

JEVNSTRØMSLEDNINGSEVNE OG GITTERSTRUKTUR

I AMORFT GERMANIUM

Eksperimentelt speciale af:

Hans Hedal

Frank C. Ludvigsen

Finn C. Physant

Vejleder:

Niels Boye Olsen

TEKSTER fra

IMFUFA

ROSKILDE UNIVERSITETSCENTER

INSTITUT FOR STUDIET AF MATEMATIK OG FYSIK SAMT DERES
FUNKTIONER I UNDERVISNING, FORSKNING OG ANVENDELSE

IMFUFA, Roskilde Universitetscenter, Postbox 260, 4000 Roskilde

JÆVNSTRØMSLEDNINGSEVNE OG GITTERSTRUKTUR

I AMORFT GERMANIUM

Specialerapport af Hans Hedal, Frank C. Ludvigsen og
Finn C. Physant

Vejleder: Niels Boye Olsen

IMFUFA tekst nr. 78/84, RUC. 293 sider ISSN 0106-6242

Abstract

Projektet indeholder en teoretisk og en eksperimentel del. Den teoretiske del består af 1) en udledning af modeller for jævnstrømsledningsevnen i amorfe halvledere, 2) opstilling af en model for relaxationen af gitterstrukturen i amorfe halvledere, 3) fremstilling af teorien for Röntgendiffraktion i enatomige stoffer. Den eksperimentelle del består af beskrivelse og diskussion af eksperimenter udført med amorf germanium, svarende til de tre teoretiske afsnit.

FORORD.

Da vi for godt tre år siden blev anbefalet at gå i gang med specialemodulet, var Hans og Finn i færd med at afslutte det første af uddannelsens tre moduler, mens Frank efter et enkelt semester i venteposition endnu ingen moduler havde.

Planen var at lave et projekt, der kombinerede fysik med vores andet fag: historie. Emnet skulle være den videnskabeligt industrielle revolution med mikroelektronik som eksempel.

Vi valgte imidlertid at følge anbefalingen om at lave speciale i det håb at arbejdet med et eksperimentelt grundvidenskabeligt problem, ville give os særlige forudsætninger for at opnå indsigt i det historisk set nye forhold mellem naturvidenskabelig forskning og teknologisk udvikling. En indsigt, der både skulle være væsentlig og anderledes fra den, som folk med en ren historie- og samfundsvidenskabelig tilgang til emnet kunne opnå.

Interessen for forholdet mellem naturvidenskab, teknologi og samfund og mikroelektronikkens betydning i denne sammenhæng skyldtes i høj grad inspiration fra studiemilliøet. Cirka et år forinden havde man påbegyndt en forskning indenfor amorfe halvledere og emnet var valgt med specielt henblik på at være eksemplarisk for fysisk forskning inden for mikroelektronikområdet.

Den nærmere argumentation for valget af amorfe halvledere, eller amorft germanium for at være helt præcis, gik som følger:

Forskning i amorfe halvledere er eksemplarisk for udviklingsaktiviteter indenfor mikroelektronikområdet både i eksperimentelle, teoretiske, teknologiske og sociologiske henseender: Eksperi-

mentelt kan man få erfaringer med almindeligt udbredte metoder som pådampningsteknik, vakuumteknik, varmebehandling og Röntgen diffraktion og ligeledes kan der opnås en indsigt i almene problemer omkring udvikling af eksperimentelt udstyr, elektronisk kontrol og styring af fysiske processer og elektronisk databehandling. Teoretisk fordrer emnet, at man tilegner sig de centrale begreber i den teori, som bruges i forståelsen af al mikroelektronik, nemlig faststoffysik. Teknologisk kendes til anvendelser i fotokopieringsmaskiner, computerhukommelser og solceller. Endeligt vil man i sociologisk henseende, for det første, få en fornemmelse af i hvilket omfang henholdsvis industrielle, universitære og militære interesser er indblandet, og, for det andet, vil man opleve den ekstreme arbejdsdeling og specialisering på nært hold.

Amorfe halvledere har også den praktiske fordel at være et nyt forskningsområde, hvor bestrebelserne endnu er samlet omkring afklaringen af de centrale begrebsdannelser. Dette gør det muligt at komme forholdsvist hurtigt ind i området og følge ihvert fald en mindre del af diskussionen. Ligeledes er det overkommeligt at lave målinger af en kvalitet, der er sammenlignelig med omverdenens, fordi det nødvendige eksperimentelle udstyr er forholdsvist enkelt. Endeligt har nogle af lærerne arbejdet med vædskedynamik og viden herfra kan bruges i visse problemstillinger indenfor amorfe halvledere.

Men det var ikke kun emnevalget, der havde praktiske undertoner. Også opfordringen til at påbegynde specialet på netop det tidspunkt havde sin praktiske baggrund. Lærerbemandingen var så utilstrækkelig, at den ekstra indsats det krævede at starte et nyt forskningsområde op, kun kunne til-

vejebringes ved at kombinere forskningen med specialeundervisningen sådan, at studenterne til en vis grad tjente som laboratoriearbejdskraft og diskussionspartnere.

For os havde "ordningen" den fordel, at vi fik forholdsvist meget vejledning, og oplevelsen af forskningsprocessen blev mere autentisk, end den man får ved et sædvanligt "færdigpakket" specialeprojekt. Ulempen var, for det første, en mindre kvalificeret vejledning, fordi lærerne endnu ikke havde oparbejdet nogen større mængde specialeviden og, for det andet, var forløbet mindre struktureret, fordi projektet også i graden af uforudsigelighed havde større lighed med egentlig forskning.

I sig selv var tre år uden en eneste eksamen en psykisk belastning og bevidstheden om, at det er seks gange den tid, hvorefter studiestøtten er normeret, gjorde ikke belastningen mindre. Og selvom vi idag er tilfredse med resultatet af anstrengelserne, er vi bestemt ikke stolte af det store tidsforbrug. Det er vores håb, at projektet bliver undtagelsen, der bekræfter en regel om, at et fysikspeciale ikke tager meget mere end et år.

Vi vil gerne bringe en tak til alle de, som har hjulpet os undervejs: Niels Bøye Olsen har vejledt os i alle specialeaktiviteterne, Bent C. Jørgensen har hjulpet med at udvikle eksperimentelt udstyr og bidraget i studiekredsen om amorf halvledere. Jens Højgaard Jensen afholdt det indledende kursus i faststoffysik, Peder Voetmann Christiansen har tjent som øverste autoritet i studiekredsen og Eigil Præstgaard har undervist os

i teori om Röntgendiffraktion. Alle har de givet råd og vejledning til vore skriftlige oplæg.

Endvidere tak til Ib Høst Pedersen, der som laboratoriets teknisk troldmand har stået os bi, når apparatur og databehandling skulle bringes til at fungere. På det mekaniske værksted har Louis Flindt og Mogens Holte Jensen kæmpet tålmodigt med vores fejlfyldte arbejdstegninger. Og vor medstuderende Jeanne Mortensen trak det tunge læs, da studierejsen til konferencen om amorfe systemer skulle arrangeres. Endelig siger vi mange tak for hjælp med indskrivningen til: Pia, Dorthe, Else og Jeanne.

Litteratur til forord.

Abatemorco, F & Seward, D.: "Mass-Produced Solar Cells", Newsweek 31.2.83.

Iversen, W. R.: "Amorphous vias in wafer lind chips", Electronics, 22.9.83.

Mort, J.: "Applications of amorphous materials". Phys. Technol., vol.11 1980.

Kuwano, Y. & Ohnishi, M.: "Industrilaization of a-Si Solar Cells.", Journal de Physique C4, Supplement au no. 10, Tome 42 Octobre 1981.

INDHOLDSFORTEGNELSE:

	side:
KAP.1. PROBLEMSTILLINGEN.....	9
KAP.2. TEORI OM ELEKTRISK JEVNSTRØMSLEDNING I AMORFE HALVLEDERE.....	14
2.1 Indledning.....	14
2.2 Elektrontilstande i amorfe halvledere.....	20
2.2.1 Reduktion af mangellegeme-problemet.....	20
2.2.1.1 Den basale Hamiltonoperator.....	21
2.2.1.2 Den adiabatiskke approksimation.....	22
2.2.1.3 Hartree-Fock-approksimationen.....	24
2.2.1.4 Indføring af spin.....	26
2.2.2 Enkelt-elektrontilstande i periodiske potentialgitter. Båndteori.....	29
2.2.2.1 Næsten-fri elektron-approksimationen.....	33
2.2.2.2 Fast-binding-approksimationen.....	37
2.2.2.3 Elektrisk ledning i krystaller.....	46
2.2.2.4 Fermi-Dirac fordelingen.....	47
2.2.3 Enkelt-elektrontilstande i amorfe potentialgitter.....	51
2.2.3.1 Lokalisering forårsaget af uorden i ionpotentialet. Anderson-lokalisering....	54
2.2.3.2 Lokalisering forårsaget af frie bindinger.....	63
2.3 Elektrontransport i amorfe halvledere.....	66
2.3.1 Ledningsevnen beskrevet ved diffusion.....	67
2.3.1.1 Mobiliteten.....	67
2.3.1.3 Ledningsevnen i de lokaliserede tilstande.....	75
2.3.2 Ledningsevnen beskrevet ved elektrisk-netværk modeller.....	78
KAP.3. STRUKTUREL RELAKSATION OG LEDNINGSEVNE.....	84
3.1 Klassifikation af strukturer.....	86
3.1.2 Relaksationsmekanismer.....	91
3.2 Simpel relaksation.....	92
3.3 Theye et al's model.....	96
3.4 Vores relaksationsmodel.....	103
3.5 Kritik af Theye et al's relaksationsmodell	115
KAP.4. TEORI FOR RÖNTGENDIFFRAKTION.....	122
4.1 Röntgenstråling og spredningsprocesser...	122
4.1.1 Polarisation.....	132
4.2 Amplituden af Röntgenstråler Rayleigh-spredt på stof.....	135
4.3 Sammenhængen mellem den frekvensintegrerede intensitet af den stofspredte Röntgenstråle og den radiale distributionsfunktion for samplets atomer.....	146
4.4 Temperaturrens indvirkning på spredningsfunktionen.....	151
4.5 Sammenhængen mellem det tidslige autokorrelationsfunktion for det Rayleigh-spredte elektriske signal og den radiale distributionsfunktion for samplets atomer.....	159
4.6 Operationalisering af teorien og normaliseringsproceduren.....	165

KAP.5. FREMSTILLING AF a-Ge-FILM.....	171
KAP.6. JEVNSTRØMSLEDNINGSEVNE. - EKSPERIMENT OG DISKUSSION.....	180
6.1 Eksperiment.....	180
6.1.1 Jævnstrømsledningsevnenes temperatur- afhængighed.....	182
6.1.2 Måling af relaksationsprocessen med led- ningsevnen som strukturparameter.....	184
6.2 Diskussion.....	189
6.2.1 Ledningsevnenes temperaturafhængighed..	189
6.2.1.1 Mott-loven sammenholdt med vore målin- ger.....	192
6.2.2 Relaksationsmodellen.....	194
6.2.3 Relaksationsmekanismer.....	195
KAP.7. RÖNTGENDIFFRAKTIONS-EKSPERIMENTET.....	198
7.1 Röntgen-diffraktions-apparatet.....	198
7.2 Röntgen-diffraktion. Eksperiment og diskus- sion.....	201
KAP.8. KONKLUSION.....	228
APPENDIX A. En normaliseringsprocedure.....	232
APPENDIX B. Röntgen-korrektioner og sample-tykkel- sesoptimering.....	235
APPENDIX C. Estimering af Ge-lagets tykkelse under pådampning.....	247
APPENDIX D. Fremstilling af Röntgen-sampler.....	252
APPENDIX E. Fejl grundet afslutning ved k_{max}	255
APPENDIX F. Dimensionering af spalter og kollimator- afstand.....	259
APPENDIX G. Program til behandling af diffraktions- data.....	287

1. PROBLEMSTILLINGEN.

Amorfe halvledere er så nyt et forskningsområde, at de indledende og grundliggende spørgsmål stadig er til debat: Hvordan ser den amorfe struktur i hele taget ud, det vil sige, hvad er formen af de strukturer, man hidtil har kaldt formløse? Og hvordan opfører elektronerne sig i sådanne strukturer, det vil sige, hvilke kvantemekaniske tilstande kan elektronerne befinde sig i, og hvordan foregår transport af elektroner i og imellem disse tilstande?

Projektet har to formål. Det ene er at behandle disse spørgsmål i en teoretisk oversigt, der kan danne grundlag for design og fortolkning af projektets eksperimentelle side. Det andet formål er at belyse spørgsmålene eksperimentelt ved at undersøge udviklingen af jævnstrømsledningsevnen og Röntgendiffraktionsspekteret under den strukturelle relaxationsproces i amorft germanium.

I det følgende uddybes problemstillingen på et populærvidenskabeligt niveau. Mere præcise definitioner og formuleringer vil blive givet under vejs, når der er brug for det.

I naturen forekommer germanium i sin krystallinske form, hvor atomernes positioner udgør en regelmæssig rumlig struktur. Denne struktur afbildes ofte som et gitter, hvor hvert gitterpunkt repræsenterer en atomposition, se fig. 1. Strengt taget er det ikke atomer der sidder i gitterpunkterne, men ioner, det vil sige atomer, der mangler de yderste elektroner. Disse yderste elektroner bevæger sig rundt i hele stoffet uden at være bundet til nogen

bestemt atomkerne. Mere præcist siger man, at valenselektronerne, eller blot elektronerne, befinder sig i udstrakte kvantemekaniske tilstande.

Ved den pådampningsmetode vi betjener os af i laboratoriet, dannes en tynd film af germanium, som ikke er krystallinsk. I denne ikke-krystallinske, eller amorfe, fase opfører stoffet sig anderledes end i den krystallinske fase: Mens krystaller har en fast og uforanderlig struktur, så har amorfe stoffer en struktur, der ændres men tiden. Derfor er amorfe stoffer strengt taget ikke faste, men flydende. Lige så flydende som en vinduesrude! Almindeligt vinduesglas har nemlig også amorf struktur, og er altså snarere en meget sejt vædske, en glas, end et fast stof. Iagttager man en rude i en tidsperiode på flere hundrede år, vil man opdage, at den faktisk flyder: den bliver stadigt tyndere for oven og tykkere for neden. I dette projekt vil vi dog betegne de amorfe stoffer som faste, så længe ændringerne i strukturen er små i forhold til den tid hvorunder stoffet iagttages.

Det er dog ikke kun ydre kræfter, som i tyngdekraften i eksemplet med vinduesruden, der får gitterpunkterne til at flytte sig. Inde i selve stoffet findes også kræfter, som ændrer strukturen. I en nydannet film er disse kræfter, eller spændinger, meget store, men efterhånden som strukturen ændres, mindskes spændingerne. Denne afspænding af stoffet kaldes strukturel relaksation.

En hensigt med den eksperimentelle side af projektet er at finde sammenhænge mellem de ændringer, der sker i strukturen og de ændringer, der sker i ledningsevnen, når stoffet relaxerer. Det kræver naturligvis, at disse størrelser kan måles. Bestemmelsen af ledningsevnen er ret uproblematisk, man skal stort set "bare" sætte et par ledninger til

stoffet, sende strøm igennem og beregne modstanden. Det er straks vanskeligere at måle strukturen, fordi en fuldstændig måling ville kræve, at man bestemte positionen af samtlige atomer. Dette er en uløselig opgave, men ved hjælp af Röntgen diffraktion kan man få et billede af den gennemsnitlige struktur i et lille område omkring et vilkårligt atom: Når Röntgenstråling rammer stoffet, vil den spredes på atomerne, og interferensmønstret af den spredte stråling kan matematisk oversættes til en radial distributionsfunktion. Denne funktion angiver sandsynligheden for at finde et atom som funktion af afstanden fra et vilkårligt atom, se fig.1. Ud fra den radiale distributionsfunktion kan man f.eks. bestemme den gennemsnitlige afstand til de nærmeste naboatomer og det gennemsnitlige antal af disse nærmeste nabo atomer.

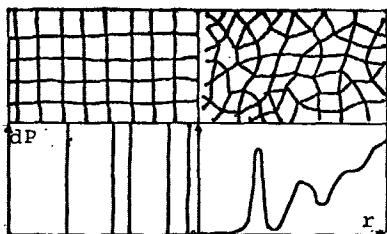


Fig.1: Et krystallinsk og et amorf atomgitter med de tilsvarende radialdistributionsfunktioner. $dP(r)$ angiver sandsynlighedstætheden for at finde et atom i afstanden, r , fra et vilkårligt atom i gitteret.

Ændringerne i ledningsevnen under den strukturelle relaxsation skal, som nævnt, sammenholdes med de strukturændringer, der måles ved Röntgendiffraktion. Men ledningsevнемålingerne tjener også et andet formål: De skal samtidigt udgøre en eksperimentel indgang til de modelforestillinger, man gør sig om elektroners opførsel i amorfe halvledere. Den eksperimentelle indgang er vigtig, fordi man ikke kan sige ret meget om elektronernes opførsel ud fra rene teoretiske overvejelser. En kendsgerning, der står bemærkelsesværdigt i kontrast til den store mængde viden, man har om elektronernes opførsel i krystaller.

I traditionel faststoffysik, der netop udelukkende omhandler krystallinske stoffer, har det været muligt at udvikle en teori om elektronerne, fordi periodiciteten i krystalgitteret begrænser de mulige elektrontilstande til en bestemt type funktioner, såkaldte Blochfunktioner, og fordi man kan nøjes med at beskrive elektronerne i et meget lille område af stoffet. Krystaller er nemlig opbygget af små byggesten med identisk struktur, og kender man elektronernes opførsel i en byggesten, eller primitiv celle, kender man også deres opførsel i hele krystallen.

Krystalstrukturens symmetriegenskaber har altså afgørende betydning for muligheden for at danne teorier om elektronernes opførsel. Dette er bemærkelsesværdigt, fordi gittersymmetrien ikke synes at have en tilsvarende betydning for elektronernes faktiske opførsel. Krystaller kan nemlig smelte, det vil sige, overgå fra krystallinsk til amorf struktur, uden der sker synderlige ændringer i ledningsevnen, se fig. 2. Den kvalitative forskel mellem krystallinsk og amorf struktur afspejles med

andre ord tilsyneladende kun i teorien om elektrodernes opførsel og ikke i emperien.

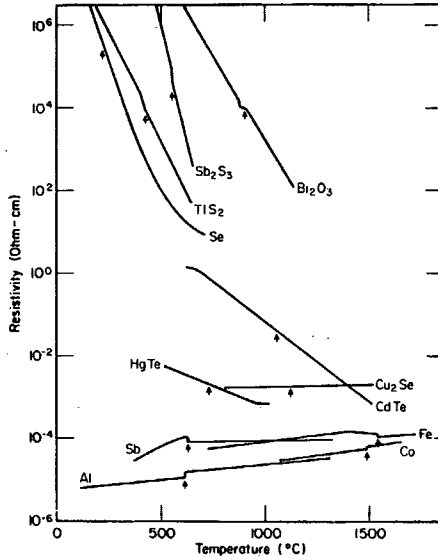


Fig. 2. Resistivitet som funktion af temperaturen for forskellige stoffer i både den krystallinske og den flydende tilstand. Smeltepunkterne er i hvert tilfælde markeret med en pil. (Kilde: Adler).

2. TEORI OM ELEKTRISK JEVNSTRØMSLEDNING I AMORFE HALVLEDERE.

2.1 Indledning.

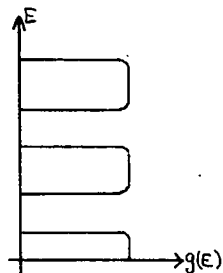
Når man under opvarmning af en krystal passerer smeltepunktet, forsvinder den teoretiske viden om elektronernes kvantemekaniske tilstande. Men, som nævnt i foregående afsnit, modsvares dette skift i den teoretiske forståelse ikke af et skift i elektronernes opførsel, tværtimod. Ledningsevnenes temperaturafhængighed anfægtes i provokerende ringe grad.

Som indledning belyses dette problem med de få overordnede resultater, faststoffysikken har kunnet mønstre til dato:

I fig. 1.2 bemærker man, at nogle af stofferne har en forholdsvis stor modstand, der aftager når temperaturen stiger, mens de øvrige omvendt har en lille modstand, der stiger med temperaturen. Den første type kaldes halvledere, og den anden kaldes metaller. Forskellen på de to typer kan, for krystallers vedkommende, forstås på grundlag af Blochs teorem, som blev fremsat i 1928.

Det kan vises, at energierne af de mulige tilstande (Blochfunktionerne) falder indenfor intervaller på energiaksen. I disse intervaller, eller energibånd, er tætheden af tilstande stor, mens den i de mellemliggende "båndgab" er lig nul. Se fig.2.1.

Fig.2.1: Tætheden af tilstande pr. energiinterval i et enhedsvolumen, $g(E)$, versus energien af tilstandene, E .



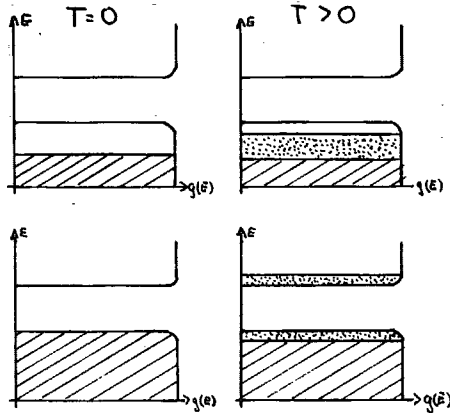





Fig.2.2: Området omkring det øverste besatte bånd. Øverst et metal ved $T=0$ og $T>0$. Nederst en halvleder. Skraveringerne ,  og  markerer henholdsvis dobbelt besatte, enkelt besatte og ubesatte tilstande.

Vi betragter området omkring det øverste besatte bånd. Fig. 2.2. Ved det absolutte temperaturnulpunkt, $T=0$, har alle elektronerne den lavest mulige energi. Det betyder, at alle båndene er fyldt op "fra neden", sådan, at der er en skarp overgang mellem besatte og ubesatte tilstande. I en halvleder falder denne overgang sammen med båndgabets, mens den i et metal ligger indenfor et bånd. I virkeligheden er overgangen mellem de tre typer besætning i fig.2.2 ikke "skarp", men "jævn". Den rigtige fordelingsfunktion beskrives i afsnit 2.2.2.4.

I hver tilstand kan der højst være to elektroner, og elektroner i samme tilstand har lige stor, men modsatrettet, impuls. Den samlede impuls i en dobbelt besat tilstand er altså lig nul, og de eneste tilstande, hvori der kan foregå en resul-

terende elektrontransport, er derfor dem med kun en elektron.

Stoffets ledningsevne, d.v.s. den reciprokke modstand, er proportional med antallet af ladningsbærere, d.v.s. antallet af elektroner i enkelt besatte tilstande, og disses mobilitet, d.v.s. den lethed hvormed de kan bevæge sig gennem stoffet.

