Diese Messungen erlauben eine Interpretation des zum ersten Mal beobachteten überraschenden Effektes, daß die relative Ausdehnung der Nb-Schichtdicke bei H-Beladung beträchtlich größer als die Zunahme der Gitterabstände im Nb senkrecht zur Schicht ist: Die H-Absorption bewirkt nicht nur eine Gitteraufweitung senkrecht zur Schichtebene (analog zur 3-dimensionalen Gitteraufweitung in Nb-Volumenproben), sondern es entstehen offensichtlich große Spannungen an den

Grenzflächen der Nb-Schicht zur nichtbeladenen Nachbarschicht bzw. Substratschicht, die schließlich auch zu einer lateralen Gitteraufweitung (gemessen mit EXAFS) führen und deswegen einen nur in Schichten beobachtbaren zweiten Effekt bei der H-Absorption induzieren: Eine Umgruppierung der Nb-Atome, so daß zusätzliche Nb-Gitterebenen ausgebildet werden, die eine wesentlich größere Ausdehnung der Nb-Schichtdicke bewirken.

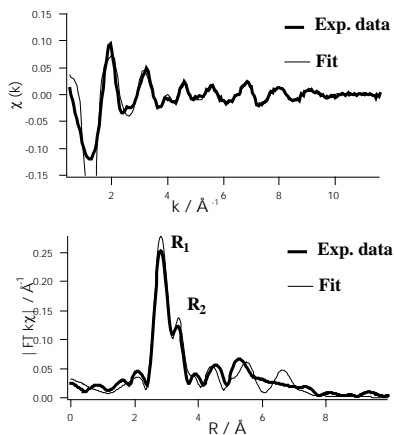


Abb.1: EXAFS-Messung mit unserem Fluoreszenzdetektor an der K-Kante des Nb unter senkrechtem X-Strahleinfall auf die W/Nb-Schichtprobe bei in-situ H-Beladung mit 1 mbar  $p(\text{H}_2)$ . Gezeigt werden (a) die EXAFS-Oszillationen oberhalb der Kante, und (b) die Fourier-Transformierte davon, aus der die Abstände zum 1. ( $R_1$ ) und 2. ( $R_2$ ) Nachbarn im Nb-Schichtgitter bestimmt werden.

#### Reorientierungsübergang zur senkrechten Magnetisierung in dünnen epitaktischen Co-Schichten

Am SSRL-Synchrotron in Stanford (USA) wurden X-MCD-Messungen zum SRT-Übergang in  $\text{Au}(111)/\text{Co}/\text{Au}$  begonnen. Bei Variation des Einfallswinkel der Photonen zur Schichtebene der Probe kann Vektormagnetometrie durchgeführt werden. Zunächst sollte der Einfluß der Deckschicht untersucht werden. Wir erhalten überraschenderweise unterschiedliche Ergebnisse für verschieden dicke Au-Deckschichten: Während die 2.0 nm Au-Bedeckung die erwartete Co-Magnetisierung in der Ebene zeigt, erhalten wir für die dünnere Deckschicht (1.0 nm Au) sogar auch eine signifikante Magnetisierungskomponente senkrecht zur Schichtebene. Über die sog. Summenregeln werden die Spin- und Bahnanteile zur Magnetisierung separiert. Die Interpretation dieser Meßergebnisse wird z.Z. noch überprüft.

#### Resonante magnetische Reflektometrie mit Röntgenstrahlen (X-RMR) an Co/Pt

In Zusammenarbeit mit der Universität Würzburg (Prof. G. Schütz, E. Goering) entwickeln wir aus unseren Erfahrungen am Neutronenreflektometer eine neue Meß- und Auswertemethode (X-RMR) an modernen Synchrotronstrahlungsquellen, in der die Vorteile der Reflektometrie mit denen des X-MCD-Effekts zur Untersuchung magnetischer Effekte kombiniert werden. Die ersten X-RMR-Experimente im HASYLAB in einer einzelnen Co/Pt-Grenzfläche verliefen erfolgreich (Abb.2): Wir konnten das Tiefenprofil der (kleinen!) Magnetisierung im Pt (senkrecht zur Grenzfläche) messen, die an der Grenzfläche durch die magnetische Co-Schicht induziert wird. Im Experiment wird die Photonenenergie auf das Maximum des dichroischen Effektes des zu untersuchenden Elements (hier Pt  $L_3$ -Absorptionskante) gesetzt, so daß elementselektiv gemessen wird. Mit Hilfe der Modifizierung unserer Auswerteprogramme aus der Neutronenreflektometrie ergibt sich eine exponentiell abfallende induzierte Magnetisierung im Pt (siehe Fitparameter in Abb. 2).

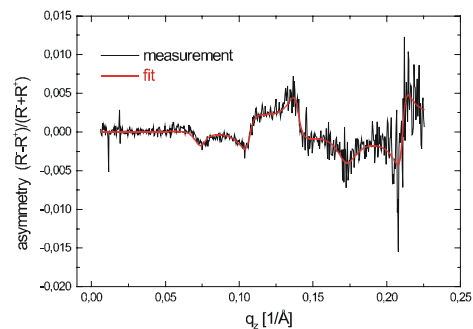


Abb.2: X-RMR-Experiment an Co/Pt: Oben: Beobachtete Asymmetrie (= normierte Differenz der Reflektivität zwischen rechts- und links zirkular polarisiertem Licht) in Abhängigkeit vom Streuvektor senkrecht zur Grenzfläche. Unten: Fitergebnis (schematisch) zum Magnetisierungsprofil im Pt.

H. Maletta, E. Holub-Krappe, D. Schmitz, J. Langer, J. Hauschild, R. Sellmann, D. Arvanitis, F. Klose, Ch. Rehm, M. Fieber-Erdmann



## BENSC Aktivitäten

### BENSC-Instrumentbetreuung

Die Abteilung SF2 betreut im Rahmen des BENSC-Gästebetriebs Neutronendiffraktometer und –spektrometer vorwiegend in der Experimentierhalle des Reaktors BER II. Röntgengeräte und ein Chemielabor werden ebenfalls für Gäste zu begleitenden Untersuchungen und zur Probenvorbereitung zur Verfügung gestellt. Die mit der Betreuung betrauten Mitarbeiter auf Planstellen verwenden etwa 70% ihrer Arbeitskraft für diese Aufgabe.

#### Betreuung der Instrumente

- E1 3-Achsenspektrometer mit Polarisationsanalyse,
- (E2) Pulverdiffraktometer (Verbundforschung, Universität Tübingen)
- E4 Einkristalldiffraktometer,
- E5 Einkristalldiffraktometer,
- E6 Einkristalldiffraktometer,
- E9 Pulverdiffraktometer,
- (E10)  $^3\text{He}$  Projekt
- V1 Membran-Diffraktometer,
- V10 Tieftemperaturdiffraktometer,

sowie der Installationen der Probenumgebungen für ultratiefe Temperaturen, sehr hohe Magnetfelder und hohe Drücke.

H.A. Graf, N. Stüßler, G. Lampert, F. Kubanek, P. Mertens, P. Smeibidl, J. Klenke, K. Prokeš, D. Többsen, A. Loose, S. Danilkin, M. Hofmann

Die Gastexperimente an den Geräten der Abteilung werden im Kapitel BENSC dieses Berichtes summarisch, im BENSC Experimental Report 2000 im Detail dargestellt.

### $^3\text{He}$ -Polarisationsfilter

Entwicklung und Bau einer Apparatur zum Polarisieren von  $^3\text{He}$  mit Hilfe eines optischen Pumpprozesses; Herstellung von Filterzellen für polarisiertes  $^3\text{He}$  als Polarisationsfilter.

Die Filterwirkung von  $^3\text{He}$  besteht nur, wenn dieses selbst zuvor hinsichtlich seiner Kernspins polarisiert wurde. Bei der von uns gewählten Methode geschieht dies über den metastabilen  $2^3\text{S}_1$ -Zustand beim He-Atom, der durch zirkularpolarisiertes Licht der Wellenlänge  $\lambda = 1083 \text{ nm}$  optisch gepumpt wird. Die Optimierung des optischen Pumpprozesses wurde bereits im Vorjahr im Wesentlichen abgeschlossen. Zur Vermeidung von Polarisationsverlusten des Pumplichts wurde als Alternative zum bisherigen Aufbringen der Fenster auf die optischen Pumpzellen durch Aufschmelzen oder Diffusionsverfahren ein Hochtemperaturvakuumkleber getestet. Nach vorläufigen Untersuchungen wirkt sich das Verfahren nicht nachteilig auf den optischen Pumpprozess aus und zeichnet sich durch Einfachheit und eine hohe mechanische Stabilität aus. Beim optischen Polarisationsnachweis führte ein Umbau zu einer erheblichen Verringerung der Hintergrundstrahlung und damit zu einer deutlich gesteigerten Empfindlichkeit.

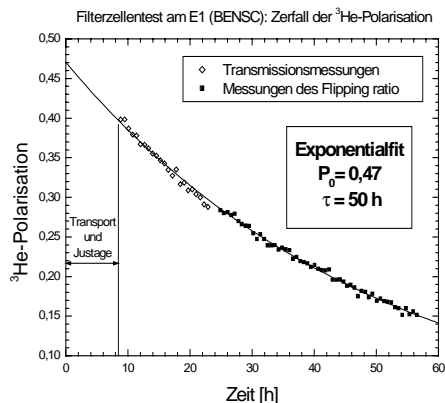
Zur Entwicklung eines neuartigen Kompressortyps zur Verdichtung des polarisierten  $^3\text{He}$  wurden in Kooperation mit dem FZ Jülich abschließende Rechnungen zur Dimensionierung bestimmter Komponenten durchgeführt und die Konstruktion wesentlicher Teile, insbesondere des Zylinderkopfes vorgenommen.

Das Hauptaugenmerk war im Berichtsjahr auf die Entwicklung praktikabler, wiederbefüllbarer Filterzellen gerichtet. Neben einer Anpassung in Geometrie und Materialwahl an die Erfordernisse der Neutronenstreuung im engeren Sinne ist es von entscheidender Bedeutung, den Zerfall der  $^3\text{He}$ -Polarisation aufgrund von Spin-Wand-Wechselwirkungen (Oberflächenrelaxation) soweit als möglich zu reduzieren, was durch eine geeignete Beschichtung des Zelleninnern erreicht werden kann.

Nachdem bereits im Vorjahr Voruntersuchungen mit gold- bzw. wismutbeschichteten Zellen vorgenommen wurden, wurde in diesem Jahr zu Coatings aus Cäsium, welches als vielversprechendstes Beschichtungsmaterial gilt, übergegangen. Für erste Tests wurde zunächst eine abgeschmolzene Zelle aus Duranglas präpariert. Diese ist, um ein direktes optisches Pumpen zu ermöglichen, mit lediglich 4 mbar  $^3\text{He}$  befüllt. Die zeitliche Abnahme der so erzeugten Polarisation wurde anschließend mit Hilfe von NMR-Messungen erfaßt. Dabei wurde für die Oberflächenrelaxation eine Zeitkonstante von  $\tau \geq 28 \text{ h}$  gefunden.

Darauf aufbauend wurde mit der Untersuchung wiederbefüllbarer, ebenfalls cäsiumbeschichteter, Filterzellen begonnen. Ein erster Prototyp aus Quarzglas wurde nach sorgfältiger Präparation

ebenfalls mittels NMR vorab geprüft, wobei eine Zeitkonstante  $\tau = 36$  h gemessen wurde.



Zur Durchführung eines ersten Tests unter Neutronenstreubedingungen wurde die Zelle in der Gruppe von Prof. Heil an der Universität Mainz befüllt und gleich im Anschluß daran ans HMI verbracht. Diese Überführung stellte gleichzeitig eine praxisnahe

Erprobung für eine spezielle, in wesentlichen Teilen bereits in früheren Jahren realisierte Transporteinheit dar, die unter gleichzeitiger Abschirmung äußerer Streufelder durchgehend ein äußerst homogenes magnetisches Führungsfeld gewährleistet. Das unverzüglich nach Eintreffen der Zelle am Dreiachsenspektrometer E1 begonnene Experiment lieferte für die Gesamtrelaxation eine Zeitkonstante  $\tau = 50$  h, wobei noch unklar ist, welcher Beitrag dabei auf die Oberflächenrelaxation entfällt und welcher Anteil auf andere Ursachen wie z. B. Magnetfeldgradienten zurückzuführen ist. Die Transmission der leeren Zelle liegt bei 80%. Messungen mit weiteren wiederbefüllbaren Zellen sind zur Zeit in Vorbereitung. Um bei NMR-Messungen von der Abfüllstation unabhängig zu werden, wurde diesbezüglich eine eigenständige Apparatur errichtet und, gestützt auf Rechnungen zur Optimierung von Führungs- und Erregerfeld, mit zufriedenstellendem Ergebnis getestet.

A. Rupp, A. Gorzel

## BESSY Aktivitäten

### Bau eines Undulators bei BESSY

Die Synchrotronstrahlung bei BESSY im weichen Photonenenergiebereich bietet einzigartige Möglichkeiten als komplementäre Sonde zu den im HMI in den letzten Jahren intensiv durchgeführten Untersuchungen an magnetischen Schichten und Nanostrukturen. Über den Dichroismus polarisierter Röntgen(X)-Strahlen erhält man einen hohen Kontrast für magnetische Effekte. Deswegen wird in enger Zusammenarbeit mit BESSY der elliptische Undulator UE46 dafür optimal konzipiert und aufgebaut. Er wird zirkular und linear polarisiertes weiches X-Licht für verschiedenartige Meßplätze an zwei Beamlines liefern.

Der Undulator UE46 (Abb.1) wurde optimiert zur Erzeugung von X-Strahlung höchster Brillanz und Polarisation in einem weiten Energiebereich (200eV bis 1800eV) für Untersuchungen zum Magnetismus ultradünner Schichten und Nanostrukturen mit 3d- und 4f-Momenten. Der Magnetaufbau des UE46 bietet vier Betriebsmoden an (Abb.2), wobei die 4. Mode die lineare Polarisation der Photonen unter verschiedenen Winkeln erzeugt und eine attraktive Neuentwicklung darstellt. Die Rechnungen zum UE46-Aufbau und dessen spektraler Charakterisierung sind abgeschlossen. Alle Bestellungen sind getätigt, so daß der UE46 wie geplant Ende 2001 in den Ring eingebaut werden sollte.

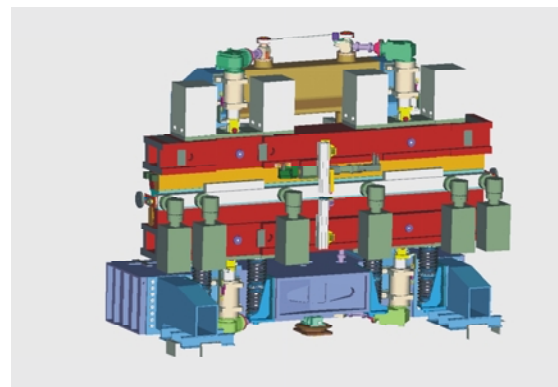


Abb. 1: Ansicht des elliptischen Undulators UE46 (Länge 3.4 m)

#### APPLE-II Type Undulator UE46: 4 Different Polarization Modes

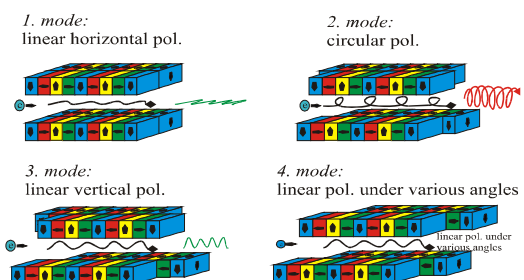


Abb. 2: Schematische Ansicht der Magnetreihen (Periodenlänge 46 mm) des elliptischen Undulators UE46 in den vier Betriebsmoden  
H. Maletta, U. Englisch

## Bau der PGM-Beamline am Undulator mit Meßplätzen für magnetische Nanostrukturen

Für Untersuchungen zum Magnetismus dünner Schichten und Nanostrukturen werden am Undulator UE46 zwei Strahlrohre aufgebaut mit Experimenten, die den magnetischen Dichroismus von polarisierten X-Strahlen ausnützen: Eine Beamline mit einem Plangittermonochromator (PGM) für magnetische Spektroskopie und eine zweite für magnetische Röntgenmikroskopie:

- Die zweite Beamline zur hochauflösenden Abbildung magnetischer Nanostrukturen wird von Universitätspartnern in Würzburg und Göttingen neu entwickelt und aufgebaut,
- Der optische Aufbau der PGM-Beamline wird in Kooperation mit BESSY konzipiert und im Rahmen dieses Projektes mit Instrumenten für magnetische Untersuchungen in Absorption und Reflexion aufgebaut.

Durch diese Meßmöglichkeiten mit zirkular und linear polarisierter, weicher Röntgenstrahlung können die Fragestellungen auf dem Gebiet des Magnetismus ultradünner Schichten und Nanostrukturen in einzigartiger Weise erweitert werden.

Die Planungs- und Bestellphasen für den optischen Ausbau der PGM-Beamline sind abgeschlossen (Spiegelkammern mit Spiegel, PGM-Kammer mit Gitter). Der kollimierte Strahl ermöglicht es, den PGM in zwei Modi zu betreiben, dem hoher Auflösung oder dem der Unterdrückung höherer Ordnungen. Das spektrale Auflösungsvermögen  $E/\Delta E$  ist im gesamten Spektralbereich größer als 5000. Die Fokussierung nach dem PGM erfolgt astigmatisch. Die Refokussierspiegelkammer wird als Besonderheit mit zwei Spiegeln ausgestattet (Modifizierung eines HASYLAB-Konzeptes, in Zusammenarbeit mit der HMI-Konstruktionsabteilung), die wahlweise betrieben werden können: Der erste Spiegel fokussiert den X-Strahl auf eine Fläche von nur  $40\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ , während der zweite einen Parallelstrahl mit 1.5mm-Durchmesser erzeugt.

An der PGM-Beamline werden z.Z. zwei Experimentierplätze geplant und aufgebaut. Die erste UHV-Kammer wird gerade im Labor getestet und soll in 2001 bereits an einem anderen Strahlrohr bei BESSY zum ersten Mal eingesetzt werden. Sie wurde als kombinierte UHV-Präparations- und Meßkammer für dünne Schichten konzipiert, um in-situ X-Messungen durchführen zu können. Die Kammer hat einen Basisdruck von  $2 \cdot 10^{-11}$  mbar und ermöglicht Probertemperaturen von 65 K bis 1200 K; die maximale Magnetfeldstärke beträgt 0.05 T. Als Meßmethoden stehen die Röntgenabsorptionsspektroskopie, gemessen mit der Elektronenausbeute oder in Transmission, die winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie und die Reflexion zur Auswahl. An einem zweiten Meßplatz wird ein Hochfeld-Reflektometer mit 7T-Magnetfeld aufgebaut.

Für die Reflexion wird die neue Meßmethode der resonanten magnetischen Reflektometrie (X-RMR) entwickelt. Erste Messungen an der Pt- $L_3$ -Kante in einer einzelnen Co/Pt-Grenzfläche am HASYLAB in Hamburg verliefen erfolgreich. Diese Experimente

werden jetzt bei BESSY weitergeführt, so daß die Erfahrungen in die Reflektometriemessungen am UE46 einfließen können: (1.) Das X-RMR-Konzept soll auf den weichen X-Bereich übertragen werden, und (2.) zur Untersuchung magnetisch diffuser Streuung in der nicht-spekulären Reflexionsgeometrie erweitert werden. Durch Messung der diffusen Streuung, die Aufschluß über laterale Strukturen gibt, sollen z.B. Unterschiede in der chemischen und magnetischen Grenzflächenrauigkeit und deren Einflüsse auf magnetische Parameter untersucht werden.

Bei intensiver Investition in diese Meßmethodentwicklung eröffnen sich neue Möglichkeiten, aktuelle Fragestellungen in der Forschung an dünnen Schichten und Grenzflächen auch in bezug auf den technologischen Einsatz neuer Materialien (Stichwort: Magnetoelektronik) zu studieren.

Für die Auswertung von EXAFS-Messungen z.B. an der PGM-Beamline des Undulators UE46 bei BESSY wurde an der Entwicklung einer genauen Fehleranalyse weitergearbeitet. Basierend auf den Ergebnissen des Computerprogramms FEFF analysieren wir EXAFS Daten im k-Raum, um die ersten drei Momente ( $R_i$ ,  $\sigma_i^2$ ,  $C3_i$ ) der Schalenabstände  $i$  vom absorbierenden Atom zu bestimmen. Zur Quantifizierung der Unsicherheiten dieser Parameter machen wir Abschätzungen für die statistischen und systematischen Fehler der Daten, für die Näherungen in der Behandlung des elektronischen Vielkörperproblems in FEFF, für die Begrenzung der Anzahl der Vielfachstreuungspfade, und für die Begrenzung des maximalen Clusterradius. Der Einfluss dieser Unsicherheiten auf die drei Momente wird mit Hilfe der Bayes'schen Methode untersucht. Wir führen einen Satz von a priori Parametern ein und betrachten zwei Strategien, um das Gewicht der a priori Daten relativ zu den experimentellen Daten festzulegen.

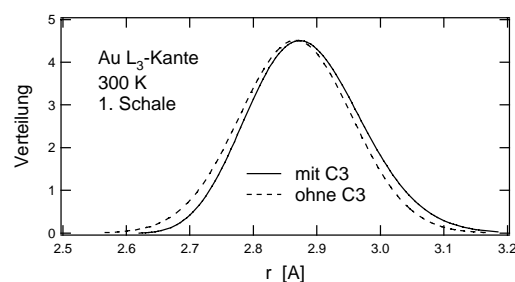


Abb. 1: Verteilungsfunktion der ersten Schale im fcc Au Gitter mit und ohne Berücksichtigung des dritten Momentes C3 in der EXAFS-Datenanalyse.

Die Analysemethode wurde bisher auf Daten angewandt, die an der Cu K-Kante bei 10K, an der Au  $L_3$ -Kante bei 300K, und an der Ta  $L_3$ -Kante bei 10K, 80K und 300K aufgenommen wurden. Es konnte gezeigt werden, dass insbesondere bei der höheren Temperatur das dritte Moment der radialen Verteilungsfunktion nicht vernachlässigt werden darf. Dies wird verdeutlicht in Abb 1, wo die Verteilungsfunktion der ersten Schale im fcc Au Gitter mit und ohne Berücksichtigung des dritten Momentes in der Datenanalyse gezeigt wird. Die Vernachlässigung von C3 führt zu Änderungen des mittleren Schalenabstandes und seiner Varianz.

In Zukunft wird daran gearbeitet, die Varianzen der einzelnen Streupfade zurückzuführen auf eine Matrix aus Federkonstanten, die ihrerseits mit den makroskopischen elastischen Konstanten zusammenhängen.

H. Maletta, E. Holub-Krappe, H. Rossner,  
D. Schmitz, J. Hauschild, J. Langer

### **Bau eines Meßplatzes am 7T-Wiggler für magnetische Untersuchungen**

*Für Experimente mit harter Röntgenstrahlung wird bei BESSY ein 7T-Wiggler in den Speicherring eingebaut. An diesem Wiggler sollen in enger Zusammenarbeit mit BESSY zwei Meßplätze (beam lines) installiert werden.*

*Eines der Strahlrohre wird monochromatische Röntgenstrahlung liefern. Die notwendige Röntgenoptik sowie ein Meßplatz, der vorwiegend für magnetische Strukturuntersuchungen mit Hilfe der resonanten magnetischen Röntgenstreuung, aber auch für andere kristallographische Untersuchungen ausgelegt ist, werden im Rahmen dieses Projektes geplant und gebaut. Der wahlweise Einsatz eines weiteren Instruments (Kleinwinkelstreuanlage) an diesem Strahlrohr ist vorgesehen.*

Die Planung des Strahlrohrs, d.h. der Röntgenoptik und der weiteren Strahlführung bis zum eigentlichen Experimentierplatz wurden abgeschlossen. Dies beinhaltet umfangreiche *ray tracing* Rechnungen, die Auslegung der Strahlenschutzhütte mit Erstellung eines detaillierten Flurplans und die Einbindung weiterer Optionen zur Nutzung des Strahlrohres (Kleinwinkelstreuung). Schließlich wurde eine detaillierte technische Spezifikation erstellt, die die Basis für eine Ausschreibung ist. Die technische Konstruktion und der Bau der Beamline soll an eine externe Firma vergeben werden.