I metaller er der altid mange ladningsbærere, selv ved meget lave temperature, og det skyldes, at de øverste elektroner kun skal tilføres ganske lidt energi for at danne enkelt besatte tilstande. Ledningsevnenes temperaturafhængighed er derfor ikke begrænset af antallet af ladningsbærere, men derimod af disses mobilitet: Når temperaturen stiger, øges gittersvingningerne og dermed spredningen af elektronerne.

For halvledere er det lige omvendt. Her er antallet af ladningsbærere den begrænsende faktor, fordi elektronerne kun kan skifte til ubesatte tilstande ved at modtage en portion termisk energi på størrelse med båndgabets.

Med fig. 1.2. blev det vist, at der ikke sker nogen væsentlig ændring i halvledernes ledningsevne, når de overgår fra den krystallinske til den amorfe fase. Den mest simple forklaring på dette forhold er, at den styrende mekanisme bevarer ved faseovergangen: At elektronerne også i den amorfe fase skal skifte over et båndgab for at danne enkelt besatte tilstande.

Denne hypotese støttes af en teoretisk ansats, som P.W.Anderson fremsatte i 1958:

På grundlag af en matematisk model af gitterpotentialet i et amorft stof sandsynliggjorde Anderson, at der også er energibånd i amorfe stoffer og, at båndene er bredere med en mere

klokkeformet fordeling. Men den afgørende og endnu kontroversielle del af resultatet er, at der både forekommer udstrakte og lokaliserede tilstande. Tilstandene i en krystal, Blochfunktionerne, er alle udstrakte over hele stoffet. Men, ifølge Anderson findes begge typer i amorf stoffer: de lokaliserede tilstande i intervaller på energiaksen, hvor tætheden af tilstande er lille og de udstrakte i intervaller, hvor tætheden er stor. Denne model for tætheden af tilstande er vist i fig.2.3.

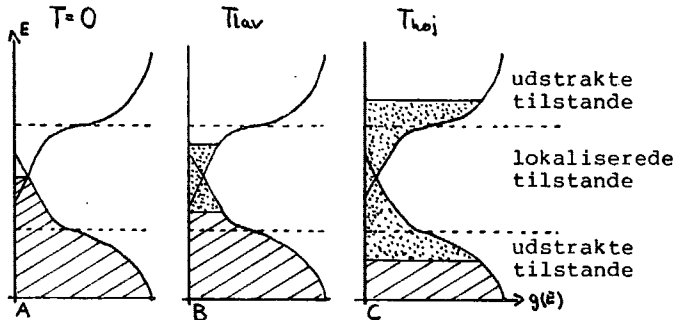


Fig.2.3: Tætheden af tilstande omkring det øverste besatte bånd i en amorf halvleder. De lokaliserede tilstande findes i "pseudo-båndgabet", hvor tætheden af tilstande er lille. Skraveringerne angiver på samme måde som i fig.2.2 tilstandenes besætningsgrad. A: ved det absolutte temperaturnulpunkt. B: ved lave temperature, hvor de enkelt besatte tilstande hovedsageligt er lokaliserede og C: ved højere temperature, hvor de enkelt besatte tilstande også er udstrakte.

Umiddelbart skulle man vente, at denne fordeling af tilstande giver metallisk ledningsevne,

fordi der ikke er noget egentligt båndgab. Elektronerne behøver ikke længere at skifte til tilstande over båndgabets for at danne enkelt besatte tilstande, de har "fri adgang" til de lokaliserede tilstande i pseudobåndgabets. Men, elektrisk ledning via lokaliserede tilstande foregår på en anden måde end via de udstrakte:

I de udstrakte tilstande skal man forestille sig, at elektronerne bevæger sig som vandrende bølger. Er der to elektroner i en tilstand, vandre de hver sin vej og danner tilsammen en stående bølge uden nogen resulterende elektrontransport. I de lokaliserede tilstande foregår transporten ved at elektronerne hopper fra den ene lokaliserede tilstand til den anden hen gennem stoffet. Skift mellem lokaliserede tilstande foregår altså ved hop i sted-rummet, mens skift mellem udstrakte tilstande foregår ved hop i impuls-rummet. Se fig.2.4.

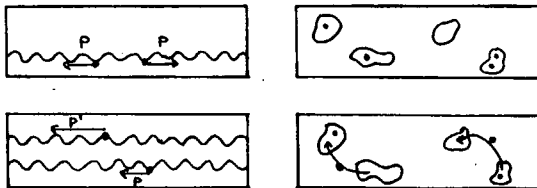


Fig.2.4. Øverst et stykke stof med elektroner i h.h.v udstrakte og lokaliserede tilstande. Nederst: transport i udstrakte tilstande sker ved skift i impuls, mens transport via lokaliserede tilstande foregår ved hop mellem steder.

Forklaringen på, at amorf halvledere ikke har metallisk ledningsevne er, at mobiliteten i de

lokaliserede tilstande er væsentligt mindre end i de udstrakte. Elektronerne har fri adgang til ubesatte tilstande ligesom i metaller, men tilstandene er af en anden art med lavere mobilitet.

Modellen i fig.2.3 giver altså en forklaring på, hvorfor der i fig.1.2 ikke sker drastiske ændringer i elektronernes opførsel, når halvlederne smelter: Det væsentlige bidrag til ledningsevnen stammer fra elektronerne i de enkelt besatte udstrakte tilstande, og disse tilstande tilvejebringes på samme måde både før og efter smeltningen, nemlig ved skift over et båndgab (fig.2.3C).

Endelig giver modellen et svar på, hvordan påstanden om eksistensen af lokaliserede tilstande kan underbygges eksperimentelt: effekten af de lokaliserede tilstande kan ses ved lave temperaturer. Her er der praktisk taget ingen enkelt besatte udstrakte tilstande og ledningsevnen er derfor alene bestemt ved elektronernes hop mellem lokaliserede tilstande (fig.2.3B).

Denne ledningsevne forårsaget af "termisk aktiverede" hop mellem lokaliserede tilstande er beskrevet i en model af N.F.Mott fra 1968. Modellen forudsiger, at logaritmen til ledningsevnen vokser med temperaturen opløftet i potensen $1/4$ ved lave temperaturer.

Et af projektets formål er at eftervise denne "Mott's $T^{1/4}$ -lov" eksperimentelt. Men dette kapitel er helliget teorien, og her er ambitionen at fremstille den teoretiske argumentation lige fra det fundamentale, men uløselige, udtryk for det totale kvantemekaniske system til den "overfladiske", men håndterlige model: at spinde en rød tråd fra Schrödingerligningen til Mott-loven.

Første del af kapitlet beskæftiger sig med sel-

ve elektrontilstanden, mens anden del handler om elektrontransport primært i de lokaliserede tilstande.

2.2 Elektrontilstande i amorfe halvledere.

Afsnittet omhandler både elektrontilstandene i krystallinske og amorfe halvledere. Det krystallinske tilfælde er medtaget, fordi det udgør forståelsesgrundlaget for det amorfe tilfælde. Men fælles for begge gælder, at elektronerne opfattes som uafhængige i den forstand, at man ser bort fra elektronernes indbyrdes Coulomb-vekselvirkning. For eksempel kan Blochs teorem ikke anvendes direkte på krystaller, fordi det kun handler om tilstandene for en enkelt elektron i et periodisk potential. Den virkelige situation er jo et virvar af 10^{25} elektroner og 10^{25} ioner, der alle vekselvirker med hinanden.

Inden der gøres rede for enkelt-elektrontilstandene i henholdsvis periodiske og amorfe potentialgitter, beskrives derfor kort hvordan man reducerer dette mangelegeme-problem.

2.2.1 Reduktion af mangelegeme-problemet.

Reduktionen af mangelegeme-problemet foregår i to trin. Først erstattes enkelt-partikel-vekselvirkningen mellem ionerne og elektronerne med potentialer, der er konstante i tiden, sådan at elektronerne tænkes at bevæge sig i et konstant potential fra ionerne og ionerne i et konstant potential fra elektronerne. Denne forenkling kaldes den adiabatiske approksimation. Dette kunstgreb gentages dernæst på selve elektronsystemet. Hver elektron tænkes at bevæge sig i en ladningsforde-

ling fra de øvrige elektroner, og ladningsfordelingen er konstant i den forstand, at den ikke påvirkes af, hvilken tilstand elektronen befinder sig i. Dette kaldes Hartree-Fock-approksimationen.

2.2.1.1 Den basale Hamiltonoperator

Det teoretiske udgangspunkt for beskrivelsen af faste stoffer er Schrödinger ligningen:

$$(0) \quad \hat{H} \Phi_h(\vec{r}) = E_h \Phi_h(\vec{r})$$

Hamiltonoperatoren for det totale mangelegeme beskriver samtlige partiklers kinetiske energi og deres indbyrdes potentielle energi.

Som første forenkling af systemet opdeles partiklerne i to typer: Valenselektroner der er ansvarlige for kemiske bindinger og ioner bestående af atomkerner og de resterende fast bundne elektroner. Fremover kaldes valenselektronerne blot elektroner, idet de er de eneste af slagsen.

Hamiltonoperatoren kan nu skrives som en sum af Hamiltonoperatorerne for hver type partikler, deres vekselvirkning og eventuelle vekselvirkning med omgivelserne.

$$(1) \quad \hat{H} = \hat{H}_{el} + \hat{H}_{ion} + \hat{H}_{el-ion} + \hat{H}_{ex}.$$

Vi ser bort fra det sidste led og analyserer de tre første lidt nærmere. For elektron-delen kan skrives:

$$(2) \quad \hat{H}_{el} = \hat{H}_{el,kin} + \hat{H}_{el-el} = \sum_n \frac{-\hbar^2 \nabla_n^2}{2m} + \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \sum_n' \sum_{n'} \frac{e^2}{|\vec{r}_n - \vec{r}_{n'}|}$$

hvor der er indsat et Coulomb-led for elektron-elektron vekselvirkningen. $i\hbar\nabla_n$ er impulsoperator, \vec{r}_n er stedet af den n'te elektron og m er elektronens masse.

For ion-delen får vi tilsvarende:

$$(3) \hat{H}_{ion} = \hat{H}_{ion,kin} + \hat{H}_{ion-ion} = \sum_i \frac{\hbar^2}{2M_i} \nabla_i^2 + \frac{1}{2} \sum_{ii'} V_{ion}(\bar{R}_i - \bar{R}_{i'})$$

hvor M_i og R_i er masse og position af den i 'te ion. Leddet for vekselvirkning er ikke nærmere specificeret, der er blot antaget, at det alene afhænger af ionernes indbyrdes afstande. Endelig kan man for elektron-ion vekselvirkningen skrive:

$$(4) \hat{H}_{el-ion} = \sum_{nl} V_{el-ion}(\bar{r}_n - \bar{R}_l) .-$$

I faste stoffer tænkes ionerne placeret i et (periodisk eller ikke-periodisk) gitter. Gitterpunkterne er ligevægtpunkter hvorom ionerne vibrerer. Derfor kan ion-ion vekselvirkningen deles op i to komponenter, en der beskriver ionernes vekselvirkning i ligevægtspositionerne og en anden, der tager højde for vibrationerne i gitteret:

$$(5) \hat{H}_{el-ion} = \hat{H}_{ion-ion}^0 + \hat{H}_{ph}$$

Indekset ph for gitter-vibrations delen refererer til fononer. Elektronernes vekselvirkning med ionerne skrives herefter som en vekselvirkning med henholdsvis det stationære gitter og vibrationsdelen:

$$(6) \hat{H}_{el-ion} = \hat{H}_{el-ion}^0 + \hat{H}_{el-ph}$$

2.2.1.2 Den adiabatiske approksimation

Mangelegeme problemet kan ikke løses eksakt. For at komme videre end den indledende analyse af (1) må der foretages approksimationer. Der findes to former for forenkling: Enten forenkler man beskrivelsen af systemet, eller også begrænser man sig til at beskrive et enklere system. Den første

mulighed bruges i den adiabatiskke approksimation og Hartree-Fock approksimationen, mens den anden benyttes i båndteori ved et krav om symmetri i systemet.

I den adiabatiskke approksimation ændres \hat{H}_{ion} og \hat{H}_{el} på en sådan måde, at vekselvirkningsleddet, \hat{H}_{el-ion} , forsvinder.

Ionerne tænkes at bevæge sig i en i tiden konstant ladningsfordeling fra elektronerne:

$$(7) \quad \hat{H}'_{ion} = \hat{H}_{ion} + \hat{H}_-$$

\hat{H}_- repræsenterer elektronernes ladningsfordeling og ionernes vekselvirkning med denne. Samtidigt tænkes elektronerne at bevæge sig i et stationært iongitter:

$$(8) \quad \hat{H}'_{el} = \hat{H}_{el} + \hat{H}^o_{el-ion}$$

Elektronernes vekselvirkning med den ikke-stationære del af gitteret, \hat{H}_{el-ph} , er ikke taget med i dette udtryk. Vi antager altså, at man kan se bort fra elektron-fonon vekselvirkningen. Dette er et rimeligt udgangspunkt så længe vekselvirkningen er svag, fordi den i denne grænse kan indføres med perturbationsteori siden hen.

Udtrykket (1) er nu forenklet til (vi ser bort fra \hat{H}_{ex}):

$$(9) \quad \hat{H}' = \hat{H}'_{el} + \hat{H}'_{ion}$$

Det totale faststof-problem deles altså op i to komponenter: elektronernes bevægelse i et stationært gitter og ionernes bevægelse i en konstant ladningsfordeling. Denne opdeling af det totale system kræver en grundig retfærdiggørelse, som la-

des ude af denne fremstilling.

2.2.1.3. Hartree-Fock approksimationen

Ionerne bevæger sig omkring faste gitterpunkter i modsætning til elektronerne, som er mobile. Det er altså elektronerne som er ladningsbærere ved elektrisk ledning i et fast stof. Og da formålet med afsnittet netop er at forklare elektrisk ledning, skal den videre analyse begrænses til studiet af elektronerne.

Ifølge den adiabatiske approksimation kan iongitteret betragtes som stationært, når man vil beskrive elektronernes bevægelse. Elektronernes Schrödingerligning, som er:

$$(10) \quad (\hat{H}_{el,kin} + \hat{H}_{el-ion}^0 + \hat{H}_{el-el}) \Phi_h = E_h \Phi_h$$

skrives mere udførligt. Jævnfør (4) må det gælde, at $\hat{H}_{el-ion}^0 = \sum_n \sum_l V_{el-ion}(\vec{r}_n - \vec{R}_l^0)$, hvor \vec{R}_l^0 er gitterpositioner af den l'te ion. Men i et givet gitter vil \vec{R}_l^0 være kendte punkter og den potentielle energi af den n'te elektron hidrørende fra ionerne, U_{ion} , kan udtrykkes som en funktion af \vec{r}_n alene: $\hat{H}_{el-ion}^0 = \sum_n U_{ion}(\vec{r}_n)$.

$$\left(\sum_n \frac{\hbar^2 v^2}{2m} + \sum_n U_{ion}(\vec{r}_n) + \frac{1}{8\pi\epsilon} \sum_n \sum_{n'} \frac{e^2}{|\vec{r}_n - \vec{r}_{n'}|} \right) \Phi_h = E_h \Phi_h$$

Vanskeligheden ved at løse denne ligning ligger i leddet for elektron-elektron vekselvirkning. Hvis \hat{H}_{el-el} ikke var tilstede, ville mange-elektron problemet være reduceret til enkelt-elektroners bevægelse i et givet potentialfelt.

I Hartree-Fock approksimationen erstattes elektron-elektron vekselvirkningsleddet med et led, der, ligesom U_{ion} , kun afhænger af positionen af den n'te elektron. Dette led, $U_{el}(\vec{r}_n)$, er potentialet

på den n'te elektron hidrørende fra alle de øvrige elektroner. Den n'te elektron tænkes altså at bevæge sig i et stationært potential fra alle de øvrige elektroner. Retfærdiggørelsen af denne for-
enkling lades ude her.

Det samlede potential på den n'te elektron, $U(\vec{r}_n)$, er summen af potentialet fra ionerne og potentialet fra de øvrige elektroner.

$$U(\vec{r}_n) = U_{\text{ion}}(\vec{r}_n) + U_{\text{el}}(\vec{r}_n)$$

Schrödingerligningen kan hermed skrives:

$$(11) \quad \sum_n \hat{H}_n \Phi_n = E_n \Phi_n \quad ; \quad \hat{H}_n = \frac{-\hbar^2}{2m} \nabla^2 + U(\vec{r}_n)$$

Denne ligning har løsninger af formen

$$\Phi_n(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \dots, \vec{r}_n) = \varphi_1(\vec{r}_1) \cdot \varphi_2(\vec{r}_2) \cdot \dots \cdot \varphi_n(\vec{r}_n)$$

Det vil sige, at mange-partikel-bølgefunktionen Φ_n er givet som et produkt af enkelt-partikel-bølgefunktioner, φ_j . Dette kan også skrives

$$\Phi_n = \prod_{j=1}^n \varphi_{j_n}(\vec{r}_n),$$

hvor φ_{j_n} er bølgefunktionen for den n'te elektron.

Det ses at Φ_n er en løsning: lader man E_j betegne en egenverdi til operatoren \hat{H}_n , d.v.s.:

$$(12) \quad \hat{H}_n \varphi_{j_n}(\vec{r}_n) = E_{j_n} \varphi_{j_n}(\vec{r}_n),$$

gælder det nemlig:

$$\hat{H}_n \Phi = \hat{H}_n \varphi_{j_n}(\vec{r}_n) \prod_{\substack{n=1 \\ n' \neq n}}^{N-1} \varphi_{j_{n'}}(\vec{r}_{n'}) = E_{j_n} \Phi$$

og dermed:

$$\sum_{n=1}^N \hat{H}_n \Phi = \sum_{n=1}^N E_{j_n} \Phi_h = E_h \Phi_h$$

$U_{el}(\vec{r}_n)$ kan nu udtrykkes ved:

$$U_{el}(\vec{r}_n) = \frac{e^2}{8\pi \epsilon_0} \sum_{n' \neq n}^{N-1} \int_V \frac{1}{|\vec{r}_n - \vec{r}_{n'}|} \varphi_{j_n}^*(\vec{r}_{n'}) \varphi_{j_{n'}}(\vec{r}_{n'}) d\vec{r}_{n'},$$

hvor der integreres over alle elektronernes koordinater, bortset fra den n' 'te. $U_{el}(\vec{r}_n)$ kaldes Hartree-potentialet og angiver altså potentialet fra de øvrige elektroners ladningsfordeling på ladningsfordelingen af den n' 'te elektron.

I modsætning til U_{ion} er U_{el} ikke på forhånd givet. U_{el} er en funktion af Φ , og Φ er en funktion af U_{el} . Dette problem løses ved en iterativ metode, hvor man først gætter rimelige værdier for U_{el} , U_{el}^0 , og dernæst bruger løsningen, Φ^0 , til at udregne forbedrede værdier for elektronpotentialet, U_{el}^1 . Proceduren fortsættes indtil løsningerne er selvkonsistente.

2.2.1.4 Indføring af spin

Indtil nu er elektronerne blevet beskrevet alene ved deres stedbølgefunktioner og det er faktisk ikke helt korrekt, fordi elektronernes spin giver anledning til vekselvirkning mellem elektronerne. På grund af spinet har hver elektron nemlig et magnetisk felt fra de øvrige elektroner. Vi skal dog se bort fra denne spin-bane kobling.

Fra relativistisk kvantemekanik vides, at et system af partikler med halvtalligt spin, som elektroner, har antisymmetriske bølgefunktioner. Dette kan vises at medføre, at der kun kan være én elektron i hver bølgefunktion. (Paulis udelukkelsesprincip).

I en mere korrekt beskrivelse må man altså an-

vende bølgefunktioner i (11) der indeholder spin:

$$\Psi = \psi_1(q_1) \psi_2(q_2) \psi_3(q_3) \dots \psi_N(q_N).$$

Ψ er både en funktion af sted og spin og koordinaterne q_n indeholder ligeledes sted og spin.

De N elektroner kan fordeles på de N enkelt-elektronfunktioner på $N!$ måder. Hvis man ser bort fra spin-bane kobling, vil elektronerne optræde som identiske partikler - de vil opføre sig ens uanset deres spin. Dermed vil elektronerne være uskelnelige og alle elektron-permutationerne lige sandsynlige. De tre nævnte egenskaber ved elektronerne kan sammenfattes i Slater-determinanten:

$$\Psi = (N!)^{-\frac{1}{2}} \begin{vmatrix} \psi_1(q_1) & \dots & \psi_1(q_N) \\ \vdots & & \vdots \\ \psi_N(q_1) & \dots & \psi_N(q_N) \end{vmatrix}.$$

Determinanten er en sum af samtlige elektronpermutationer og konstanten sikrer, at Ψ er normeret:

$$\frac{1}{N!} \int |\Psi|^2 dq_1 dq_2 \dots dq_N = 1.$$

Hermed er der taget højde for elektronernes uskelnelighed. Ψ er samtidigt antisymmetrisk: hvis to elektroner byttes om, svarer det til en ombytning af to søjler og Ψ skifter derfor fortegn. Endelig kan Ψ ikke indeholde elektroner med samme enkelt-elektronfunktion ψ_n : dette ville nemlig svare til at to rækker var identiske hvorved determinanten bliver nul.

Når der ingen spin-bane kobling er, kan bølgefunktionerne skrives som et produkt af sted- og spin- funktionerne:

$$\psi_n(q_n) = \Phi_n(\bar{r}_n) \chi_n$$

χ_n er spinbølgefunktioner for den n' te elektron. Spinnet kan have to værdier ($\frac{1}{2}$ og $-\frac{1}{2}$) og det betyder, at elektronernes stedfunktioner $\phi_n(r_n)$ højst kan være parvis identiske, når Pauliprincippet skal overholdes.

Da elektronerne er uskelnelige, er der ingen grund til at nummerere dem:

$$\Phi_n = \phi_1(\bar{r}) \phi_2(\bar{r}) \dots \phi_N(\bar{r}) .$$

Det samme gælder (12), og man får derfor Schrödingerligningen:

$$(13) \quad \hat{H} \phi_j(\bar{r}) = E_j \phi_j(\bar{r}) \quad ; \quad \hat{H} = \frac{-\hbar^2}{2m} \nabla^2 + U(r) .$$

Hatree-potentialet indeholder ikke spin og derfor skal man i virkeligheden bruge et mere kompliceret udtryk for elektronpotentialet, hvor spin indgår. Dette potential hedder Hartree-Fockpotentialet og er givet ved integraloperatoren \hat{U}_{el}^{HF} :

$$\hat{U}_{el}^{HF} \phi_j(\bar{r}) = \frac{e^2}{8\pi \epsilon_0} \sum_{j'=j} \int_V \frac{\phi_{j'}^*(\bar{r}') [\phi_{j'}(\bar{r}') \phi_j(\bar{r}) - \phi_j(\bar{r}') \phi_{j'}(\bar{r})]}{|\bar{r}' - \bar{r}|} d\bar{r}' .$$

2.2.2 Enkelt-elektrontilstande i periodiske potentialgitter. Båndteori.

Med den adiabatiske approksimation blev det totale mangelgеме delt op i et system af ioner og et system af elektroner. Ved at se delvist bort fra elektron-elektron-vekselvirkningen kunne elektronsystemet beskrives som enkelt-elektroner i potentialet fra de øvrige elektroner og ionerne.

I det følgende skal undersøges det tilfælde, hvor iongitteret er periodisk. Ganske vist er det overordnede emne elektronernes bevægelse i ikke-periodiske gitter, men mange af de begreber der bruges til beskrivelsen i disse amorfe gitter er hentet fra tilfældet med det periodiske gitter, og derfor er det nyttigt først at vise hvilke forenklinger gittersymmetrien kan bringe.

Gittersymmetrien gør ikke nødvendigvis Schrödingerligningen (13) enklere. Hvis U er periodisk er der tale om en forenkling, men det er kun tilfældet, hvis elektronpotentialet, U_{e1} , er periodisk i ionpotentialet, U_{ion} . Antager man, at U faktisk er periodisk, kan det vises, at løsningerne har formen.

$$(14) \quad \varphi_{\vec{k}}(\vec{r}) = u_{\vec{k}}(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{k}\vec{r}} \quad , \quad u_{\vec{k}}(\vec{r}) \equiv \sum_{\vec{G}} C(\vec{k}-\vec{G}) e^{i\vec{G}\vec{r}} .$$

\vec{G} er reciprokke gittervektore og \vec{k} er et bølgetal. Forskellige løsninger har forskelligt bølgetal og derfor bruges indekset \vec{k} til nummerering af løsningerne. Funktionen $u_{\vec{k}}(\vec{r})$ har samme periode som gitteret, fordi det for en vilkårlig gittervektor \vec{T} gælder:

$$u_{\vec{k}}(\vec{r}+\vec{T}) = \sum_{\vec{G}} C(\vec{k}-\vec{G}) e^{i\vec{G}(\vec{r}+\vec{T})} = \sum_{\vec{G}} e^{i\vec{G}\vec{T}} C(\vec{k}-\vec{G}) e^{i\vec{G}\vec{r}} = u_{\vec{k}}(\vec{r}) .$$

$\varphi_{\vec{k}}$ i (14) kaldes Blochfunktioner og kan opfattes

som udtrykket for en fri elektron, $\varphi = e^{i\vec{k}\vec{r}}$, modulet med en funktion, der er periodisk i gitteret.

Kvadratet på Blochfunktionerne er periodisk i gitteret:

$$|\varphi_{\vec{k}}|^2 = (u_{\vec{k}} \cdot e^{i\vec{k}\vec{r}})^* \cdot u_{\vec{k}} \cdot e^{i\vec{k}\vec{r}} = u_{\vec{k}}^* \cdot u_{\vec{k}} = |u_{\vec{k}}|^2$$

og det betyder at U_{el} også er periodisk i gitteret. Antagelsen om at U er periodisk i gitteret er altså konsistent med sig selv.

Det, at egenfunktionerne er Blochfunktioner, begrænser ikke mængden af egenverdier. Egenverdierne til Blochfunktionerne falder indenfor hele mængden af reelle tal. Alligevel menes egenverdierne i en krystal at være begrænset til visse intervaller på energiaksen.



Fig. 2.5: I krystaller menes elektronernes energi at falde inden for visse intervaller. Disse intervaller kaldes energibånd og de "tomme" intervaller kaldes energigab.

Rent teoritisk kan der argumenteres for denne antagelse udfra to grænsetilfælde. Det ene, som kaldes næsten fri elektron approksimationen, er den grænse, hvor elektronerne tænkes at bevæge sig frit i forhold til iongitteret. Den anden, fast binding approksimationen, er den modsatte grænse, hvor der er stærk vekselvirkning mellem elektronerne og iongitteret.

Til beskrivelsen af de to approksimationer indføres en model af potentialet på en enkelt-elektron, U . For et givet gitter kan det ikke siges hvordan U præcist ser ud, fordi det kræver kendskab til e-

genfunktionerne ϕ_k . De to problemer skal i virkeligheden løses samtidigt ved den procedure, som blev beskrevet i afsnittet om Hartree-Fock approksimationen. Men som et gæt kunne man lade elektronpotential, U_{el} , være konstant i rummet, hvorved det effektive potential ville blive et gitter af Coulomb-potentialer fra ionerne afskærmet af elektronerne. I én dimension ser dette potential sådan ud:

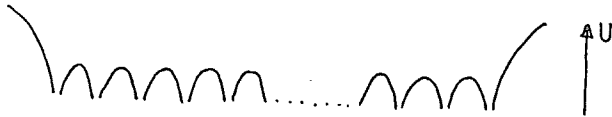


Fig. 2.6: Potentialalets formodede form.

En enkel og hensigtsmæssig model af et sådant potential er en uendelig lang potentialbrønd med små potentialbrønde i bunden. Se fig. 2.7.

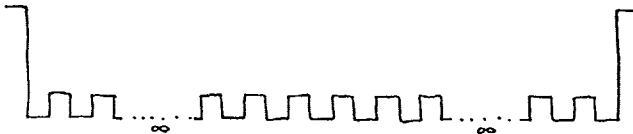


Fig. 2.7: Model af potentialet U.

Som et billede at tænke i tegnes en elektron i dette potential. Hvis den befinder sig i en tilstand med stor energi tegnes den øverst i brønden, mens den i tilstande med lav energi tegnes nederst.

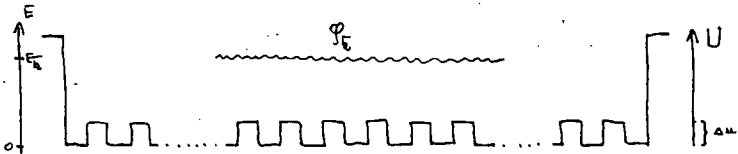


Fig. 2.8.: En elektron med stor energi. (Formen af ψ_k skal ikke tillægges nogen betydning i denne figur.)

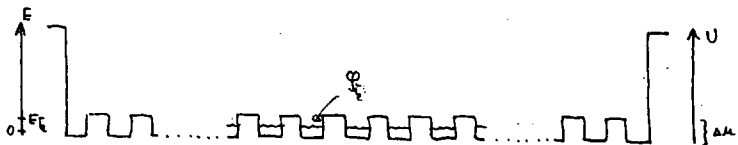


Fig. 2.9: En elektron med lille energi.

I fig. 2.8 er egenværdien E_k stor i forhold til dybden af de små potentialbrønde, Δu . Kun ved stoffets kanter er potentialforskellene store i sammenligning med tilstandens samløbe energi. Elektronerne vil i det væsentlige opleve stoffet som en stor potentialbrønd. I næsten fri elektron approksimationen bestemmes formen af egenværdierne ud fra denne grænse.

I fig. 2.9 er elektronens energi lille i sammenligning med dybden af de små potentialbrønde. Bølgefunktionen er tegnet som havende lige stor amplitude i hver af de små brønde, det betyder, at sandsynligheden for ved en tænkt måling at finde elektronen er den samme for alle brøndene. Dette giver selvfølgelig ikke mening i klassisk mekanisk forstand, for så snart den kinetiske energi er mindre end dybden

af potentialbrønden, vil elektronen kun kunne befinde sig i en bestemt brønd. Her vil sandsynligheden for at finde elektronen være præcis 1, mens den i alle de andre brønde er 0. Men i følge kvantemekanikken vil en elektron, der som udgangsposition tænkes at befinde sig i en bestemt af de små brønde, "tunnele" ud og fordele sig i alle brønde.

I denne grænse med lav energi er det også muligt at estimere egenværdierne. Det gøres i fast binding approksimationen.

I det følgende beskrives først næsten fri elektron approksimationen og dernæst fast binding approksimationen.

2.2.2.1. Næsten fri elektron approksimationen.

Den ene mulighed for at give et bud på formen af egenværdierne er at antage, at alle løsninger til det periodiske potential, fig. 2.6, har stor energi i forhold til potentialforskellene inde i stoffet. Se fig. 2.8. I denne grænse kan man antage, at de små potentialbrønde opleves som et konstant gennemsnits-potential, U_{gn} . Vælges U_{gn} som nulpunkt, giver (13) Schrödingerligningen for en fri elektron:

$$(15) \quad \frac{-\hbar^2}{2m} \nabla^2 \varphi(\vec{r}) = E \varphi(\vec{r}).$$

Ligningen har to ortogonale løsninger:

$$(16) \quad \varphi = e^{i\vec{k}\vec{r}} \quad \text{og} \quad \varphi = e^{-i\vec{k}\vec{r}}.$$

I en dimension repræsenterer $\varphi = e^{ikx}$ en fri elek-

Løsningerne (17) er fundet for et konstant potential. Men selvom man tager med i betragtningen at $U(\vec{r})$ faktisk varierer, så er det stadig en god approksimation at sætte $U(\vec{r})$ lig nul for små variationer i $U(\vec{r})$, fordi den potentielle energi for løsningerne er lig nul, hvis man midler over hele gitteret. Se fig. 2.10. Dette gælder dog ikke for alle løsninger.

Af fig. 2.11 kan det ses, at de to løsninger får forskellige middel potentiel energi, hvis kvadrater på deres sandsynlighedsamplituder har samme periode og fase som gitteret. Da de har samme kinetiske energi, kan de ikke have samme totalenergi. Det betyder, at de ikke kan være løsninger

til samme Schrödingerligning. Man kan vise, at når kvadratet på sandsynlighedsamplituden har samme periode som gitteret, har den også samme fase og det vil sige, at (15) kun er en god approksimation, når løsningernes sandsynlighedsfordeling ikke er periodisk i potentialet.

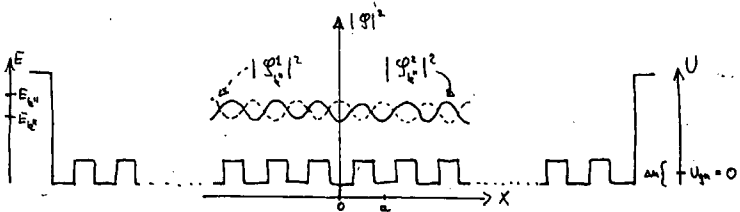


Fig. 2.11: Løsninger hvis sandsynlighedsfordeling er periodisk i gitteret. Det ses at $\phi_{k,1}^1$ kun har stor sandsynlighedstæthed der hvor den potentielle energi er større end U_{gn} , mens $\phi_{k,1}^2$ kun har stor sandsynlighed i de områder, hvor den potentielle energi er lavere end U_{gn} .

tron med impulsen $p = \hbar k$, der bevæger sig i x-aksens positive retning, men $\varphi = e^{-ikx}$ repræsenterer en elektron, der bevæger sig i den negative retning, og den generelle løsning til (14) kan i én dimension skrives som linearkombinationer af de to ortogonale løsninger:

$$\varphi(x) = A e^{ikx} + B e^{-ikx}.$$

Men (14) har også andre ortogonale løsningssæt:

$$(17) \quad \varphi^1(x) = \cos kx \quad \text{og} \quad \varphi^2(x) = i \sin kx.$$

Den generelle løsning kunne altså lige så godt skrives som linearkombinationer af disse stående bølger

$$\varphi(x) = C \cos kx + D i \sin kx.$$

Det betyder, at man kan vælge mellem at opfatte fri elektroner som enten vandrende eller stående bølger. I det følgende skal de fri elektroner behandles som stående bølger. De stående bølger, (17) er tegnet for en bestemt værdi af k i fig. 6.

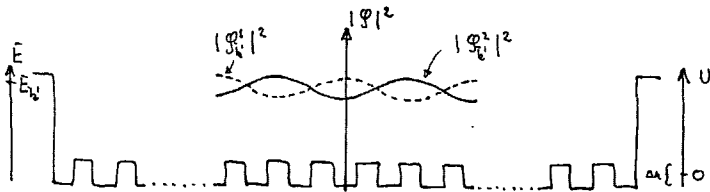


Fig. 2.10: Sandsynlighedsfordelingerne $|\varphi_1/k|^2 \propto \cos^2 k'x$ og $|\varphi_2/k|^2 \propto \sin^2 k'x$ for en elektron med bølgetallet k' .

Betingelsen om periodicitet er opfyldt når $k = \pi n/a$, $n = 1, 2, 3, \dots$, hvor a er en primitiv gittervektor. For disse bølgetal splitter energien op i to værdier, mens energien for de øvrige bølgetal stort set er givet ved energien for en fri elektron. Se fig. 2.13. En nærmere analyse vil vise, at grafen for E som fkt. af k har vandret tangent for $k = \pi n/a$.



Fig. 2.12: Energien, $E_k = \hbar^2 k^2 / 2m$, som funktion af k for en fri elektron.

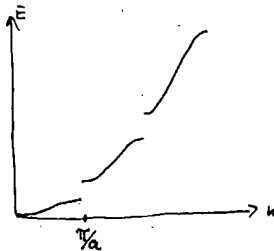


Fig. 2.13: Energien, som funktion af k i et periodisk potential.

Hermed er det illustreret, hvordan der kan opstå energibånd i en krystal.

Men kan komme til samme resultat ved at betragte elektronerne som vandrende bølger. Når energien er stor i forhold til Δu , vil den relative vekselvirkning med gitteret være meget svag, undtagen for de bølgetal som opfylder betingelsen for Bragg-reflektion. Når Bragg-betingelsen, $(\vec{k} + \vec{G})^2 = k^2$, er opfyldt, d.v.s. når

$$k = \pm \frac{1}{2} \cdot G = \pm \frac{\pi}{a} \cdot S, \quad S = \pm 1, \pm 2, \dots$$

fås stående bølger. Og som allerede vist splitter energien op for stående bølger ved disse bølgetal.

I begyndelsen af kapitlet blev det konstateret, at kvadratet på Blochfunktionerne er periodisk i gitteret, og det kan derfor måske virke forvirrende, at der i fig. 2.10 optræder bølgefunktioner, hvis kvadrat ikke er periodisk i gitteret. Det skyldes ganske enkelt, at bølgefunktionerne i dette afsnit ikke er Blochfunktioner, men derimod bølgefunktioner for fri elektroner.

Fri elektroner kan repræsenteres som enten stående eller vandrende bølger, men det gælder ikke for Blochfunktioner. En given Blochfunktion vil, afhængigt af dens bølgetal, enten være en stående eller vandrende bølge.

2.2.2.2. Fast binding approksimationen.

Som nævnt kan energibåndstrukturen også vises for elektroner, der befinder sig i den modsatte grænse af de næsten fri elektroner, hvor energien er lille i forhold til dybden af de små potentialbrønde. Se fig. 2.9. I fast binding approksimationen antages det, at alle elektronerne befinder sig i sådanne tilstande.

Når elektronens kinetiske energi er mindre end dybden af de små potentialbrønde, vil den i følge klassisk mekanik befinde sig i en bestemt brønd. Tænkt klassisk mekanisk vil alle elektronerne altså være lokaliserede ved ionerne og man kan derfor ikke operere med et konstant elektronepotential, der afskærmer ionpotentialt, sådan som det er gjort hidtil. Se fig. 2.7. Det eneste beydende potential på en elektron vil være potentialt fra den ion, hvor den er lokaliseret. Se fig. 2.14.

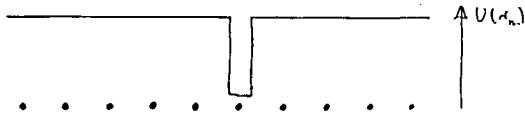


Fig. 2.14. Potentialet på den n 'te elektron. I følge klassisk mekanik vil en elektron, hvis energi er mindre end bindingsenergien, d.v.s. dybden af potentialbrønden, være lokaliseret ved een bestemt ion.

Det samme billede forekommer i en kvantemekanisk beskrivelse af en enatomig gas. Her er det rimeligt at opfatte systemet som en samling af enkelt-atomer, hvor hver elektron er fast bundet til en bestemt ion. Afstandene mellem atomerne er nemlig så store i forhold til udstrækningen af atomernes elektronbølgefunktioner, at atombølgefunktionerne stort set er stationære tilstande. I et hypotetisk fast stof med en meget stor gitterkonstant skulle hver elektron altså være lokaliseret omkring en bestemt ion og befinde sig i en af atomets elektrontilstande, ψ_1 , Se fig. 2.15.

Men atom-tilstandene er som sagt ikke fuldstændigt stationære, fordi en elektron omkring en bestemt ion også mærker potentialet fra de øvrige elektroner og ioner. De eneste stationære tilstande er Blochfunktioner, og hvis alle elektroner til et begyndelsestidspunkt befinder sig i atomtilstande, vil de derfor gradvist gå over i Blochtilstande. Man siger, at elektronerne tunneler ud af potentialbrøndene.

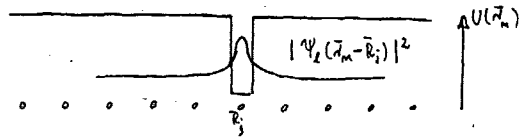


Fig. 2.15: Kvadratet på bølgefunktionen for den n'te elektron i et "fast stof" med meget stor gitterkonstant. R_j er positionen af den j'te ion.

Det kan vises, at Blochfunktionerne har meget lille amplitude mellem ionerne, når atomtilstandens udstrækning er lille i forhold til gitterkonstanten. Sandsynligheden for at finde en bestemt elektron ved en ion er derfor næsten lig $1/N$, hvor N er antallet af ioner. Er stoffet monovalent bliver sandsynligheden for at finde en vilkårlig elektron omkring en ion derfor næsten lig 1, og i den forstand kan man sige, at elektronerne stadig er fast bundne til atomerne, selvom de er i udstrakte tilstande.

Der gælder alment, at Blochfunktionerne kan skrives som en linearkombination af atombølgefunktioner:

$$(19) \quad \varphi_k = K \sum_j^N C_j \psi_1(\vec{r} - \vec{R}_j),$$

hvor $C_j = e^{i\vec{k}\vec{R}_j}$ og K er en normeringskonstant. Ved en omskrivning vises, at φ_k er en Blochfunktion:

$$\varphi_k = \left[\sum_j e^{-i\vec{k}(\vec{r} - \vec{R}_j)} \psi_1(\vec{r} - \vec{R}_j) \right] e^{i\vec{k}\vec{r}} = u_k(\vec{r}) e^{i\vec{k}\vec{r}}.$$

Her er $u_k(\vec{r})$ defineret, som det der står indenfor de kantede paranteser. Hvis $u_k(\vec{r})$ er periodisk i git-

teret, så er φ_k en Blochfunktion med det karakteristiske bølgetal \bar{k} . Idet \bar{T} er en gittervektor skrives:

$$u_k(\bar{r} + \bar{T}) = \sum_j e^{-i\bar{k}(\bar{r} - (\bar{R}_j - \bar{T}))} \psi_1(\bar{r} - (\bar{R}_j - \bar{T})) = \sum_{j'} e^{-i\bar{k}(\bar{r} - \bar{R}'_{j'})} \psi_1(\bar{r} - \bar{R}'_{j'}) = u_k(\bar{r})$$

hvor $\bar{R}'_j = (\bar{R}_j + \bar{T})$ og j' er indexet svarende til gitterpunkterne $\bar{R}'_{j'}$. Der andet lighedstegn er gyldigt, fordi det er uden betydning, at man går over til en ny rækkefølge i summationen over gitterpunkterne, når bare alle punkter kommer med. $u_k(\bar{r})$ er altså periodisk i gitteret og det viser, at φ_k er en Blochfunktion.

Kvadratet på bølgefunktionen skrives:

$$|\varphi_k|^2 = K^2 \sum_j \sum_m e^{-i\bar{k}(\bar{R}_j - \bar{R}_m)} \int_V \psi_1^*(\bar{r} - \bar{R}_j) \psi_1(\bar{r} - \bar{R}_m) d\bar{r}$$

Integralet angiver det rumlige overlap mellem atombølgefunktionerne omkring gitterpunkterne R_j og R_m .

Hvis bølgefunktionerne næsten ikke overlapper, det vil sige:

$$\int_V \psi_1^*(\bar{r} - \bar{R}_j) \psi_1(\bar{r} - \bar{R}_m) d\bar{r} \approx 0 \text{ for } j \neq m$$

fås

$$|\varphi_k|^2 \approx K^2 \sum_j |\psi_1(\bar{r} - \bar{R}_j)|^2$$

Er ψ_1 normeret, vil φ_k være normeret for $K^2 = N^{-1}$:

$$\varphi_k \approx N^{-\frac{1}{2}} \sum_j \psi_1(\bar{r} - \bar{R}_j)$$

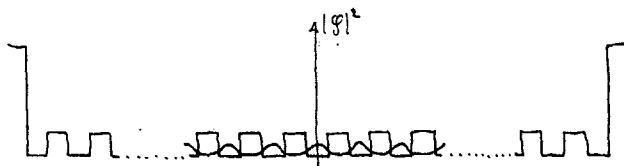


Fig. 2.16. Sandsynlighedsfordelingen for en elektron i tilstanden $\varphi_k \approx N^{-1/2} \sum_j \psi_1(\vec{r}-\vec{R}_j)$. Sandsynligheden for at finde elektronen i en brønd er ca. $1/N$.

I fast binding approksimationen antages det, at atombølgefunktionerne kun overlapper med de nærmeste naboer og det skal nu vises, hvordan man kan bestemme energien indenfor denne antagelse.

I modsætning til næsten fri elektron approksimation skal der ikke gives et bud på hvad energien er som funktion af k . Derimod tages udgangspunkt i udtrykket for middelværdien af energien:

$$(20) \quad \langle E_k \rangle = \int_V \varphi_k^* \hat{H} \varphi_k d\vec{r}.$$

Ved indsættelse af (19) i (20) fås:

$$E_{\vec{k}} = N^{-1} \sum_j \sum_m e^{i\vec{k}(\vec{R}_m - \vec{R}_j)} \int_V \psi_1^*(\vec{r}-\vec{R}_j) \hat{H} \psi_1(\vec{r}-\vec{R}_m) d\vec{r}$$

\vec{R}_m er positionen af den m 'te ion og $\psi_1(\vec{r}-\vec{R}_m)$ er en atombølgefunktion omkring den m 'te ion. Bølgefunktionen omkring den m 'te ion skal i det følgende benævnes $\psi_{1m}(\vec{r})$:

$$\psi_{1m}(\vec{r}) \equiv \psi_1(\vec{r}-\vec{R}_m)$$

Atombølgefunktionen omkring den j 'te ion kan omskrives til atombølgefunktionen for den m 'te ion forskudt med afstandsvektoren $(\bar{R}_j - \bar{R}_m)$:

$$\psi_1(\bar{r} - \bar{R}_j) = \psi_1(\bar{r} - \bar{R}_j + \bar{R}_m - \bar{R}_m) = \psi_{1m}(\bar{r} - (\bar{R}_j - \bar{R}_m)).$$

Med disse to omformuleringer skrives energien:

$$E_{\bar{k}} \approx N^{-1} \sum_j \sum_m e^{i\bar{k}(\bar{R}_m - \bar{R}_j)} \int_V \psi_{1m}^*(\bar{r} - (\bar{R}_j - \bar{R}_m)) \hat{H} \psi_{1m}(\bar{r}) d\bar{r}.$$

Integralet

$$\int_V \psi_{1m}(\bar{r} - (\bar{R}_j - \bar{R}_m)) \hat{H} \psi_{1m}(\bar{r}) d\bar{r}$$

giver overlap-energien mellem bølgefunktionerne omkring den m 'te ion og bølgefunktionen omkring en ion i afstanden $(\bar{R}_j - \bar{R}_m)$ fra den m 'te ion. Se fig. 2.17.