R. Feyerherm, E. Dudzik

**Abteilung**

**SF3 Werkstoffe**



Die makroskopischen (mechanisch-technologischen) Eigenschaften von Werkstoffen sind durch ihre Mikrostruktur bestimmt. Die gezielte Einstellung und Verbesserung der Werkstoff- und Bauteileigenschaften erfordert daher die Charakterisierung der Mikrostruktur (Phasenzusammensetzung, -verteilung, Morphologie, Eigenspannungen, Textur), aber auch darauf aufbauend die Klärung der Zusammenhänge zwischen Mikrostruktur und makroskopischen Eigenschaften. Darüber hinaus unterliegt die Mikrostruktur der Werkstoffe bei betrieblicher Beanspruchung einer Evolution, die mit Änderungen der makroskopischen Eigenschaften einhergeht und die die Bauteillebensdauer bestimmt. Auch die Klärung dieser Zusammenhänge ist Bestandteil der Zielsetzung der Thematik „Struktur und Eigenschaften von Werkstoffen“.

Untersuchungsgegenstand sind neben konventionellen Werkstoffen auch moderne Werkstoffe wie z.B. amorphe und nanostrukturierte Legierungen, intermetallische Verbindungen, sowie Partikel- und Schichtverbunde (z.B. keramisch beschichtete Turbinenschaufeln).

Die umfassende Zielsetzung und die breite Werkstoffpalette erfordern die Konzentration der Arbeiten auf die Gebiete der Werkstoffstrukturanalytik. In diesem Rahmen werden insbesondere diejenigen Fragestellungen behandelt, deren Bearbeitung den Einsatz der Großgeräte BER II – Reaktor und künftig BESSY – Ring erfordert.

## Mikrostruktur und Kinetik der Phasenumwandlungen in ausgewählten Legierungen und keramischen Materialien

*Aufklärung der grundlegenden Mechanismen zur Entstehung und Stabilität der Mikrostruktur mehrkomponentiger heterogener Werkstoffe mit Bezug auf die technische Anwendung. Die Fragen werden unter komplementärem Einsatz der verschiedenen hochauflösenden Methoden der Abteilung zur mikrostrukturellen Analyse bearbeitet.*

*Schwerpunktmäßig werden metallische Massivgläser und Nanomaterialien untersucht. Bei den metallischen Massivgläsern stehen deren gezielte Herstellung und Verarbeitung als Werkstoff und die Zusammenhänge zwischen Stabilität, Diffusion, Strukturänderungen, Kristallisation und viskosem Verhalten im Vordergrund. Bei Nanomaterialien werden Fluktuationen der Dichte, der Konzentration oder der Magnetisierung in Materialien im Größenbereich zwischen 0.5 nm und 300 nm im wesentlichen mit Hilfe der Neutronen-Kleinwinkelstreuung (NKWS) untersucht. Daneben werden Nano-Inhomogenitäten mit Hilfe der tomographischen Atomsonde direkt abgebildet und quantitativ bezüglich ihrer Zusammensetzung analysiert sowie mit Hilfe hochauflösender Transmissionselektronenmikroskopie strukturell charakterisiert. Die verschiedenen Analyseverfahren und theoretischer Modelle werden ständig für neue Anwendungen weiter entwickelt*

### Metallische Massivgläser zur Herstellung von Mikrobauteilen:

Die Diffusion in  $\text{Zr}_{46.8}\text{Ti}_{8.2}\text{Cu}_{7.5}\text{Ni}_{10}\text{Be}_{27.5}$  (V4) wird durch einen langsamen Relaxationseffekt beeinflusst. Auch unterhalb der kalorischen Glas-temperatur kann der relaxierte Zustand der stark unterkühlten Schmelze durch Langzeitwärmebehandlung erreicht werden.

Quantitative Aussagen über die Zusammensetzung nanoskalig entmischter amorpher Tröpfchen, in amorphem  $\text{Zr}_{41}\text{Ti}_{14}\text{Cu}_{12.5}\text{Ni}_{10}\text{Be}_{22.5}$  durch Kombination von NKWS mit Synchrotron-KWS und mittels anomaler Röntgenabsorption (ASAXS) mit Synchrotronstrahlung: Be und Zr sind sowohl im Tröpfchenkern als auch in der umgebenden Schale antikorreliert zu Ti und Cu an- bzw. abgereichert, Ni ist homogen verteilt.

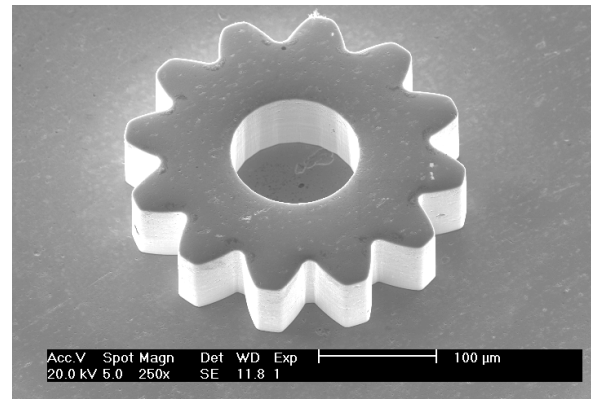


Abb. 1: Herstellung von Mikrobauteilen durch superplastisches Umformen. Rasterelektronenmikroskopische Abbildung eines Mikrozahnrades von 200 µm Durchmesser und 100 µm Dicke aus  $\text{Zr}_{46.8}\text{Ti}_{8.2}\text{Cu}_{7.5}\text{Ni}_{10}\text{Be}_{27.5}$  Massivglas. Das Zahnrad ist der Abdruck einer in einen Si-Wafer geätzten Form, in die das Glas mit 5 MPa Druck bei 653 K gepresst wurde.

Die Kristallisation von  $\text{ZrTiCuNiBe}$ -Massivgläsern erfordert weitreichende Entmischung des Glases. Die hierin begründete kinetische Hemmung ist eine wesentliche Ursache für die große Stabilität dieser Gläser. Die Kristallisation beginnt mit der Entstehung metastabiler Phasen, z.B. mit einfach-icosahedrischen Quasikristallen im Nanometerbereich in  $\text{Zr}_{46.8}\text{Ti}_{8.2}\text{Cu}_{7.5}\text{Ni}_{10}\text{Be}_{27.5}$  (V4).

Die Eignung der Massivgläser V4 und  $\text{Pd}_{40}\text{Cu}_{30}\text{Ni}_{10}\text{P}_{20}$  für das superplastische Umformen wurde nachgewiesen und das Temperatur-Zeit-Gebiet, in dem die Umformung möglich ist, bestimmt. V4 Glas ist ausreichend stabil, um Verformungsgrade von bis zu  $\epsilon=5$  bei Drucken von nur 5 MPa zuzulassen. Die Verformung erfolgt hierbei über Newton'sches Fließen. Feine Strukturen aus V4 – Glas, bis herunter zu 100 µm mit Strukturdetails im Sub-µm Bereich wurden mit hoher Präzision geformt (Abb.1).

Strukturaufklärung in Nanomaterialien: Anisotrope NKWS Untersuchungen in nanoskaligen, kompaktierten Fe, Co und Ni Proben zeigten, dass die magnetischen Korrelationen durch starke Austauschkopplungen dominiert werden: Die Nanokörner bilden magnetische Domänen, die in eine ferromagnetische Matrix eingebettet sind, wobei die Magnetisierungsvektoren gegeneinander unterschiedlich stark und von der Feldstärke abhängig verkippt sind.

Für Fe-Si-B-Nb-Cu und Fe-Si-B konnte die Curie-Temperatur der ferromagnetischen Nanokristallite in der ferromagnetischen amorphen Matrix präzise bestimmt werden. Mit Hilfe von SANS-POL-Messungen konnten Kompositions- Dichte- und Magnetisierungs-Fluktuationen an den inneren Grenzflächen zwischen Nanokristall und amorpher Matrix ermittelt werden. Die durch SANS-POL-Messungen direkt bestätigt magnetisch stark gestörte Oberflächenschicht der Magnetit Partikel in Eisen- Oxidkeramiken, beeinflusst wesentlich das magnetische Verhalten der  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  Nanokristalle. Superparamagnetisches Verhalten der Nanokristallite bei hohen Temperaturen wurde nachgewiesen.

Mit Hilfe einer neuen mikromagnetischen Theorie konnte die Magnetfeldabhängigkeit des Q-abhängigen NKWS-Signals erklärt werden. Dies erlaubt erstmalig die Bestimmung der Konstanten für ferromagnetischen Austausch und Spinwellen-Steiheit in nanoskaligen Materialien.

Die Entwicklung der Mikrostruktur beim Sintern keramischer Nanokomposite ist wesentlich für die Eigenschaften dieser neuartigen Keramiken für technische Anwendungen. Im Rahmen der Kooperation mit dem FB Materialwissenschaften der Technischen Universität Darmstadt wurde mit Hilfe von NKWS-Messungen in Immersionsflüssigkeiten die Poren, die nanokristallinen Phasen sowie die amorphen Hüllenschichten in  $\text{Y}_2\text{O}_3$ -  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{ZrO}_2$ -Nanokompositen bestimmt.

Aufbau und Stabilität der mesoskopischen Strukturen in magnetische Flüssigkeiten (MF) (stabile Dispersionen von ferromagnetischen Materialien, aus einem nanoskaligen magnetischen Kern und einer nichtmagnetischen Hülle) wurden untersucht (Abb 2).

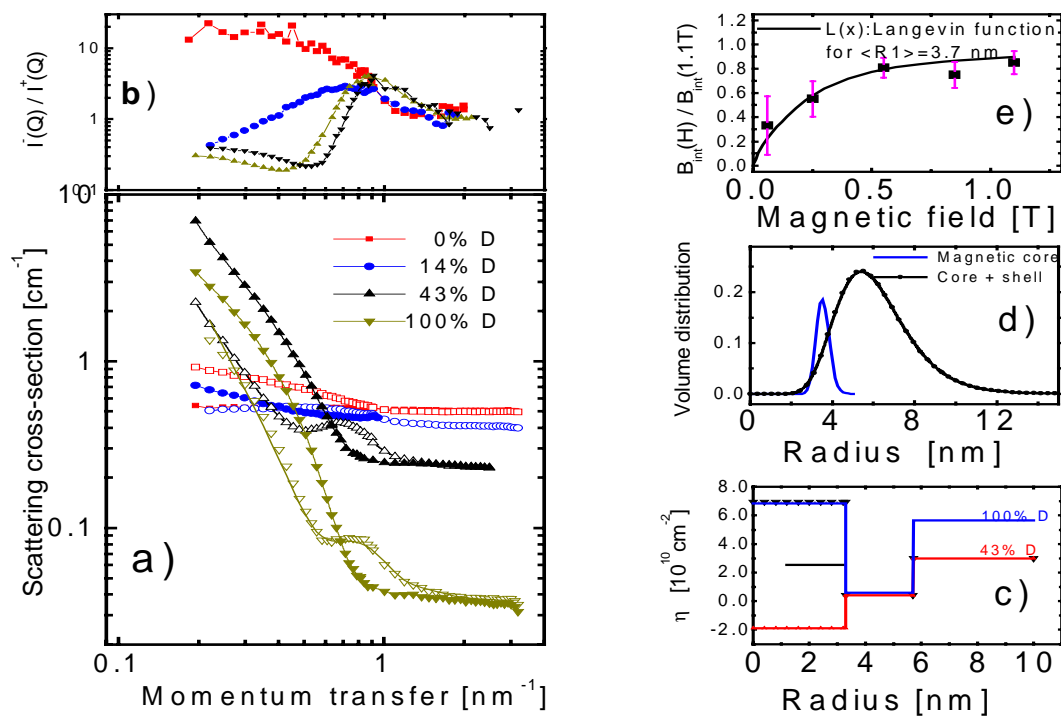


Abb 2: SANS-POL Ergebnisse eines Co-Ferrofluids im horizontalen externen Magnetfeld: a) Streusignale  $I^*(L)$  (volle Symbole) und  $I(L)$  (offene Symbole) und b) Flipverhältnis in verschiedenen deuterierten Lösungsmittel als kombinierte Kontrastvariation. Die durchgezogene Linien stellen die Anpassung an ein einheitliches Modell eines magnetisierten Kerns und einer nichtdurchdringbaren Hülle mit den Streulängenprofilen aus c) und der Größenverteilung aus d) dar. e) Aus der Magnetfeldabhängigkeit des Interferenzterms wurde das eindomnige nicht-wechselwirkende Verhalten der magnetischen Kerne nachgewiesen



Die Zerstörung der Hülle führt zum Beispiel zum Verlust der superparamagnetischen Eigenschaften, die für technische und medizinische Anwendungen bedeutsam ist. Als erstes Beispiel konnte in einem Cobalt-Ferrofluid die Grössenverteilung des Co-Kerns, die Ausdehnung der organischen Hülle und das Magnetisierungsprofil des superparamagnetischen Nano-Kerns bestimmt werden: Dies wurde durch eine Kombination der klassischen Kontrastvariation (Variation der Streulängendichte des Lösungsmittels) mit SANS POL (Variation der Streulängendichte des magnetischen Kerns) ermöglicht.

Entwicklung und Anwendung neuer Analyseverfahren und theoretischer Modelle Mit Hilfe von tomographischen Atomsondenmessungen wurden in der kriechverformten einkristallinen Nickelbasis-Superlegierung SC16 spannungsabhängige Cr-Verarmungen und Ni-Anreicherungen in der Matrix und Ti- und Ta-Verarmung an den  $\gamma/\gamma'$  Grenzflächen der  $\gamma'$  Ausscheidungen gemessen, während dort sowohl im unverformten wie auch im verformten Material Ti an- und Al abgereichert ist (Abb.3). Das zeigt, daß die spannungsgetriebene, langreichweitige Diffusion, die zur Degeneration der Festigkeits bestimmenden  $\gamma'$ -Ausscheidungen führt, im wesentlichen in der  $\gamma$ -Matrix stattfindet. Durch ein neu entwickeltes statistisches Auswerteverfahren ist jetzt die quantitative Charakterisierung nanoskaliger Heterogenitäten in Legierungen aus tomographischen Atomsondenmessungen möglich.

Damit konnte erstmals eine periodische Entmischungsstruktur mit einer charakteristischen Wellenlänge von etwa 2 nm in einer übersättigten  $\text{Cu}_{80}\text{Co}_{20}$ -Legierung für GMR Anwendungen lokal nachgewiesen werden.

Mit Hilfe von SANS POL-Messungen ergaben sich qualitativ neue Erkenntnisse über innere Grenzflächen, Magnetisierungs- und Dichteprofile in nanoskaligen Materialien. Die interaktive Daten-Reduktionssoftware BerSANS wurde für die Auswertung der 2-dimensionalen SANS POL - Datensätze erweitert. Ein Mess- und Analyseverfahren, zur Ermittlung von Form und Volumenteil von Ausscheidung aus dem 2-dimensionalen NKWS Streubild wurde neu entwickelt. Damit wurde ein sehr geringer Volumenanteil plattenförmiger  $\sigma$  oder  $\mu$  Phasen in der einkristallinen Nickelbasis-Superlegierung SC16 nachgewiesen, von denen aus Risse im Werkstoff eingeleitet werden.

Die Kinetik der Phasentransformationen ferngeordneter, intermetallischer Legierungen unter Nichtgleichgewichtsbedingungen wurde mittels Monte Carlo Simulation untersucht. Es wurde gezeigt, wie die Nukleation und das Wachstum von geordneten Bereichen mit der Ausbildung von ausgedehnten Antiphasengrenzen durch Bestrahlung mit energiereichen Teilchen kontrolliert und experimentell bestimmt werden können.

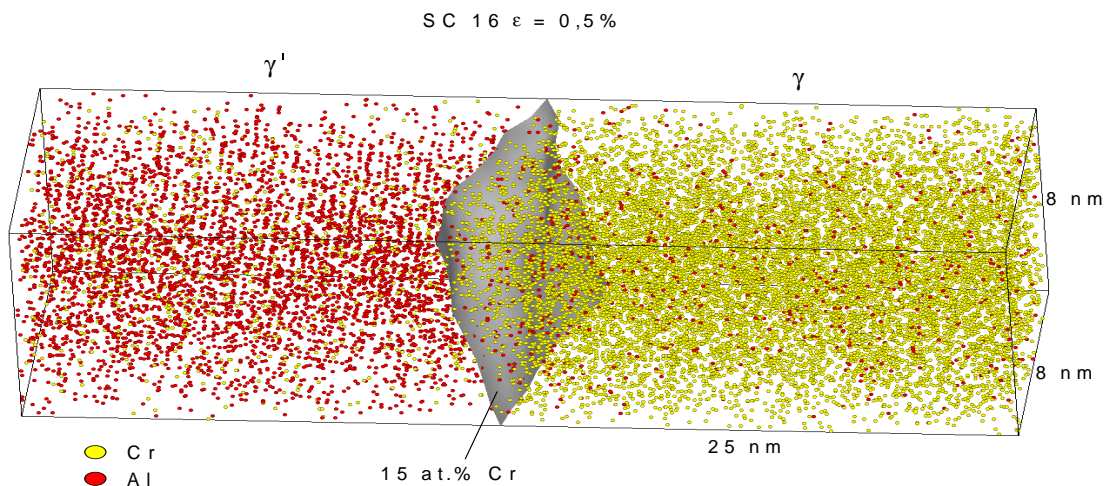


Abb. 3: Räumliche Rekonstruktion der Atompositionen von Cr und Al eines Ausschnitts aus der kriechverformten Superlegierung SC16, gemessen mit der tomographischen Atomsonde. Die eingezeichnete Phasengrenze trennt die geordnete  $\gamma'$ -Phase (linke Bildhälfte) von der  $\gamma$ -Matrix (rechte Bildhälfte). Das Streifenmuster in der linken Bildhälfte ist ein Schnitt durch die Al reichen Netzebenen der geordneten  $\gamma'$ -Phase.

M.-P. Macht, A. Wiedenman C. Abromeit ; E. Davidov; M.Müller; V. Naundorf ; W. Reimers, N. Wanderka, A. Hoell; P. Strunz, U. Czubayko; J. Rüsing, M. Seidel; S. Suzuki; T. Zunkley

## Eigenspannungen in Werkstoffen und Bauteilen

Das Forschungsprojekt befaßt sich mit der Analyse von Eigenspannungen als Form interner Beanspruchung von Werkstoffen und Bauteilen. Eigenspannungen werden zerstörungsfrei über Messungen von Gitterkonstanten und Linienverbreiterungen mit Röntgen- und Neutronenbeugungsmethoden ermittelt. Das am HMI aufgebaute Instrumentarium erlaubt die Untersuchung von oberflächennahen Eigenspannungszuständen mittels Röntgenbeugung (Informationstiefe  $< 10 \mu\text{m}$ ) sowie von Volumenspannungen mittels Neutronenbeugung (Informationstiefe bis zum cm-Bereich). Mittels spezieller Meßtechniken ist dabei sowohl die Untersuchung der im technischen Bereich üblichen Materialien mit Korngrößen  $< 50 \mu\text{m}$  wie auch grobkörniger bzw. einkristalliner Materialien möglich.

Die Ambivalenz der Rißbildung in Verbundwerkstoffen ist von besonderer Bedeutung für Schichtverbundwerkstoffe (s. z. B. Wärmedämmschichtsysteme). Eine für zukünftige Anwendungen interessante Werkstoffgruppe stellen dabei metall – keramische Gradientenwerkstoffe dar, die es erlauben, die Spannungsinkompatibilitäten an den Grenzflächen zwischen keramischer Deckschicht und metallischem Substrat durch die Gradiierung zu reduzieren. Hierzu wurden Untersuchungen an mikrowellengesinterten Metall – Keramik – Schichtverbundsystemen mit gradiertem Zwischenschicht im Materialsystem Ni/8Y-ZrO<sub>2</sub> bzw. NiCr8020/8Y-ZrO<sub>2</sub> durchgeführt. Im Volumen der gradiert zusammengesetzten Sinterkörper liegen entsprechend der Fehlpassung der thermischen Ausdehnungskoeffizienten Druck-eigenspannungen auf der keramikreichen Seite vor, die von den Zugeigenspannungen auf der metallischen Seite ausgeglichen werden. Die Maximalwerte der Spannungsbeträge sind bei einem linearen Zusammensetzungsgradienten jeweils bei Phasenanteilen von 10 – 20 Vol.% Metall- bzw. Keramikgehalt zu finden. Durch eine Veränderung der Zusammensetzungsverteilung von Metall und Keramik mit Hilfe von Querschnittsänderungen der einzelnen Schichten können sowohl die räumliche Lage der Eigenspannungsmaxima als auch deren Höhe beeinflusst werden. Darüber hinaus wurde der Einfluss des den keramikreichen Schichten zusätzlich beigemengten ZrSiO<sub>4</sub> auf die Eigenspannungsentwicklung untersucht. Infolge der netzwerkartigen Rißbildung zwischen den einzelnen Silikatpartikeln wurden die phasenspezifischen Zugeigenspannungen im Ni, im Volumen der Sinterkörper, verringert (Abb.1)

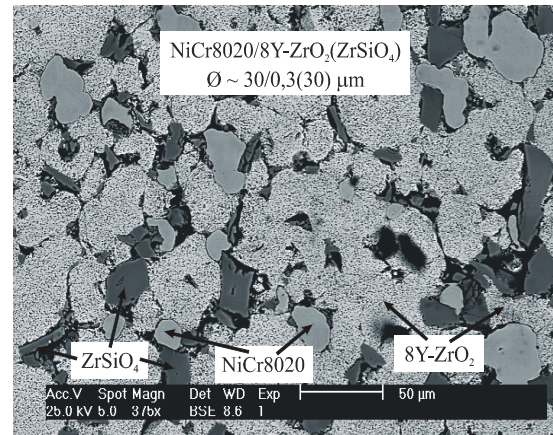


Abb.1: Netzwerkartige Rissbildung in der Zirkonia-matrix im keramikreichen Gebiet eines NiCr8020/8Y-ZrO<sub>2</sub> Gradientenwerkstoffs infolge der Zugabe von ZrSiO<sub>4</sub>

Im Hinblick auf einen praktischen Einsatz dieser Werkstoffe ist auch von Bedeutung, daß durch den ZrSiO<sub>4</sub> – Zusatz der makroskopische E-Modul des Gefüges herabgesetzt werden konnte und infolgedessen die Auswirkungen des Temperaturgradienten begrenzt werden.

Die zukunftsweisende Kombination von theoretischen und experimentellen Untersuchungen wurde eingesetzt zur Analyse von Massivumformprozessen und den daraus resultierenden Textur- und Eigenspannungsverteilungen. In diesem Rahmen wurde auf der Grundlage eines Taylor – Bishop – Hill – Modells ein Simulationspaket entwickelt, das die Textur- und Eigenspannungsentwicklung kubisch flächenzentrierter und kubisch raumzentrierter Metalle sowohl unter ein- als auch mehrachsiger Verformung erlaubt und das z.Zt. auf hexagonale Werkstoffe erweitert wird. Die Simulationsrechnungen liefern neben der Texturentwicklung insbesondere quantitative Informationen über Eigenspannungen II. Art, deren Bedeutung für makroskopische mechanisch – technologische Eigenschaften noch weithin unterschätzt wird. Darüber hinaus können anhand der Ergebnisse der Simulationsrechnungen Gitterdehnungsverläufe bezüglich ihrer Nichtlinearitäten korrigiert werden (Abb. 2), sodaß zuverlässige Makroeigenspannungswerte in stark plastisch umgeformten Werkstoffen ermittelt werden können. Entsprechende Vergleiche zwischen Experiment und Rechnungen wurden für verschiedenachsige Beanspruchungen an den Werkstoffen AlMg3, E-Cu und X10Cr13 durchgeführt und ergaben sehr gute Übereinstimmungen.