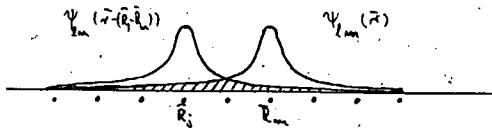


Fig. 2.17: Atombølgefunktionerne $\psi_{1m}(\bar{r})$ og $\psi_{1m}(\bar{r} - (\bar{R}_j - \bar{R}_m))$. Bidraget til den samlede forventnings-energi fra de to bølgefunktioner vokser med overlap (det skraverede areal).

Afstanden mellem ionerne er konstant og det betyder, at alle $\psi_{1m}(\bar{r})$ vil have den samme serie af overlap-arealer med naboerne $\psi_{1m}(\bar{r} - (\bar{R}_j - \bar{R}_m))$. For et stof med N ioner kan man derfor skrive:

$$E_{\bar{k}} = \sum_j e^{-i\bar{k}\bar{\rho}_j} \int_V \psi_1^*(\bar{r}-\bar{\rho}_j) \hat{H} \psi_1(\bar{r}) d\bar{r}$$

hvor $\bar{\rho}_j$ gennemløber afstandsvektorene fra en vilkårlig ion til alle ioner i gitteret.

Des længere væk en nabo-funktion befinder sig, des mindre er overlappet. Der antages nu, at bølgefunktionens udstrækning er så lille i forhold til afstanden mellem ionerne, at man kan se bort fra overlappet med bølgefunktioner fjernere end nærmeste nabo. Funktionens overlap med sig selv benævnes $-\alpha$ og $-\gamma$ er overlapenergien med en nærmeste nabo:

$$-\alpha = \int_V \psi_1^*(\bar{r}) \hat{H} \psi_1(\bar{r}) d\bar{r} ; \quad -\gamma = \int_V \psi_1^*(\bar{r}-\bar{a}) \hat{H} \psi_1(\bar{r}) d\bar{r}$$

Energien skrives:

$$E_{\bar{k}} = -\alpha - \gamma \sum_j e^{-i\bar{k}\bar{a}_j} ,$$

Hvor der summeres over primitive gittervektore \bar{a}_j , d.v.s. de nærmeste naboer.

Overlap-energien med en nærmeste nabo, $-\gamma$, afhænger altså af afstanden mellem atomerne, a . Denne afhængighed kan bestemmes for to brintatomer i 1s-tilstanden. Her viser det sig at:

$$\gamma = 2(1+a/a_0) \cdot e^{(-a/a_0)} ,$$

hvor $a_0 = \hbar^2/me^2$ og er givet i energienheden Rydberg, $Ry = me^4/2\hbar^2$. Overlap-energien aftager altså eksponentielt med afstanden.

I en simpel kubisk struktur er de nærmeste nabo-ioner i:

$$\bar{a}_j = (a, 0, 0) ; (0, a, 0) ; (0, 0, a)$$

som indsat i (19) giver:

$$E_{\vec{k}} = -\alpha - 2\gamma (\cos k_x a + \cos k_y a + \cos k_z a)$$

Energien falder altså inden for et bånd med bredden 12γ . Jo mindre overlap jo snævrere bånd. Se fig. 2.18.

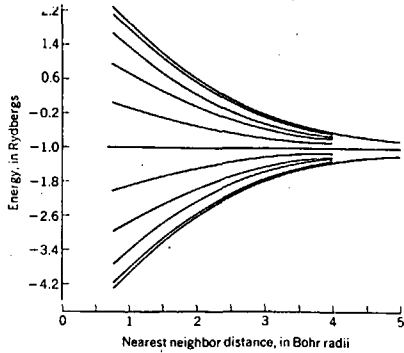


Fig. 2.18. Overlap-energien som funktion af afstanden til nærmeste nabo-atom beregnet på $1s$ -tilstanden i en ring af 20 hydrogen-atomer. /Kittel/.

Denne opsplnitning optræder for alle atomtilstande, ψ_1 , i alle atomer.

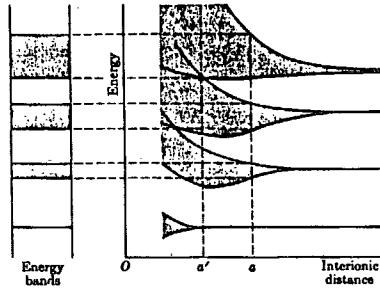


Fig.2.19. Energibånd. /Alonso-Finn/.

I et tænkt gitter af enkelt-atomer vil atomets energiniveauer altså spaltes op i energibånd, når gitteret presses sammen til dimensionerne for et fast stof.

Hermed er det skitseret, hvordan der med fast binding approksimationen kan argumenteres teoretisk for eksistensen af energibånd i krystallinske stoffer.

2.2.2.3 Elektrisk ledning i krystaller.

Energibåndstrukturen er et afgørende redskab i forståelsen af krystallinske stoffers elektriske egenskaber, først og fremmest fordi den i modsætning til tidligere modeller, kan forklare forskellen på metaller, halvledere og isolatore:

For at kunne lede en elektrisk strøm må elektron-systemet kunne modtage impuls. En fri elektron har impulsen $p = \hbar k$, og der kan argumenteres for, at elektroner i krystaller i middel har impulsen $\langle p \rangle = \hbar k$, hvor k er bølgetallet i bølgefunktionen $\psi_k = u_k e^{i k r}$.

I de energibånd, hvor alle tilstandene er besatte, er den samlede impuls nul, fordi k , givet ved $k = 2\pi s/L$, $s=0, \pm 1, \pm 2, \dots$, er symmetrisk om nul. Elektronerne i et fyldt bånd kan altså ikke bidrage til elektrisk ledning. Derimod kan elektronerne altid bidrage til elektrisk ledning, hvis båndet ikke er helt fyldt, fordi de nødvendige ændringer i elektronkonfigurationen indenfor et bånd kun er forbundet med meget små ændringer i elektronsystemets energi.

Det skal nu vises, at det øverste besatte bånd i alle stoffer med et ulige antal valenselektroner er halvt fyldt. Antallet af tilstande i et bånd er givet ved antallet af bølgetal i intervallet $-\frac{1}{2}g < k \leq \frac{1}{2}g$. Den reciprokke gittervektor, g , er defineret ved $\frac{1}{2}g = \pi/a$ og stoffets længde, L , er givet ved $L = Na$. Der gælder derfor, at

$$-\pi/a < 2\pi s/Na \leq \pi/a \quad \Rightarrow \quad -\frac{1}{2}N < s \leq \frac{1}{2}N$$

s , og dermed k , kan altså antage N forskellige værdier svarende til N stedbølgefunktioner. Og da der kan være to elektroner i hver stedbølgefunktion, fås ialt $2N$ tilstande i et bånd. Når der er et ulige antal valenselektroner, vil det øverste fyldte bånd

derfor kun være halvt fyldt.

Metaller er stoffer, hvor elektronerne kan skifte impuls uden store skift i energi. Alle (en-atomige) stoffer med et ulige antal valenselektroner er altså metaller.

Umiddelbart skulle man vente, at alle stoffer med et lige antal valenselektroner ikke kan være metaller, fordi det øverste bånd her skulle være helt fyldt. Men det er ikke altid tilfældet, fordi båndgabet kan have forskellig beliggenhed i k -rummet.

Hvis der er et effektivt båndgab, vil et stof med et lige antal valenselektroner, afhængigt af båndgabets størrelse, enten være en halvleder eller en isolator. I halvledere er båndgabet så lille, at stofets termiske energi er tilstrækkelig til at sende elektroner op i det øvre bånd, mens isolatore modsat har så store energigab, at der ikke kan befinde sig elektroner i det øvre bånd.

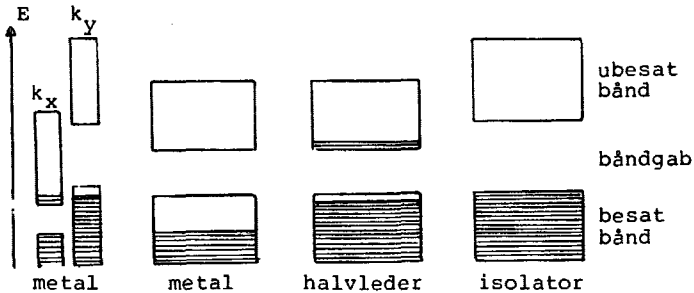


Fig.2.20. Sammenligning af elektronfordelingen i de øvre bånd hos metaller, halvledere og isolatore.

2.2.2.4 Fermi - Dirac fordelingen.

Vi har lige nævnt, at elektronerne i halvledere sendes fra det nedre til det øvre bånd ved en termisk aktiveret proces. Elektronsystemet indeholder

en del af stoffets termiske energi ved at have elektroner i det øvre bånd. Kun ved det absolutte temperaturnulpunkt er elektronsystemet i sit energiminimum med alle elektronerne i det nedre (og nu helt fyldte) bånd.

I halvledere kaldes det nedre bånd valensbåndet og det øvre ledningsbåndet. Fordelingen af elektroner på de to bånd er givet ved Fermi - Dirac fordelingen hentet fra statistisk mekanik. Fordelingsfunktionen angiver sandsynligheden, $f(E_k)$, for, at der er en elektron i tilstanden ϕ_k med energien E_k :

$$(21) \quad f(E_k) = \frac{1}{e^{(E_k - \mu)/k_B T} + 1}$$

hvor k_B er Boltzmann konstanten, T er den absolutte temperatur og μ det kemiske potential.

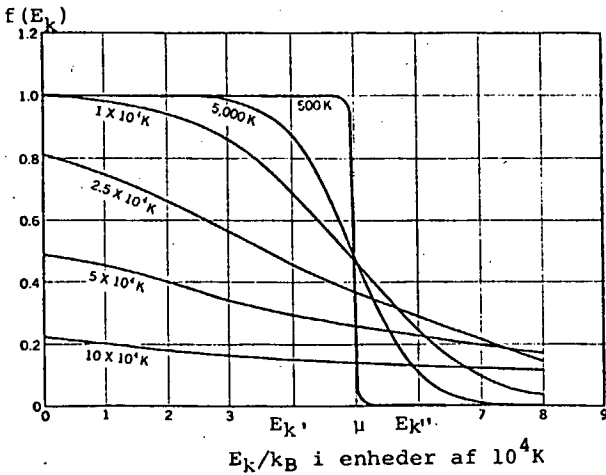


Fig.2.21. Fermi - Dirac fordelingen for en gas af elektroner i tre dimensioner ved forskellige temperature. (Kilde: Kittel).

Det kemiske potential, μ , er den energi, hvorom fordelingen "balancerer". Lader vi $E_{k'}$ og $E_{k''}$ betegne to bestemte energier, der ligger symmetrisk om μ , så vil det gælde, at $f(E_{k'}) = 1 - f(E_{k''})$. Eller sagt med andre ord: μ er den værdi, hvorom det gælder, at sandsynligheden for, at tilstande med energien $E_{k'}$ er besatte, er lig med sandsynligheden for, at tilstande med energien $E_{k''}$ er ubesatte.

Af definitionen (21) ses, at $f(\mu) = \frac{1}{2}$, og fig. 2.21 viser, at det kemiske potential for en gas af fri elektroner i tre dimensioner forskydes mod lavere energier, når temperaturen stiger. μ er en funktion af T , $\mu(T)$.

Antallet af besatte tilstande, N , er givet ved:

$$N = \int g(E_k) f(E_k) dE_k$$

, hvor $g(E_k)$ er tætheden af tilstande ved energien E_k .

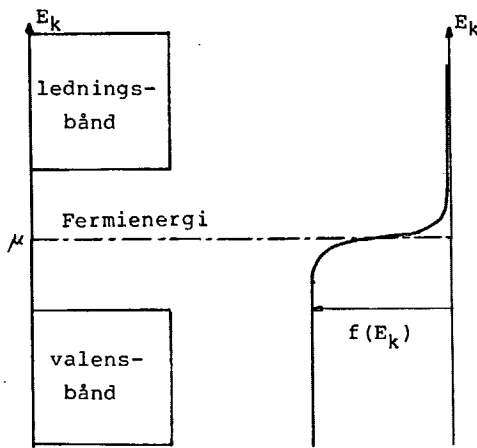


Fig. 2.22. I en halvleder ligger Fermienergi- en omtrent midt i båndgabet.

Hvis $g(E_k)$ f.eks. er en voksende funktion, så skal $\mu(T)$ være en aftagende funktion for at holde N konstant ved alle temperature.

Det kemiske potential ved det absolutte temperatur-nulpunkt kaldes Fermi-energien, E_F .

$$E_F = \mu(0)$$

I halvledere ligger Fermi-energien omtrent midt i energi-gabet, svarende til at tætheden af tilstande i overkanten af valensbåndet og i underkanten af ledningsevnebåndet er cirka lige store.

2.2.3 Enkelt-elektrontilstande i amorfe potentialgitter.

I det foregående blev skitseret en teori om elektrisk ledning i faste stoffer med et periodisk gitter.

Der blev vist, at enkelt-elektrontilstandene er Blochfunktioner og udfra næsten fri elektronapproximationen og fast binding approksimationen argumenteredes for, at egenværdierne falder indenfor energibånd.

Ledningsevnen afhænger af elektronsystemets evne til at skifte impuls. Og impulsændringer sker ved, at elektronernes fordeling på tilstande ændres. Det blev tilsidst skitseret, hvordan disse ændringer i elektronkonfigurationen afhænger af båndgabets størrelse, antallet af valenselektroner og temperaturen.

For amorfe stoffer er ionpotentiallet ikke periodisk og det betyder, at der ikke er nogen genvej, når man skal finde løsninger til enkelt-elektron-Schrödingerligningen (13). Den eneste rettesnor er, at løsningerne skal være selvkonsistente, sådan som det blev beskrevet i afsnittet om Hartree - Fock approksimationen.

Når løsningerne ikke er Blochfunktioner, forsvinder kendskabet til bølgetallet k , og man må derfor opgive ideen om at tegne energien som funktion af k (se fig.2.13). Men man kan stadig tegne diagrammer for tætheden af tilstande, $g(E)$, (se fig.2.1), fordi løsningerne er enkelt-elektrontilstande. Af samme grund kan elektronernes fordeling på tilstandene beskrives ved Fermi - Dirac fordelingen, $f(E)$.

Blochfunktionerne er udstrakte tilstande, men når løsningerne ikke er Blochfunktioner, har man ikke noget bevis for, at alle tilstandene er ud-

strakte. Spørgsmålet om hvorvidt der findes lokaliserede tilstande er vigtigt, fordi elektrisk ledning via lokaliserede tilstande er kvalitativt forskellig fra ledning via udstrakte tilstande.

I det følgende argumenteres først for formen af tætheden af tilstande i den amorf fase, og dernæst diskuteres spørgsmålet om lokalisering. Der må skelnes mellem to typer af lokalisering. Nemlig lokalisering som følge af uorden i iongitteret og lokalisering som følge af fejlsteder i gitteret. Vi går ikke ind i diskussionen af hvilke typer fejl, der kan findes, men begrænser beskrivelsen til den type fejlsteder, der består i frie bindinger.

Tætheden af tilstande.

Der findes en række argumenter for, at elektron-energiene i amorf stoffer falder i energibånd. De fleste er empiriske, men der findes også et vigteoretisk argument, og det er fast binding approksimationen.

Resultatet i fast binding approksimationen er, at energibåndene har deres oprindelse i atomets energiniveauer og, at bredden af båndene alene afhænger af afstanden til nærmeste nabo-ion. Dette må også gælde for amorf faste stoffer: Fra beregninger på molekyler ved man nemlig, at atomets energiniveauer spalter op på samme måde, selvom der ikke er periodicitet. Kravet om periodicitet i afsnittet om fastbinding approksimationen var altså kun nødvendigt for at muliggøre den matematiske beskrivelse, mens resultatet om opsplnitning af atomets energiniveauer gælder generelt.

Afstanden til nærmeste nabo varierer i amorf stoffer. Og da båndbredden vokser, når afstanden til nærmeste nabo mindskes, er det atomerne med den minimale nærmeste nabo -afstand, a_{\min} , der bestemmer båndbredden. a_{\min} vil oftest være mindre

end gitterkonstanten, a , i den tilsvarende krystal, fordi densiteten af den amorge og den krystallinske fase sjældent afviger ret meget fra hinanden.

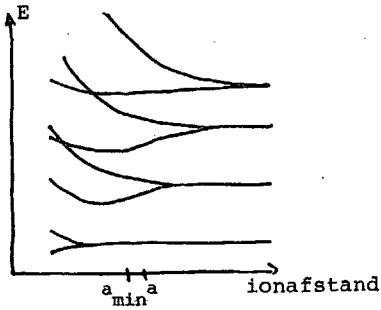


Fig.2.23. I den amorge fase bestemmes båndbredden af den mindste afstand til nærmeste nabo.

Energibåndene er altså bredere i den amorge fase og tætheden af tilstande har samtidigt en anden form. Det sidste kan blandt andet ses af, at det kun er de få ioner med nærmeste-nabo-afstanden a_{\min} , der bidrager med tilstande ved båndkanten, i modsætning til krystaller, hvor alle ioner bidrager.

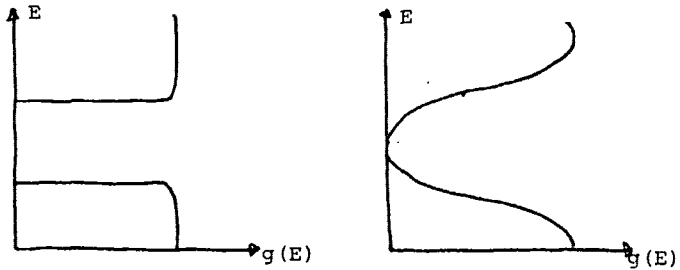


Fig.2.24. Tætheden af tilstande, $g(E)$, i den krystallinske og den amorge fase.

2.2.3.1 Lokalisering forårsaget af uorden i ion-potentialet. Anderson-lokalisering.

Når løsninger ikke er Blochfunktioner, har man som nævnt ikke noget bevis for, at alle tilstandene er udstrakte. Og en beregning af P.W.Anderson, der nu betragtes som grundlaget for teori om elektroner i amorfe faste stoffer, sandsynliggør, at der faktisk findes lokaliserede tilstande i den amorfe fase.

Indledningsvis tegnes en model af potentialet på en elektron i et amorft stof. Antager man, at potentialet på en elektron hidhørende fra de øvrige elektroner, U_{el} , er konstant, fås et uregelmæssigt gitter af Coulombpotentialer. Se fig.2.25.

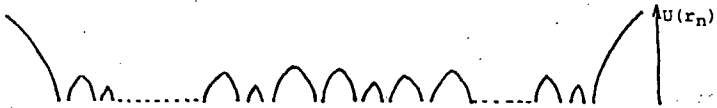


Fig.2.25. Det formodede potential på en elektron i et fast amorft stof.

En model med potentialbrønde kan for eksempel se sådan ud:



Fig.2.26. Model af potentialet på en elektron i et amorft stof.

I stedet for et potential som i fig.2.26, hvor afstanden mellem brøndene varierer, bruger Anderson en model, hvor afstanden mellem brøndene er

konstant. Variationen i afstanden til nærmeste nabo repræsenteres alene ved en variation, V , af brøndenes dybde. Se fig.2.27. Det tilsvarende peri-

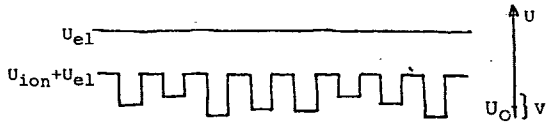


Fig.2.27. Andersons model af potentialet på den n 'te elektron i et amorft fast stof. Variationen i brøndenes dybde opfattes alene som et resultat af variationen i afstanden til nærmeste nabo, svarende til at U_{e1} er konstant. U_0 er den gennemsnitlige brønddybde.

odiske gitter har den konstante brønddybde U_0 . Ved at anvende fast binding approksimationen på bølgefunktionerne, ψ_1 , svarende til en isoleret brønd med dybden U_0 beregnes bredden, Δ_1 , af de tilsvarende bånd for det periodiske gitter. Når fast binding approksimationen anvendes på det uordnede potential, fås bånd, der er bredere end Δ_1 , og det viser sig, at alle tilstandene i et bånd er lokaliserede, når $V/\Delta_1 > 4,3$.

Hvor findes Anderson-lokaliserede tilstande?

Vi har ikke studeret Andersons beregning, og kender derfor ikke hans svar på problemet. Men vi kan se, at spørgsmålet om hvorvidt en tilstand er lokaliseret eller ej, afhænger af tilstandenes energi og tætheden af tilstande ved denne energi.

Hvis tilstanden har stor energi i forhold til dybden af potentialbrøndene, vil den være udstrakt, fordi elektroner med stor energi kan bevæge sig "næsten frit" i hele stoffet. Se fig.2.28.

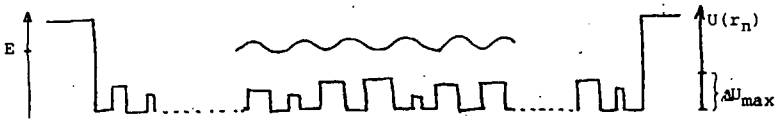


Fig.2.28. Bølgelinjen illustrerer en tilstand med stor energi i forhold til U_{\max} .

Lokaliserede tilstande må altså søges blandt tilstande, hvis energi er lille i forhold til den maksimale brønddybde, ΔU_{\max} . En tilstand med lille energi, der til et begyndelsestidspunkt er egenfunktion til en af brøndene, vil overgå til en stationær tilstand, fordi den også "mærker" de andre brønde. Hvis potentialet er periodisk, vil den gå over i en udstrakt Blochtilstand -den vil med andre ord tunnele ud og fordele sig i alle brøndene. Men hvis potentialet ikke er periodisk, er det ikke sikkert, at elektronen tunneler ud i hele gitteret -den stationære tilstand kan være lokaliseret.

Vi forestiller os, at tilstanden er lokaliseret, når dens energi er mindre end en bestemt kritisk værdi, E_L . Jo mindre energi begyndelsestilstanden har, jo mindre er dens udstrækning og jo mindre mærker den derfor de andre brønde. En elektron i en tilstand med lille energi vil derfor have "svært" ved at tunnele ud af en brønd og af den "grund" vil den ikke kunne nå så langt. Denne tankegang er hverken præcis eller korrekt, men et plausibilitetsargument for eksistensen af E_L kunne være, at en sådan tærskel-energi findes, hvis systemet behandles klassisk mekanisk:

$$E_{L\text{klassisk}} = \Delta U_{\max}$$

Hvis E_L eksisterer i en kvantemekanisk beskrivelse, må den på grund af tunneling være mindre end ΔU_{\max} :

$$E_L < \Delta U_{\max}.$$

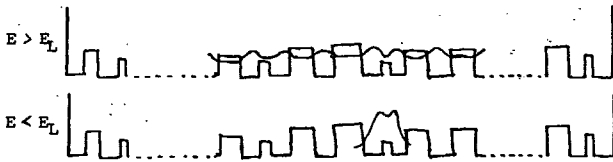


Fig.2.29. Vi forestiller os, at alle tilstande med energier mindre end E_L er lokaliserede.

Vi antager altså, at der for et givet potential findes en bestemt kritisk energi, som adskiljer de lokaliserede tilstande fra de udstrakte. Denne antagelse synes ved første øjekast at være uforenelig med den i litteraturen udbredte opfattelse, at den kritiske parameter er tætheden af tilstande. Problemet løses, når man bliver opmærksom på, at potentialet er et enkelt-elektron-potential og, at potentialet på forskellige elektroner kan være forskelligt, når der findes lokaliserede tilstande.

I et stof med både lokaliserede og udstrakte tilstande, hvor alle de lokaliserede tilstande er ubesatte, vil alle elektronerne opleve (praktisk taget) det samme potential. Hvis en af elektronerne skifter til en lokaliseret tilstand, opstår der derimod endnu et potential: Den lokaliserede elektron oplever det samme potential, som før den skiftede tilstand, mens potentialet på alle de andre elektroner er ændret. Det skyldes, at den lokaliserede tilstand hæver potentialet i det område, hvor den er lokaliseret. Når den næste elektron

lokaliseres, vil den både ændre potentialet på den første elektron og alle de øvrige. Elektronerne befinder sig nu i tre forskellige potentialer. Tankegangen er illustreret i fig. 2.31. Nederst til højre i figuren er vist, hvordan de lokaliserede tilstande i de forskellige potentialer tilsammen udgør udstrakte tilstande ved at lappe over hinanden gennem hele stoffet.

Spørgsmålet om lokalisering afhænger altså ikke kun af lokaliseringsenergien, E_L . Tætheden af tilstande, $g(E)$, og de lokaliserede tilstandes udstrækning, d.v.s. lokaliseringslængde, λ , har også betydning.

Hvis λ er konstant og E_L er stor, så vil der være lokaliserede tilstande ved de energier, hvor $g(E)$ er lille. Se fig.2.30. Disse lokaliserede tilstande kaldes båndhaler og overgangen mellem de udstrakte og de lokaliserede tilstande kaldes mobilitetskanter. Endeligt kaldes intervallet mellem mobilitetskanterne, E_v og E_c , for pseudobåndgabet.

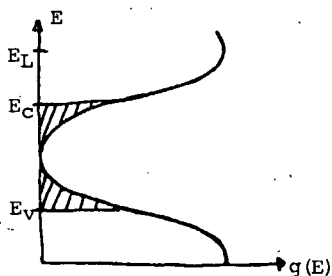


Fig.2.30. Tætheden af tilstande. De skraverede områder angiver lokaliserede tilstande i pseudobåndgabet.

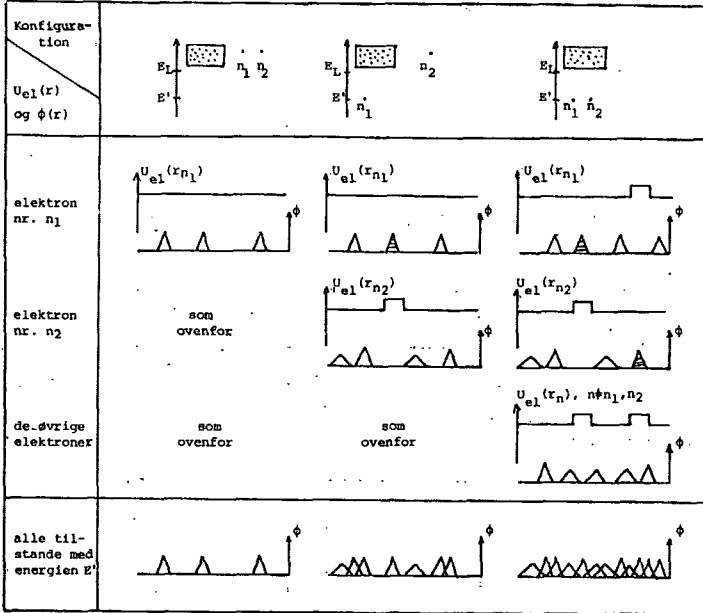


Fig.2.31. viser, hvordan der kan opstå udstrakte tilstande ved en energi, E' , under lokaliseringens energien, E_L . Vandret vises tre forskellige elektronkonfigurationer. Den første søjle omhandler det tilfælde, hvor alle elektronerne er i tilstande med energier højere end E_L . I den anden søjle har elektron nummer n_1 energien E' , mens alle de andre stadig har energier større end E_L . I tredje søjle er der endnu en elektron, n_2 , i en lokaliseret tilstand med energien E' .

De tre øverste rækker viser elektronpotential, U_{el} , og de tilsvarende bølgefunktioner, ϕ , for henholdsvis elektron nummer n_1 , n_2 og alle de øvrige. Den nederste række viser alle tilstandene med energien E' . En besat tilstand symboliseres ved en skraveret trekant.

Denne model (fig.2.30) kaldes CFO-modellen efter M.H.Cohen, H.Fritzsche og S.R.Ovshinsky og antages at gælde for tetravalente amorfe halvledere som Ge og Si uden frie bindinger /D.Adler ref.2 /.

Inden vi diskutterer effekten af frie bindinger, gøres der kort rede for, hvordan gitterstrukturen kan forstås ud fra germaniumatomets kemiske egenskaber.

Den kemiske binding.

Strukturen i en krystal af enkelt-atomer forklares ud fra den kemiske binding mellem atomerne.

To tetravalente atomer, som f.eks. germanium, danner en kemisk binding ved at bølgefunktionen for en eller flere af valenselektronerne i det ene atom lapper over med bølgefunktionen for en eller flere af valenselektronerne i det andet atom. I et isole-ret Ge-atom er der to valenselektroner i hver sin s-tilstand og to elektroner i hver sin p-tilstand, men når atomet reagerer med et andet atom, det vil sige når der opstår fælles elektrontilstande for de to atomer, vil valenselektronerne normalt optræde i hybridiserede sp-tilstande Se fig.2.32.

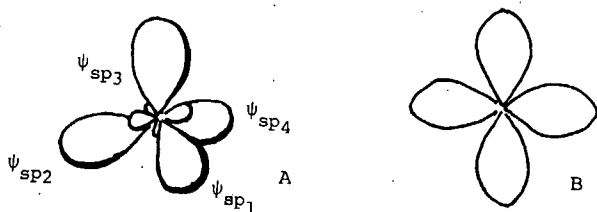


Fig.2.32. A viser de fire hybridiserede sp-tilstande, som valenselektronerne normalt befinder sig i, når germanium-atomet reagerer. B er en todimensional model.

Set inden for fast binding approksimationen opstår valensbåndet ved, at sp-tilstandene i hvert atom lapper over med de nærmeste nabo-atomers sp-tilstande.

Tidligere er overlappet kun tegnet i én dimension og her afhænger det udelukkende af afstanden mellem

ionerne, men i tre dimensioner er overlappet også afhængigt af bølgefunktionernes orientering i rummet.

Elektronernes samlede energi er mindst, når overlappet har en bestemt størrelse. I tre dimensioner kan dette bestemte overlap imidlertid opnås ved forskellige afstande mellem ionerne, fordi bølgefunktionerne kan have forskellig orientering i rummet. Men ligesom elektronsystemet

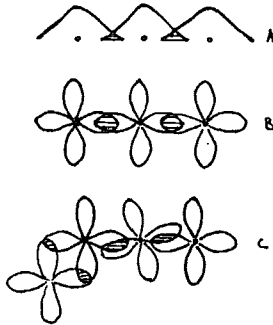


Fig.2.33. Overlap mellem bølgefunktionerne i én og "tre" dimensioner. I tre dimensioner kan overlappet svarende til laveste elektron-energi opnås med forskellige afstande mellem ionerne.

vil ionsystemet under en krystallisationsproces søge mod den laveste energi, og derfor sidder atomerne med den indbyrdes orientering, hvor afstanden mellem ionerne er størst, som vist i fig. 2.33.B. Dette er samtidig en forklaring på, hvorfor iongitteret er periodisk i en krystal.

For en perfekt krystal siges elektronbølgefunktionerne Ψ_1 , og ionernes gitterpunkter at udgøre et kontinuert ordnet netværk. "Kontinuert", fordi hver bølgefunktion har overlap med en anden bølgefunktion og "ordnet", fordi gitterpunkterne sidder i en ordnet struktur. Bølgefunktionerne kaldes også bindinger, eller orbitaler, og kontinuiteten kan derfor alternativt formuleres som fravær af frie bindinger.

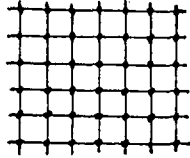


Fig.2.34. Et kontinuert ordnet netværk.

På figuren symboliserer prikkerne ionernes gitterpunkter og en linie mellem to punkter betyder, at en orbital fra et atom i det ene punkt overlapper med en orbital fra et atom i det andet punkt.

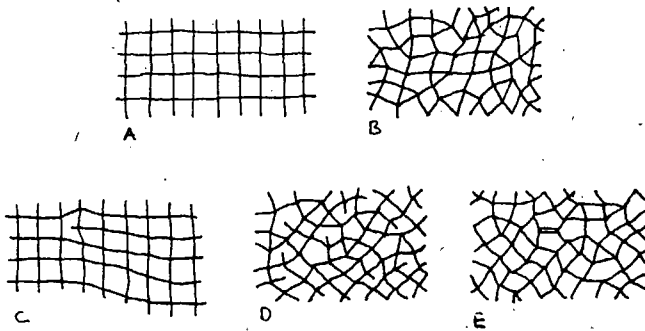


Fig.2.35. A: kontinuert ordnet netværk. B: kontinuert uordnet netværk. C: ikke-kontinuert ordnet netværk. D: ikke-kontinuert uordnet netværk. Linjestykker, som kun har en prik i den ene ende, symboliserer frie bindinger. E: kontinuert uordnet netværk med dobbelt-binding.

Det kan umiddelbart synes lidt åkavet at tale om et ikke-kontinuert ordnet netværk, men der er brug for en betegnelse for næsten perfekte krystaller med frie bindinger.

2.2.3.2 Lokalisering forårsaget af frie bindinger.

Et atom med en fri binding er et atom, hvis ene af de fire sp -tilstande ikke har noget overlap med nabo-atomernes sp -tilstande. Et sådant atom har en elektron "i overskud" på samme måde som et penta-valent doterings-atom i en halvleder af tetravalente atomer.

Forestiller vi os en perfekt krystal med én fri binding (fig.2.35C), vil denne overskydende elektron ikke befinde sig i en udstrakt tilstand som alle de øvrige elektroner, men derimod i en lokaliseret tilstand omkring "moder-ionen". Det skyldes, at elektronen oplever et særligt dybt potential omkring denne ion, hvis ladning jo kun modsvares af tre elektronladninger fra de udstrakte tilstande. Energien af en sådan "donor-tilstand" antages at ligge i nederste halvdel af båndgabet /ref. /.

De øvrige elektroner vil ikke befinde sig i et fuldstændigt periodisk potential, fordi den lokaliserede tilstand hæver potentialet i området omkring den fri binding. Se fig.2.36A. Beregninger på et

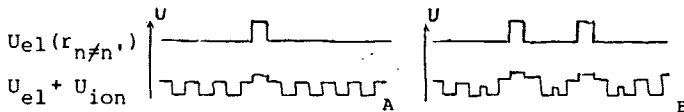


Fig.2.36. Potentialmodel for A: en krystalstruktur med en fri binding, B: en amorf struktur med frie bindinger. Elektronerne ved de frie bindinger (n') hæver potentialet på de øvrige elektroner, $U_{el}(r_{n \neq n'})$, lokalt.

sådant potential med en enkelt afvigelse viser, at tilstanden med den højeste energi i hvert energibånd i den tilsvarende perfekte krystal ændres til en lokaliseret tilstand med højere energi, når afvigelsen, V , er positiv som i fig.2.3 A. Hvis afvigelsen er negativ, ændres den nederste tilstand i hvert bånd til en lokaliseret tilstand med lavere energi. Jo større afvigelsen, $|V|$, er, jo større er ændringen i energi. Se fig.2.37.

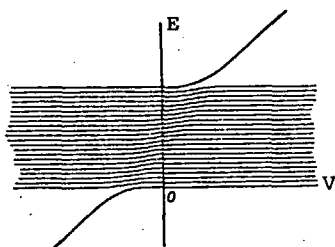


Fig.2.37. Energibånd for en simpel tredimensional potentialmodel (periodisk potential med en isoleret defekt) som funktion af defektopotentialets afvigelse, V , fra det perfekte potential. Afhængigt af fortegnet på V udskilles enten tilstanden med den største eller den mindste energi fra det quasi-kontinuerte bånd. Den udskildte tilstand er rumligt lokaliseret i omegnen af defekten. De tilbageblevne udstrakte båndtilstande forskydes kun ganske lidt i energi. (Kilde: Madelung.)

Den frie binding forårsager altså endnu en lokaliseret tilstand.

I tilfældet med det ikke-kontinuerte uordnede netværk må de frie bindinger have den samme effekt. Men til forskel fra krystalstrukturen med frie bindinger vil energierne af de lokaliserede tilstande være fordelt på grund af uorden i gitteret.

Mott (ref. 9) har foreslået nedenstående model, hvis væsentligste antagelser er at: "A dangling bond can provide a donor below the middle of the gap and an acceptor above it; but the disorder, and particularly random fields due to charged cavities, gives a range of energies for both, so that the two bands overlap, and some dangling bonds acquire a positive and some a negative charge. In this sense the model is like the CFO model. The density of states is illustrated in Fig.; $g(E_F)$ is finite and the Fermi energy is "pinned"."

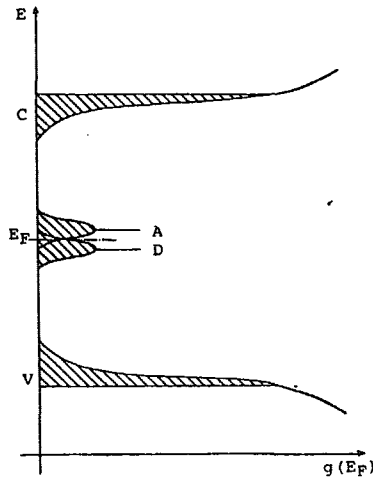


Fig.2.38. " Density of states in amorphous semiconductors in revised model, with dangling bonds at vacancies. V is the valence band, C the conduction band, D are deep donor states due to neutral dangling bonds, A acceptors produced by double occupation." /ref.9 /. Figuren er taget fra ref.11.

Denne model er almindeligt anderkendt (ref.11) og ifølge Adler (ref.2) taler man om, at Fermi-energien er "pinned" "in the sense that conductivity would be quite insensitive to substitutional doping or injection of the excess carriers".

2.3 Elektrontransport i amorfe halvledere.

I indledningen demonstrerede vi en måde at anskue problemet om elektrontransport på, idet vi påstod, at ledningsevnen er proportional med antallet af ladningsbærere og disses mobilitet. Sprogligt set er denne påstand vel altid korrekt. Et systems evne til at transportere kan altid antages at afhænge af nogle "transportører" og deres evne til at bevæge sig. Problemet er altså ikke hvorvidt opfattelsen er korrekt, men snarere om den er hensigtsmæssig, om man kan "komme igennem" til en brugbar model.

Bestemmelsen af antallet af ladningsbærere, N , er uproblematisk:

$$N = \int_0^{\infty} g(E) \cdot f(E) \cdot dE .$$

Det er straks vanskeligere at opstille et udtryk for mobiliteten. Alt hvad vi ved om mobiliteten er, at den er nul i dobbelt besatte udstrakte tilstande og, at den er større i enkelt besatte udstrakte tilstande end i lokaliserede tilstande. Det første har vi argumenteret for teoretisk, det andet kan blot tages som en eksperimentel kendsgerning. Altså afhænger mobiliteten af en elektron, u , i hvert fald af hvilken tilstand den befinder sig i og dermed hvilken energi den har.

$$\mu = \mu(E) .$$

Bidraget til ledningsevnen fra en enkelt elektron, $\Delta\sigma$ er givet ved: $\Delta\sigma = e \cdot \mu(E)$ og den samlede ledningsevne kan derfor skrives:

$$(22) \quad \sigma = e \int_0^{\infty} \mu(E) \cdot g(E) \cdot f(E) dE ,$$

hvor e er elektronens ladning.

Teori om diffusion kan give os et udtryk for mobiliteten både i lokaliserede og udstrakte tilstande, men det kræver, at der gøres nogle antagelser. Motts beregning af ledningsevnen i lokaliserede tilstande bygger på en sådan diffusionsmodel.

Beskrivelsen af elektrontransport kan også foretages i andre termer end "mobilitet". Efter gennemgangen af Motts beregning skitseres en elektrisk - netværk model for ledning via lokaliserede tilstande, hvor man istedet for at fokusere på mobiliteten af hver elektron, fokuserer på ledningsevnen mellem hver af de lokaliserede tilstande.

2.3.1 Ledningsevnen beskrevet ved diffusion.

2.3.1.1 Mobiliteten.

Elektronernes mobilitet kan udledes af fluktuationsdissipationsteoremet, der giver følgende sammenhæng mellem fluktuationskvadratet, x^2 , og krybefunktionen, $J_m(t)$. Krybefunktionen angiver positionen af en partikkel som funktion af tiden pr. enhed af en påtrykt kraft virkende på partiklen.

$$(23) \quad \langle x^2 \rangle = 2k_B T \cdot J_m(t).$$

Ved simpel diffusion, det vil sige når diffusions-fluxen er proportional med koncentrations-gradienten af den diffunderende substans (i vores tilfælde elektroner) gælder:

$$(24) \quad \langle x^2 \rangle = 2D \cdot t,$$

og dermed ved kombination af (23) og (24):

$$J_m(t) = \frac{D \cdot t}{k_B T}.$$

Den mekaniske konduktans, det vil sige hastigheden af en elektron pr. enhed af den påtrykte kraft, $Y_m(t)$, er:

$$Y_m(t) = \frac{\delta J_m(t)}{\delta t}.$$

Den påtrykte kraft hidrører i vores tilfælde fra et elektrisk felt, $\bar{\xi}$, og har størrelsen $e \cdot \xi$, hvorfor elektronens hastighed i $\bar{\xi}$ -feltets retning, v , er:

$$v = e \cdot \xi \cdot Y_m(t) = e \cdot \xi \cdot \frac{D}{k_B T}.$$

Og da mobiliteten er defineret ved: $\mu = v/\xi$ fås:

$$\mu = \frac{e \cdot D}{k_B T}.$$

I de ubesatte tilstande kan elektronernes bevægelse beskrives ved bølgepakker, som af og til spredes på grund af uorden i gitteret. Jo tættere tilstanden er på mobilitetskanten E_C , jo kortere er middelflyvetiden, γ . Ifølge Madelung er den middelfri vejlængde, L , for tilstande ved mobilitetskanten sammenlignelig med afstanden til nærmeste nabo og her er diffusionskonstanten givet ved

$$D = \frac{L^2}{6\gamma},$$

hvilket giver mobiliteten:

$$\mu(E_C) = \frac{eL^2}{6k_B T}.$$

Vi skal ikke gå nærmere ind i diskussionen af mobiliteten i de udstrakte tilstande. Til vores formål er det nok at konstatere, at mobiliteten i de udstrakte enkelt besatte tilstande er meget større end i de lokaliserede.

2.3.1.2 Mobiliteten i lokaliserede tilstande.

Diffusionskonstanten for diffusion ved hop mellem bestemte lokaliserede tilstande kendes i det tilfælde, hvor længden af hoppene, R_0 , er konstant:

$$D = P_0 R_0^2 .$$

P_0 er sandsynligheden pr. tidsenhed for at elektro-
nen hopper (P_0 kan altså være større end 1). Under antagelse af, at hoplængden og hopsandsynligheden er konstante, fås altså følgende udtryk for mobiliteten:

$$(25) \quad \mu = \frac{e P_0 R_0^2}{k_B T} .$$

Hopfrekvensen P .

Sandsynligheden pr. tidsenhed for hop måles ved antallet af hop pr. tidsenhed. Fremover bruges begrebet derfor synonymt med "hopfrekvensen" eller blot "sandsynligheden for hop".

Sandsynligheden, P_{ij} , for at en elektron hopper fra en tilstand, i , med energien E_i til en anden tilstand, j , med energien E_j , er givet ved:

$$(26) \quad P_{ij} = f(E_i) (1-f(E_j)) p_{ij} ,$$

hvor f er Fermi - Dirac fordelingsfunktionen. $f(E_i)$ giver sandsynligheden for, at i er besat. $(1-f(E_j))$ er sandsynligheden for, at tilstanden j er ubesat

og P_{ij} er sandsynligheden (pr. tid) for, at der sker et hop fra i til j under forudsætning af, at i er besat og j er ubesat.

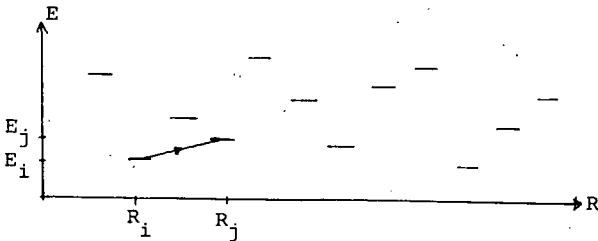


Fig.2.39. Lokaliserede tilstande fordelt i energi og rum. Pilen illustrerer et hop fra tilstanden i til tilstanden j . (\bar{R}_i, E_i) og (\bar{R}_j, E_j) er position og energi af de to tilstande.

P_{ij} bestemmes af tre forhold:

Tunnelingsandsynligheden. Elektronerne tilbagelægger afstanden $R = |\bar{R}_j - \bar{R}_i|$ ved tunneling. Den faktor, som bestemmer tunnelingsandsynligheden, er overlap-pet af de to tilstandes bølgefunktioner. Den simpleste model for bølgefunktionen svarende til en lokaliseret tilstand er en funktion, der aftager fra centret proportionalt med $\exp(-|r - R_i|/\lambda)$, hvor lokaliseringslængden, λ , er et mål for tilstandens udstrækning. Hvis den antages at være ens for de to tilstande, er tunnelingsandsynligheden proportional med $\exp(-2R/\lambda)$.

Fononerne. En elektron kan kun skifte energi ved at vekselvirke med gitteret. Hvis energiforskellen, W_{ij} , er positiv, det vil sige $W_{ij} = E_j - E_i > 0$, modtager elektronen energi fra gittersvingningerne og hvis $W_{ij} < 0$ afgiver den energi. Energien af gittersvingningerne er kvantiseret og et kvant kaldes en fonon. Den tidslige middelværdi, $\langle n(W) \rangle$ af antallet af fononer med energien W i et fast stof i termisk ligevægt er givet ved Planck-fordelingen:

$$\langle n(W) \rangle = \frac{1}{\exp(W/k_B T) - 1} .$$

I grænsen ved tilstrækkeligt lave temperature, $k_B T \ll W$, er middelbesætningstallet givet ved Boltzmann-fordelingen:

$$(27) \quad \langle n(W) \rangle = \exp(-W/k_B T) ; \quad k_B T \ll W .$$

Det antages, at der kun indgår en fonon i vekselvirkningen. (Denne antagelse er ifølge Debye-approximationen, gældende for ikke-polære faste stoffer, gyldig når $W \leq k_B \theta_D$, hvor θ_D er Debyetemperaturen).