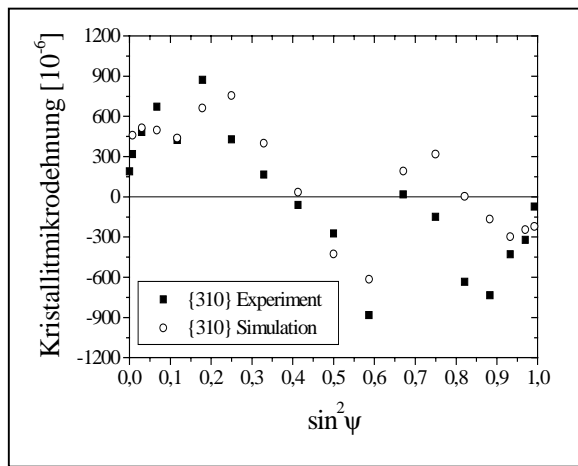
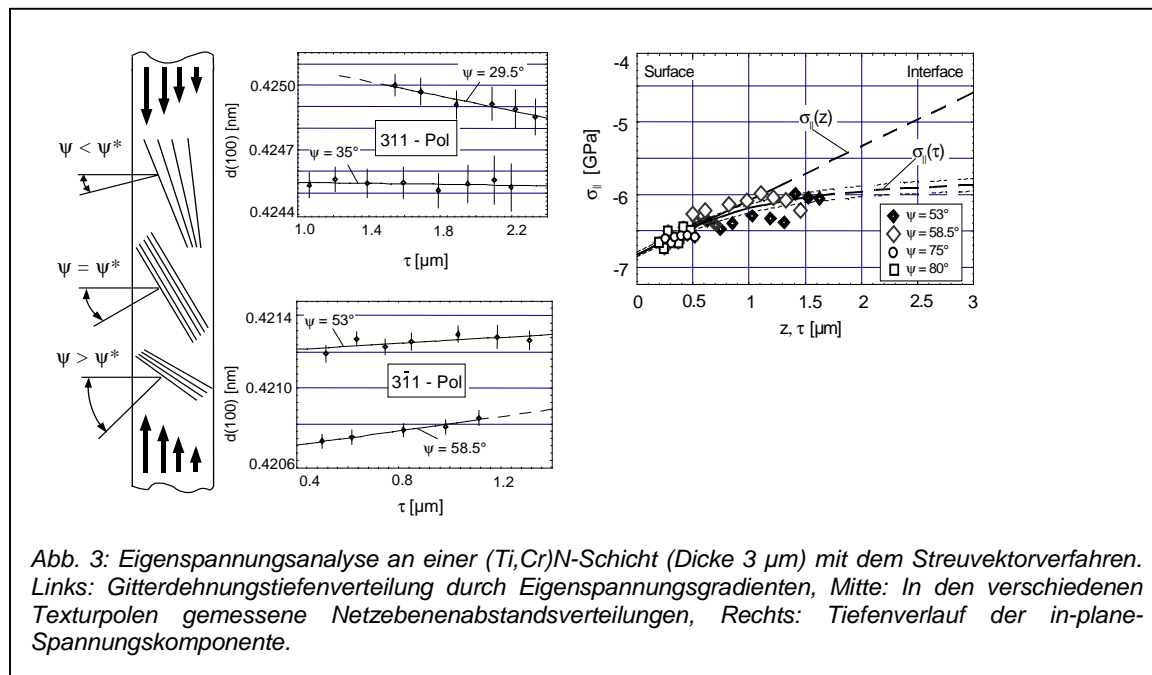


Abb. 2: Kristallmikrodehnungen in einer druckverformten Probe aus dem ferritischen Stahl X10Cr13, Umformgrad  $\phi_V = 0.5$

Neben der weiteren Intensivierung der Zusammenführung von Experiment und Simulation wird zukünftig insbesondere auch eine fallspezifische Kombination von komplementären Analyseverfahren sowie die Bewertung von Mikrostrukturen im Hinblick auf die Anforderungsprofile von Werkstoffen und Bauteilen von Bedeutung sein. Beispielhaft für diese Zielsetzung wurde die Gefügeausbildung und die Eigenspannungsverteilungen des hochstickstofflegierten Werkzeugstahls X30CrMoN15 1 + 0,4% N und des konventionellen Kaltarbeitsstahls X39CrMo17 1 (Vergleichsstahl) nach einer Kurzzeitlaserwärmebehandlung sowie die daraus resultierenden chemischen Eigenschaften untersucht. Ausgehend von einem Vergütungsgefüge wird durch Kurzzeitaustenitisierung eine martensitische Umwandlung und eine Auflösung bzw. Teilauflösung der Karbide und Nitride erreicht. Dabei wurde durch transmissionselektronen-mikroskopische Untersuchungen und Untersuchungen mittels Neutronenkleinwinkel-Streuung nachgewiesen, daß sich die Ausscheidungen im hochstickstofflegierten Stahl X30CrMoN15 1 durch eine Kurzzeitlaserwärmebehandlung vollständig auflösen lassen. Für die großen Karbide im konventionellen Kaltarbeitsstahl sind die Verweilzeiten im Austenitgebiet bei einer Kurzzeitwärmebehandlung viel zu gering, um eine merkliche Größenveränderung herbeizuführen. Lochfraßversuche in 3% NaCl bei pH 7 zeigen, daß aufgrund des durch die Wärmebehandlung in Lösung gebrachten Stickstoffs und Chroms eine deutliche Verbesserung des Widerstandes gegen Lochfraß resultiert. Weiterhin konnte der Einfluß von Eigenspannungen auf chemische Eigenschaften beispielhaft nachgewiesen werden. So führt die Relaxation von Zugeigenspannungen durch eine Wärmebehandlung (200°C) zu einer Verbesserung der Korrosionseigenschaften.

Zur Analyse von Eigenspannungsgradienten in Tiefenrichtung wurde ein röntgenographisches Meß- und Auswerteverfahren für vielkristalline Werkstoffe entwickelt. Der Grundgedanke der Methode besteht darin, die Eindringtiefe  $\tau$  der Röntgenstrahlung in den Werkstoff durch schrittweise Drehung der Probe um den Streuvektor ( $\gamma \phi \psi$ ) zu variieren. Damit können Tiefenprofile der Netzebenenabstände  $d^{hkl}$  für fest vorgegebene Azimut- und Neigungswinkel  $\phi$  und  $\psi$  des Streuvektors im Probensystem ermittelt

werden, wodurch sich die Möglichkeit abzeichnet, einzelne Komponenten des Spannungstensors aus der Grundgleichung der röntgenographischen Spannungsanalyse (RSA) zu entkoppeln und einzeln zu analysieren. Zur Berechnung der entsprechenden Eigenspannungsverteilungen  $\sigma_{ij}(\tau)$  aus den Netzebenenabstands-Tiefenprofilen wird eine selbstkonsistente Methode entwickelt, die der hohen Empfindlichkeit der ermittelten Eigenspannungen bezüglich des Netzebenenabstandes  $d_o^{hkl}$  im spannungsfreien Kristallgitter Rechnung trägt. Die Auswertung liefert neben den Eigenspannungstiefenprofilen auch den dehnungsfreien Netzebenenabstand  $d_o^{hkl}$  selbst und gestattet somit die quantitative Analyse eines dreiachsigen Eigenspannungszustandes im oberflächennahen Werkstoffbereich. Da die tiefenaufgelöste Gitterdehnungsanalyse bei der Streuvektortechnik in festen Meßrichtungen bezüglich des Probensystems erfolgt, liegt das Hauptanwendungsgebiet der Methode in der Ermittlung der intrinsischen Spannungsverteilung in dünnen, oftmals stark texturierten Schichten. In diesem Fall werden die Messungen in den Intensitätspolen der Textur, beziehungsweise unter streifendem Einfall durchgeführt. Untersuchungsgegenstände waren u.a. Arc – PVD – (TiCr)N – Schichten mit Schichtdicken von einem bis ca. 5  $\mu\text{m}$  (Abb. 3) und Dünnschichtsysteme für magnetische Anwendungen.



W. Reimers, D. Berger, C. Bohne, G. Bruno, D. Dantz, S. Dieter, C. Genzel, H.-M. Mayer, P. Peter, T. Poeste, A. Pyzalla, C. Stock, T. Töpfer, B. Wallis, L. Wang, J. Wegener

## BENSC Aktivitäten

Die Abteilung SF3 betreibt die Instrumente

E3 Neutronenspannungsdiffraktometer  
V4 Neutronenkleinwinkelstreuanlage SANS.  
(E7a) z.Z. Aufbau Diffraktometer für FRM 2.

Darüber hinaus steht das Röntgendiffraktometer X 1 zur Nutzung durch Gäste zur Verfügung.

### V4 Betreuung und Weiterentwicklung des Kleinwinkelinstruments

Neben der Betreuung der Kleinwinkelanlage V4 im BENSC Gästebetrieb für externe Nutzer wird vor allem die neue Option SANPOL zu vielfältigen Kooperationen insbesondere auf dem Gebiet der Ferrofluidforschung führen. Dies erfordert den weiteren Ausbau der Probenumgebung für spezielle Anwendungen wie z. B. Scherversuche bei der Hochtemperatur-rheometrie und rheologische Untersuchungen in Magnetfeldern. Ferner wird an der Realisierung der Option Polarisationsanalyse nach dem Prinzip des polarisierten  $^3\text{He}$ -Filters gearbeitet- erste Tests sind für März 2001 geplant. Die neuen Messbedingungen erfordern auch eine Weiterentwicklung der bestehenden Datenreduktionssoftware "BerSANS" sowie der Auswertesoftware "SASFIT", in Kooperation mit dem PSI, Schweiz.

Wie bisher werden mikrostrukturelle Untersuchungen durch NKWS als Industrieaufträge oder Koope-

rationen erwartet, die im Rahmen des BENSC Nutzerbetriebs durchgeführt werden.

### E7a Aufbau Materialforschungsdiffraktometer

Im Falle der Erteilung der 3. Teilbetriebsgenehmigung für den FRM- II Reaktor soll im Planjahr das Neutronen-Spannungsdiffraktometer E7-neu an den Münchner Reaktor ausgeliefert werden.

W. Reimers, A. Wiedenmann, M. Müller, G. Bruno, P. Strunz, A. Höll

**Abteilung**

**SF4 Struktur und Dynamik**





Zentrales Thema der Grundlagenforschung der Abteilung sind **atomare Bewegungen** in fester Materie und die damit verknüpften Strukturänderungen, insbesondere strukturelle Phasenübergänge. Bewegungen (Dynamik) und Strukturveränderungen werden einerseits durch Ionenimpact ausgelöst, entwickeln sich andererseits als Funktion thermodynamischer Parameter. Gerade die **Strukturveränderungen durch Ionenimpact** sind Gegenstand verstärkter Forschung im Rahmen eines bewilligten **HGF-Strategiefondsprojekts 'Ionenspuren / Ion Tracks in Solids'**, das zu einem wesentlichen Teil die Forschungsaktivitäten der Abteilung für die nächsten drei Jahre bestimmen wird.

Wesentliche Aufgabe der Abteilung ist der Betrieb des **Ionenstrahllabors ISL**. Dazu gehören Entwicklungsarbeiten und die Betreuung der internen und externen Nutzer. Neben Grundlagenforschung auf dem Gebiet der Erzeugung, Veränderung und Analyse lokaler Strukturen durch Ionenimpact werden – in dieser Breite wohl einmalig auf der Welt – hochenergetische Ionen in der Medizin und für industrielle Zwecke angewandt. Diese Forschungen sowie die erfolgreichen industriellen und medizinischen Anwendungen wurden erst durch die Gründung des ISL ermöglicht, da damit erstmals ein großer Beschleuniger fast ausschließlich für umfangreichere Materialuntersuchungen und Materialveränderungen zur Verfügung steht.

Forschungs- und Entwicklungsprojekte sind

- Atomare Dynamik: Ionenimpact
- Atomare Dynamik: Diffusion und Phasenumwandlung
- Atomistik der Bildung und Umwandlung lokaler Strukturen

Projekte der Anwendung von Ionenstrahltechniken

- Ionenstrahlanalytik
- Augentumorthherapie
- Technologie mit Ionenstrahlen.

Es gehören dazu die Beschleunigerentwicklung und der Nutzerbetrieb sowie als BESSY Aktivität der Aufbau eines leistungsfähigen Röntgendiffraktometers und eines Strahlrohrs für Hochenergie-Kleinwinkel-Streuung.

## Atomare Dynamik, lokale Strukturen

### Atomare Dynamik: Ionenimpact

Die folgenden Forschungsthemen im Rahmen dieses Projekts sind Teil eines HGF-Strategiefondsprojekts 'Ion Tracks in Solids':.

- Untersuchung der Relaxation der elektronischen Anregung nach Durchgang schneller Schwerionen durch Festkörper und der daraus resultierenden Materialveränderungen mit Hilfe von Auger- und Konvoi-Elektronenspektroskopie.
- Untersuchung von Materialveränderungen nach Ionenimpact mit Röntgendiffraktion und Mikroskopie.
- Untersuchung der Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Oberflächen mittels Spektroskopie der von den Ionen emittierten Elektronen und Analyse gestreuter und gesputterter Ionen.

Eine semi-empirische Beschreibung des Ladungszustandes schwerer Ionen beim Durchgang durch Festkörper und Gase wurde entwickelt. Für schnelle Ionen haben wir die „unitary convolution approximation“ (UCA) weiterentwickelt, die explizite Projektilabschirmfunktionen sowie die Stoßparameterabhängigkeit der Energiedeposition berücksichtigt.

Aus der Analyse der Linienform von emittierten Auger-Elektronen wurden Elektronentemperaturen für drei Kohlenstofftypen bestimmt. Zusätzlich zum graphitartigen amorphen Kohlenstoff wurden dafür Messungen an diamantartigem amorphen

Kohlenstoff und an kristallinem Graphit durchgeführt (vgl. Abb.1).

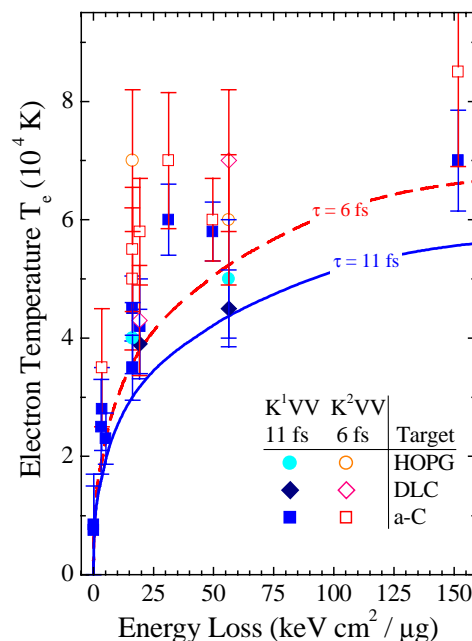


Abb. 1: Elektronentemperatur nach dem Durchgang schneller Schwerionen durch Graphit (HOPG), diamantartigem (DLC) und graphitartigem (a-C) amorphen Kohlenstoff für 2 Target-Auger-Übergänge mit Lebensdauern von 6 und 11 x 10<sup>-15</sup> s. Die theoretischen Kurven wurden im

Rahmen eines „thermal spike“-Modells für a-C und Ionen bei 5 MeV/u berechnet.

Ungeklärt ist zur Zeit noch, warum die Elektronentemperaturen in den verschiedenen Materialien nahezu identisch sind, obwohl die entsprechenden Wärmeleitfähigkeitskoeffizienten bei Zimmertemperatur um Größenordnungen differieren. Erste Auger-Messungen zur Elektronentemperatur von amorphem und kristallinem Si zeigen ebenfalls Effekte der Elektronentemperatur.

Es wurden Elektronen spektroskopiert, die bei der Wechselwirkung von  $\text{Ar}^{17+}$ -Projektilen mit Oberflächen bei extrem niedrigen Energien von 17 eV emittiert werden. Die Experimente, die von Modellrechnungen begleitet wurden, haben einen wesentlichen Beitrag zum Verständnis der Bildung und des Zerfalls hohler Atome in den ersten Atomlagen der Oberflächen geleistet. Es zeigte sich, dass die Ionen durch ihre hohe Ladung große Energiedepositionen verursachen, die zu starken nichtlinearen Effekte im Festkörper führen.

Detaillierte Untersuchungen sehr niederenergetischer Elektronen lieferten Aufschluss über Quanteneffekte beim Elektronentransport liefern. Dabei konnte erstmalig die Anregung von kollektiven Elektronenbewegungen (Plasmonen) beobachtet werden. Resonanzeffekte lassen erwarten, dass die Plasmonenanregung innerhalb weniger Atomlagen erfolgt, die gezielte Studien oberflächennaher Schichten ermöglicht.

Es wurde damit begonnen, Nanokapillaren im Durchmesser von 100 nm durch Ätzen von Ionen Spuren zu erzeugen und durch Streuung niederenergetischer Ionen auszumessen.

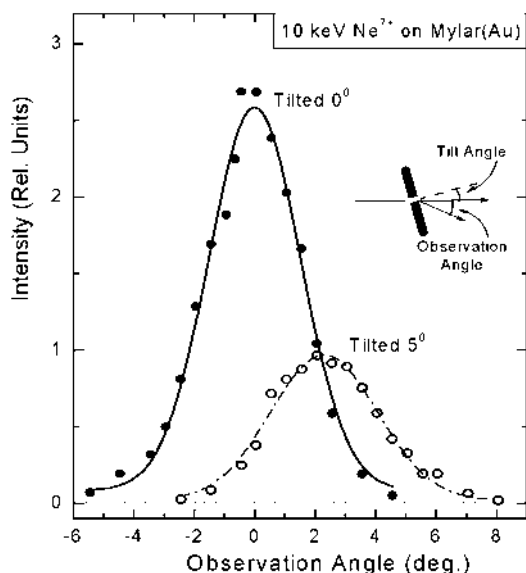


Abb.2: Winkelverteilung von 10-keV  $\text{Ne}^{7+}$  Ionen, die beim Durchgang durch Nanokapillaren in Mylar gestreut wurden. Durch Anstellen der Folie um 5 Grad konnten Führungseffekte der Ionen in den Kapillaren nachgewiesen werden.

G. Schiwietz, N. Stolterfoht, D. Fink, S. Klumünzer, V. Hoffmann, D. Niemann, M. Rösler

## Atomare Dynamik: Diffusion und Phasenumwandlung

- Untersuchung des Atomismus der Diffusion mit ioneninduzierten nuklearen Sonden, mit Röntgenstreuung und mit Neutronen, das bedeutet für Festkörpergitter die Bestimmung des atomaren Diffusionssprungs nach Länge und Richtung.
- Zeitliche Verfolgung von Phasenübergängen von Keimen mit atomaren Dimensionen (Kernsonden-Methoden) über mikroskopische Ausscheidungen (Röntgen-Kleinwinkelstreuung) bis zu neuen Volumenphasen sowohl im klassischen Tempervorverfahren wie in Realzeit nach Ioneneintrag und durch Diffusion.

Die mechanischen Konsequenzen einer aufgeschmolzenen Kernspur in massiven bzw. kompaktifizierbaren Gläsern wurden studiert und mit dem Modell der thermo-elastischen Inklusion verglichen. Die gute Übereinstimmung (vgl. Tab. 1) der gemessenen mechanischen Spannungen mit theoretischen Vorhersagen liefert eine gute Basis zum Verständnis des Verhaltens von kristallinen Nichtgleichgewichtsphasen nach Ionenimpakt, da erstmals die Temperatur  $T^*$  innerhalb der Kernspur bestimmt wurde, bei der atomare Relaxationvorgänge einfrieren.

	$T_i$ (K)	$\sigma_{\perp}$ (GPa) (exp.)	$\sigma_{\perp}$ (GPa) (theor.)	$T^*$ (K)
$\text{Pd}_{80}\text{Si}_{20}$	140	- 0.42	- 0.44	980
$\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$	145	- 1.20	- 1.30	1200
$\text{Fe}_{81}\text{B}_{13.5}\text{Si}_{3.5}\text{C}_2$	85	- 1.60	- 2.00	1020

Tab. 1

Zum Hochtemperatur-Phasenübergang in Ti hat an der ESRF eine erste Messung stattgefunden. Die Ergebnisse sind noch nicht vollständig ausgewertet. Es hat sich gezeigt, dass an die Präzision der Messung von Temperatur und Vakuum äusserste Anforderungen zu stellen sind. Das Zeitfenster der Messungen betrug ca. 1 min, kann aber noch deutlich zu kürzeren Zeiten verschoben werden.

In den intermetallischen bcc-Verbindungen NiGa und CoGa wurde ein Diffusionsprozess gefunden, der zwei Zeitskalen enthält. Eine lange Zeitskala wird dem Aufenthalt im regulären Untergitter, eine kurze Zeitskala dem Aufenthalt auf Antistrukturplätzen zugeordnet. Die genauere Untersuchung legt nahe, dass beim elementaren Diffusionsschritt mehrere Defekte gleichzeitig beteiligt sind und somit die atomare Bewegung nicht auf die zwangsläufig stark korrelierte Bewegung einer einzelnen Leerstelle angewiesen ist.



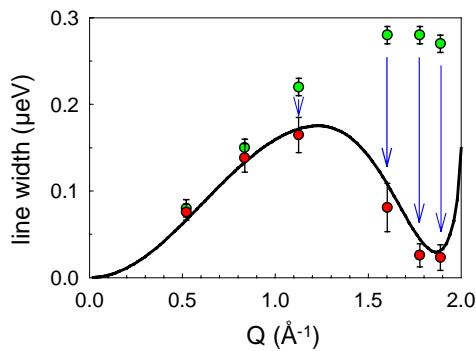


Abb. 1: Linienbreite der quasielastischen Neutronenstreuung an  $\text{Co}_{64}\text{Ga}_{36}$  bei 1400 K. Das Maximum der Linienbreite bei  $Q=1.8 \text{ \AA}^{-1}$ , die aus einem Fit mit einer einzigen Lorentzlinie (grün) erhalten wurde, kann nicht mit einem passenden Modell erklärt werden. Wenn hingegen eine breite Linie, die ihre Ursache in Sprüngen auf Antistrukturplätze hat, subtrahiert wird, zeigt die verbleibende schmale Linie (rot) eine  $Q$ -Abhängigkeit, die sich gut mit dem NN-Sprungmodell (Linie) vereinbaren lässt.

S. Klaumünzer, R. Sielemann, D.Fink, G.Vogl, N. Darowski, I. Zizak

### Atomistik der Bildung und Umwandlung lokaler Strukturen

- Untersuchungen ultradünner magnetischer Schichtsysteme in atomarem Maßstab mittels

radioaktiver Sondenatome. Erzeugung und hochreine Separierung der radioaktiven Sonden mit einem Massenseparator, z.Z. ISOLDE/CERN.

- Untersuchung lokaler Strukturen und dynamischer Vorgänge auf atomarer Skala in Halbleitern. Charakterisierung von Störstellen, insbesondere intrinsischer Defekte und isolierter Fremdatome in Verbindungshalbleitern aufbauend auf Untersuchungen an den Elementhalb-  
leitern.

Die vorgesehene Verknüpfung der komplementären Methodengruppen, Kernsonden-Spektroskopie mit implantierten nuklearen Sonden an ISL und Röntgen-Absorptionsspektroskopie an BESSY II und Hasylab, verspricht einen qualitativen Fortschritt für die Aufklärung lokaler Strukturen im Festkörper.

Das Programm zur Messung magnetischer Hyperfeinfelder an Adatomen von 4sp-Elementen (Se) und 5sp-Elementen (Cd) auf den ferromagnetischen Metalloberflächen der 3d-Elemente Fe, Co, Ni wurde im wesentlichen abgeschlossen. Die theoretische Vorhersage, daß magnetische Hyperfeinfelder infolge stärkerer s-Elektronenpolarisation auf der Oberfläche wesentlich größere Felder annehmen können als im Volumen, wurde erstmals experimentell bestätigt: Auf der Ni(111) Oberfläche maßen wir für das Adatom 16 T, im Volumen sind es 7 T.

Insgesamt erhielten wir eine Darstellung des magnetischen Hyperfeinfeldes (als Maß für die s-Elektronenpolarisation in einem speziellen magnetischen System) vom Volumenwert in einem Ferromagneten (Ni) über mehrere Stufen bis zum Adatomwert, Abb.1.

### Magnetische Hyperfeinfelder

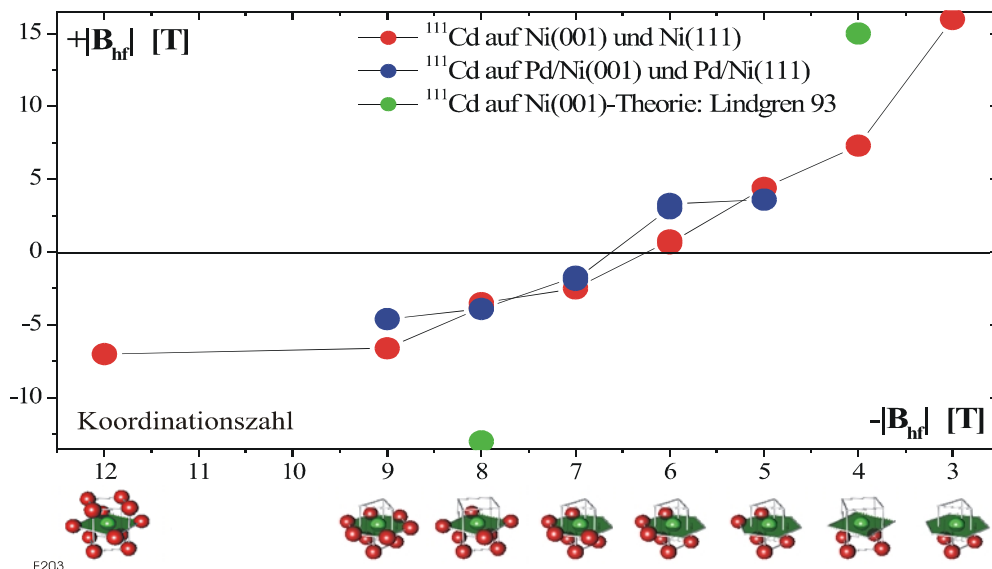


Abb. 1: Verlauf des magnetischen Hyperfeinfeldes von  $^{111}\text{Cd}$  in und auf Ni.