Under antagelse af en-fonon processer og $k_B T \ll W$ er p_{ij} , for positive W_{ij} , altså proportional med tunnelingsandsynligheden og antallet af fononer med energien W_{ij} :

$$(28) \quad p_{ij} = p_v \cdot \exp(-2R/\lambda - W_{ij}/k_B T) , \quad W_{ij} > 0 .$$

Elektron - fonon vekselvirkningen. Proportionalitetsfaktoren, p_v , udtrykker vekselvirkningen mellem elektroner og fononer. Den kan kun beregnes, hvis man gør yderligere antagelser om de lokaliserede tilstande og elektron - fonon vekselvirkningen. For positive W_{ij} er p_v blevet bestemt til:

$$p_v = \frac{E_d^2 \cdot A_0^2 \cdot W_{ij}}{\rho_0 s^5 \hbar^4} , \quad W_{ij} > 0$$

hvor E_d er deformationspotentialkonstanten, A_0 er et udvekslingsintegral, ρ_0 er massefylden og s er lydets hastighed.

Når $W_{ij} < 0$ afhænger p_{ij} kun af tunnelingsandsynligheden og elektron - fonon vekselvirkningen:

$$(29) \quad P_{ij} = p_v \exp(-2R/\lambda) , \quad W_{ij} < 0 .$$

Ved sammenligning med formel (28) ses, at sandsynligheden for hop til tilstande med lavere energi er større end sandsynligheden for hop til tilstande med højere energi.

Mott's estimering af p.

Vi har nu to udtryk for P_{ij} : formel (28) for den langsomme proces, hvor W_{ij} er positiv og formel (29) for den hurtige proces, hvor W_{ij} er negativ. Da elektronerne foretager både positive og negative energispring ved deres bevægelse rundt i stoffet, er det de træge hop med positive energispring, der begrænser mobiliteten. Vi vælger derfor formel (28) i den videre undersøgelse af mobiliteten i de lokaliserede tilstande.

Sammenhængen mellem P_{ij} og p_{ij} er givet ved formel (26). Da enten $f(E)$ eller $(1-f(E))$ tilnærmelsesvist er lig nul udenfor et interval af størrelsesordenen $k_B T$ omkring E_F , er det rimeligt at sætte $P_{ij} = 0$ her. For energier indenfor intervallet vil $f(E)(1-f(E))$ tilgængelig være nogenlunde konstant, hvorved P_{ij} bliver proportional med p_{ij} .

$$P_{ij} \approx p_{ij} \quad \text{for } E_i, E_j \in [E_F - k_B T; E_F + k_B T]$$

$$P_{ij} \approx 0 \quad \text{for } E_i, E_j \notin [E_F - k_B T; E_F + k_B T] .$$

P_{ij} afhænger både af R_{ij} og W_{ij} . Hvis diffusionsmodellen, formel (25), skal kunne bruges, må P_{ij} og R_{ij} være konstante for alle i, j . Dette er ikke tilfældet. Mott's løsning på problemet er at finde den optimale hopsandsynlighed, p_0 , og ud fra middel-energispringet, W_0 , (midlet over alle positive W_{ij}) den dertil svarende middel-hoplængde, R_0 . (28) giver da:

$$p_0 = p_{v_0} \exp(-2R_0/\lambda - W_0/k_B T) .$$

Det er kun nødvendigt at studere hopsandsynligheden, p , mellem tilstande indenfor et interval af størrelsesordenen $k_B T$ omkring E_F . Antager man, at tilstandene her er statistisk fordelte både i energi og rum med tætheden af tilstande i radialrummet, $g(R)$, og tætheden af tilstande i energi er konstante:

$$g(R) = \text{konstant}$$
$$g(E) = g(E_F),$$

kan man udlede et tilnærmet udtryk for W_0 som funktion af R_0 :

Antallet af tilstande, N , som en elektron kan hoppe til, er givet ved:

$$N = V \cdot g(E_F) \cdot W_M.$$

Det maksimale energispring, W_M , er af størrelsesordenen $k_B T$.

Antager vi, at elektronen kun kan foretage middelenergispringet W_0 givet ved

$$(30) \quad W_0 = W_M / N,$$

fås følgende sammenhæng mellem W_0 og det betragtede rumfang, V :

$$W_0 = 1 / (g(E_F) \cdot V) .$$

Lader man endvidere rumfanget være givet ved en kugle med radius R og antager, at middelhøplængden, R_0 , svarende til middelenergispringet er lig kuglens radius (skønt der jo i virkeligheden gælder: $0 < R_0 < R$), fås:

$$W_0(R_0) = 3 / (4\pi \cdot R_0^3 \cdot g(E_F)) .$$

Hopsandsynligheden, p , kan hermed skrives som en funktion af R_0 :

$$(31) \quad p_0 = p_{v_0} \cdot \exp(-2R_0/\lambda - 3 / (4\pi \cdot R_0^3 \cdot g(E_F) \cdot k_B T)) .$$

Vi søger nu den middelhøplængde, der giver den maksimale hopsandsynlighed. p_0 har maksimum, når udtrykket i eksponenten, $h(R_0)$, har maksimum. Maksimumspunktet, R_0 , findes ved at sætte differentialkvotienten lig nul:

$$h'(R_0) = -2/\lambda + 9 / (4\pi \cdot g(E_F) \cdot k_B T \cdot R_0^4) = 0 ,$$

hvilket giver

$$(32) \quad R_0 = (9\lambda / (8\pi \cdot g(E_F) \cdot k_B T))^{1/4} .$$

indsat i (31) giver denne værdi:

$$p_0 = p_{v_0} \exp(-(T_0/T)^{1/4}) , \text{ hvor}$$

$$T_0 = 512 / (9\pi \cdot \lambda^3 \cdot k_B \cdot g(E_F)) .$$

Af næste afsnit vil fremgå, at denne eksponentielle afhængighed af temperaturen er afgørende for ledningsevnenes temperaturafhængighed.

2.3.1.3 Ledningsevnen i de lokaliserede tilstande.

Som nævnt er ledningsevnen i almindelighed givet ved:

$$\sigma = e \int_0^{\infty} \mu(E) \cdot g(E) \cdot f(E) \cdot dE.$$

Produktet under integrationstegnet er lig nul udenfor intervallet $I = [E_F - k_B T; E_F + k_B T]$, fordi mobiliteten her er lig nul. Indenfor intervallet I er $\mu(E)$ og $g(E)$ konstante og integralet af $f(E)$ er tilnærmelsesvist proportionalt med $k_B T$:

$$\sigma \approx e \cdot \mu \cdot g(E_F) \cdot k_B T.$$

Ved indsættelse af μ fås:

$$\sigma(T) \approx \sigma_0(T) \cdot \exp(-T_0/T)^{1/4}, \text{ hvor}$$

$$\sigma_0(T) = e^2 \cdot p_{V_0} \cdot (9\lambda \cdot g(E_F) / (8\pi \cdot k_B T))^{1/2}.$$

Dette er Mott-loven.

Elektron - fonon vekselvirkningsleddet for et middelenergispring, p_{V_0} , er en funktion af W_0 og dermed af R_0 og dermed af temperaturen, men der kan argumenteres for, at denne afhængighed er meget svag, hvorfor det fremover regnes for konstant.

Middelhopafstanden, R_0 , aftager når temperaturen stiger (jævnfør formel (32)). Det betyder, at optimeringsproceduren til bestemmelse af R_0 højst kan være gyldig ved temperature der er så lave, at R_0 er større end middelfaststanden til nærmeste lokaliserede nabotilstand, R_N . Denne form kaldes hop over variabel afstand (variable range hopping).

Ved højere temperature er hopafstanden den kortest mulige, det vil sige R_N . Denne form kaldes hop til nærmeste nabotilstand (nearest neighbour hopping) eller hop over fast afstand (fixed range hopping). Antallet af nærmeste nabotilstande er af størrelsesordenen 1, hvorfor middelenergispringet, ifølge formel (30), er cirka lig \bar{W}_M . Da R_N er uafhængig af temperature skrives:

$$p \propto \exp(-2R_N/\lambda - W_M/k_B T) \propto \exp(-W_M/k_B T) ,$$

hvilket medfører:

$$\sigma_b \propto \exp(-W_M/k_B T) .$$

Hop til nærmeste nabo behøver ikke at foregå mellem tilstande omkring E_F . Denne form kan også forekomme mellem tilstande lige under mobilitetskanten (se fig.2.). Hvis E' er middelenergien for lokaliserede tilstande ved mobilitetskanten, og $E' - E_F > k_B T$, er besættelsessandsynligheden tilnærmelsesvist givet ved Boltzmannfaktoren $\exp(-(E' - E_F)/k_B T)$. Lader vi W'_M betegne middelenergispringet mellem nærmeste nabotilstande ved mobilitetskanten fås:

$$\sigma_c(T) \propto \exp(-(E' - E_F + W'_M)/k_B T) .$$

Tager vi for fuldstændighedens skyld ledning i de udstrakte tilstande med, vil der altså, en efter en,

træde fire forskellige former for ledningsevnebidrag i kraft, efterhånden som temperaturen øges:

a) Hop over variabel afstand.

$$\sigma_a(T) = \sigma_{a0} \exp(-(T_0/T)^{1/4}) .$$

b) Hop til nærmeste nabo omkring E_F .

$$\sigma_b(T) = \sigma_{b0} \exp(-W_M/k_B T)$$

c) Hop til nærmeste nabo lige under mobilitetskanten.

$$\sigma_c(T) = \sigma_{c0} \exp(-(E'_F - E_F + W'_M)/k_B T) .$$

d) Ledning i udstrakte tilstande.

$$\sigma_d(T) = \sigma_{d0} \exp(-(E_C - E_F)/k_B T) .$$

Den samlede ledningsevne er lig summen af de fire bidrag, men ved høje temperaturer, hvor σ_d er indtrådt, vil denne være dominerende, fordi mobiliteten i de enkelt besatte udstrakte tilstande er meget større end i de lokaliserede.

Problemer med Mott-loven.

Det faktum, at elektronerne primært hopper mellem tilstande med energier indenfor et interval af størrelsen $k_B T$ omkring E_F , synes at stride mod antagelsen i formel (27) om, at energispringene er større end $k_B T$. Hverken Mott eller Madelung kommenterer dette problem.

Til gengæld har Overhof en kommentar til antagelsen, om at $g(E)$ er konstant, idet han demonstrerer, at man både kan konstruere ikke-konstante fordelinger, der reproducerer en $T^{1/4}$ -afhængighed og fordelinger, der giver andre funktionelle afhængigheder af T !

2.3.2 Ledningsevnen beskrevet ved elektrisk - netværk modeller.

I stedet for at estimere mobiliteten, kan man estimere ledningsevnen mellem hver af de lokaliserede tilstande. Ambegaokar har lavet en sådan model, hvor ledningsevnen alene afhænger af temperaturen, energierne og den indbyrdes afstand mellem tilstandene:

$\sigma_{ij} = \bar{\sigma}_{ij}(R_{ij}, E_i, E_j, T)$. Nærmere bestemt er udgangspunktet for modellen hopfrekvensen mellem to tilstande i og j :

$$P_{ij} = f(E_i) \cdot (1-f(E_j)) \cdot p_{ij}$$

Lige som i Mott's udledning antages: $E_i - E_j > k_B T$, hvorved man får det samme udtryk for p_{ij} :

$$P_{ij} = \begin{cases} p_V \exp(-2R_{ij}/\lambda - (E_j - E_i)/k_B T), & \text{for } E_j > E_i \\ p_V \exp(-2R_{ij}/\lambda), & \text{for } E_j < E_i \end{cases}$$

Der udledes et tilnærmet udtryk, P_{ij}^0 , for hopfrekvensen:

$$(35) \quad P_{ij}^0 = \exp(-2R_{ij}/\lambda - (|E_i - E_i^F| + |E_j - E_j^F| + |E_i - E_j|)/2k_B T),$$

og man finder:

$$\sigma_{ij} = e^2 P_{ij}^0 / k_B T.$$

I princippet kan stoffets ledningsevne herefter bestemmes udfra en model, i hvilken stoffet beskrives som et netværk af knudepunkter, der alle er parvist forbundne af strømveje med forskellige konduktanser. Kirchhoff's love skal da anvendes på hvert eneste knudepunkt i netværket, og den resulterende ledningsevne bestemmes ved det derved fremkomne ligningssy-

stem. Dette er der også gjort flere forsøg på i literaturen. Hovedproblemet er den selvkonsistente beregning af de elektriske potentialer for de enkelte knudepunkter, idet man får et sæt af lineære ligninger, som endda ved hjælp af datamaskiner kun kan løses for et meget begrænset antal knudepunkter. Man er derfor begrænset til at opstille modeller, hvor elektronerne ved lave temperature kan bevæge sig fra den ene elektrode til den anden ved ganske få hop. Der gøres derved ingen ordentlig statistisk midling, hvorved statistisk støj bliver et alvorligt problem. Overhof nævner en sådan todimensional model, der giver en $T^{-1/3}$ -afhængighed, hvilket er i overensstemmelse med en $T^{-1/4}$ -afhængighed i tre dimensioner.

Det ses nu, hvori det problematiske i Mott's antagelse om en middelhoplængde og et middelenergispriug består: σ_{ij} er gennem p_{ij} en stærkt varierende funktion af R_{ij} og W_{ij} . At operere med en middelhoplængde og et middelenergispriug ville derfor svare til at indføre en middelkonduktans mellem hver lokaliseret tilstand. Men i en kæde af vidt forskellige konduktanser er det ikke den individuelle gennemsnitlige konduktans, der derterminerer kädens konduktans, men derimod den minimale individuelle konduktans. Når man beskriver lednings evnen af et stof, skal man derfor snarere søge de mest favorable strømveje gennem stoffet.

Konduktansen mellem to knudepunkter er en stærkt aftagende funktion af afstanden mellem disse, (formel (35)), og de fleste parvise afstande er store i sammenligning med de mindste parvise afstande. Derfor vil der være få store konduktanser i sammenligning med antallet af små konduktanser.

Den mest favorable strømvej kan findes, hvis vi tænker os, at man opbygger netværket i trin, begyndende med de største konduktanser. Da der kun er et lille antal af disse, vil de kun kortslutte knude-

punkterne i få og spredte områder af stoffet. I næste trin med indsættelse af lavere konduktanser, vil de kortsluttede områder øges i antal og omfang. Proceduren fortsættes indtil de kortsluttede områder (pludseligt) danner en strømvej gennem hele stoffet. Konduktansen af denne kritiske vej gennem stoffet bestemmer i det væsentlige stoffets (sampliets) ledningsevne.

Ved den pludselige overgang, hvor der dannes en vej gennem stoffet, siger man, at systemet perkolerer. I almindelighed menes med perkolation bevægelse af en klassisk partikel i et spredningsmedium, som udgøres af tilfældigt fordelte spredningscentre med givne egenskaber. Bevægelsen er således bestemt af mediets egenskaber. Dette er forskellig for diffusion, hvor enhver spredningsproces er statistisk uafhængig af forhistorien for spredningen og den spredtepartikel. Perkolationsteorien er teorien om bevægelse eller flow gennem et sådant random medium, hvor der i dele af dette ikke er adgang for den bevægede entitet, som f.eks. bevægelsen af en flod gennem et bjerglandskab.

Ved anvendelse af perkolationsteori kommer Ambe-gaokar til den samme temperaturafhængighed af ledningsevnen ved lave temperaturer, som er givet i Mott's $T^{-1/4}$ - lov.

De to beregninger på de elektriske netværk lider af den samme svaghed som Mott's udledning af $T^{-1/4}$ -afhængigheden, idet man i begge tilfælde har måttet antage, at energispringene er større end $k_B T$ og, at tætheden af tilstande, $g(E)$, er konstant. Ambe-gaokar regner disse to antagelser for den alvorligste begrænsning i modellernes anvendelighed som fortolkningsgrundlag overfor eksperimentelle data.

Imidlertid findes der ikke mere udviklede modeller og eksperimenter viser faktisk den temperaturafhængighed af ledningsevnen ved lave temperaturer, som Mott-loven forudsiger. Sammen med modellen for tætheden af tilstande i amorft germanium og -silicium, figur 2.38, vil Mott-loven derfor udgøre modelgrundlaget i den videre fremstilling, og det vil blive benyttet, at de tre nævnte fremgangsmåder alle resulterer i:

$$T_0 \propto 1/(\lambda^3 \cdot g(E_F)).$$

Litteratur til kapitel 2.

- 1) Adler, D.: "Amorphous Semiconductors", London 1972, ButterWorths.
- 2) Adler, D.: "Defects in Covalent Amorphous Semiconductors" fra "Fundamental Physics of Amorphous Semiconductors. Proceedings of the Kyoto Summer Institute, Kyoto, Japan, September 8-11, 1980". Editor: Yonezawa, F., Springer-Verlag, Berlin 1981.
- 3) Alonso, M. & Finn, E.J.: "Fundamental University Physics", Addison-Wesley. 4.-oplag 1973.
- 4) Ambegaokar, Hlaperin & Langer: "Hopping Conductivity in Disordered Systems", Physical Review B, vol.4, nr.8, 1971, p.2612.
- 5) Jensen, K. A.: "Almen kemi II". Gjellerups forlag, København 1959.
- 6) Kittel, C.: "Introduction to Solid-State Physics", 4. & 5. udg. John Wiley & Sons, USA 1971.
- 7) Madelung, O.: "Introduction to Solid-State Theory", Springer-Verlag, Berlin 1978.
- 8) Mott, N. F. & Davis, E. A. : "Electronic Processes in Non-Crystalline Materials", Oxford University Press, Belfast 1971.
- 9) Mott, N. F.: "Electrons in Non-Crystalline Materials", fra "Electronic and Structural Properties of Amorphous Semiconductors". Proceedings of the thirteenth Session of Scottish Universities Summer School in Physics. 1972. Edetor: Le Comber, P. G. & Mort, J.
- 10) Overhof, H.: "Hopping Conductivity in Disordered Solids", Festkörperprobleme XVI, 1976p. 239.

- 11) Viscor, P.: "New model for one-electron states in amorphous germanium", Physical Review B, vol. 28, no. 2, 15.7.1983.
- 12) Zallen, R.: "Stochastic Geometry: Aspects of Amorphous Solids" fra "Fluctuation Phenomena", Editors: Montroll, E. W. & Lebowitz, J. L., North- Holland P.C., 1979.

3 STRUKTUREL RELAKSATION OG LEDNINGSEVNE

Dette kapitel behandler strukturel relaksation og sammenhængen mellem den strukturelle relaksation af amorfe halvledere (specielt a-Ge) og den dertil svarende tidslige udvikling af den specifikke ledningsevne.

I det første afsnit (3.1) fremstilles begrebsapparatet for behandling af strukturel relaksation. Den strukturelle relaksation defineres her som det fænomen, at strukturen i alle faste stoffer, som ikke har krystalstruktur, ændres med tiden. Alle stoffer søger at minimere deres fri energi, og den fri energi er erfaringsmæssigt minimaliseret i den krystallinske tilstand.

I de følgende tre afsn. (3.2-3.4) beskrives tre forskellige typer matematiske modeller, der forsøger at beskrive det tidslige forløb af relaksationsprocessen. Modellerne forsøger ud fra forskellige antagelser om de processer, der forårsager strukturel relaksation, at kvantificere mængden af relaksation. Den strukturelle tilstand (defineret i 3.1) anses for at være den størrelse, der relaxerer med tiden. Denne hænger sammen med antallet af defekter (også defineret i 3.1), og antallet af lokaliserede tilstande ved Fermi-energien hænger så igen sammen med antallet af defekter eller fejlsteder. Derfor betegnes disse lokaliserede tilstande også defekttilstande. Endelig er ledningsevnebidraget fra disse lokaliserede tilstande knyttet til koncentrationen af dem. Disse sammenhænge benyttes i opstillingen af relaksationsmodeller og i den eksperimentelle måling af relaksationsprocessens fremadskriden.

Uden at komme nærmere ind på indholdet af relaxationsmodellerne skal det nævnes, at den første model (som præsenteres i afsn. 3.2) opfatter relaxationen forløbende som såkaldt simpel relaxation. Den anden relaxationsmodel (afsn.3.3) er udarbejdet af Theye et al. Endelig er den sidste model (afsn.3.4) en mere kompliceret variant og udarbejdet som en del af det foreliggende eksperimentelle arbejde.

Væsentlige bidrag i den videnskabelige diskussion om problematikken, strukturel relaxation i amorfe halvledere, specielt a-Ge, og den dertil svarende tidslige udvikling af den specifikke ledningsevne, er Longini & Pansino og Theye et al.

Theye et al er den sidste og mest udviklede af disse, hvorfor en diskussion og forholden sig til denne videnskabelige artikel spiller en meget vigtig rolle i dette kapitel om strukturel relaxation og specifik ledningsevne. Denne diskussion og kritik fremstilles i afsn.3.5.

3.1 Klassifikation af strukturer

Dette afsnit har til formål at fremstille begrebsapparatet for den følgende behandling af strukturel relaxsation.

Til en begyndelse defineres det faste stof, som er udgangspunktet. På det makroskopiske plan er et fast stof, et stof der ikke er deformerbart, d.v.s. når dette påtrykkes en kraft, og denne derefter ophører med at virke, vil stoffet vende tilbage til eksakt den form, stoffet havde, inden kraften blev påtrykt. På det mikroskopiske plan er det faste stof defineret ved forholdet mellem to tider. Det iagttagne stof er fast, dersom forholdet mellem de stof-karakteristiske relaxsationstider (d.v.s. gennemsnitlige tider for omplacering af ioner i stoffet) og de karakteristiske undersøgelsestider i laboratoriet er meget større end 1. Og dette er per definition tilfældet for temperaturer under glastemperaturen for stoffet.

Strukturen i et fast stof er fuldstændigt beskrevet ved gitterpunkternes positioner. Gitterpunkterne er de punkter, hvorom ionerne vibrerer. Enhver kvalitativt forskellig konfiguration af stoffets gitterpunkter betegner en særlig strukturel tilstand af stoffet. Det faste stofs strukturelle tilstand kan være enten krystallinsk eller amorf. Krystalstrukturen er kendetegnet ved et periodisk gitter af ioner. Et sådant periodisk gitter af ioner karakteriseres i teorien af translationsinvarians. For et tænkt gitter med translationsinvarians findes der vektorer, der fører hele gitteret over i sig selv. Vektorerne kan f.eks. være de mindstevektorer, der udspænder den stofkarakteristiske enhedscelle.

Krystalstrukturen er også kendetegnet ved fjernorden. Med fjernorden menes den regulære placering af

ioner over adskillige gitterafstande taget som et gennemsnit i stoffet.

Amorf stofstruktur er enhver struktur, der ikke er krystallinsk. I den amorfe stofstruktur forekommer ingen periodicitet.

Nærorden er dog almindeligt forekommende i amorfe stoffer. Med nærorden menes den regulære placering af ioner over nogle få gitterafstande taget som et gennemsnit i stoffet.

Amorfe faste stoffer er uordnede stoffer. Der findes imidlertid forskellige former for afvigelse fra krystalstrukturen. Derfor klassificeres sådanne forskellige former for uorden i det følgende.

Til klassifikation af uorden ses der nærmere på nedenstående figur (fig.3.1) med to-dimensionale gittere, hvorpå prikkerne beskriver gitterpunkter, hvorom ionerne vibrerer, og stregerne bindingerne, d.v.s. de orbitaler som valenselektronerne i valensbåndet befinder sig i.

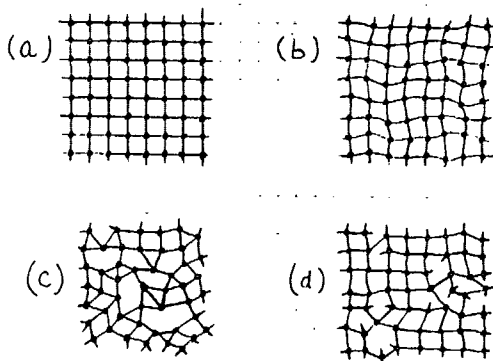


Fig.3.1. Mulige former for gitter-uorden: (a) krystallinsk fjernorden. (b) positionel uorden. (c) topologisk (og positionel) uorden. (d) positionel uorden med frie bindinger.

På fig.a ses et gitter af ens atomer. Gitteret karakteriseres ved krystallinsk fjernorden, og dermed er koordinationsstallet, d.v.s. antallet af nærmeste-nabo atomer, ens for alle atomer (der ses her og i det følgende bort fra randeffekter på figurerne).

På fig.b betragtes et eks. på positionel uorden. Her ses de samme atomer, som udgjorde fig.a's gitter. Den geometriske opbygning af nærmeste-nabo atomer er dog statistisk forstyrret.

På fig.c er gitteret ikke blot i positionel uorden, men også i topologisk uorden, eftersom selve gitter-topologien heri er blevet berørt. På fig.a og b forekommer udelukkende 4-atomer-ringe, mens man på fig.c kan finde yderligere såvel 3-og 5- som 6-og 7-atomer-ringe. Denne uorden (afvigelse) i antallet af atomer, der danner ringe i stoffet, er karakteristisk for amorfe stoffer.

På fig.d ses, at den positionelle uorden optrædende på fig.b og c er blevet så udtalt, at bindingerne ikke i alle tilfælde kan tilfredsstilles, og såkaldte dangling bonds opstår. Disse benævnes her frie bindinger. Ligeledes opstår der med disse lokale fejl uorden svarende til vakancer (ikke-besatte gitterpositioner) i det krystallinske gitter. Det kan tænkes, at amorfe halvledere såsom a-Ge er karakteriseret ved frie bindinger.

Frie bindinger er et eks. på gitter-defekter. Gitter-defekter vil vi foreløbig definere som så relativt store lokale afvigelser i gitter-potentialet, at der opstår defekt-tilstande, d.v.s. tilstande midt i båndgabets. Senere i rapporten vil vi komme nærmere ind på den fysiske tolkning af defekter i et amorft gitter.

3.1.1 Struktur og strukturel relaxation

Strukturel relaxation er betegnelsen for det fænomen, at strukturen i alle faste stoffer, som ikke har krystalstruktur, ændres med tiden.

Den teoretiske forklaring på dette fænomen er, at ethvert stof vil søge at minimalisere sin fri energi. Og den fri energi er erfaringsmæssigt minimaliseret i stoffets krystalstruktur. Minimaliseringen af fri energi sker for stoffet bl.a. ved, at dets potentielle energi i gitteret mindskes. Processen (strukturel relaxation) forekommer i amorfe faste stoffer, der har relativt stor potentiel energi i gitteret.

En beskrivelse af sammenhængen mellem et fast stofs amorfe og krystallinske struktur og potentielle energi i gitteret ser sandsynligvis kvalitativt ud som på flg. diagram.

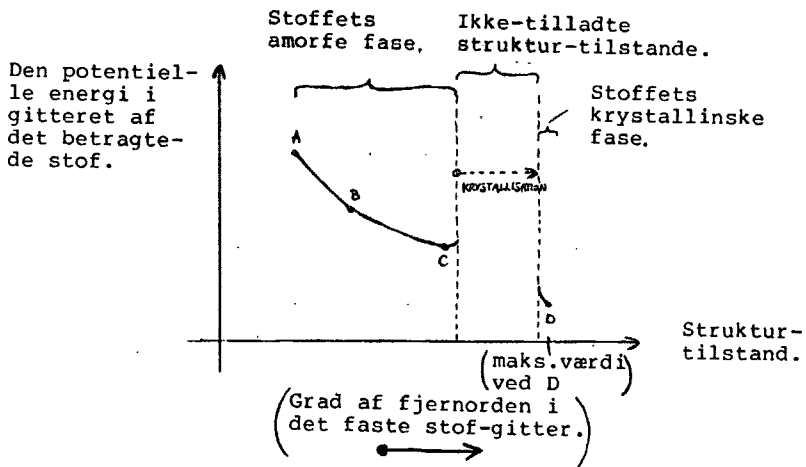


Fig.3.2. Skitse af sammenhængen mellem et fast stofs amorne og krystallinske struktur og potentielle energi i gitteret.

Diagrammet (fig.3.2) kan læses i et tidsligt billede, hvor man til et begyndelsestidspunkt, t_0 , ved A har en eksempelvis nydannet stofstruktur med en meget ringe grad af fjernorden i strukturen - en amorf stofstruktur med en dertil hørende relativt stor potentiel energi i gitteret.

Ved B betragtes til et senere tidspunkt $t_1 > t_0$, det samme stof, der p.g.a. termiske fluktuationer, som har leveret aktiveringenergien til strukturændringen, nu har en højere grad af fjernorden og en mere lavenergetisk strukturtilstand end ved A.

Ved C til $t_2 > t_1$ har stoffet opnået en metastabil amorf struktur, som er relativt lavenergetisk og ordnet, og som stoffet vil forblive i, dersom en tilstrækkelig aktiveringsenergi ikke er tilstede. Hvis denne aktiveringsenergi er tilstede, gennemløber stoffet krystallisationsprocessen, og den potentielle energi i gitteret er da minimaliseret ved D. På de enkelte atomers niveau er denne krystallisationsproces skitseret i den flg. fig.(3.3). I denne befinder atomet sig ved A i en tilstand svarende til at være placeret i den metastabile amorfe struktur. Ved tilstedeværelse af aktiveringsenergien, der giver atomet skubbet over energibarrieren mellem tilstand A og B, bringes atomet på plads i krystallen i B med minimal potentiel energi i gitteret.

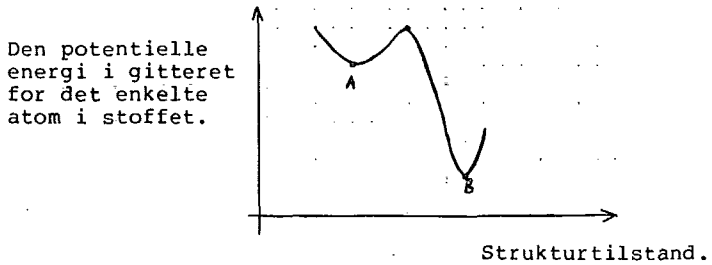


Fig.3.3. Skitse af den potentielle energi i gitteret for et enkelt atom i det faste stof som funktion af strukturtilstandene i forbindelse med krystallisation.

3.1.2 Relaksationsmekanismer

Relaksationsmekanismerne er de mikroskopiske processer, der foregår på det enkelte atoms niveau, og som betragtet over hele stoffet giver sig udslag i den strukturelle relaksation for hele stoffet, sådan som beskrevet i det foregående afsnit (3.1.1).

For at beskrive sådanne processer iagttages fig.3.1. Det antages, at den potentielle energi i gitteret af de enkelte strukturer bestående af ens atomer i a, b, c og d er mindst i struktur a, er vokset i b og vokset yderligere i c for endelig at være størst i d. Man kan tænke sig fig. kvalitativt skelnelige relaksationsprocesser forløbe ved struktur b's overgang til a, c's til b og d's til c:

Under den strukturelle relaksation ved struktur c's overgang til b sker der betydelige ændringer i positionerne af gitterpunkterne. Disse ændringer er så markante, at bindinger både brydes og knyttes under processen. Denne relaksationsproces er den nævnte krystallisationsproces for det betragtede stof, da b kun er svagt perturbet i forhold til krystalstrukturen i a.

Den strukturelle relaxationsproces forløbende fra b til a eksisterer sandsynligvis slet ikke. Hvis struktur b faktisk eksisterede, ville den øjeblikkeligt falde på plads i krystalstrukturen a. Faktisk kan man forestille sig struktur b som en krystal fastfrosset i et øjebliksbillede ved en endelig temperatur, hvis man lader prikkerne symbolisere ioner istedet for gitterpunkter.

Om struktur d's overgang til c skal bemærkes, at denne sandsynligvis ikke er nødvendig, men overspringes, i forbindelse med krystallisation. Er aktiveringsenergien (for krystallisation) tilstede, går struktur d direkte over i a.

Efter denne præsentation af begrebsapparatet for behandlingen af strukturel relaxation, skal vi i de flg. afsn. beskæftige os med opstillingen af forskellige matematiske modeller til beskrivelse af strukturel relaxation.

3.2 Simpel relaxation

Som et første forsøg på en matematisk beskrivelse af strukturel relaxation, skal simpel relaxation behandles. Denne behandlings endelige matematiske udtryk er formel 1c. Årsagen til at denne model behandles først er, at den på forskellig måde er det idemæssige grundlag for de to øvrige relaxationsmodeller, der behandles længere fremme i teksten. Denne relaxationslov er særlig enkel og kendes også inden for andre fysiske discipliner. F.eks. bruges den til at beskrive afladningen af en kondensator over en modstand og til at beskrive radioaktivt henfald. Der er altså tale om en model af mere generel karakter, hvorimod de relaxationsmodeller, der beskrives senere, har mere speciel karakter.

Som allerede nævnt er antallet af defekter i den amorge struktur nært forbundet med dennes strukturelle tilstand. Der skal nu opstilles en simpel relaxationsmodel for den tidslige udvikling af antallet N_d af defekter i det amorge gitter. Først skal de fysiske grundantagelser for modellen fremsættes.

Givet et antal N_{d0} delsystemer af det samlede relaxerende amorge system. Disse kan hver især enten befinde sig i tilstand I eller tilstand II. Tilstand I er karakteriseret ved at være den urelaxerede tilstand af det enkelte delsystem, hvilket svarer til en ikke-elimineret defekt. Tilstand II er den relaxerede tilstand, hvilket svarer til en elimineret defekt. Den relaxerede tilstand er yderligere karakteriseret ved at være relativt lavenergetisk og delsystemets ligevægtstilstand, som illustreret i nedenstående potentialdiagram (fig.3.4) for det enkelte delsystem.

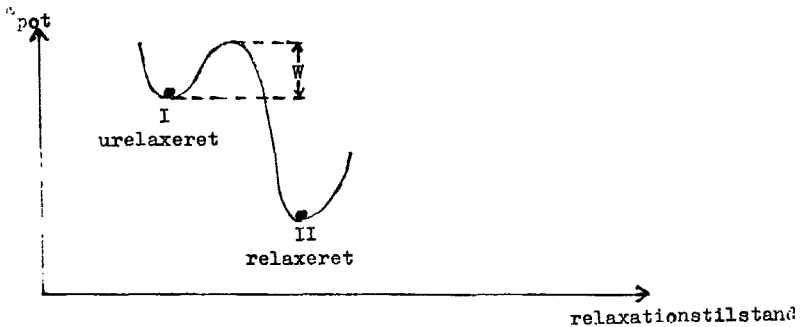


Fig.3.4.

Som illustreret i fig.3.4 gælder der således også, at højden af potentialbarrieren over I er energien W . Det totale antal defekter til tiden $t=0$ er lig med antallet af delsystemer N_{d0} . N_d er som nævnt antallet af defekter til tiden t , d.v.s. antallet af delsystemer i tilstand I til tiden t . N_{dL} er antallet af defekter i tilstand I ved ligevægt af det samlede system. .

Det antages yderligere, at relaxsationerne i de enkelte delsystemer er statistiske processer, således at der er en bestemt given sandsynlighed for relaxsation pr. tid. For at kunne se bort fra statistiske udsving skal det antages, at vi betragter så store værdier af N_{d0} , at N_{d0} kan betragtes som uendelig stor.

Hvis antallet af relaxserede defekter i tidsrummet dt er $-d(N_d - N_{dL})$, så må dette antal være proportionalt med den samlede afvigelse $N_d - N_{dL}$ fra ligevægt, samt med det infinitesimale tidsrum dt . Proportionalitetsfaktoren er da relaxsationssandsynligheden $1/\tau$, som er defineret som antal eliminerede defekter pr. tid pr. ikke-elimineret defekt. Herved bliver τ systemets tidskonstant. Matematisk formuleret resulterer dette i flg.:

$$(o) \quad d(N_d - N_{dL}) = -\frac{1}{\tau} (N_d - N_{dL}) dt \Rightarrow$$

$$\int_{N_{d0} - N_{dL}}^{N_d(t) - N_{dL}} \frac{d(N_d - N_{dL})}{N_d - N_{dL}} = - \int_0^t \frac{dt}{\tau} \Rightarrow$$

$$N_d(t) = (N_{d0} - N_{dL}) \exp(-t/\tau) + N_{dL}$$

Da $\lim_{t \rightarrow \infty} (N_d(t)) = N_{dL}$, sætter vi $N_{dL} = N_{d\infty}$, og så fås det endelige udtryk for antallet af defekter til tiden t :

$$(1a) \quad N(t) = (N_{d0} - N_{d\infty}) \exp(-t/\tau) + N_{d\infty}$$

Der skal nu udarbejdes en model over relaxations sandsynlighedens, $(1/\tau)$'s, afhængighed af temperaturen T og det enkelte delsystems karakteristika. Relaxations sandsynligheden er som nævnt antallet af relaxerede defekter pr. tid pr. defekt. Hvad angår antallet af relaxationsforsøg pr. tid pr. defekt, må dette være nært forbundet med det amorfes gitters termiske svingninger, således at antallet af relaxationsforsøg pr. tid pr. defekt, $1/\tau_0$, bliver af samme størrelsesorden som fononfrekvenser: 10^{12} Hz. Idet vi betragter fig. 3.4, vil strukturen da svinge lokalt i den øverste potentialdal (I) omkring bundpositionen. Antallet af forsøg på at overskride energibarrieren for at nå delsystemets ligevægtstilstand (II), d.v.s. forsøg på relaxation pr. tid pr. ikke-elimineret defekt antages at være Boltzmann-fordelt m.h.t. energi i forhold til bundpositionen (I). Antallet af forsøg, der når toppen af energibarrieren, pr. tid pr. ikke-elimineret defekt, d.v.s. relaxations sandsynligheden, kan derfor skrives som flg. produkt:

$$(1b) \quad \frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} \exp(-W/k_B T)$$

, hvori T er det samlede systems temperatur, og W er højden over I af energibarrieren. Relaxationsprocessen er således termisk aktiveret. Ved indsættelse af 1b i 1a fås det resulterende udtr. for den tidlige udvikling af antallet af defekter beskrevet ved simpel relaxation:

$$(1c) \quad N_d(t) = (N_{do} - N_{doo}) \exp(-t/(\tau_o \exp(\frac{W}{k_B T}))) + N_{doo}$$

Endelig skal det trækkes op og gentages, at den her skitserede model for simpel relaksation udgør en væsentlig del af det idemæssige grundlag for de næste to modeller, som præsenteres i afsn.3.3 og 3.4.

3.3 Theye et al's relaksationsmodel

Indledningsvis skal det siges, at væsentlige resultater i opstillingen af Theye et al's relaksationsmodel er differentiaalligningerne 3a og 4b og løsningerne 3b og 4d. Disse resultater vil blive udledt og diskuteret i det følgende. En egentlig kritik af relaksationsmodellen vil blive givet i slutningen af kapitlet (afsn.3.5).

Theye et al undersøger den spontane relaksation af en amorf Ge-film dannet ved stuetemperatur, $T_s = 293^\circ\text{K}$, uden at temperaturen ændres under relaksationsforløbet. Det viser sig ved måling, at den specifikke ledningsevne aftager med tiden. Faldet i specifik ledningsevne opfattes som udtryk for at antallet af defekter løbende reduceres under relaksationsprocessen. Baggrunden for denne antagelse hos Theye et al er, at for amorfe Ge-film, som undersøges for specifik ledningsevne ved T_s , er den specifikke ledningsevne stadig domineret af lavtemperaturprocessen for elektrontransport. D.v.s. transport ved hop mellem lokaliserede tilstande i pseudogabet. Dette ledningsevnebidrag antages at være proportionalt med en eller anden potens af tætheden af tilstande i energigabet. Da de lokaliserede tilstande i energigabet i det væsentlige opfattes som

relateret til tilstedeværelsen af defekter i det amorge netværk, fortolkes en aftagen $\Delta\sigma$ i specifik ledningsevne groft som forårsaget af en reduktion ΔN_d af antallet af defekter (Theye et al, s.304).

Yderligere antages det, at den specifikke ledningsevne ved en given varmebehandlingstemperatur T_a , med tiden nærmer sig en grænseværdi $\sigma_{\infty}(T_a)$, som således er en funktion af T_a . Denne grænseværdi er udtryk for, at den amorge struktur har relaxeret gennem thermodynamisk ustabile tilstande med et stadigt aftagende antal defekter til en mere stabil grænsetilstand med det mindste antal $N_{d\infty}(T_a)$ defekter ved temperaturen T_a .

Iflg. Theye et al viser det sig ved betragtning af måledata, at funktionen $\sigma_{\infty}(T_a)$ er en aftagende funktion indtil en vis værdi T_{as} , over hvilken den specifikke ledningsevne forbliver konstant $\sigma_{\infty s}$ indtil temperaturer opnås, hvor krystallisation finder sted, og den amorge fase derfor forlades. Dette fortolkes således: Ved relativt lave $T_a < T_{as}$ er grænsetilstanden af den amorge struktur kvasimetastabil m.h.t. den krystallinske tilstand. Over T_{as} og under de temperaturer, hvor krystallisation finder sted, relaxerer det amorge gitter mod en såkaldt sand metastabil tilstand givet ved at den specifikke ledningsevne er konstant $\sigma_{\infty s}$ i tid (Theye et al, s.304-306 og 311-312).

Vi vil tillægge Theye et al's relaxationsmodel fysisk mening ved at fortolke den i termer af den allerede beskrevne model for den simple relaxationsmekanisme. Hvis $N_d(t)$ og $N_{d\infty}$ er antallet af defekter til henholdsvis tiden t og uendelig tid for given T_a , så bliver den grundlæggende differential-ligning som ligning o:

$$(2a) \quad \frac{d(N_d(t) - N_{d\infty})}{dt} = - \frac{1}{\tau(t)} (N_d(t) - N_{d\infty})$$

,hvor $\tau(t)$ er en tidsafhængig tidskonstant. Ud fra denne ligning vil vi udlede Theye's grundlæggende differentiaalligning for den specifikke ledningsevnes tidsafhængighed (ligning 2b) v.h.a. de allerede gjorte grundantagelser om sammenhængen mellem specifik ledningsevne, tætheden af tilstande i pseudogabet og antallet af defekter. Hvis $\sigma(t)$ og σ_{∞} er den specifikke ledningsevne ved en given varmebehandlingstemperatur T_a for henholdsvis tiden t og uendelig tid, og c er en given potens, vil vi fortolke Theye et al således, at de antager flg. proportionalitet, idet k er konstant:

$$\sigma(t) - \sigma_{\infty} = k(N_d(t) - N_{d\infty})^c$$

Ved indsættelse af denne i ovenstående grundlæggende differentiaalligning fås

$$(2b) \quad \frac{d}{dt} \left(\frac{\sigma(t) - \sigma_{\infty}}{\sigma_0 - \sigma_{\infty}} \right) = -\frac{1}{\tau/c} \frac{\sigma(t) - \sigma_{\infty}}{\sigma_0 - \sigma_{\infty}}$$

,hvor τ er en tidsafhængig tidskonstant for relaxationen af defekter. Hvis værdien af potensen c ikke kendes, bliver det således umuligt at bestemme tidskonstanten τ ud fra kendskab til tidsafhængigheden af den specifikke ledningsevne. Derfor vil vi fremover som forenkling erstatte τ/c med τ , idet vi underforstår c .

Theye et al skelner mellem to tidslige udviklingsstadier af relaxationsprocessen, som følger forskellige mekanismer. Disse to forskellige relaxationsmekanismer udtrykkes ved henholdsvis en konstant og en tidsafhængig τ . Den første relaxationsmekanisme følges iflg. Theye et al i intervallet 1-100 min., og den tilsvarende målekurve beskrives ved formlerne 4a og 4b. Den anden relaxationsmekanisme følges for $t > 400$ min., og måledata beskrives ved formel 3b.

I et $(t, \ln((\sigma - \sigma_{\infty}) / (\sigma_0 - \sigma_{\infty})))$ -diagram ser måledata således ud:

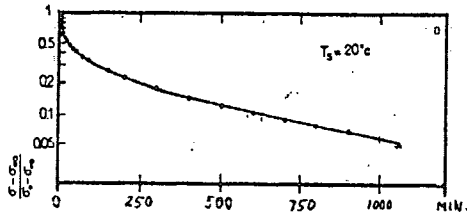


Fig.3.5. Variation af størrelsen $(\sigma - \sigma_{\infty}) / (\sigma_0 - \sigma_{\infty})$ med tiden t for en amorf Ge-film (tykkelse 415 Å, $T = 393^{\circ}\text{K}$, pådampningshastighed $V_s = 3\text{Å/s}$). /Theye et al, fig.4a, s.308/

For store tidsværdier $t > 400$ min. er kurven lineær i dette diagram. Dette giver en løsningsfunktion til 2b, som svarer til en konstant værdi af τ . Idet vi sætter $\sigma_r(t) = (\sigma(t) - \sigma_{\infty}) / (\sigma_0 - \sigma_{\infty})$, kan vi opskrive den pågældende differentiaalligning og den deraf afledte løsning:

$$(3a) \quad \frac{d}{dt}(\sigma_r(t)) = -\frac{\sigma_r(t)}{\tau}$$

$$(3b) \quad \sigma_r(t) = \exp(-t/\tau)$$

Den reciproke tidskonstant er givet af hældningen $-1/\tau$, hvorved tidskonstanten $\tau = 7.25 \cdot 10^2$ min. Theye et al antager, at relaxationsprocessen er termisk aktiveret med en konstant aktiveringsenergi W , hvorved tidskonstanten afhænger af T_a på følgende måde:

$$(3c) \quad \tau = \tau_0 \exp(W/k_B T_a)$$

Theye et al foreslår således simpel relaxation for store tidsværdier $t > 400$ min., da 2a og 3c svarer til o og 1b for konstant τ .