Die  $\beta$ -NMR Untersuchungen zum Verhalten des Akzeptors Bor in Silizium-Germanium-Mischkristallen wurden abgeschlossen. Die gefundenen Resonanzen sind auf die Quadrupolwechselwirkung in gestörten Symmetrien zurückzuführen. Zur Identifikation der zugeordneten Defektkomplexe wurden Berechnungen mit der Methode der linear angepassten ebenen Wellen (FLPAW) basierend auf der Dichtefunktionaltheorie (DFT) durchgeführt. Der Vergleich erlaubt eine direkte Zuordnung der NMR-Resonanzen zu Defektkomplexen. Beispielsweise ist für die Konfiguration, bei der Bor in der Nachbarschaft eines Germanium-Atoms eingebaut wird, der gemessene Feldgradient vereinbar mit der berechneten Ladungsdichteverteilung und den, verglichen mit dem reinen Silizium verringerten Gitterabständen in den Bor-Bindungen sowie einer vergrößerten Si-Ge-Bindung.

Bei den Arbeiten zur atomaren Diffusion von Eisenatomen an der ISOLDE konnten nach Implantation der dort neuerdings zur Verfügung stehenden  $^{57}\text{Mn}$ -Aktivität erstmals die isolierten Plätze für substitutionelle und interstitielle Eisenatome über den Mößbauereffekt gemessen werden. Die Messungen im Bereich von 550K zeigen bereits die Diffusion der Atome als Sprungprozess (über die Linienverbreiterung des Mößbauereffekts).

Die Arbeiten am II-VI Halbleiter CdTe sind noch im experimentellen Stadium, aber eine Reihe sehr interessanter Ergebnisse liegen bereits vor. Es wird nach Neutrinorückstoß ein extern verzerrtes Sn-Leerstellenpaar beobachtet. Das Sn Atom auf dem Te-Gitterplatz zeigt einen ausgeprägten Jahn-Teller Effekt, der sowohl im statischen Fall tiefer Temperatur als starke Gitterverzerrung als auch im Hochtemperaturfall als dynamischer Prozess während des Sprungprozesses beobachtet werden kann.

Zum Einstieg in die Absorptionsspektroskopie haben wir zusammen mit Kollegen der Abteilung Magnetismus (SF2) am HASYLAB begonnen, mit EXAFS Bindungslängen im Mischsystem  $\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Te}$  in Abhängigkeit von der Zn-Konzentration zu bestimmen. Erstes Ergebnis mit der Absorption am Zn: die Bindungslänge von Zn zum nächstbenachbarten Te ändert sich deutlich weniger als nach dem VCA (virtual-crystal-approximation) Modell (siehe Abb.2). (bislang nur über L-Kanten Absorption am Te deutlich ungenauer bekannt). Dagegen deuten die bisherigen Daten auf einen Ausgleich der Abstände zu den Kationen in der zweiten Schale (nnn) in Anlehnung an das VCA-Modell.

Nach dem Full-potential Linearized Augmented Plane Waves (FLAPW) Verfahren wurden systematische ab-initio Berechnungen von magnetischen Hyperfeinfeldern an 4d/5sp-Fremdatomen in Eisen unter Berücksichtigung der lokalen Gitterrelaxation in Zusammenarbeit mit S. Cottenier (Leuven) durchgeführt. Im Allgemeinen konnte eine sehr gute Übereinstimmung mit den vorhandenen Messungen erzielt werden. Die

Gitteraufweitung und Magnetisierungsänderung durch die Fremdatome konnten ebenfalls quantitativ

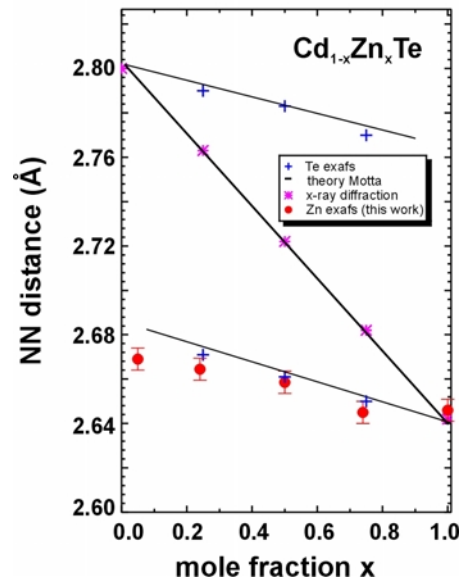


Abb. 2: Lokale Bindungslängen zwischen Cd -Te und Zn -Te gesehen vom Te aus [Motta et al.] und vom Zn (unsere Daten) aus, die sich deutlich vom VCA-Modell unterscheiden (vgl. XRD Werte).

erklärt werden.

H. Bertschat, H.-E. Mahnke, H.Haas, R. Sielemann, W.-D. Zeitz, V. Koteski

## Ionenstrahlanalytik

- Durchführung von Materialanalysen mit Ionenstrahlen – RBS, ERDA, PIXE -, u. a. Ermittlung der Zusammensetzung (Element- bzw. Massen- und gegebenenfalls für Massen mit  $A < 80$  auch Isotopenverteilungen) einer Probe bei gleichzeitiger Bestimmung der Tiefenverteilungen aller enthaltenen Komponenten
- Entwicklung neuer Messmethoden und Nachweisgeräte

ERDA (Electronical Recoil Detection Analysis) wird sehr erfolgreich für die Analyse von dünnen Schichten eingesetzt. Sie ist eine wertvolle Unterstützung bei der Entwicklung verschiedener Typen von Photovoltaik-Zellen. Die Nachfrage nach ERDA-Analysen ist im betrachteten Zeitraum dementsprechend stark gewachsen. Es wurden ca. 20% der an ISL verfügbaren Experiment-Strahlzeit für die ERDA eingesetzt. Der Anteil der Untersuchungen für die Photovoltaik betrug etwa 75%. Die restlichen 25% der ca. 350 Proben stammen von Forschungsgruppen mit den unterschiedlichsten Fragestellungen, wie Dotierung von Elektrolumineszenzmaterialien, Schichtzusammensetzung von Halbleiterstrukturen aus der Nachrichtentechnik, Reinheit von Metallbeschichtungen, Veränderungen an kariösen Zahnoberflächen und die Stöchiometrie von Polymeren, um nur einige zu nennen. Die Zusammenarbeit mit der Photovoltaik ist weiter vertieft worden. Erste

Ergebnisse der gemeinsamen Arbeit können, als typisches Beispiel für die Möglichkeiten von ERDA gezeigt werden.

Um bei der Herstellung von Solarzellen ZnSe-Schichten mit möglichst geringen Verunreinigungen reproduzierbar auf Solarzellenabsorboren abzuscheiden, wird die Chemische Gasphasendeposition (CVD) benutzt. Während der Deposition muß der Absorber für ungefähr eine Stunde auf Temperaturen von 280°C bis 350°C gebracht werden. Dadurch kann es zu atomaren Diffusionen kommen. Zur genaueren Untersuchung dieser Diffusionsprozesse wurden ERDA-Studien begonnen.

In ersten ERDA-Messungen konnte durch den Vergleich von Spektren die Diffusion von Indium in die ZnSe-Pufferschicht qualitativ nachgewiesen werden. Allerdings sind die gemessenen Schichten prozessbedingt sehr rau, was quantitative Aussagen erschwert. Darüber hinaus diffundiert das Indium schon während des Aufbringens des ZnSe-Puffers, weshalb zunächst ein einfaches Modellsystem - Indium aufgedampft auf einem glatten ZnSe-Einkristall - betrachtet wurde. In Abb. 1 kann man deutlich den Unterschied zwischen den Indiumprofilen im Ausgangszustand (links) und nach einer 50-stündigen Temperaturbehandlung bei 350°C sehen. Indium diffundiert somit nicht nur entlang von Korngrenzen sondern auch in und durch die ZnSe-Kristalle.

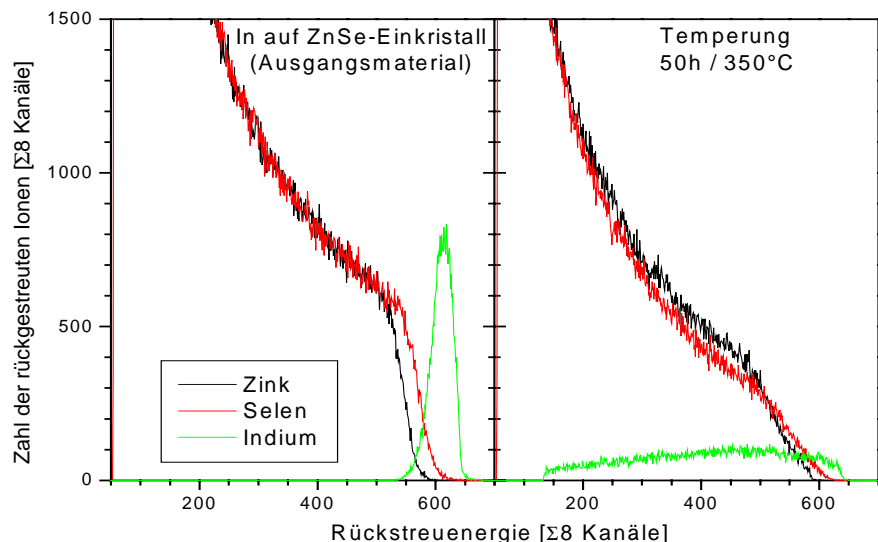


Abb. 1: Energiespektren für ein Modellsystem In auf ZnSe Einkristall: im Ausgangszustand (links) und nach 50-stündiger Temperaturbehandlung bei 350°C (rechts)

Hochenergie-PIXE (Proton Induced X-ray Emission) wird erfolgreich bei der Analyse kunsthistorischer Gegenstände mit dicken Schichten eingesetzt. Das größte Projekt im Jahr 2000 war die Analyse der italienischen Metallplaketten der Skulpturensammlung, wobei die Last der Auswertung durch das Rathgenforschungslabor getragen wurde. Es handelt sich hierbei um Metallreliefs aus dem 16./17. Jhdt. Die analytische Aufgabe war die Bestimmung des Legierungstyps um eine metallurgisch korrekte Zuordnung der Objekte zu erhalten. Die Farbe der Plaketten reichte von rot über braun zu schwarz, wobei alle mit Patina belegt oder mit einem anderen Metall überzogen waren. Daher ist eine reine Oberflächenanalyse in diesem Fall nicht ausreichend. Andererseits war eine Probenentnahme aufgrund des Wertes der Gegenstände nicht möglich. 765 der Plaketten wurden in nur 14 Schichten gemessen und dabei über 1000 Spektren aufgenommen. Bereits während der Messung stellte sich heraus, dass die Farbe der Plaketten keine Hinweise auf die

Zusammensetzung gibt. Entgegen der Annahme der Kunsthistoriker stellte sich jedoch heraus, dass nur knapp 9% der Objekte aus Bronze sind, alle möglichen Legierungsarten sind vertreten, sogar ein paar eiserne und silberne Plaketten wurden entdeckt (s. Abb. 2).

Zusätzlich wurde der Aufbau im Berichtsjahr um automatische Scan- und Maproutinen sowie eine Stromintegration der sehr kleinen Ströme (typischerweise unter 1 pA) erweitert. Damit bewährte sich der Aufbau für Hochenergie PIXE unterdessen auch in anderen Experimenten (z.B. Dosimeterkalibrierung und Single Event Upset).

W. Böhne, A. Denker, W. Böhne, A. Denker, G. Röschert †, J. Röhrich, Lindner

† Herr Dr. Georg Röschert ist im Berichtsjahr verstorben.

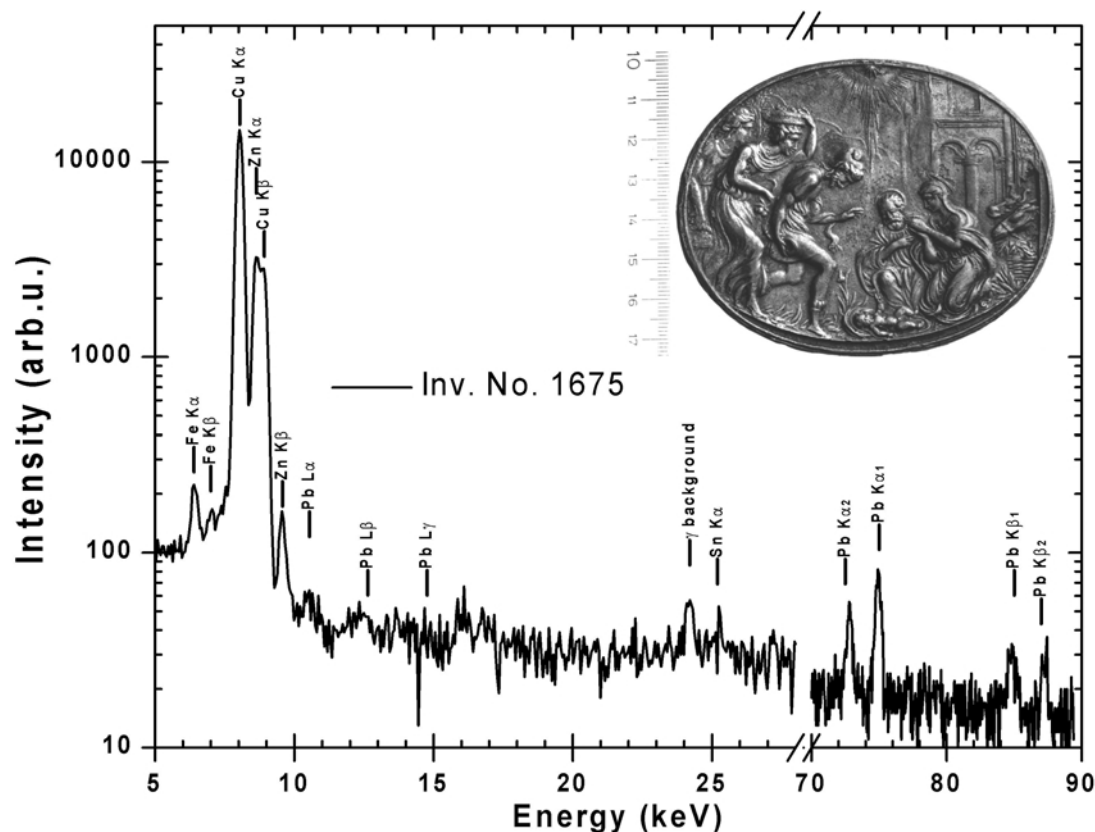


Abb. 2: Gian Giacomo Caraglio, *Die Anbetung der Hirten*, 1540-50. Messing, 74,4 x 90,3 mm. Berlin, Skulpturensammlung, inv. No. 1675

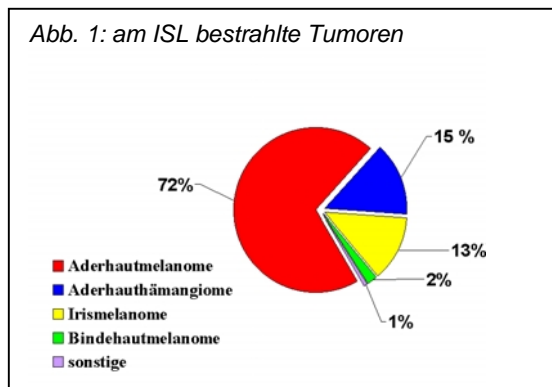
## Augentumorthherapie

*Therapie von Augentumoren in Zusammenarbeit mit dem Universitätsklinikum Benjamin Franklin sowie der Augenklinik der Universitätsklinikums Essen. Entwicklung und Test von Werkzeugen zur Erhöhung der Präzision der Protonentherapie.*

### Klinischer Therapiebetrieb

Im Berichtszeitraum wurden 61 Patienten mit Tumoren des Auges behandelt. Alle zur Durchführung der Bestrahlungen notwendigen Systeme arbeiteten einwandfrei. Seit Beginn der Behandlungen wurden damit insgesamt 166 Patienten am ISL bestrahlt. Abbildung 1 zeigt das Spektrum der behandelten Tumoren.

Abb. 1: am ISL bestrahlte Tumoren

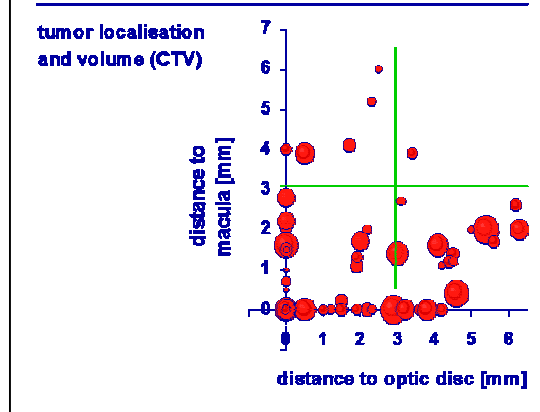


Zur Verbesserung des Therapieablaufs wurde eine Kopfhaltung zur Fixierung der Blickrichtung der Patienten während der CT-Aufnahmen entwickelt. Diese Halterung wird inzwischen routinemäßig für ATT-Patienten im UKBF eingesetzt und konnte die Qualität der zur Bestrahlungsplanung benötigten CT-Schnittbilder entscheidend verbessern.

Am ISL werden mittlerweile Patienten aus dem gesamten Bundesgebiet behandelt. Zu der leicht rückläufigen Anzahl der behandelten Fälle im Jahr 2000 ist anzumerken, daß die Behandlungskapazität am HMI nicht annähernd ausgeschöpft wurde. Der Engpaß besteht vielmehr in der Vorbereitungskapazität des UKBF bezüglich der Clipaufnahme und diagnostischen Vorbereitung der Protonentherapie. Abbildung 2 zeigt die Lokalisation der am HMI behandelten Melanome: nahezu alle Tumoren befanden sich innerhalb einer Distanz von 3 mm zum optischen Nerv und/oder der zentralen Sehgrube. Die Bestrahlung solcher Fälle erfordert besondere Präzision. Verlässliche Langzeitergebnisse bezüglich der Tumorkontrolle und des visuellen Ergebnisses der Bestrahlungen liegen aufgrund der noch zu kurzen Nachbeobachtungsdauer bisher nicht vor.

Die technischen Voraussetzungen für den Beginn einer klinischen Studie zur Protonentherapie der altersbedingten Makuladegeneration (AMD) wurden geschaffen.

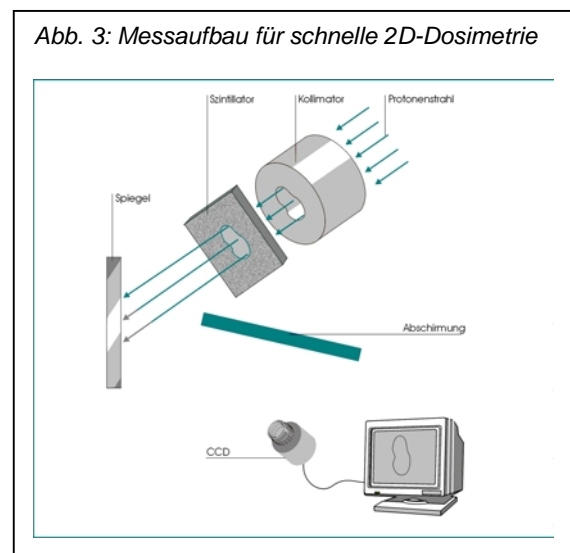
Abb. 2: Lokalisation der behandelten Aderhautmelanome



### Schnelle 2D-Dosimetrie

Eine elegante Methode zur schnellen Messung von Protonenfeldern ist die Aufnahme der Intensitätsverteilungen des emittierten Lichtes einer Szintillatorfolie im Protonenstrahl mit einer CCD-Kamera. Diese Methode liefert ein Bild, dessen Graustufen proportional zur Dosisverteilung des Protonenstrahls auf der Folie sind. Eine Online-Auswertung erfolgt mit Methoden der Bildverarbeitung. Das in Abbildung 3 schematisch gezeigte System wurde aufgebaut.

Abb. 3: Messaufbau für schnelle 2D-Dosimetrie

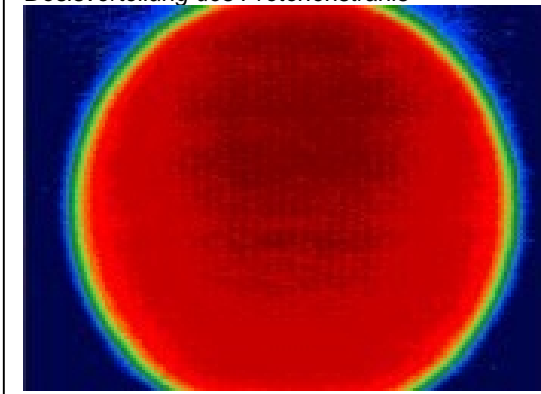


Die Übereinstimmung zwischen aus Bildern des homogenisierten Protonenstrahls extrahierten Dosisquerprofilen und mit Dioden oder Ionisationskammern gemessenen Profilen ist gut. Eine Intensitätsverteilung des Protonenstrahls, fotografiert mit einer kreisförmigen Blende ist in Abbildung 4 in Falschfarbendarstellung gezeigt.



Dabei entsprechen die Farbstufen 10%-Änderungen der Grauwerte.

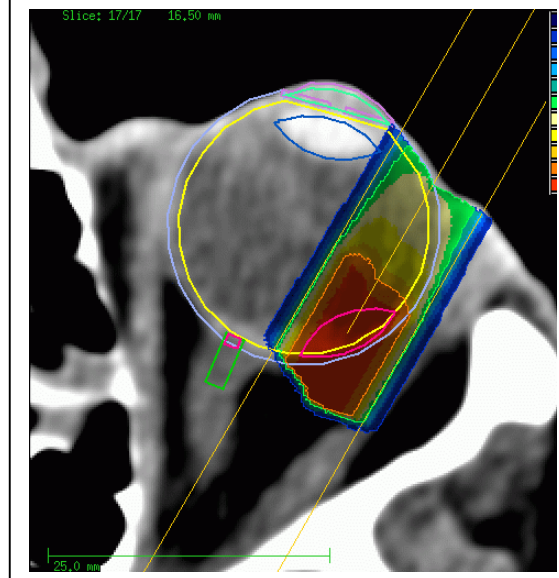
**Abb. 4:** Falschfarbendarstellung der Dosisverteilung des Protonenstrahls



### Therapieplanung

Das im Rahmen einer DFG-geförderten Kollaboration mit dem DKFZ Heidelberg und dem UKBF entwickelte System OCTOPUS, entwickelt zur CT-gestützten Planung von Protonenbestrahlungen des Auges, wurde am HMI installiert. Der Beitrag des ISL in diesem Projekt ist der sogenannte Protonenmodul. Dabei wird die Aufstreuung des Protonenstrahls und die daraus resultierende Dosisverteilung im Gewebe möglichst realistisch berechnet. Abbildung 5 zeigt eine mit dem neuen Planungsprogramm gerechnete Bestrahlung. Die geplante Verifikation des Programms wurde zugunsten einer Optimierung der praktischen Bestrahlungsplanung und eines systematischen Vergleichs mit dem alten Planungsprogramm EYEPLAN zunächst verschoben.

**Abb. 5:** gerechnetes Dosisprofil mit CT-basierter Planung der Protonenbestrahlung.



In Kollaboration mit dem Institute of Nuclear Physics in Krakau wurde die erste PC-Version des Therapieplanungsprogramms EYEPLAN entwickelt. Dieses Programm fand bei seiner erstmaligen Vorstellung auf dem 33. Meeting der Proton Therapy Co-Operative Group großes Interesse aller Protonentherapie des Auges betreibenden Institutionen.

H. Kluge, J. Heese, H. Fuchs, I. Reng, H. Morgenstern, Ch. Rethfeldt

## Technologie mit Ionenstrahlen

*Am ISL werden diverse größere und kleinere Technologietransferprojekte betrieben. Es handelt sich dabei außer den Arbeiten zur Analytik im wesentlichen um Bestrahlungen von Materialien und Komponenten. Dazu sind sehr unterschiedliche Ionenmassen, Ionenenergien, totale Strahlungsdosen und Dosisleistungen erforderlich. Die mit diesen Randbedingungen verbundenen Bestrahlungstechniken müssen entwickelt, getestet und standardisiert werden.*

*Die Entwicklungsarbeiten schließen die Betreuung der Gastgruppen mit ein.*

Unter Technologie mit Ionenstrahlen sind die diversen Aktivitäten zusammengefasst, die sich dadurch auszeichnen, dass sie durch spezifische Anwendungen von Ionenstrahltechniken Neuland erschließen oder für den Fortschritt auf dem betreffenden Gebiet notwendig sind. Neben der Augentumorthherapie gehört auch die Produktion von Filterfolien zu den Großprojekten in diesen Bereich, der ein jährlich festgelegtes Kontingent

an Strahlzeit am ISL benötigt. Diese Vorhaben erfahren kontinuierliche technische Verbesserungen.

Ebenfalls zum Gebiet der Materialmodifikation mit Ionenstrahlen gehören die Bestrahlung von Dioden zur Herstellung von Pikosekundenlasern und die Herstellung von Nanostrukturen.

Hinzu kamen im Berichtszeitraum mehrere Anfragen von Forschungsinstituten und Firmen, die Strahlenhärte-tests am ISL durchführen wollten. Zum Teil konnten diese Untersuchungen an bereits bestehenden Strahlplätzen durchgeführt werden, darunter Bestrahlungen von Detektorelektronik für den Einsatz während der Rosetta Mission der ESA. Sie wurden zusammen mit dem DRL-Institut für Weltraumsensorik und Planetenerkundung in Berlin Adlershof bearbeitet.

Für verschiedene andere Anwendungen muss jedoch ein spezieller Targetplatz aufgebaut werden.

A. Denker, H. Homeyer

## ISL - Beschleunigerentwicklung und -betrieb

*Entwicklung an allen Komponenten der Beschleuniger, den Ionenquellen, dem Strahltransport und den Steuerungs- und Kontrollsystemen zur Erhaltung und Verbesserung der Leistungsfähigkeit der Anlage.*

*Betrieb und Service der Beschleuniger und der Strahltransporteinrichtungen des ISL.*

### Entwicklung

#### Beschleuniger

Nach der erfolgreichen Inbetriebnahme des RFQ Injektors im Vorjahr wurden beim Betrieb aufgetretene Probleme bearbeitet. Bei mehreren Öffnungen des Tanks konnte festgestellt werden, dass die neuen Schleifkontakte nicht mehr abbrechen.

Weiterhin wurden Maßnahmen getroffen, das immer noch nicht zufriedenstellende Endvakuum zu erreichen. Eine neue, moderne Laufzeitelektronik gestattet das Koppeln der sechs Injektionsphasen und damit ein leichteres Einstellen.

Genauere Rechnungen für die 200 kV Plattform ergaben, dass die Ionenquelle nicht die optimale Entfernung zum Analysiermagneten aufweist. Die Fokussierung der Beschleunigungsstrecke variiert in Abhängigkeit von der angelegten Spannung. Beides zusammen bewirkt, dass der Fokus des Ionenstrahls von der Einstellung abhängt. Die Verkleinerung des Abstandes Quelle-Magnet und die Einführung spannungsabhängiger Kurzschlussgeber an der Beschleunigungsstrecke ermöglicht die exakte Festlegung des Fokus in die Schlitze und damit die Reproduzierbarkeit der Einstellungen.

Die genaue Diagnose des Strahlprofils und der Vergleich mit den Rechnungen ergab, dass der Analysiermagnet nach der Ionenquelle so schlechte Fokussiereigenschaften besitzt, dass ein Ersatz nicht zu vermeiden ist.

Zu Jahresbeginn war der Neuaufbau des 2 MV Beschleunigers für RBS Messungen erfolgreich abgeschlossen.

#### Ionenquellen

Die Weiterentwicklung für die 14,5 GHz Quelle des RFQ ging schrittweise voran. Diverse Umbauten wurden vorgenommen, um die Stabilität und die Leitungsaufnahme zu erhöhen. Im Berichtszeitraum konnte ein sehr stabiler 2,5  $\mu\text{A}$   $\text{Xe}^{25+}$  Strahl erzielt werden.

Die Entwicklung von Metallionen wurde zurückgestellt. Diese Arbeiten erfordern eine zweite Testquelle, die zu Beginn des neuen Jahres geliefert wird.

Auf dem Ionenquellenteststand wurden umfassende Versuche mit der BECRIS durchgeführt. Parallel dazu wurde die Ansteuerung des Teststandes weiter verbessert. Spezielle Auswerteroutinen erlauben automatische Spektrenaufnahmen mit Peakidentifizierung.

Die 14 GHz Quelle für extrem langsame Ionen wurde mit einem neuen Hexapolfeld versehen und

mit stärkeren Spulen ausgestattet. Ziel dieser Maßnahmen ist die Hoffnung auf höhere Ladungszustände in der neuen Konfiguration.

Für den CN Injektor wurde eine neue Quelle erworben. Die mit einer Hochfrequenz von 10 GHz betriebene Quelle ermöglicht höhere Ladungszustände und damit höhere Energien.

#### Strahlentwicklung und Strahlführung

Zwei Strahlplätze wurden fertiggestellt und getestet. 20 Strahlen wurden für die Experimentatoren neu entwickelt.

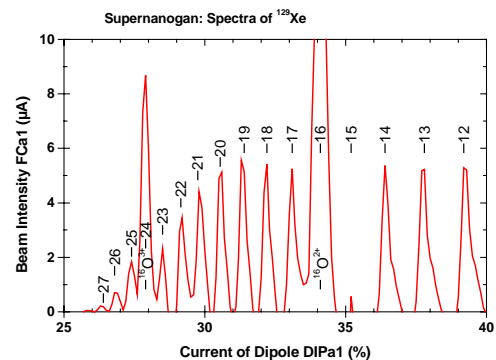


Abb. 1: Spektrum der Supernanogan  
In einem ausgesprochen stabilen Betrieb konnten 2  $\mu\text{A}$   $\text{Xe}^{25+}$  erzielt werden.

#### Betrieb

Die Einstellprozeduren wurden insgesamt verfeinert, so dass sich die Einstellzeiten sowohl für den CN auch als den RFQ Injektor weiter verbessert haben. Unterstützt durch spezielle Schulungen gestaltet sich der Betrieb des RFQ nahezu routinemäßig.

Da damit nun nicht nur der Parallel-, sondern auch Zweistrahlbetrieb möglich ist, konnte der Zweistrahlplatz erstmals sowohl von der Hoch- als auch von der Niederenergieseite bedient werden.

Durch die Übernahme des RFQ Injektors in den Routinebetrieb wurden im Berichtsjahr über 5000 Stunden Betriebszeit erzielt. Abb. 2 zeigt die Betriebsstatistik: Der Anteil der Ausfälle ist mit 7% sehr niedrig, die Ausfälle verteilen sich recht gleichmäßig auf die verschiedenen Untersysteme der Anlage. Beim RFQ Injektor lag ein Teil der Ausfälle an Quellenproblemen. Der hohe Anteil der Strahltests reflektiert die Schulungen und Entwicklungen neuer Strahlen.

Die Zahl der Einstellungen hat sich von 146 auf 178 erhöht, die durchschnittliche Experimentzeit wurde kürzer.

Erfolgreich gestaltete sich der Betrieb der Therapieeinrichtung: Die 10 geplanten Therapiewochen wurden termingerecht durchgeführt.

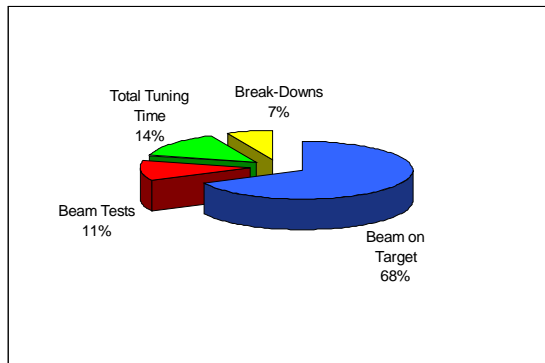


Abb.2: Strahlzeitstatistik 2000

*Im Berichtsjahr konnte eine gegenüber dem Mittel der vergangenen Jahre erhöhte Betriebszeit erreicht werden. Die Ausfallzeit blieb mit 7% erfreulich niedrig. Die erhöhten Test und Einstellzeiten sind auf die Schulung zum Routinebetrieb des RF - Injektors zurückzuführen.*

Die Niederenergieionenquelle ECRIS4 war im Berichtszeitraum sehr gefragt. Trotz umfangreicher Umbauten wurden 28 Wochen Betrieb durchgeführt.

H. Homeyer, P. Arndt, W. Busse, A. Denker, W. Pelzer, B. Martin†, Ch. Rethfeldt, J. Röhrich

† Herr Dr. Bernd Martin ist im Berichtsjahr verstorben.



**Abteilung**

**SF5 Theoretische Physik**



Die Abteilung Theoretische Physik beschäftigt sich mit grundlegenden Fragestellungen der Strukturforschung, zum Teil auch im Hinblick auf Anwendungen in der Photovoltaik.

Besondere Fortschritte waren zu verzeichnen auf dem Gebiet der magnetischen Systeme mit reduzierter Dimension. Insbesondere in dünnen ferromagnetischen Filmen und Multilagensystemen gelang es, eine signifikante Verbesserung in der Beschreibung der feldinduzierten magnetischen Reorientierung gegenüber der üblicherweise benutzten Theorie zu erzielen. Die Theorie wurde auf mehrere Filmlagen und auf Multischichtsysteme erweitert. Weiterhin wurde ein erheblicher Einfluss der Zwischenschicht-Austauschkopplung und der zweidimensionalen magnetischen Fluktuationen auf das Temperaturverhalten der magnetischen Eigenschaften festgestellt.

Fortschritte wurden ebenfalls erzielt auf dem Gebiet der mikrokanonischen Thermodynamik, in welcher die grundlegenden physikalischen Erhaltungssätze berücksichtigt werden. Durch die Untersuchung spezieller realistischer Systeme sowie einfacher Modelle erhält man eine tiefere Einsicht in die Natur der Phasenübergänge und der multikritischen Punkte.

Auf dem Gebiet der relativistischen atomaren Stöße wurde vor allem der Ladungstransfer und die Elektron-Positron-Paarerzeugung berechnet. Weiterhin wurde in enger Zusammenarbeit mit der GSI Darmstadt der radiative Elektronentransfer und der Photoeffekt für Systeme mit hoher Kernladungszahl  $Z$  untersucht und vor allem eine detaillierte Abschätzung quantenelektrodynamischer Korrekturen durchgeführt, die in der Zukunft messbar werden könnten.

Innerhalb der Halbleitertheorie wurde der Ladungsträgertransport durch Korngrenzen in polykristallinen Materialien hindurch vor allem im Hinblick auf Anwendungen in der Photovoltaik untersucht, d.h. auch in Abhängigkeit von der Beleuchtung. Weiterhin wurde ein theoretisches Verständnis von Verspannungen erzielt, die beim epitaktischen Aufwachsen von Substanzen auf maskenbedeckte Substrate entstehen.

## Magnetische Systeme, Thermodynamik und atomare Stöße

### Magnetische Systeme reduzierter Dimension

*Untersuchung magnetischer Eigenschaften von dünnen ferromagnetischen Filmen, Multilagensystemen und Clustern, insbesondere unter Berücksichtigung von kollektiven Anregungen (Spinwellen).*

Die Arbeiten zur Reorientierung der Magnetisierung an dünnen ferromagnetischen Filmen mit Hilfe der Vielteilchen-Greenschen-Funktionen wurden fortgesetzt. Dabei wurden frühere Arbeiten [1,2], die sich mit Monolagen und Spin  $S = 1$  beschäftigten, dadurch erweitert, dass die Dipolkopplung mitgenommen wurde, und Spin  $S > 1$  und Multilagen behandelt wurden [3]. Der Hamiltonoperator des Modells besteht aus einer isotropen Heisenberg-Austauschwechselwirkung, einer Einzel-ionenanisotropie zweiter Ordnung, der magnetischen Dipolkopplung und einem externen Magnetfeld. Wie zuvor [1,2] wurde die random phase approximation (RPA) für die Austauschwechselwirkung und die Anderson-Callen-Entkopplung für die Anisotropieterme verwendet. Die Dipolkopplung wurde in meanfield-Näherung behandelt, von der gezeigt wurde, dass sie für kleine Kopplungskonstanten eine gute Näherung ist [3]. Da sich herausstellt, dass  $N$  Eigenwerte ( $N$  ist die Anzahl der Filmlagen) der  $3N \times 3N$  unsymmetrischen Matrix der Bewegungsgleichungen Null werden, müssen Kommutator und Antikommutator Greensche Funktionen verwendet werden. Dann erhält man die thermischen Erwartungswerte durch Anwendung des entsprechenden Spektraltheorems. Das gibt noch keinen vollständigen Satz von Bestimmungsgleichungen, sondern man muss zusätzliche Gleichungen aus der Bedingung herleiten, dass die Kommutator-Greenschen-Funktionen am Ursprung regulär sind. Es stellt sich heraus, dass

man für einen bestimmten Spin  $S$  insgesamt  $2S \times N$  gekoppelte Integralgleichungen selbstkonsistent lösen muss. Dies wird mit einem Gradientenverfahren erreicht, bei dem man die Lösungen im Raum der relevanten Variablen verfolgt. Durch ein neues Verfahren, das die Eigenwerte und Eigenvektoren der nichtsymmetrischen Bewegungsgleichungsmatrix benutzt, werden die entsprechenden Erwartungswerte berechnet. Aus diesen können dann der Orientierungswinkel  $\Theta/(T,N)$  der Magnetisierung und die effektive Anisotropie  $K_2(T,N)$  als Funktionen der Temperatur und der Anzahl der Lagen des Films berechnet werden.

In der Abbildung zeigen wir als Beispiel die Magnetisierung für Filme mit  $N$  Lagen für Spin  $S = 1$ .

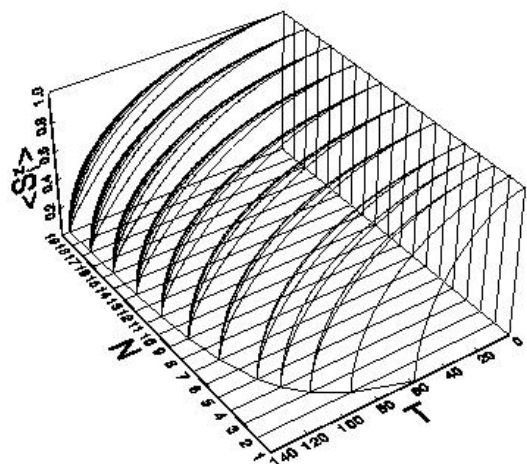


Abb 1: z-Komponente der Magnetisierungen der Unterlagen  $\langle S_z \rangle$  für Filme mit  $N (1, \dots, 19)$  Lagen und Spin=1 als Funktion der Temperatur.

- [1] Ecker, A.; Fröbrich, P.; Jensen, P.J.; Kuntz, P.J., J. Phys., Condens. Matter **11** (1999) 1557
- [2] Fröbrich, P.; Jensen, P.J.; Kuntz, P.J., Eur. Phys. J. B **13** (2000) 477
- [3] Fröbrich, P.; Jensen, P.J.; Kuntz, P.J.; and Ecker, A., Eur. Phys. J. B **18** (2000) 579

P. Fröbrich, A. Ecker, P.J. Kuntz, P.J. Jensen

## Mikrokanonische Thermodynamik

*Mikrokanonische Beschreibung von Phasenübergängen in "kleinen" Systemen wie Kernen, Clustern und astrophysikalischen Systemen.*

Boltzmann und Gibbs haben der Thermodynamik mit der statistischen Mechanik eine mikroskopische Grundlage gegeben. Seither wird immer angenommen, dass dies nur für große homogene Systeme (im thermodynamischen Limes) gilt. Jedoch gehören viele Systeme in der Natur, darunter die größten, nicht dazu. Die interessantesten Erscheinungen der Thermodynamik, die Phasenübergänge, beschreiben inhomogene Systeme. Alle diese Systeme sind nicht-extensiv und die konventionelle kanonische Thermodynamik mit dem thermodynamischen Limes kann man ohne Vorsicht nicht anwenden.

Boltzmann's Prinzip  $S=k \ln W$  gibt die fundamentale mikrokanonische Definition der Entropie und damit der Thermodynamik. Hier braucht man weder den thermodynamischen Limes, noch Extensivität, noch Homogenität des Systems. Wir haben nun in unserer bisherigen Arbeit gezeigt, dass dieses Prinzip alle Phänomene der Phasenübergänge für kleine Systeme zeigt. Das steht im Gegensatz zu den meisten Lehrbüchern der Statistischen Mechanik. Angewandt auf „Kleine“ Systeme erlaubt das Prinzip sogar die Oberflächenspannung der Phasengrenzfläche automatisch zu bestimmen! Dies ist eine der schwierigsten Größen der konventionellen Statistik. Das Prinzip kann man auch auf selbstgravitierende kosmische Systeme anwenden. Heiße Kerne oder kleine Atomcluster zeigen den neuartigen Zerfall der Multifragmentation. Im Gegensatz zum bekannten Flüssig-Gas-Übergang neutraler makroskopischer Systeme zerfällt hier das Gesamtsystem in mehrere größere Tropfen. Das Beispiel zeigt, dass unsere neue Formulierung der Gleichgewichtsstatistik viele neue und überraschende Eigenschaften hat, die der konventionellen (Gibbs-) Thermodynamik fremd sind.

Ende des vergangenen Jahres haben wir uns mit der Nichtgleichgewichts-Statistik und dem Zweiten Hauptsatz beschäftigt. Das Boltzmann'sche Prinzip gestattet einen Beweis des Zweiten Hauptsatzes ohne Bemühung eines - willkürlichen - „coarse graining“. Die Irreversibilität hat ihre tiefe Ursache in der unvollständigen Information einer makroskopischen Theorie wie der Thermodynamik. Damit konnte der berühmte Loschmid'sche Wiederkehrerwand und das Zermelo'sche Paradoxon auf eine Fehlinterpretation der statistischen Mechanik zurückgeführt werden. Unser Formalismus wird zur Zeit von mehreren internationalen Experten der Nichtgleichgewichts-Thermodynamik sehr diskutiert, siehe z.B.

die kürzlich erschienene Arbeit von L. Ispolatov und E.G.D. Cohen in cond-mat/0101311.

D. Groß, E. Votyakov

## Atomare Stöße

*Theoretische Arbeiten zur radiativen Rekombination und zum photoelektrischen Effekt in starken Feldern. Elektron-Positron-Paarerzeugung in relativistischen atomaren Stößen.*

In Zusammenarbeit mit der GSI Darmstadt wurde im Berichtsjahr die Photoionisation von wasserstoffartigem Uran nahe der Schwelle untersucht, indem der zeitumgekehrte Prozess der radiativen Rekombination analysiert wurde. Die von uns theoretisch vorhergesagten (relativistisch hervorgerufenen) magnetischen Spin-Umklappprozesse konnten experimentell bei Vorwärtswinkeln eindeutig identifiziert werden, sogar noch bei der geringen Photoelektronen-Energie von 48 keV [1].

Innerhalb einer exakten relativistischen Beschreibung wurden winkeldifferentielle Wirkungsquerschnitte für radiative Rekombination und Photoionisation in den K-, L- und M-Schalen von Einelektron-Systemen mit hoher Genauigkeit (drei signifikante Stellen) berechnet. Für repräsentative Ladungen von  $Z=18, 36, 54, 66, 79$  und  $92$  und Elektronenenergien von  $1.0$  keV bis  $1.5$  MeV wurden die differentiellen Wirkungsquerschnitte tabelliert und in einer großen Anzahl von Diagrammen systematisch dargestellt. Durch Bereitstellung dieser Daten in *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, teils in elektronischer Form, wird eine empfindliche Lücke gefüllt werden.

Da die differentiellen Wirkungsquerschnitte für radiative Rekombination mit hoher Genauigkeit berechnet werden können, ist es sinnvoll, die zugehörigen QED-Korrekturen zu berücksichtigen. Dabei wurden die Ultraviolett- und Infrarot-Divergenzen analysiert. Der Beitrag von QED-Korrekturen zu den Winkelverteilungen wurde für Projektilenergien von  $100, 300$  und  $1000$  GeV/u  $U^{92+}$  Ionen berechnet. Die Abweichungen sind von der Ordnung von  $1\%$  und sollten in Zukunft messbar werden [2]. Darüber hinaus wurde der Effekt von Elektron-Elektron-Wechselwirkungen auf die radiative Rekombination in schweren heliumartigen Ionen berechnet und mit den üblichen Näherungen durch eine effektive Kernladung und eine Abschirmfunktion verglichen [3].

Innerhalb des Gebiets Elektron-Positron-Paarerzeugung und Ladungstransfer in relativistischen Atom-Ion Stößen wurden numerische Berechnungen mit der Methode der gekoppelten Kanäle durchgeführt. Diese führten zu einer ersten systematischen Untersuchung der Verletzung der Lorentz-Invarianz in relativistischen Zwei-Zentren-Rechnungen. Weiterhin wurde die Ladungszahl-Abhängigkeit beim Ladungstransfer in schweren Stoßsystemen untersucht, und es wurde ein bemerkenswerter Unterschied dieser Abhängigkeit im Vergleich zur bisher ausschließlich bekannten Störungstheorie bemerkt. Schließlich gaben Rechnungen zur Paarerzeugung, die wegen des enormen Rechenzeitbedarfs nur auf Workstation-Clustern

oder massiv parallelen Prozessorsystemen durchgeführt werden konnten, einen deutlichen Hinweis auf die Notwendigkeit einer Zwei-Zentren-Beschreibung des Kontinuums, die im Rahmen dieses Projekts nichtstörungstheoretisch erstmals umgesetzt wurde.

[1] Stöhlker et al., Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 983-6

[2] Shabaev et al.; Phys. Rev. A **61** (2000) 052112 1-12  
 [3] Yerokhin et al., Phys. Rev A **62** (2000) 042712 1-9

J. Eichler, T. Brunne

## Halbleiterphysik und Photovoltaik

*Theoretische Arbeiten zum Ladungsträgertransport in Halbleitern und zur epitaktischen Abscheidung von Halbleiterschichten, insbesondere im Hinblick auf photovoltaische Anwendungen.*

Im Rahmen des früher entwickelten einheitlichen Modells zur Beschreibung des Ladungsträgertransports in poly- und mikrokristallinen Halbleitermaterialien wurden Untersuchungen zum Einfluss von Größe und Zahl der Körner sowie von Beleuchtung auf die Transporteigenschaften photovoltaischer Materialien durchgeführt. Die elektronische Struktur der Korngrenzen wird dabei durch das Trapping-Modell beschrieben. Der Einfluss von Beleuchtung wird in der Näherung flacher Quasi-Fermi-Niveaus für Elektronen und Löcher berücksichtigt. Für die Aufspaltung  $\Delta E_F$  dieser Niveaus wird ein Wert gewählt, der mit der Träger-Erzeugungsrate in SOL-Solarzellen bei AM1.5-Beleuchtung konsistent ist. In Abbildung 1 werden Dunkelleitfähigkeit und Photoleitfähigkeit von n-dotierten pc-Si-Proben, bestehend aus einem Korn bzw. 100 identischen Körnern, miteinander verglichen; insbesondere zeigt sich dabei bei kleinen Donorkonzentrationen eine erhebliche Abhängigkeit der Leitfähigkeiten von der Körnerzahl.

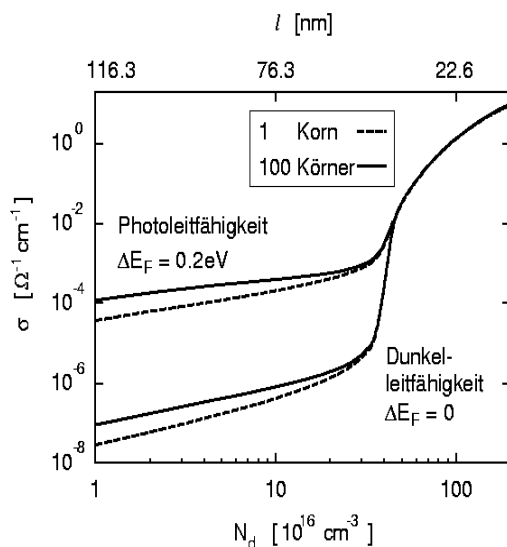


Abb. 1: Dunkelleitfähigkeit und Photoleitfähigkeit von n-dotiertem pc-Si als Funktion der Donorkonzentration  $N_d$  und der mittleren freien Weglänge  $l$  für ein Korn bzw. eine Kette von 100 Körnern (Kornlänge: 50 nm; Dichte der Trap-Zustände:  $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ; Temperatur: 300 K).

Die geplanten Rechnungen zum Gasphasentransport im CSVT-Reaktor in der Abteilung Heterogene Materialsysteme (SE2) sind ins Stocken geraten, da sich im Design durch den Industriepartner Verzögerungen ergeben haben; die Geometrie wird erst im Frühjahr 2001 festgelegt. An Stelle dessen wurden die Kenntnisse im Umgang mit dem kommerziellen CFD-Programmpaket gepflegt durch unterstützende Rechnungen für die Abteilung Solare Energetik (SE5). Es wurden verschiedene Modelle für den Wassertransport in einem Baum erprobt und bestimmt, wie sich die Temperatur im Bereich um eine Heiznadel im Baumstamm verteilt, zum näheren Verständnis und zur Eichung entsprechender Messmethoden. Qualitativ gibt es aber mit plausiblen Annahmen über die Transportparameter des Baumes Abweichungen zum Experiment, deren Verständnis noch aussteht.

Zur Analyse von Verspannungen in GaN beim epitaktischen Aufwachsen auf maskenbedeckte Substrate („epitaxial lateral over-growth“) wurden im Rahmen der Kontinuumstheorie Rechnungen mit der Methode der finiten Elemente für verschiedene Kombinationen von Substraten und Masken durchgeführt. Beim Wachstum auf einem Saphir-Substrat, das mit einer Maske mit hexagonalen Öffnungen bedeckt ist, wachsen hexagonale Pyramiden durch die Öffnungen. Zur Beschreibung der Gitterfehlanpassung zwischen GaN und Saphir wird ein effektiver Parameter eingeführt. Damit ergeben sich Verspannungsverteilungen, die sehr gut mit experimentellen Daten aus Mikro-Raman-Spektroskopie und Kathodolumineszenz übereinstimmen. Das Gleiche gilt für das Wachstum von GaN auf Saphir-Substraten mit einer Streifenmaske, wobei allerdings bei den Finite-Elemente-Simulationen Fäden mikroskopischer Leerstellen zwischen den GaN-Reihen berücksichtigt werden müssen.

U. Wille, W. Fritsch, Q. Liu, T. Weis



**Abteilung**

**SF6 Spurenelemente**





In dem Forschungsvorhaben werden Untersuchungen über biologisch wichtige Spurenelemente im menschlichen und tierischen Organismus durchgeführt. Die meisten Spurenelemente sind an Proteine gebunden und ihre biologischen Effekte sind die Wirkungen von Spurenelement-Protein-Komplexen. Durch Kombination von Mikrotechniken der Elementanalyse mit biochemischen und molekularbiologischen Methoden werden diese "Metalloproteine" identifiziert und ihre Eigenschaften, Strukturen und Funktionen aufgeklärt. Die dabei gewonnenen Erkenntnisse sind für die verschiedenen Bereiche der Biowissenschaften von großem Interesse.

Die Studien sind interdisziplinär angelegt und erfordern den Einsatz hochentwickelter analytischer Verfahren. Im Rahmen von Serviceleistungen werden die Methoden Gästen zur Verfügung gestellt und Bestrahlungen und Analysen für auswärtige Institutionen durchgeführt. Dazu gehören auch als Service für die Krankenhäuser die Bestimmungen von Spurenelementen und Metalloproteinen für die Diagnose und Therapiekontrolle bei verschiedenen klinischen Fragestellungen.

Die Arbeiten werden in drei eng zusammenhängenden und aufeinander abgestimmten Projekten

- Analytik von Spurenelementen und Metalloproteinen
- Grundlagenforschung zur Untersuchung ausgewählter Metalloproteine
- Klinische Anwendungen

durchgeführt.

## Analyse von Spurenelementen und Metalloproteinen durch NAA und andere Methoden

*Analyse von Spurenelementen in biologischen Proben, dabei insbesondere Einsatz der NAA zur Multi-elementbestimmung und zur Qualitätskontrolle der anderen analytischen Verfahren;*

*Bestimmung von Metalloproteinen durch Kombination von Proteintrennverfahren mit Mikro-techniken der Elementanalytik*

Das analytische Instrumentarium der Abteilung umfasst die Neutronenaktivierungsanalyse (NAA), verschiedene Techniken der Atomabsorptionsspektrometrie (AAS) sowie die mit einem induktiv gekoppelten Plasma arbeitenden Verfahren der Atomemissions-spektrometrie (ICP-AES) und der Massenspektrometrie (ICP-MS). Eine weitere wichtige Analysenmethode ist die Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA) mit Hilfe der Synchrotronstrahlung bei BESSY II. Für die Identifizierung und Untersuchung von metallhaltigen Proteinen in Proteingemischen werden die elementanalytischen Methoden mit gelelektrophoretischen oder chromatographischen Verfahren zur Proteintrennung gekoppelt. Daneben werden bei der Untersuchung von Metalloproteinen auch radio-aktive Tracer mit hoher spezifischer Aktivität eingesetzt, die im Reaktor BER II hergestellt werden.

### Spurenelementanalytik

Betrieb der Bestrahlungseinrichtungen am BER II, der Gammaspektrometer und des Aktiv-Labors für die Abteilung SF6 und Gäste.

Im Spektrum der Methoden zur Spurenelementbestimmung nimmt die NAA eine besondere Stellung ein. Betrieb und Weiterentwicklung der Bestrahlungseinrichtungen am BER II und der Messapparaturen für die NAA sind zentrale Aufgaben der Abteilung. Der Routinebetrieb bei der Probenbestrahlung und der Durchführung der NAA lief bis auf eine notwendige Reparatur an der drehbaren Bestrahlungsvorrichtung im Reflektor (DBVR) störungsfrei. Durch Verwendung eines extrem chlorar-

men Quarzmaterials für die Bestrahlungsampullen und den Einsatz einer Laserapparatur für deren Beschriftung konnten die Bestrahlungsverfahren weiter optimiert werden. Nach den Untersuchungen zum Berstverhalten der Quarzampullen bestehen jetzt keine Sicherheitsbedenken mehr gegen die Bestrahlung von fetthaltigen Proben.

Es wurden 296 Bestrahlungen durchgeführt, davon 219 (74 %) für 20 externe Nutzergruppen. 87 % der Bestrahlungen dienten neutronenaktivierungsanalytische Messungen. Bei der Multi-elementbestimmung in biologischen Materialien durch NAA nach Langzeitbestrahlung wurden insgesamt 1255 Einzelproben analysiert.

### *Methodische Arbeiten zur Multi-elementanalyse in sehr kleinen Probenmengen*

Blutproben von Neugeborenen und Säuglingen sind meist nicht größer als 100-250 µl. Für Multi-elementbestimmungen in derart kleinen Proben mit der ICP-MS und der ICP-AES muss ein spezieller Minizerstäuber eingesetzt werden. Für Routineanalysen benötigt man 150-250 µl der Probe, was 15 - 25 µl an unverdünnten Serum oder Erythrozyten-Lysat entspricht. Wichtig ist eine sehr sorgfältige Probenvorbereitung, da die Minizerstäuber leicht durch Schwebstoffe und Staubpartikel verstopfen können.

### *Entwicklung von Verfahren zur Bestimmung der Metall-Protein-Stöchiometrie von Metalloproteinen*

Durch die beachtlichen Fortschritte in der Proteinforschung und bei der Strukturaufklärung verschiedenster Metalloproteine besteht ein zunehmender Bedarf an einer präzisen Bestimmung der Metall-Protein-Stöchiometrie. Da die Proteine meistens nur in sehr kleinen Mengen gereinigt werden können, müssen spezielle Mikroverfahren entwickelt werden. Hierfür wurde die NAA und die AAS eingesetzt. Erste Erfolge bei der Analyse von Metalloenzymen sind bereits zu verzeichnen, so z.B. bei der Bestimmung von Molybdän und Wolfram in Dehydrogenasen (Zusammenarbeit mit dem Institut für Mik-

robiologie, Universität Marburg), der Bestimmung von Nickel in einer Nickelhydrogenase und der Kupfer- und Eisenkonzentration in einer NO-Reduktase (Zusammenarbeit mit dem Institut für Mikrobiologie der HU Berlin). Schwieriger war wegen der Kontaminationsgefahr bei der Probenpräparation die Bestimmung der molaren Magnesiumkonzentration in einer Arylsulfatase (Zusammenarbeit mit dem Institut für Kristallographie der FU Berlin).

#### *Umgang mit linksseitig gestutzten Datensätzen*

Bei Spurenanalysen in der Nähe der Nachweisgrenze des Bestimmungsverfahrens können innerhalb eines Kollektivs Proben vorkommen, bei denen die Gehalte unter der Bestimmungsgrenze liegen. Ziel der Arbeit ist die Entwicklung einer Strategie, wie man für solche lückenhaften Kollektive einen gemeinsamen Mittelwert mit einer gemeinsamen Streuung angeben kann. Es wurde gezeigt, dass es nicht zulässig ist, eine Mittelwertbildung unter Weglassen der fraglichen Werte durchzuführen oder die Nachweis- oder Bestimmungsgrenzen in die Berechnungen einzubeziehen. Selbst die häufig angewandte Praxis, für solche Werte die halbe Nachweisgrenze anzusetzen, kann unter bestimmten Umständen zu beachtlichen Trugschlüssen führen.

#### Speziationsanalytik

Bestimmung von Metallothioneinen in Gewebecytosolen

Metallothioneine sind niedermolekulare metallbindende Proteine, die im Organismus verschiedene Funktionen haben. Für ihre Bestimmung in Gewebecytosolen wurde ein Verfahren entwickelt, bei dem nach Homogenisation des Gewebes, Gewinnung des Cytosols durch Ultrazentrifugation und Abtrennung der hochmolekularen Proteine durch Ultrafiltration die niedermolekularen Proteine mit Hilfe chromatographischer Verfahren getrennt und die metallhaltigen Verbindungen im Eluat on-line mit Hilfe der ICP-AES oder ICP-MS identifiziert werden. Die Methode wurde sorgfältig validiert. Bei der quantitativen Bestimmung der unterschiedlichen Metallbeladung für die beiden Isoformen des Metallothioneins MT-1 und MT-2 aus humanen Leber-

cytosolproben wurde die Eignung des Verfahrens demonstriert.

#### *Verfahrensminiaturisierung für die Bestimmung von Metalloproteinen in Biopsieproben*

Für Untersuchungen an Biopsieproben stehen nur wenige mg des Probenmaterials zur Verfügung. Deshalb wurde das oben beschriebene Verfahren miniaturisiert. Dabei wurde auf die Vermeidung jeglicher Metallkontamination geachtet. Für die Cytosolgewinnung wurde die Probe im gleichen Gefäß homogenisiert und ultrazentrifugiert, für die chromatographische Trennung wurde eine SEC-Säule benutzt. Die Metalle im Eluat wurden mit der ICP-MS bestimmt. Das Verfahren wurde durch Bestimmung der Elemente S, Fe, Zn, Cu, Cd und Pb in einer 5 mg-Rinderleberprobe getestet.

#### *Analyse von metallhaltigen Proteinen durch Kombination von NAA und RFA mit gelelektrophoretischen Methoden*

Proteine eines Proteingemisches werden durch hochauflösende gelelektrophoretische Methoden getrennt und auf eine Membran überführt. Für die Elementbestimmung bei einem einzelnen Protein wird der die betreffende Proteinbande enthaltende Membranstreifen ausgeschnitten und mit Hilfe der NAA analysiert. Bei der Untersuchung der gesamten Proteine wird die Membran mit Synchrotronstrahlung gescannt und die Metallverteilung mit Hilfe der RFA gemessen. Die Untersuchungen zur Entwicklung und Optimierung der Verfahren wurden fortgesetzt. Bei der RFA wurden neben den Pilotstudien bei HASYLAB (Zusammenarbeit mit Prof. Knöchel, Universität Hamburg) mit ersten Untersuchungen bei BESSY II (Zusammenarbeit mit der BAM Berlin) begonnen.

D. Behne, D. Alber, P. Brätter\*, U. Rösick\*, C. Wolf, A. Richarz, M. Kühbacher

\* Im Laufe des Berichtsjahres aus dem Institut ausgeschieden

## Molekulare Spurenelementforschung: Seleno- und Metalloproteine

*Untersuchung von Selenoproteinen und ausgewählten Metalloproteinen im menschlichen und tierischen Organismus und Aufklärung ihrer Primärstruktur, Eigenschaften und Funktionen, insbesondere im Hinblick auf ihre Verwendung in der molekularen Medizin*

Die im Berichtsjahr durchgeführten Untersuchungen beschäftigten sich vor allem mit der Identifizierung und Charakterisierung von Selenoproteinen und der Aufklärung ihrer Primärstruktur und ihrer biologischen Funktionen. Durch Weiterentwicklung der Methoden konnten in den Geweben der Ratte mehr als 30 selenhaltige Proteine unterschieden werden. Erste Studien an tierischen und menschlichen Zellen zeigten, dass die im Organismus der Ratte gefundenen selenhaltigen Proteine auch in den

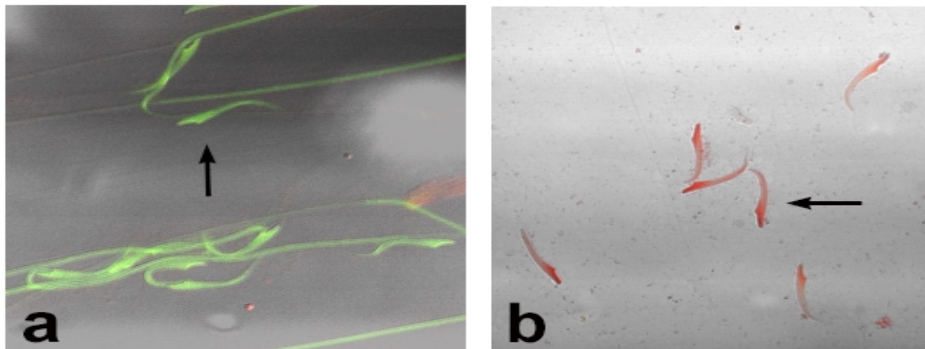
menschlichen Geweben vorhanden sind. Es wurde damit begonnen, die für die Selenoproteinforschung entwickelten Methoden für die Untersuchung anderer Metalloproteine zu modifizieren.

#### *Charakterisierung eines spermienpezifischen Selenoproteins*

In den Untersuchungen über ein von uns in früheren Arbeiten entdecktes Selenoprotein, das nur in den Spermien vorhanden ist, konnte jetzt dessen Funktion nachgewiesen werden. Durch Aufklärung seiner Primärstruktur wurde im Vorjahr gezeigt, dass es aufgrund von bestimmten Aminosäuresequenzen in der Lage ist, die Spermienkernmembran zu durchdringen und an die die Erbinformation enthaltende DNA zu binden. Während der Reifung der Spermien kommt es zu einem Umpacken und einer starken

Verdichtung der DNA und dadurch zu einer Umformung und Verkleinerung des Spermienkerns. Die Stabilisierung der verdichteten DNA wird durch bestimmte Proteine, die sogenannten Protamine, erreicht, die über S-S-Brücken miteinander verknüpft sind. Wir konnten zeigen, dass das neue Selenoenzym hier als eine Protaminthiol-Peroxidase wirksam ist, das bei den Protaminen die Oxidation der SH-Gruppen zu S-S-Brücken katalysiert und

damit eine wichtige Funktion bei dem Stabilisierungsprozess besitzt. In daraufhin bei Ratten durchgeführten Untersuchungen wurde gefunden, dass Selenmangel zu einer unvollständigen Kondensation der Spermienkerne und damit zur Unfruchtbarkeit führt (s. Abb. 1). Aufgrund dieses Zusammenhanges wurde mit klinischen Untersuchungen über die Rolle dieses Enzyms bei der männlichen Infertilität begonnen.



*Abb. 1: Effekt von Selenmangel auf die Spermienentwicklung*

Spermien von adäquat ernährten Ratten (a) und von Ratten mit Selenmangel (b) wurden mit Acridin-Orange gefärbt. Durch diese Färbemethode lassen sich unvollständig kondensierte Spermienkerne (rote Färbung) von normal kondensierten (grüne Färbung) unterscheiden. Fast alle Spermienkerne der Selenmangelratten zeigten eine zur Infertilität führende anomale Kondensation.

#### *Charakterisierung von 15 kDa-Selenoproteinen*

Bei einem Selenoprotein mit einer Molekülmasse von 15 kDa, das in der Prostata angereichert ist und eine Schutzfunktion bei der Entstehung des Prostatakarzinoms haben könnte, wurden weitere Arbeiten zur Entwicklung eines Immunoassays durchgeführt. Ziel dabei ist es, das Selenoprotein in menschlichen Prostataprobe zu messen. Diese Methode soll dann bei klinischen Untersuchungen bei Patienten mit Prostatakarzinomen eingesetzt werden.

Neben diesem Protein wurde ein 15 kDa-Selenoprotein im Gehirn gefunden, das andere Eigenschaften als das Prostataprotein besitzt und sehr wahrscheinlich ein weiteres neues Selenoprotein ist.

#### *Selenoproteine im zentralen Nervensystem*

Im Rahmen des DFG-Schwerpunktprogramms "Selenoproteine" wurde mit der Untersuchung dieses Selenoproteins und anderer selenhaltiger Proteine im zentralen Nervensystem begonnen. Die ersten Ergebnisse zeigen, dass die Selenverbindungen unterschiedlich in den verschiedenen Bereichen des Gehirns verteilt sind.

#### *Strukturaufklärung von Selenoproteinen*

Im Hinblick auf die Bestimmung der dreidimensionalen Struktur des Prostata-Selenoproteins werden in Zusammenarbeit mit Prof. Heinemann, MDC Berlin, Kristallisationsversuche durchgeführt. Für die Gewinnung von dafür benötigten größeren Mengen des Selenoproteins wurde eine spezifische Affinitätsäule hergestellt, die immobilisierte Antikörper gegen das 15 kDa-Protein enthält. Ziel der augenblicklich laufenden Versuche ist die Produktion von mg-Mengen des Proteins.

#### *Untersuchung eines 18 kDa-Selenoproteins*

Die Untersuchungen über ein 18 kDa-Selenoprotein, das von uns in früheren Studien in den Mitochondrienmembranen mehrerer Gewebe entdeckt wurde, wurden fortgesetzt. Anhand der entschlüsselten Teilsequenz wurde ein aus 19 Aminosäuren bestehendes Peptid synthetisiert. Mit Hilfe dieses Peptids wurde ein Antikörper produziert, der in Proteinfractionen aus Leber, Niere, Gehirn und Herz spezifisch mit dem 18 kDa-Selenoprotein reagierte. Damit wurde ein weiterer Beweis erbracht, dass sich das 18 kDa-Protein von dem Selenoenzym Phospholipid-Hydroperoxid-Glutathionperoxidase (PHGPx) mit einer ähnlichen Molekülmasse von 20 kDa unterscheidet und ein bisher unbekanntes Selenoprotein ist.

#### *Nukleäre selenhaltige Proteine*

Bei der Untersuchung der Verteilung von Selen in den Zellkompartimenten wurden im Vorjahr in den Nierenkernen drei selenhaltige Proteine mit Molekülmassen im Bereich von 22 -25 kDa gefunden. Um sicherzustellen, dass es sich dabei nicht um bereits bekannte Selenoenzyme (zelluläre GPx, Plasma-GPx, PHGPx) handelt, wurden spezifische Antikörper gegen die zelluläre GPx und die PHGPx produziert und gereinigt. Sie zeigten keine immunochemische Reaktion mit den Nierenkern-Selenoproteinen. Für die endgültige Klärung der Frage, ob es sich um neue nukleäre Selenoproteine handelt, muss jedoch der Test mit einem zur Zeit produzierten Antikörper gegen die Plasma-GPx abgewartet werden.

#### *Bestimmung von neuen selenhaltigen Proteinen mit niedriger Molekülmasse in Geweben der Ratte*

Nach Markierung von Ratten in vivo mit  $^{75}\text{Se}$  und Trennung der Proteine von Leber, Niere, Herz und Gehirn mittels Tricin-SDS-PAGE wurden vier neue selenhaltige Proteine mit Molekülmassen von 7, 5, 4 und 3 kDa autoradiographisch nachgewiesen. Durch Aminosäureanalyse wurden das 7 kDa-Protein und das 5 kDa-Protein als selenocysteinhaltige Proteine identifiziert.

*Projekt im RiNA-Netzwerk "Produktion von Selenoproteinen in zellfreien Synthesystemen"*

Eine Möglichkeit zur Produktion von Proteinen ist der "Bioreaktor", der bis auf die mRNA die zur Biosynthese von Proteinen notwendigen Zellbestandteile enthält. Nach Zugabe der mRNA des interessierenden Proteins erfolgt dann dessen Synthese aus den Aminosäuren entsprechend dem in der mRNA festgelegten Code. Erste Versuche haben gezeigt, dass für die Produktion von Selenoproteinen die Transfer-RNA nicht optimal mit Selenocystein beladen werden kann. Deshalb wird augenblicklich zunächst dieser Schritt optimiert (Zusammenarbeit mit dem IBA Göttingen).

*Wechselwirkungen zwischen Fettsäuren- und Selenstoffwechsel*

Im Rahmen eines DFG-Projektes wurde in Zusammenarbeit mit Dr. Schäfer, Institut für Tierernährung der FU Berlin untersucht, ob eine erhöhte Aufnahme von ungesättigten Fettsäuren über die verstärkte Bildung von Peroxiden zu einer Erhöhung des Bedarfs an im antioxidativen Schutzsystem wirksamen Selenoenzymen führt. Die im Berichtsjahr erhaltenen Ergebnisse zeigen, dass durch diese Fettsäuren die Verteilung und die Wirkung der biologisch aktiven Selenoproteine beeinflusst werden.

A. Kyriakopoulos, D. Behne, H. Bertelsmann, H. Pfeifer, D. Röhlein

## Klinische Anwendung und epidemiologische Studien

*Die aus den anderen Projekten des Forschungsvorhabens gewonnenen Kenntnisse und Erfahrungen werden in Verbindung mit spezifischen spurenanalytischen Methoden in der klinischen Diagnostik von Spurenelementdefiziten und -belastungen, der Kontrolle von Therapiemaßnahmen und der Beurteilung von Ernährungsformen eingesetzt.*

*lytischen Methoden in der klinischen Diagnostik von Spurenelementdefiziten und -belastungen, der Kontrolle von Therapiemaßnahmen und der Beurteilung von Ernährungsformen eingesetzt.*

Jahr	Anzahl der Patienten	Anzahl der Analysen von Se bzw. Al	Serum-Selen <sup>1,2,3)</sup> Min/Max-Werte (µg/L)	Serum-Aluminium <sup>4)</sup> Min/Max-Werte (µg/L)
1997	22	91	36 - 142	2 - 39
1998	18	111	34 - 123	1 - 33
1999	21	153	44 - 117	1 - 76
2000	19	137	41 - 124	2 - 57

1) Referenzbereiche (95% Toleranzgrenzen) für Serum-Selen in der Berliner Bevölkerung : 27-58 µg/L für Neugeborene (1991) und 55-100µg/L für Erwachsene (1992 im HMI bestimmt und 1997 bestätigt)

2) Selenzufuhr für TPN-Patienten: 2µg/kg Körpergewicht für Neugeborene und 0.9µg/kg für Erwachsene,

3) Interventionsgrenzen für eine Selensubstitution: ab Serumsele <20µg/l bei Kindern und ab < 40µg/l bei Erwachsenen

4) No-effect-level für parenteral zugeführtes Aluminium bis heute nicht bekannt. Vorläufige Unbedenklichkeitsschwelle nach Einschätzung der „European Dialysis and Transplant Association“: 50 µg Al/L im Serum-Aluminium

*Tabelle 1: Kontrollanalysen zur Beurteilung der Selenversorgung und der Aluminiumbelastung bei total parenteral ernährten Patienten*

### Kontrolle der Selenversorgung und Aluminiumbelastung bei langfristig total parenteral ernährten Patienten

Wie in den Jahren zuvor wurde bei langfristig total ernährten Patienten, die im Universitätsklinikum Benjamin Franklin stationär und ambulant betreut werden, Serumproben analysiert, um die Selenversorgung und die Aluminiumbelastung zu kontrollieren. Tabelle 1 gibt Aufschluß über das Probenaufkommen und zeigt an Hand der Analyseergebnisse, daß die Selenversorgung im zulässigen the-

rapeutischen Bereich liegt und daß eine Aluminiumvergiftung durch die parenterale Nahrungszufuhr nach dem heutigen Erkenntnisstand nicht zu befürchten ist.

Bestimmung der Aluminiumbelastung bei Ernährung aus All-in-one-Beuteln: Wie wichtig eine ständige Kontrolle ist, zeigte sich, als nach Umstellung der Ernährung auf sogenannte all-in-one-TPN-Beutel bei 13 Patienten stichprobenartig jeweils zwei Beutel auf Aluminium analysiert wurden. Dabei wurde festgestellt, daß die Nahrung für einen Patienten

nicht unerheblich mit Aluminium kontaminiert war (210 und 316 µg Al/L), während die Aluminiumkonzentrationen in allen anderen Beuteln mit Werten zwischen 17 und 43 µg Al/L deutlich geringer waren. Bestimmung der Aluminiumbelastung von parenteral ernährten Neugeborenen: Neu aufgenommen wurde die Überwachung der Aluminiumbelastung von parenteral ernährten Neugeborenen. Auch hier setzt sich bei den behandelnden Ärzten die Erkenntnis durch, daß für die Ernährung dieser Risikogruppe gezielt aluminiumfreie oder zumindest aluminiumarme Präparate eingesetzt werden sollen.

### **Spurenelemente in der Säuglingsernährung**

Bei Frühgeborenen mit sehr niedrigem Geburtsgewicht verdoppelt sich ihre Körpermasse in wenigen Wochen. Wegen des hohen Bedarfs an Mineralien und Spurenelementen in dieser Phase kann es bei Unterversorgung zu einem Mangel mit zum Teil gravierenden Folgeschäden kommen. Es wird daher eine bedarfsangepaßte Supplementierung der Muttermilch angestrebt, um Wachstum, Knochenmineralisierung und Immunabwehr zu gewährleisten.

Bilanzstudien zur Versorgung von sehr untergewichtigen Frühgeborenen (ELBW) mit essentiellen Spurenelementen: Die Untersuchungen von ELBW-Kindern (Geburtsgewicht <1000g), die in Zusammenarbeit mit der Abteilung für Neonatologie der Charité Berlin durchgeführt wurden, sind inzwischen abgeschlossen. Bei 10 ELBW-Kindern wurden nach 7 und nach 12 Lebenswochen mehrere essentielle Spurenelemente bestimmt. Dabei wurde bei Zn, Se, I und Mo eine negative Bilanz gefunden. Auch für Ca, Mg und P war der Bedarf höher als die Nahrungszufuhr. Dies zeigte, daß das verwendete Ernährungsschema nicht ausreichte und daß für eine optimale Versorgung von ELBW-Kindern die Zufuhr von Mineralien und essentiellen Spurenelementen in den ersten Lebensmonaten erhöht werden muß. Neben den Bilanzstudien wurden zur besseren Beurteilung der Versorgung von Säuglingen mit essentiellen Spurenelementen mit Hilfe des Methodenverbundes HPLC/ICP-MS vergleichende Speziationsuntersuchungen an Muttermilchproben und an Ersatzmilchpräparaten durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen, daß sich die Ersatzmilchen sowohl in der Konzentration als auch im Bindungsmuster der Spurenelemente signifikant von der Muttermilch unterscheiden. Die Unterschiede beruhen sowohl auf dem Basismaterial (Soya, Kuhmilch, Ziegenmilch) als auch auf den Supplementierungsformen der Hersteller.

Mitarbeit an der europäischen multizentrischen Erythropoietin-Studie: In Zusammenhang mit einer Klinikstudie (Sponsor Roche), die sich primär mit der Anregung der Erythrozytenbildung bei untergewichtigen Neugeborenen durch Gabe von Erythropoietin befaßte, wurden in verschiedenen Neonatologie-Zentren Europas Serum- und Erythrozytenproben von 240 ELBW-Kindern am 5. und am 63. Tag gesammelt und zeitgleich mit der zweiten Blutprobe zusätzlich auch gepoolte Nahrungsproben. In allen Proben wurden die Spurenelemente Fe, Cu, Zn, Se, I, Mn und Mo und die Mineralelemente Ca, Mg und P analysiert. In den Seren und Erythrozyten wurden zusätzlich die Gehalte der Metalloenzyme Katalase, Glutathionperoxidase und Superoxid-Dismutase gemessen. Es wurde ein deutliches Absinken des Serum-Zinkspiegels mit

der Zeit gefunden, die auf eine ungenügende Versorgung mit diesem Element hinweist.

Bizentrische randomisierte geblindete Studie "Verhinderung des Zinkmangels bei untergewichtigen Neugeborenen": Aufgrund dieses Ergebnisses wurde in Zusammenarbeit mit der Abteilung für Neonatologie der Charité und der Fa. Milupa eine Studie an 60 Frühgeborenen (Geburtsgewicht 1000 - 1500 g) durchgeführt, die zwei Muttermilch-Fortifier mit und ohne Zusatz essentieller Spurenelemente erhielten. Das Hauptaugenmerk lag auf den Elementen Zink und Iod. Die Ergebnisse werden augenblicklich ausgewertet. Vorab läßt sich jedoch sagen, daß sich die Supplementierung mit dem spurenelementangereicherten Fortifier äußerst vorteilhaft auf die Entwicklung der Kinder ausgewirkt hat.

### **Spurenelemente beim Morbus Alzheimer**

Frühere an anderer Stelle durchgeführte Untersuchungen an Hirngeweben von Alzheimer-Patienten hatten für die Spurenelemente Eisen und Aluminium deutlich höhere Werte im Vergleich zu Gesunden ergeben. Diese Ergebnisse wurden aber immer wieder angezweifelt, da die Probennahme nicht unter strikter Kontaminationskontrolle erfolgt war. In Zusammenarbeit mit der Universität Budapest wurden deshalb Untersuchungen unter Einsatz einer methodisch einwandfreien Präanalytik durchgeführt. Dabei wurden verstorbenen Alzheimer-Patienten und einer Kontrollgruppe unter sorgfältiger Vermeidung von Kontaminationen Proben aus verschiedenen Hirnregionen entnommen und in Gewebe und Fett getrennt. In diesen Proben wurden mit der instrumentellen NAA die Elemente Se, Zn, Fe, Rb und Cs bestimmt und in einem Teil der Proben nach radiochemischer Trennung Iod. Zwischen beiden Gruppen gab es deutliche Unterschiede für Se, Zn, Rb und Cs, nicht jedoch für Fe. Beim Iod sind wegen extrem hoher Gehalte in einigen Proben aus beiden Gruppen eindeutige Schlußfolgerungen noch nicht möglich.

### **Untersuchung von Metalloproteinen in menschlichen Blut- und Gewebeproben**

Um erste Informationen über die Verteilungsmuster von Metalloproteinen in den menschlichen Geweben und über Zusammenhänge zwischen Krankheiten und Metalloproteinkonzentrationen zu erhalten, wurden verschiedene metallhaltige Proteine in Gewebecytosolen und Blutfraktionen durch Kopplung von chromatographischen Methoden und ICP-MS bestimmt.

Bestimmung von Metalloenzymen in Erythrocyten: Mit Hilfe dieses Verfahrens konnten in Erythrozyten die Gehalte der eisenhaltigen Katalase, der selenhaltigen Glutathionperoxidase und der kupfer- und zinkhaltigen Superoxid-Dismutase gemessen werden. Alle drei Enzyme, die nicht routinemäßig in der Klinik bestimmt werden, wurden in Erythrozytenproben von gesunden und schilddrüsenkranken Personen analysiert. Dabei ergab sich eine gute Übereinstimmung mit den über Enzymassays erhaltenen Werten.

Metalloproteine in Organen und Serumproben von Sepsispatienten: Informationen über organspezifischen Unterschiede in der Verteilung der Metalloproteine wurden durch Untersuchung der Cytosole von zwölf Geweben (Gehirn, Leber, Niere, Herz, Muskel, Milz, Pankreas, Schilddrüse, Lunge, Kno-

chenmark, Dünndarm, Dickdarm) eines verstorbenen Sepsispatienten erhalten. Bei Blutserumproben, die mehreren Patienten im Verlauf einer Sepsis entnommen worden waren, wurden die Änderungen im Verteilungsmuster von metallhaltigen Proteinen bestimmt, und unter anderem als Folge der Entzündung das Auftreten des sonst nur intrazellulär vorkommenden zinkhaltigen Metallothioneins im Blutplasma beobachtet.

Bestimmung der Metallverteilung in Metallothioneinen aus Lebercytosolproben bei verschiedenen Lebererkrankungen: Metallothioneine wurden ebenfalls im Cytosol von zirrhotischen Leberproben bestimmt, die nach Lebertransplantationen aus den erkrankten Organen entnommen worden waren. Die Bestimmung der Verteilung von Cd, Cu und Zn bei den beiden Metallothionein-Isoformen MT-1 und MT-2 zeigte, daß Kupfer bevorzugt an MT-2 gebunden vorlag während Zn und Cd vor allem in MT-1 gefunden wurde. Für die Klärung der Frage, ob sich aus dem Gehalt und der Metallbeladung der Metallothioneine ein ein Bezug zu der betreffenden Lebererkrankung herstellen läßt, müssen weitere Untersuchungen durchgeführt werden.

Metallothioneine in verschiedenen Gehirnregionen von Alzheimer- und Kontrollpatienten: In den Cytosolen von Gehirnproben, die aus der Hirnbank in München stammten, wurde neben den Isoformen MT-1 und MT2 auch das gehirnspezifischen MT-3 nachgewiesen. Bei Morbus Alzheimer-Patienten wurden im Vergleich zu den Kontrollen signifikante Änderungen in der Bindung von Kupfer und Zink an die Metallothioneine festgestellt.

D. Behne, U. Rösick, D. Behne, A. Kyriakopoulos,  
C. Wolf, A. Raab

**Arbeitsgruppe**

**SF7 Nukleare Messtechnik**





In der Arbeitsgruppe „Nukleare Meßmethoden“ werden Entwicklungsarbeiten zu kernphysikalischen Meßmethoden und kernspektroskopische Untersuchungen durchgeführt.

Mit dem Q3D-Magnetspektrometer können mit Hilfe der Elastic Recoil Detection Analysis (ERDA) sehr dünne Schichten leichter Elemente ( $Z < 20$ ) mit einer Tiefenauflösung von einigen Nanometern untersucht werden. Wasserstoffprofile können nunmehr ebenfalls mit dieser Methode gemessen werden. Im Zusammenhang mit ERDA wurde eine neue Methode der ladungsselektiven Messung von Energieverlusten und Umladungsprozessen entwickelt, die zur Untersuchung von Nichtgleichgewichtsprozessen in sehr dünnen Schichten eingesetzt werden kann. Diese Untersuchungen werden in Zusammenarbeit mit SF4, der TU-München und der TU-Darmstadt durchgeführt; im letzteren Falle ist außerdem die Bestimmung des Energieverlustes in verdünnten Medien und heißen Plasmen von Interesse.

In der Kernspektroskopie konzentrieren sich die Arbeiten auf die Untersuchung extrem deformierter Kerne. In einer Reihe experimenteller und theoretischer Arbeiten konnten wir zeigen, daß  $\alpha$ -Teilchen und  $^{16}\text{O}$ -Cluster durch kovalente Neutronen in Kernmolekülen gebunden werden. Diese Konfigurationen erschienen als angeregte isomere Zustände in leichten neutronreichen Kernen. Hierzu werden sowohl Experimente mit den Magnetspektrometern Q3D und SPEG (GANIL) durchgeführt als auch neue Möglichkeiten der  $\gamma$ -Spektroskopie mit Teilchen- $\gamma$ -Koinzidenzen entwickelt. Ein Detektorsystem zum Nachweis binärer Reaktionen für den Europäischen  $\gamma$ -Detektor-Ball EUROBALL wurde gebaut und wird in einer Europäischen Kollaboration am Beschleuniger VIVITRON am IReS, Strasbourg, im Jahre 2001/02 zum Einsatz kommen.

Basierend auf der kernphysikalischen Nachweisteknik für geladene Teilchen wurde die Entwicklung eines neuartigen ortsauflösenden Detektors für thermische Neutronen (Reaktorneutronen und Spallationsquellen) begonnen, der mit einem  $^{157}\text{Gd}$ -Konverter arbeitet. Die Ortsinformation wird mit Hilfe von Mikrostreifenzählern in einer Niederdruckkammer erhalten. Dieses Projekt ist in ein europäisches Netzwerk (TECHNI), das sich besonders um die Entwicklung der zukünftigen Instrumentierung an ESS bemüht, eingebunden.

## ERDA und Kernspektroskopie

### ERDA-Messungen und Wechselwirkung von Ionen mit Materie

Mit Hilfe des Q3D-Spektrometers können Tiefenprofile im ERDA-Modus mit sehr hoher Auflösung gemessen werden, sofern die Schichtdicken sehr dünn sind. In diesem Tiefenbereich sind systematische Untersuchungen des Energieverlusts in Abhängigkeit der einzelnen Ladungszustände einer sich mit zunehmender Tiefe entwickelnden Ladungsverteilung notwendig. Es stellt sich schließlich ein dynamisches Gleichgewicht ein. Der spezifische Energieverlust eines Ions ist an seinen jeweiligen Ladungszustand  $q$  gekoppelt, in erster Ordnung mit  $q^2$ . Die Ladungsverteilung ändert sich durch elementare Prozesse des Elektronen-Verlustes und –Einfangs. Die quantitative Beschreibung dieser Prozesse mit theoretischen Modellen und die Verwendung dieser Ergebnisse bei der Berechnung des Energieverlustes führt zu einem tieferen Verständnis des Energieverlustes von Ionen in Materie. Mit Ionenstrahlen vom ISL werden deshalb Messungen zur Ladungsabhängigkeit des spezifischen Energieverlustes im Nichtgleichgewichtsbereich gemacht. Mit den Ergebnissen werden mikroskopische Modellrechnungen getestet.

#### Energieverluste im Nichtgleichgewichtsbereich

Am Q3D-Spektrometer wurde eine neue Methode zur Messung von Umladungsquerschnitten und Energieverlusten von Ionen im Nichtgleichgewichtsbereich entwickelt, deren Prinzip bereits im Ergebnisbericht 1999 vorgestellt wurde.

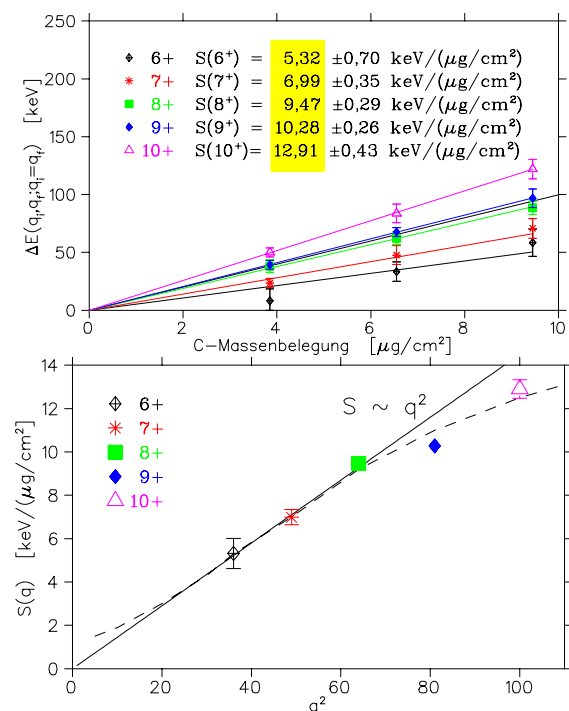


Abb. 1: Oben: Energieverlust von  $^{22}\text{Ne}$ -Ionen in Kohlenstoffschichten für festen Ladungszustand  $q$ . Der gelb unterlegte Bereich zeigt die Steigungen der eingezeichneten Geraden. Unten: Spezifischer Energieverlust für festes  $q$  in Abhängigkeit von  $q^2$ .

Für  $^{22}\text{Ne}$ -Ionen mit einer Energie von 2 MeV/Nukleon wurden erste Ergebnisse, die die Entwicklung der Ladungsverteilungen und der Umladungsprozesse in Abhängigkeit von der Schichtdicke betreffen, veröffentlicht. In Abb. 1, oben, ist die Analyse

der gemessenen Energieverluste für einzelne feste Ladungszustände  $q = 6^+ - 10^+$  ( $q = q_i = q_f$ , Eingangsladungszustand = Ausgangsladungszustand) gezeigt. Diese Daten wurden in einem Monte-Carlo-Verfahren aus den Meßwerten extrahiert. Die Linien stellen Ausgleichsgeraden durch vier Punkte dar. Ihre Steigungen ergeben den spezifischen Energieverlust  $S(q)$  von  $^{22}\text{Ne}$ -Ionen in den einzelnen Ladungszuständen (gelb unterlegt in Abb. 1, oben), sie sind in Abb. 1, unten, mit verschiedenen Symbolen gegen  $q^2$  aufgetragen. Die in erster Ordnung erwartete Abhängigkeit  $S(q) \sim q^2$  trifft für die drei ersten Werte zu, bei den beiden höchsten Ladungszuständen bewirken jedoch Effekte höherer Ordnung ein Abbiegen der Kurve mit geringerem Anstieg.

#### Wasserstoffprofile hoher Auflösung mit ERDA am Q3D-Spektrometer

Hochauflösende Tiefenprofilmessungen können am Q3D-Spektrometer mit ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis) durchgeführt werden. Im Rahmen einer Diplomarbeit wurden nun auch die Meßbedingungen für die Messung von Wasserstoffprofilen etabliert. In Abb. 2 ist als Beispiel das Ergebnis einer Messung an einer Modellprobe gezeigt, deren Aufbau im oberen Teil des Bildes zu sehen ist. Das Profil der Bestandteile Si, Al, O, C wurde simultan mit einer Feldeinstellung gemessen und danach das H-Profil bei etwa halber Feldstärke.

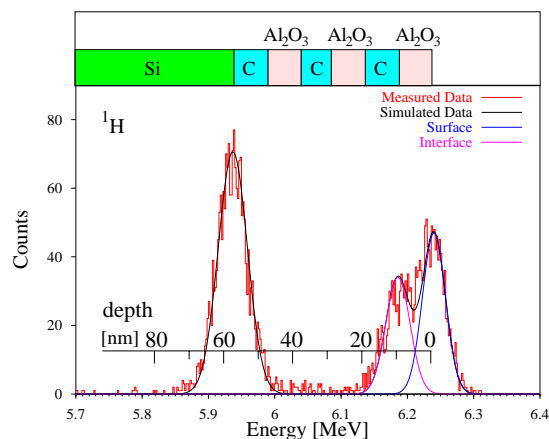


Abb. 2: Wasserstoffprofil einer Multischichtprobe, die abwechselnd aus je drei Schichten  $\text{Al}_2\text{O}_3$  und Kohlenstoff auf Si-Substrat aufgebaut ist.

Wasserstoff ist an der Oberfläche ( $0.7 \cdot 10^{15} \text{ at./cm}^2$ ), im ersten Interface ( $0.55 \cdot 10^{15} \text{ at./cm}^2$ ), und in der Grenzschicht zum Si-Substrat ( $1.3 \cdot 10^{15} \text{ at./cm}^2$ ), lokalisiert (zum Vergleich: die Schichten der Probe haben eine Dicke von ca.  $10^{17} \text{ at./cm}^2$ ). Die Tiefenauflösung beträgt an der Oberfläche 6 nm und wird mit zunehmender Tiefe durch Straggling-Effekte schlechter. Die Auflösung hängt außerdem von der Homogenität der Schichtdicken im Strahlfleckbereich ab.

H.G. Bohlen, W. von Oertzen, Abel Blazevic

## Kernspektroskopie

Mit Hilfe eines Detektoraufbaus, in dem die beiden schweren Reaktionspartner in einer binären Reaktion nachgewiesen werden, soll ein neuer Zugang in der  $\gamma$ -Spektroskopie zu super- und hyperdeformierten leichten Kernen eröffnet werden.

Komplementäre Experimente von binären Reaktionen zur Spektroskopie molekularer Zustände und neutronenreicher Kerne werden mit den Magnet-spektrometern Q3D (HMI) und SPEG (GANIL) durchgeführt.

Dieses Forschungsvorhaben zielt auf die Spektroskopie sehr neutronenreicher leichter Kerne, insbesondere molekularer Strukturen, im Bereich der Isotope von Beryllium bis Neon sowie extrem deformierter Kerne mit  $Z = N$  bei  $A = 36 - 48$ . Mit Hilfe eines Detektoraufbaus zum Nachweis binärer Reaktionen in Koinzidenz mit  $\gamma$ -Strahlung aus den Reaktionspartnern werden neue Gebiete der Kernspektroskopie eröffnet. Der Mechanismus der Bevölkerung stark deformierter Seitenbanden wird untersucht.

#### a) $\gamma$ -Spektroskopie mit binären Reaktionen

Mit dem Umzug von EUROBALL aus Legnaro (I) nach IReS Strasbourg (F) wurde ein geändertes Konzept des Aufbaus des Binary Reaction Spectrometer entwickelt und für den Einbau an EUROBALL IV vorbereitet (Abb. 1). Zur zusätzlichen Messung von geladenen leichten Teilchen wurde ein System aus segmentierten Silizium-Detektoren konzipiert und in Auftrag gegeben.

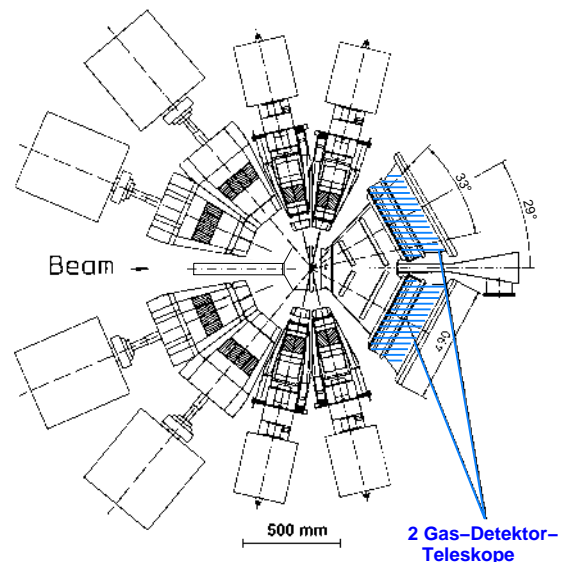


Abb. 1: Experimenteller Aufbau mit dem BRS und Euroball IV. Die Ge-Detektoren von Euroball IV sind mit ihren BGO-Shields und den Kryostaten um die Targetkammer herum platziert. In Vorwärtsrichtung befinden sich die beiden Detektorteleskope des BRS.

### b) Clusteremissionen in $\alpha$ -Cluster-Kernen

Die Untersuchung von  $^8\text{Be}$ - und  $^{12}\text{C}$ -Emissionen aus hochangeregten Compoundkernen als binäre Reaktion wurde fortgesetzt und die verstärkte Bevölkerung der stark deformierten Seitenbande in  $^{48}\text{Cr}$  im Falle der binären  $^8\text{Be}$ -Emission nachgewiesen. Diese Reaktionskanäle können mit Halbleiter-Detektor-Teleskopen sehr effizient nachgewiesen werden (Abb. 2). Ein Experiment mit dem  $\gamma$ -Spektrometer GASP am LNL (Legnaro) mit diesem Reaktionskanal wurde in Zusammenarbeit mit dem LNL und IReS (Strasbourg) für das System  $^{28}\text{Si} + ^{24}\text{Mg}$  durchgeführt. Die Auswertung des Experiments wurde begonnen.

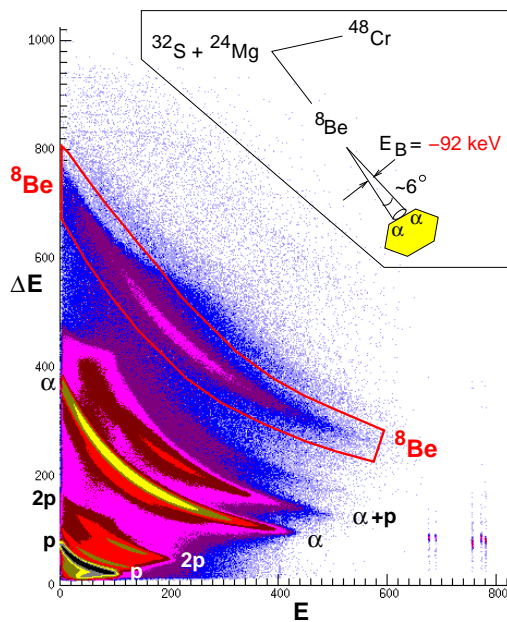


Abb 2: Teilchenidentifizierung im  $\Delta E$ - $E$ -Diagramm. Zu sehen sind die Äste, die charakteristisch für die verschiedenen Teilchensorten sind. Das Inlet zeigt den Mechanismus des  $^8\text{Be}$ -Nachweises im  $\Delta E$ - $E$ -Si-Zähler.

### c) $\gamma$ -Spektroskopie leichter neutronenreicher Kerne

Die Untersuchung molekularer Strukturen in neutronenreichen leichten Bor- und Beryllium-Isotopen wurde um  $\gamma$ -spektroskopische Untersuchungen erweitert. Dazu wurde ein Experiment mit dem  $\gamma$ -Spektrometer GASP am LNL (Legnaro) durchgeführt. Benutzt wurden hierbei die Strahl-Target-Kombinationen mit einem  $^7\text{Li}$ -Strahl und dicken  $^9\text{Be}$ - und  $^{10}\text{Be}$ -Targets, die jeweils mit einem Gold-Backing versehen waren. Die Bevölkerung der zu untersuchenden molekularen Bande in  $^{10}\text{Be}$  konnte durch die Beobachtung der Interband-Übergänge bestätigt werden. Die Auswertung der Daten dauert an. Desweiteren ist ein weiteres Experiment mit höherer Einschussenergie geplant, um die Intraband-Übergänge in den molekularen Banden in  $^{10}\text{Be}$  und  $^{10}\text{B}$  zu untersuchen. Außerdem wurden aus der  $^7\text{Li} + ^{16}\text{O}$  Reaktion neue spektroskopische Daten zu  $^{21}\text{Na}$  und  $^{21}\text{Ne}$  gewonnen.

### d) Teilchenspektroskopie neutronenreicher leichter Kerne

In Kernen sind molekulare Strukturen wegen der kurzen Reichweite der Kernkräfte äußerst ungewöhnlich. In neutronenreichen Be-Isotopen konnten wir jedoch solche Strukturen, die aus zwei  $^4\text{He}$ -Kernen mit großem Abstand und zusätzlichen Bindungsneutronen bestehen, durch die Spektroskopie molekularer Rotationsbanden nachweisen. Die Neutronen der p3/2-Schale bilden in diesen Kernen „klassische“  $\sigma$ - und  $\pi$ -Bindungorbitale. Für die erfolgreiche Bevölkerung dieser Zustände waren zwei Punkte entscheidend: 1. diese Strukturen werden durch den Transfer von Neutronen an  $^9\text{Be}$ , das bereits im Grundzustand eine molekulare Struktur hat, gebildet und es werden dabei hohe Drehimpulse erreicht; 2. die Neutronentransferreaktion muß bei hoher Einschussenergie durchgeführt werden, damit auch die bei hohen Anregungsenergien liegenden Mitglieder der Rotationsbanden bevölkert werden. Außerdem sind die sehr guten Strahleigenschaften, wie sie am ISL vorliegen, kombiniert mit dem Magnetspektrometer Q3D, wichtig.

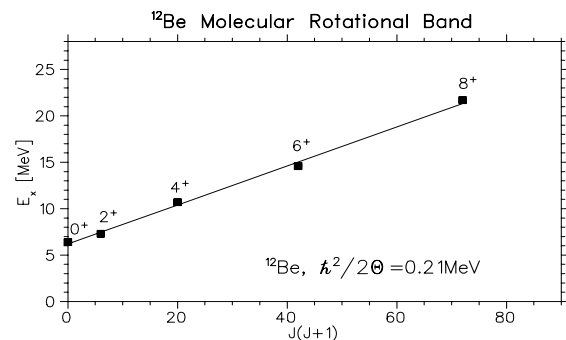
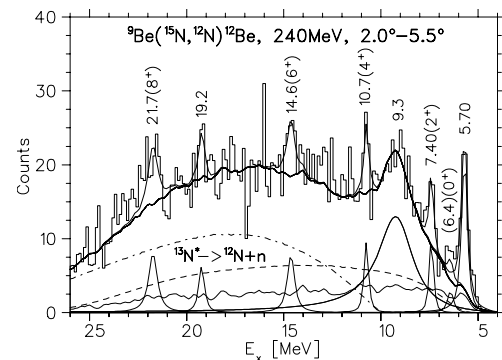


Abb. 3: Molekulare Rotationsbande in  $^{12}\text{Be}$ . Oben: Spektrum der  $^9\text{Be}(^{15}\text{N}, ^{12}\text{N})^{12}\text{Be}$ -Reaktion bei 240 MeV. Der Untergrund resultiert aus Drei-Körper-Prozessen. Unten: Darstellung der Anregungsenergie  $E_x$  der Mitglieder der Rotationsbande in Abhängigkeit von  $J(J+1)$ .

In Abb. 3 sind die Ergebnisse für die molekulare Rotationsbande von  $^{12}\text{Be}$  gezeigt. Es wurden vier Mitglieder einer  $K=0^+$ -Bande, deren Anregungsenergien zwischen 7.4 und 21.7 MeV und deren Spins zwischen  $2^+$  und  $8^+$  liegen, gefunden. Der  $0^+$  Bandenkopf konnte noch nicht im Spektrum wegen seines kleinen Wirkungsquerschnittes identifiziert werden. Mit der Extrapolation der Geraden in Abb. 3 (unten) wird eine Anregungsenergie von 6.4 MeV erwartet. Aus der Steigung der Geraden ergibt sich

ein Trägheitsmoment von  $\Theta = 2.4 \text{ MeV}^{-1}$ , dies entspricht einem Abstand der beiden  ${}^4\text{He}$ -Rümpfe von ca. 6-7 fm.

#### e) Kernregenbogen-Streuung im ${}^{16}\text{O} + {}^{16}\text{O}$ System und Zustandsgleichung von Kern-Materie

Die Regenbogenstreuung von  ${}^{16}\text{O} + {}^{16}\text{O}$  haben wir in den letzten Jahren intensiv sowohl experimentell als auch theoretisch untersucht. Regenbogenstreuung wird bei Streuvorgängen mit *attraktivem* Potential beobachtet, bei denen eine Ablenkung bis zu einem maximalen Winkel, dem Regenbogenwinkel, stattfindet. Der Verlauf der Streuintensität kann in diesem Bereich durch die Airy-Funktion beschrieben werden.

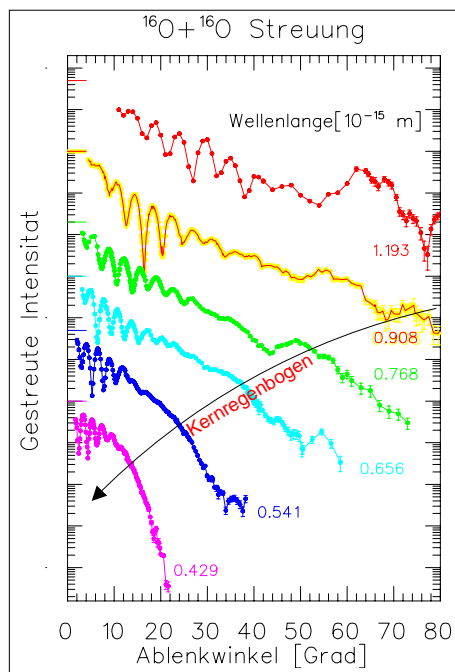


Abb. 4: Elastische Streuung von  ${}^{16}\text{O} + {}^{16}\text{O}$  (dividiert durch Mottstreuung) für sechs Energien. Die tiefste Energie ist 145 MeV, die höchste 1120 MeV, die de-Broglie-Wellenlängen im Schwerpunktsystem der streuenden Teilchen sind an den Daten angegeben. Das Regenbogenmaximum ändert seine Lage mit der Einschussenergie wie gezeigt.

Abb. 4 zeigt einen Überblick über die gemessenen Daten im Energiebereich von 145 MeV bis 1120 MeV. Dargestellt ist der Wirkungsquerschnitt dividiert durch den Mottquerschnitt, als Funktion des Streuwinkels. In dieser Darstellung kann man die engen Strukturen der Fraunhofer-Diffraktion bei kleinen Winkeln sehr gut erkennen, während das Regenbogen-Maximum (verursacht durch „Brechung“) seine Lage schnell mit der Energie (d.h. der Wellenlänge) verändert, und der primäre Regenbogen bei Energien kleiner  $E=250 \text{ MeV}$  außerhalb des messbaren Bereichs liegt (dieser ist für identische Kerne auf Winkel bis  $90^\circ$  begrenzt). Mit neuen Experimenten aus Laboratorien in Frankreich und Japan gibt es nun eine Datenbasis von sehr präzise gemessenen Winkelverteilungen über einen sehr

großen Energiebereich (75 MeV – 1120 MeV). Das große Interesse an diesen Daten und den theoretischen Analysen beruht auf der Tatsache, dass mit der Struktur der Kernregenbogenstreuung zum ersten Mal das Wechselwirkungspotential zwischen Kernen bis zu Abständen von 2 fm, bei denen sich die Kerne stark überlappen, eindeutig bestimmt werden konnte, d.h. bei Überlappungsdichten von  $2\rho_0$  ( $\rho_0$  Kernsättigungsdichte). Die genaue Analyse der  ${}^{16}\text{O} + {}^{16}\text{O}$ -Streuung lieferte daher neue Einsichten in die Zustandsgleichung kalter Kernmaterie, insbesondere im Bereich der Dichten von  $\rho/\rho_0 = 0.1 - 2.0$ , für den Inkompressibilitäts-Modul  $K$  konnte der Wert zu  $K = 250 \text{ MeV}$  ( $\pm 15\%$ ) bestimmt werden.

Zur Analyse der Daten haben wir ein semi-mikroskopisches Verfahren weiterentwickelt - das Doppel-Faltungs-Modell (DFM), in dem die Kerndichten mit einer dichte-abhängigen (effektiven) Nukleon-Nukleon Wechselwirkung gefaltet werden. Als freie Parameter gehen nur eine globale Normierung des DFM-Potentials ( $\sim 0.9$ ) und die Parameter der Dichteabhängigkeit der effektiven Wechselwirkung ein. Aus den letzteren kann dann die Kompressibilität der Kernmaterie über eine Hartree-Fock Rechnung bestimmt werden.

Eine eingehende Analyse aller Daten bis zu kleinsten Energien von 7 MeV/Nukleon ergab, dass bei den niedrigen Energien immer noch die gleichen attraktiven Potentiale wirken. Diese bewirken, dass bei  $E = 95 \text{ MeV}$  das Airy-Maximum dritter Ordnung beobachtet wird! In einer neuen Arbeit (zusammen mit V. Subbotin aus St. Petersburg) konnten wir zeigen, warum das stark attraktive Potential bei den niedrigen Energien nicht durch die Wirkung des Pauli-Prinzips zerstört wird. Die Überlappung der Fermi-Kugeln der beiden Kerne wird durch den Impuls der Relativbewegung der Kerne bestimmt. Das mittlere Feld produziert jedoch in dem Überlappbereich eine Potentialtiefe von über 150 MeV, ein Wert, der weit größer als die der Fermi-Impulse ist. In einer selbstkonsistenten Behandlung dieses Effektes, der den Abstand der Fermikugeln bestimmt, konnten wir zeigen, daß im Impulsraum die Fermi-Kugeln wieder von einander getrennt werden. Damit ist es uns gelungen, zur  ${}^{16}\text{O} + {}^{16}\text{O}$ -Streuung eine abschließende Erklärung aller physikalischen Aspekte zu erhalten. Insbesondere ist nun klar, warum in den Wirkungsquerschnitten der Anregungsfunktionen bei  $90^\circ$  sehr tiefe Minima auftreten können: es handelt sich *nicht* um Effekte von Resonanzen, sondern um die scharfen Minima der *Airy-Strukturen höherer Ordnung*.

Mit D.T. Khoa (VAEC, Hanoi) ist nun noch geplant, die experimentellen Daten zu den Reaktionskanälen (Neutrontransfer und inelastische Streuung) in diesem System auf Regenbogeneffekte zu analysieren.

W. von Oertzen, B. Gebauer, S. Thummerer, H.G. Bohlen



## Entwicklung eines ortsabbildenden Detektors für Reaktorneutronen

Im Detektorlabor der Arbeitsgruppe wird in Zusammenarbeit mit BENSC ein neuartiger, großflächiger Detektor höchster Auflösung für thermische Neutronen entwickelt: Mittels eines Gd/CsI-Mehrschichtenkonverters werden nach Neutroneneinfang

an  $^{157}\text{Gd}$  langsame Sekundärelektronen freigesetzt und in großflächigen Niederdruck-Mikrostreifengaskammern (MSGC) verstärkt und nachgewiesen. Der Detektor erfüllt die Anforderungen an hochauflösende Experimente bei ESS.

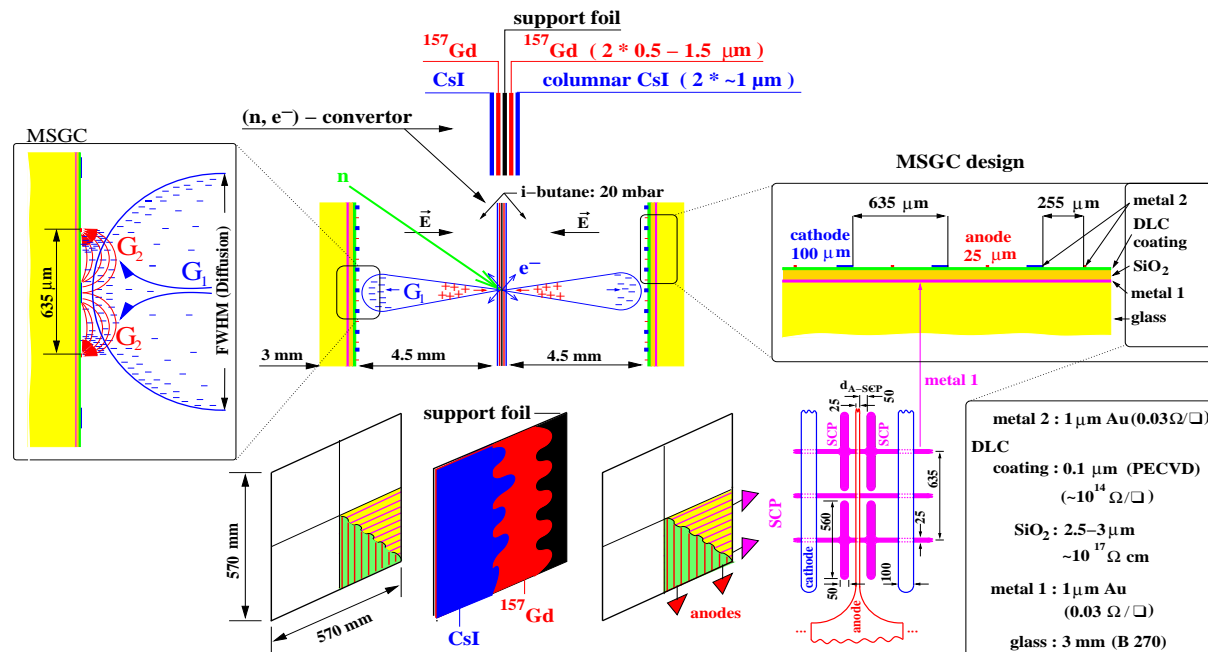


Abb. 1: Schematische Darstellung eines vierfach segmentierten MSGC-Großflächenzählers von 570 x 570 mm<sup>2</sup> Fläche. Das Diagramm zeigt in Teilbildern (i) den Zweistufigengasverstärkungsmodus im Niederdruckbereich (links), (ii) die Mehrschichtenkonverterfolie (oben), (iii) die vierfach segmentierten MSGC-Flächen beidseitig des Konverters (unten), und Details (iv) des Mehrschichtenaufbaus der MSGCs (rechts oben) und (v) des Layouts der oberen Mikrostreifenebene (Metall 2) mit Anoden- und Kathodenstreifen und der unteren SCP-(Second-Coordinate-Pad)-Ebene (rechts unten).

### Entwicklung grossflächiger Hybrid-Mikro-streifengasdetektoren für thermische Neutronen

Für Anwendungen an BER II und langfristig an der gepulsten europäischen Hochflußspallations-neutronenquelle ESS wird ein neuartiger großflächiger vierfach-segmentierter Detektortyp für thermische und kalte Neutronen entwickelt, der zweidimensionale Ortsauflösungen von wenigen zehntel mm, Flugzeitaufösungen von wenigen ns und Zählraten von  $> 10^7/\text{s}$  erlaubt (Abb. 1). ESS liefert im Vergleich zu BER II eine Erhöhung des Flusses thermischer Neutronen im Puls um mehr als drei Größenordnungen. Ferner ist aufgrund der Verbesserung der Neutronenoptik eine Erhöhung der Neutronenflußdichte am Ort der Probe um ca. eine weitere Größenordnung zu erwarten. Daher sind neuartige hochauflösende und schnelle Detektoren erforderlich.

Es werden Hybriddetektoren entwickelt mit einer  $^{157}\text{Gd}/\text{CsI}$ -Mehrschichtenkonverterfolie mittig in

einem Niederdruckgasvolumen, welches beidseitig von zwei Mikrostreifengaskammern (MSGC) eines neuartigen zweidimensional ortsbestimmenden Typs begrenzt wird. Nach Neutroneneinfang an  $^{157}\text{Gd}$  wird mit  $87.3 \pm 2.5\%$  Effizienz mindestens ein schnelles Konversionselektron von 29-181 keV emittiert, welches aus der CsI-Oberfläche einen Cluster von niederenergetischen Sekundärelektronen (SE) emittiert. Durch das Einsetzen einer zweistufigen exponentiellen Gasverstärkung an der Konverteroberfläche bei hoher reduzierter Feldstärke  $E/p$  bei  $p=20$  mbar und durch die  $^{157}\text{Gd}$ -Dicke von wenigen Mikrometern ist im Gegensatz zu Gas-konvertoren der Einfangsort des Neutrons sehr gut lateral und longitudinal parallaxefrei lokalisierbar. Für eine optimale SE-Emission wurden im Rahmen des Projekts dünne CsI-Schichten mit säulenförmiger Morphologie entwickelt. An der Optimierung der SE-Cluster-Größe wird zur Zeit gearbeitet.

Die MSGCs sind erstmalig (i) für den Niederdruck-betrieb optimiert und (ii) in einer Mehrschichten-technologie mit integrierten Dünnschicht-Konden-

satoren und -Widerständen auf der Oberfläche großflächiger, robuster, 3 mm dicker Platten aus B270-Glas aufgebaut. Die Entwicklung der Multi-layer- Platten erfolgt (i) in Zusammenarbeit mit der schweizer Firma IMT und dem Fraunhofer-Institut für Schicht- und Oberflächentechnik (FhG-IST) und (ii) parallel dazu in Zusammenarbeit mit dem Institute for Physics of Microstructures der russischen Akademie der Wissenschaften IPM RAS. Die Front-end Elektronik wurde im HMI entwickelt. Eine bereits für ESS taugliche Datenaufnahmekarte mit 32 TDC-Kanälen und bis zu 2 MHz Durchsatzrate wurde in Zusammenarbeit mit dem Frank Laboratory of Neutron Physics (FLNP), JINR Dubna entwickelt.

B. Gebauer, W. von Oertzen, Ch. Schulz

## **RE Forschungsreaktor**





### Routinebetrieb

Der Forschungsreaktor wurde während des Jahres 2000 planmäßig betrieben. Nach einer durchgängigen dreiwöchigen Betriebszeit blieb der Reaktor jeweils eine Woche lang für Wartungs- und Prüfarbeiten abgeschaltet. Dazu kam eine geplante 6-wöchige Betriebspause ab Ende September zur fälligen Prüfung der Druckbehälter, Neuinstallation der digitalen Neutronenflussmesstechnik und der kompletten Neuverrohrung der Sprinkleranlage in der E-, R- und V-Halle. Insgesamt stand der BER II für den Experimentierbetrieb 5030 Stunden zur Verfügung, dabei wurden 47800 Megawatt-Stunden erzeugt.

Mit Abschluss der HEU-/LEU-Umstellung Ende 1999/Anfang 2000 wurden in diesem Jahr 4 LEU-Kerne aufgebaut. Die jeweils umfangreichen Inbetriebsetzungsprogramme wurden dabei vom Reaktorphysikalischen Personal zügig und problemlos abgearbeitet. Ab dem 22.01.2000 wird im BER II nur noch niedrig angereicherter Brennstoff eingesetzt.

### Ertüchtigung von Komponenten am BER II

Der Austausch von technischen Komponenten am BER II infolge der Weiterentwicklung des wissenschaftlich-technischen Fortschritts wurde in diesem Jahr forciert. Der Komplex der Neutronenflussinstrumentierung wurde von der Analogtechnik auf digitale Messkanäle umgestellt und schrittweise über einen Zeitraum von zwei Jahren ausgetauscht. Diese Technik ist zuverlässiger, die Messkanäle sind selbstüberwacht und sie gestattet eine leichtere Durchführung der wiederkehrenden Prüfungen. Parallel dazu wurden die elektromechanischen Umformer, die den Strom für die Primärpumpen im Kühlkreislauf des BER II liefern, durch elektronisch statische Wechselrichter ersetzt. Damit wird ebenfalls eine höhere Zuverlässigkeit der Anlage garantiert.

### Kalte Neutronenquelle (KNQ)

Die Betriebssicherheit der KNQ wurde im Jahre 2000 weiter verbessert. Auf der Basis des im Jahre 1999 erarbeiteten Konzeptes zur Durchsetzung von Massnahmen zur weiteren Ertüchtigung der KNQ wurden die Betriebsperioden verlängert, um eine Minimierung des Warmfahrens der Anlage zu erreichen. Anfang 2000 wurden zusätzliche Kaltwassersätze installiert, die zur Kühlung der Turbine, Vakuumböden und Gebläse dienen. Ausserdem wurde die vierjährlich durchzuführende Prüfung der Pufferbehälter erfolgreich abgeschlossen. An der in Auftrag gegebenen Neuverrohrung der Jointbox zur Vermeidung von Kaltlecks und zur Erhöhung der Wartungsfreundlichkeit wird planmässig gearbeitet. Dabei werden speziell entwickelte Flanschverbindungen eingebaut, die auch bei den herrschenden extremen Temperaturdifferenzen eine hohe Dichtigkeit gewährleisten. Diese Massnahme wird im Jahre 2001 abgeschlossen. Mit 298 Tagen KNQ-Normalbetrieb bei 55 Tagen KNQ-Stillstand wurde im Jahre 2000 ein sehr gutes Ergebnis erzielt.

### Entsorgung

Im September 2000 wurde ein Behälter mit 17 abgebrannten hochangereicherten Brennelementen in die USA transportiert. Damit befindet sich kein HEU-Brennstoff mehr im HMI. Im Rahmen des Rückfüh-

rungsprogramms von US-originem Uran in die USA steht dieser Entsorgungsweg bis zum Jahre 2006 auch für abgebrannte niedrig angereicherte Brennelemente offen.

Für den Betrieb des BER II müssen jedoch langfristig weitere Entsorgungsalternativen bereitstehen. Vom HMI werden daher folgende Alternativen verfolgt:

#### *Zwischenlagerung in Transport- und Lagerbehälter in Ahaus.*

Das HMI hat mit der Betreibergesellschaft BZA einen Lagervertrag abgeschlossen und 3 Stellplätze für insgesamt 9 MTR-Transport und Lagerbehälter angemietet. Zur Nutzung dieser Kapazität ist jedoch noch die Zulassung der Behälter und die Aufbewahrungsgenehmigung im Zwischenlager erforderlich. Da einerseits das Inventarspektrum erweitert wurde und von Seiten der Genehmigungsbehörden Zusatzaufgaben abzuwickeln waren, wird mit der endgültigen Erteilung der Genehmigungen im Jahre 2001 gerechnet. Dieser Weg ist nach dem Auslaufen des amerikanischen Rückführungsprogramms die günstigste Variante für das HMI.

#### *Wiederaufarbeitung in La Hague*

Die Aufbereitungsanlage in La Hague kann keine Uran-Silizid Brennelemente wiederaufarbeiten. Da aber in Frankreich und den USA wiederaufarbeitbarer Uran-Molybdän Brennstoff mit höherer Uran-dichte entwickelt wird, kann dieser Entsorgungsweg für das HMI in Zukunft interessant werden. Das HMI ist sehr an die Entwicklung derartiger Brennelemente interessiert und prüft, ob diese Brennelemente auch im BER II eingesetzt werden können. Sollte dieser Weg beschritten werden, ist jedoch zu klären, wo der bei der Wiederaufarbeitung anfallende radioaktive Abfall gelagert werden kann. Eine langfristige Zwischenlagerung ist in La Hague nicht möglich.

### Reaktorwerkstatt

Hauptbetätigungsfeld der Reaktorwerkstatt sind Instandhaltungsarbeiten am BER II, einschliesslich seiner Komponenten. Darüber hinaus werden Arbeiten an den Experimentaufbauten in enger Zusammenarbeit mit den Experimentatoren des Bereiches Strukturforschung und von BENSC durchgeführt. Ein Schwerpunkt der Arbeiten waren Wartungs- und Instandhaltungsarbeiten bei kernnahen Bestrahlungseinrichtungen. Dabei konnte u.a. dank der Flexibilität der Mitarbeiter der Werkstatt oftmals nicht geplante Aufgaben realisiert werden, was sich in einer bedeutenden Anzahl von Serviceaufgaben dokumentiert.

Die Werkstatt war im Jahre 2000 wie folgt ausgelastet: RE 48%; SF 32%; BENSC 14%; SZ und Sonstige 6%. Die Serviceleistungen haben dabei eine Gesamtkapazität von 38% gebunden