I intervallet fra 1-100 min. krummer målekurven voldsomt i (t, \ln) -diagrammet og antages at følge en mekanisme, som adskiller sig fra simpel relaxsation ved, at aktiveringsenergien W er proportional med mængden af relaxsation i det amorge system. D.v.s. jo mere strukturen er relaxseret, jo trægere forløber relaxsationsprocessen. Theye et al foreslår en mekanisme, som går ud på, at relaxsationsprocessen forløber trægere og trægere, efterhånden som defekter i det amorge gitter elimineres. Dette kan finde sted, hvis den strukturelle relaxsation skrider fremad ved den kollektive bevægelse af et antal naboatomer over meget korte afstande. Sådant en proces vil blive vanskeligere og vanskeligere, jo flere atomer, som har opnået en position og et koordinationstal, som tenderer mod at minimere den frie energi lokalt. Disse kollektive atomare omstruktureringer kan f.eks. forandre forvrængningen af de elementære tetraeder og deres relative orientering samt forandre middelkoordinationstallet, idet der elimineres frie bindinger, ved at der dannes nye virkelige bindinger eller såkaldte svage eller lange bindinger (Theye et al, s.309).

Idet mængden af relaxsation opfattes som givet ved $\Delta\sigma = \sigma_0 - \sigma(t)$, og c_1 er en proportionalitetskonstant, kan den tidsafhængige tidskonstant for 1-100 min. skrives som:

$$\tau(t) = \tau_0 \exp(c_1(\sigma_0 - \sigma(t))/k_B T_a)$$

Idet vi nu erstatter τ/c i differentialligningen 2b med ovenstående tidsafhængige tidskonstant fås differentialligningen for 1-100 min.:

$$(4a) \quad \frac{d}{dt} \frac{\sigma(t) - \sigma_\infty}{\sigma_0 - \sigma_\infty} = -\frac{1}{\tau_0} \frac{\sigma(t) - \sigma_\infty}{\sigma_0 - \sigma_\infty} \exp(-c_1(\sigma_0 - \sigma(t))/k_B T_a)$$

Ved at definere en temperaturafhængig konstant α , en ny tidskonstant τ_e og en relativ tid t_r kan ligning 4a omformes til en dimensionsløs differential-ligning.

$$\alpha = c_1 \frac{\sigma_0 - \sigma_\infty}{k_B T_a} \quad , \quad \tau_e = \tau_0 \exp(\alpha) \quad , \quad t_r = t/\tau_e$$

Idet $\sigma_r(t_r) = (\sigma(t) - \sigma_\infty) / (\sigma_0 - \sigma_\infty)$ bliver den dimensionsløse differentialligning:

$$(4b) \quad \frac{d\sigma_r(t_r)}{dt_r} = -\sigma_r(t_r) \exp(\alpha \sigma_r(t_r))$$

Ligning 4a retfærdiggøres ved at funktionen

$$(4c) \quad \sigma(t) = A \ln(t/\text{min}) + B$$

,hvor A og B er konstanter, fitter målekurven godt i intervallet 1-100 min. Denne funktion er lineær i et $(\ln(t/\text{min}), \sigma)$ -diagram. Måledata er afbildet i et sådant herunder:

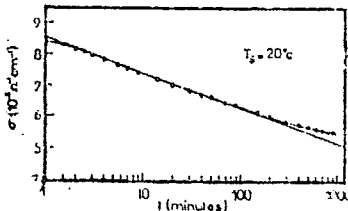


Fig.3.6. Ledningsevnen σ af den samme film som i fig.3.5 som fkt. af $\log t$, lige efter pådampning. /Theye et al, fig.5, s.309/

Formel 4c er imidlertid ikke analytisk løsning til 4a og kan derfor kun være en approksimativ løsning. Denne kan omskrives til relativ tid og relativ specifik ledningsevne:

$$(4d) \quad \sigma_r(t_r) = \frac{A \ln(t/\text{min}) + B - \sigma_\infty}{\sigma_0 - \sigma_\infty} = a \ln t_r + b$$

,hvori a og b er to dimensionsløse konstanter. Ved indsættelse af 4d i venstresiden af 4b fås:

$$\frac{d}{dt_r} \sigma_r(t_r) = \frac{a}{t_r}$$

Og højresiden giver ved indsættelse i 4b:

$$-\sigma_r(t_r) \exp(\alpha \sigma_r(t_r)) = -\sigma_r(t_r) \exp(\alpha(a \ln t_r + b))$$

D.v.s.:

$$\frac{a}{t_r} = -\sigma_r(t_r) \exp(\alpha(a \ln t_r + b))$$

,hvorefter man vender tilbage til udtr. 4d og får:

$$\sigma_r(t_r) = a \ln t_r + b = -a \exp(-\alpha b) t_r^{-(1+\alpha a)} = k t_r^{-\beta}$$

Hvis 4d er approksimativ løsning til 4b, så er en potensfunktion af typen $\sigma_r(t_r) = k t_r^{-\beta}$, hvor t_r er en dimensionsløs tid og k er en talkonstant, også en approksimativ løsning, som fitter data. Vi vil da lade dette resultat lægge op til at undersøge om skalainvariante funktioner af denne type kan beskrive data som empirisk fit for tider større end en given minimalværdi (se lob). Denne minimalværdi skal bestemmes som funktion af varmebehandlingstemperaturen. Ligeledes skal påstanden om eksistensen af en varmebehandlingstemperatur-afhængig specifik ledningsevne $\sigma_{\infty}(T_a)$ for uendelige tider undersøges. Det følgende afsnit indledes med opstillingen af en differentia ligning, som netop har en skalainvariant funktion af ovennævnte type som approksimativ løsning. Dog fører denne model ikke til at σ_{∞} er en funktion af T_a . Den fører istedet til en konstant $\sigma_{\infty} \approx 0$.

3.4 Vores relaksationsmodel

Dette afsnit indeholder en redegørelse for den relaksationsmodel, som er udviklet i relation til det foreliggende eksperimentelle specialearbejde. Ligesom hos Theye et al forsøger denne model at beskrive den tidslige udvikling af antallet af defekter i det amorf gitter. Faldet i specifik ledningsevne med tiden opfattes så igen som et udtryk for en reduktion i antallet af defekter/fejlsteder. Den forventede tidslige udvikling af den specifikke ledningsevne sammenlignes med de eksperimentelle data, som opnås ved undersøgelse af den strukturelle relaksation i amorfe Ge-film v.h.a. ledningsevne målinger som fkt. af tiden ved forskellige varmebehandlingstemperaturer (annealingtemperaturer) ligesom hos Theye et al (for en uddybende behandling af de eksperimentelle omstændigheder se s. her i rapporten).

De væsentligste punkter i dette afsnit er følgende: Først gøres der nogle antagelser om grundlaget for modellen. Dette fører til, at den tidslige udvikling af antallet N_d af defekter er givet ved relaksationsmodellen 5b, som er udtrykt i generaliseret form i 10a. Denne er så udtrykt i en mere simpel og approksimeret form i udtr.12. Det viser sig, at man efter et kort tidsinterval i starten af varmebehandlingen ved en given temperatur T_n kan se bort fra den relaksation, der allerede er forløbet inden ved den lavere varmebehandlingstemperatur T_{n-1} . Sammenhængen mellem $N_d(t)$ og $\sigma(t)$ bringes i stand via Mott's $T^{-1/4}$ -lov, idet ledningsevnen punktvis i tid måles ved tilstrækkeligt lave temperaturer. Denne nedkølingsproces har også den fordel, at strukturen "fastfryses" og dermed forhindres i at fortsætte sin relaksation (se også databehandlingsafsnittet s.). Dette fører endelig til formel 2o, som giver

den tidslige udvikling af ledningsevnen ved relaxsation af den amorf struktur. Det bliver denne sammenhæng mellem ledningsevne og tid, som skal fittes i forhold til måledata. Dette gøres ved at variere Boltzmann-temperaturen T_B og attack-frekvensen $1/\tau_0$. Ud fra denne procedure konkluderes der i databehandlingsafsnittet om formel 20's evne til at beskrive målingerne og om de to nævnte konstanter's fysiske betydninger.

Med udgangspunkt i formelen for simpel relaxsation skal der nu opstilles en relaxsationsmodel af mere kompliceret art. Analogt med simpel relaxsation er der givet N_{do} delsystemer, som hver især enten kan befinde sig i en relativt højenergetisk urelakseret tilstand eller i en relativt lavenergetisk relaxseret tilstand. N_{do} er således antallet af defekter til tiden $t=0$. Ligeledes skal det antages, at vi betragter så store værdier af N_{do} , at N_{do} kan betragtes som uendelig stor, sådan at vi kan se bort fra statistiske udsving. Hvor det samlede system i den simple relaxsation er karakteriseret ved én aktiveringsenergi, består det samlede system i denne mere komplicerede variant af mange parallelle relaxsationssystemer med hver sin aktiveringsenergi E . Den strukturelle relaxsation af et amorf gitter opfattes således som det samlede resultat af en fordeling af mange individuelle, ukorrelerede, elementære relaxsationsprocessers forløb. De elementære relaxsationsprocesser forstås som konsekvens af lokale afvigelser fra ligevægtstilstande, og forløbet består således i, at atomare positioner falder på plads aktiveret med givne energier E . Det individuelt relaxserende system opfattes som et simpelt relaxserende system og derfor givet ved en dertil svarende differentiaalligning. Hvis ligevægtstilstanden for det individuelt relaxserende system er givet ved,

at alle dertil hørende defekter er elimineret, kan den infinitesimale afvigelse fra ligevægt til tiden t i et sådant delsystem skrives som antallet $dN_d(E, t)$ af ikke-eliminerede defekter til tiden t karakteriseret ved aktiveringsenergi E . Hvis vi antager tidsafhængig relaxations sandsynlighed $1/\tau(t)$ fås differentialligningen:

$$\frac{d}{dt} dN_d(E, t) = -\frac{1}{\tau(t)} dN_d(E, t) \quad \Rightarrow$$

$$dN_d(E, t) = dN_d(E, 0) \exp\left(-\int_0^t \frac{dt}{\tau(t)}\right)$$

Hvis bestanden af delsystemer er fordelt m.h.t. aktiveringsenergien E , og fordelingsfunktionen til tiden er $f(E, t)$, så gælder der:

$$\begin{aligned} dN_d(E, t) &= f(E, t) dE \\ (4\frac{1}{2}) \quad &= f(E, 0) \exp\left(-\int_0^t \frac{dt}{\tau(t)}\right) dE \end{aligned}$$

Eller

$$f(E, t) = f(E, 0) \exp\left(-\int_0^t \frac{dt}{\tau(t)}\right)$$

Disse udtryk er generelle for så vidt, at tidskonstanten τ er tidsafhængig. Hvis $\tau(t)$ er konstant τ i intervallet $t \in [0; t_{\max}]$, fås:

$$-\int_0^t \frac{dt}{\tau(t)} = -t/\tau \quad \text{for } 0 \leq t \leq t_{\max}$$

Hvis antagelserne om $1/\tau$ fra afsnittet om simpel relaxasjon, nemlig at antallet af relaxationsforsøg pr. tid pr. defekt er Boltzmannfordelt, gøres tilsvarende på de beskrevne individuelle, ukorrele-

rede relaksationssystemer, fås idet $1/\tau_0$ er af størrelsesordenen fononfrekvenser:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} \exp(-E/k_B T)$$

,hvor T er temperaturen af det samlede system. De enkelte elementære relaksationsprocesser er da termisk aktiverede. Hvis temperaturen holdes konstant for tider $t \in [0; t_{\max}]$, så bliver det resulterende udtryk for antallet af defekter til tiden t i et delsystem karakteriseret ved aktiveringsenergien E da:

$$(5a) \quad dN_d(E, t) = \exp\left(-\frac{t}{\tau} \exp(-E/k_B T)\right) f(E) dE$$

Når relaksationsprocessen opfattes som eliminati-on af defekter i et amorf gitter, hvilket svarer til at tilfældigt fordelte atomare positioner falder på plads, fører dette til en antagelse om fordelingen af elementære relaksationsprocesser m.h.t. aktiveringsenergi E.

I den amorfe struktur antages de individuelle elementære relaksationsprocesser statistisk fordelt p.g.a. defekternes tilfældige karakter. En særlig simpel antagelse er, at defekterne til tiden $t=0$ er Boltzmannfordelte m.h.t. aktiveringsenergi. Idet k er en konstant, og T_B er en Boltzmanntemperatur, kan en sådan fordeling skrives:

$$f(E) = k \exp(-E/k_B T_B)$$

Eller idet vi måler aktiveringsenergien E i temperatur $W=E/k_B$ og dermed fremover underforstår Boltzmanns konstant, så fås:

$$f(W) = k \exp(-W/T_B)$$

Den nærmere fysiske betydning af T_B skal senere fortolkes ud fra eksperimentelle data. Den thermiske aktivering af den samlede relaksationsproces bliver da forårsaget af varmebehandlingstemperaturen T , sådan at tidskonstanten

$$\tau(W) = \tau_0 \exp(W/T)$$

Under forudsætning af de gjorte antagelser og symbolske forenklinger kommer modellen 5a til at se ud på følgende måde: Det samlede antal urelakserede defekter til tiden t , der er karakteriseret ved aktiveringsenergien E :

$$dN_d(W, t) = \exp\left(-\frac{t}{\tau_0} \exp(-W/T)\right) k \exp(-W/T_B) dW$$

Det samlede antal ikke-eliminerede defekter til tiden t for fastholdt T er da

$$N_d(t) = k \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{t}{\tau_0} \exp(-W/T)\right) \exp(-W/T_B) dW$$

Konstanten k bestemmes nu, idet vi ved, at antallet af defekter til tiden $t=0$ er $N_{d0} = N_d(0)$:

$$N_d(0) = k \int_0^{\infty} \exp(-W/T_B) dW \Rightarrow k = N_d(0) / T_B$$

Det samlede udtryk for det totale antal defekter til tiden t for en given varmebehandlingstemperatur T er da

$$(5b) \quad N_d(t) = \frac{N_d(0)}{T_B} \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{t}{\tau_0} \exp(-W/T)\right) \exp(-W/T_B) dW$$

Dette udtryk er udledt under forudsætning af fastholdt varmebehandlingstemperatur T i tidsintervallet $[0; t_{\max}]$, givet at tiden t tilhører dette interval. Dette gav konstant værdi af $\tau(t)$. Hvis temperaturen nu forhøjes til tiden t_1 , hvor $0 < t_1 < t_{\max}$, fra temperaturen T_1 til T_2 , så giver udtryk 4 $\frac{1}{2}$, at formel 5b ændres, idet tidskonstanten $\tau(t)$ bliver på flg. måde:

$$\tau(t) = \begin{cases} \tau_0 \exp(W/T_1) & \text{for } 0 \leq t \leq t_1 \\ \tau_0 \exp(W/T_2) & \text{for } t_1 < t \leq t_{\max} \end{cases}$$

Antallet $N_{d1}(t)$ af defekter til tiden $t \in [t_1; t_{\max}]$ for skift fra T_1 til T_2 ved t_1 bliver da

$$\begin{aligned} N_{d1}(t) &= \frac{N_d(0)}{T_B} \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{t_1}{\tau_0} \exp(-W/T_1)\right) \exp\left(-\frac{t-t_1}{\tau_0} \exp(-W/T_2)\right) \cdot \\ &\quad \cdot \exp(-W/T_B) dW \\ &= \frac{N_d(0)}{T_B} \int_0^{\infty} \exp\left(-\left(\frac{t_1}{\tau_0} \exp(-W/T_1) + \frac{t-t_1}{\tau_0} \exp(-W/T_2)\right)\right) \cdot \\ &\quad \cdot \exp(-W/T_B) dW \end{aligned}$$

Hvis vi sætter $t-t_1 = \Delta t$, $t_{1r} = t_1/\tau_0$ og $\Delta t_r = (t-t_1)/\tau_0$, så kan integralet forenkles:

$$\begin{aligned} N_{d1}(t) &= \frac{N_d(0)}{T_B} \int_0^{\infty} \exp\left(-\left(t_{1r} \exp(-W/T_1) + \Delta t_r \exp(-W/T_2)\right)\right) \cdot \\ &\quad \cdot \exp(-W/T_B) dW. \end{aligned}$$

Hjælpstørrelserne α og β indføres, således at:

$$\alpha = \alpha(W) = t_{1r} \exp(-W/T_1)$$

$$\beta = \beta(W, \Delta t_r) = \Delta t_r \exp(-W/T_2)$$

, hvorefter $N_{d1}(t)$ kan skrives på flg. måde:

$$(6) N_{d1}(t) = \frac{N_d(0)}{T_B} \int_0^{\infty} \exp(-(\alpha + \beta)) \exp(-W/T_B) dW$$

Spørgsmålet er nu, om man kan approksimere dette udtryk med et mere simpelt ved at bortkaste α i integralet. En god grund til at formode dette er, at relaxationsprocessen løber meget hurtigere ved $T_2 > T_1$, da tidskonstanten bliver mindre, og leddet α er jo netop det led, som repræsenterer det langsomme relaxationsforløb med den store tidskonstant. Dette betyder, at efter et kort tidsinterval Δt_{\min} kan der ses bort fra α og dermed den relaxations, som har fundet sted ved den lave temperatur T_1 . Denne approksimation betyder i praksis, at relaxationsprocessen stort set "nulstilles", når man går fra den lave temperatur T_1 til den store T_2 .

Imidlertid skal påstanden om, at Δt_{\min} er lille i forhold til de tider, som vi arbejder med i vores eksperiment, bevises. Vi kan kort formulere problemet således: Hvis man i intervallet $[0; t_1]$ har varmebehandlingstemperaturen T_1 , og man i intervallet $]t_1; t_2]$ har varmebehandlingstemperaturen $T_2 > T_1$, og hvis den strukturelle tilstand i det første interval er $N(t, T_1)$. Så gælder der efter et tidsrum $t_1 + \Delta t_{\min}$, at den strukturelle tilstand kan beskrives som $N(\Delta t, T_2) = N(t - t_1, T_2)$. Hvor stor er Δt_{\min} da?

For givet Δt_r befinder hovedparten af arealet under integranden i udtr. 6 sig i intervallet $[W_0; \infty[$. Dette er illustreret i fig. 3.7.

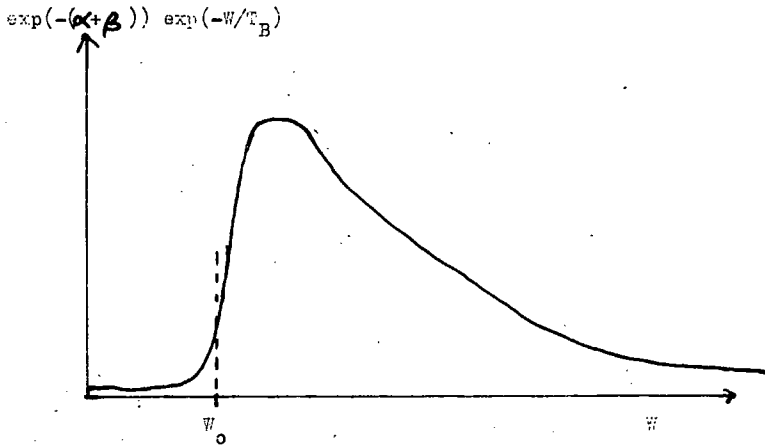


Fig.3.7. Skitse af integranden i udtr.6.

Integralet i udtr.6 kan da approksimeres ved en integration fra W_0 til ∞ . Integranden vokser først op, når faktoren $\exp(-(\alpha+\beta))$ vokser op. Som kriterium for størrelsen W_0 vælges da:

$$\alpha(W_0) + \beta(W_0, \Delta t_r) = 1$$

$$W_0(\Delta t_r) = \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right)^{-1} (\ln t_{1r} + \ln \Delta t_r)$$

For alle $\Delta t_r > \Delta t_{rmin}$ befinder arealet under integranden sig i intervallet $[W_{omin}; \infty[$, hvor

$$(7) \quad W_{omin} = W_0(\Delta t_{rmin})$$

Kriteriet for at se bort fra α i integranden for alle $\Delta t_r > \Delta t_{rmin}$ vælges som $\alpha < \beta$ for alle $W \geq W_{omin}$:

$$(W) \quad \alpha(W, \Delta t_r) \wedge W \geq W_{omin} \Rightarrow$$

$$(8) \quad \Delta t_r > \Delta t_{rmin} = \frac{t_{1r}}{\exp(W_{omin}(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}))}$$

Ligningerne 7 og 8 giver, at:

$$(9) \quad \begin{aligned} \Delta t_{rmin} &= \frac{1}{2}(2t_{1r})^{T_1/T_2} \quad \Leftrightarrow \\ \Delta t_{min} &= (2/\tau_0)^{T_1/T_2-1} \cdot t_1 \end{aligned}$$

Det kan nu afgøres, at:

$$T_1 < T_2 \Rightarrow \left\{ \begin{array}{l} T_1/T_2 - 1 < 0 \Rightarrow (2/\tau_0)^{T_1/T_2-1} < 1 \\ T_1/T_2 < 0 \Rightarrow t_1^{T_1/T_2} < t_1 \end{array} \right\} \Rightarrow \Delta t_{min} < t_1$$

Det kan yderligere fastslås, at hvis t_1 er meget stor, så behøver T_2 kun at være en lille smule større end T_1 , for at $t_1^{T_1/T_2}$ bliver voldsomt meget mindre. Da $1/\tau_0$ er antallet af relaksationsforsøg pr. tid, d.v.s. attackfrekvensen, så er det en rimelig antagelse at knytte denne til det amorfes gitters termiske svingninger. Størrelsen $1/\tau_0$ er dermed af samme størrelsesorden som fononfrekvenser. Dette betyder også, at faktoren $(2/\tau_0)^{T_1/T_2-1}$ bliver voldsomt meget mindre, når T_2 bliver en lille smule større end T_1 . Alt i alt må Δt_{min} blive meget mindre end t_1 , når T_2 bliver en lille smule større end T_1 . Dette betyder, at vi efter et kort tidsinterval Δt_{min} lige efter temperaturskiftet fra T_1 til T_2 kan se bort fra den relaksation, som er foregået i intervallet $[0; t_1]$.

Den foregående udledning og overvejelserne indtil her har drejet sig om skiftet fra intervallet $[0; t_1]$ med varmebehandlingstemperatur T_1 , til intervallet $[t_1; t_2]$ med varmebehandlingstemperaturen T_2 .

Men den kan uden videre generaliseres. Konklusionen bliver da, at vi kan generalisere integralerne 5b og 6 til

$$(10a) N_d(\Delta t) = \frac{N_d(0)}{T_B} \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{t}{\tau_0} \exp(-W/T_n)\right) \exp(-W/T_B) dW$$

Dette integral gælder for det n'te varmebehandlingsinterval med temperaturen $T_n > T_{n-1}$. Varmebehandlingen varer i tidsintervallet $]t_{n-1}; t_n]$, og størrelsen $\Delta t = t - t_{n-1} > \Delta t_{\min}$ er givet generelt ved

$$(10b) \Delta t_{\min} = (2/\tau_0)^{T_{n-1}/T_n - 1} \cdot (t_{n-1} - t_{n-2})^{T_{n-1}/T_n}$$

Dette integral kan forenkles væsentligt og løses approksimativt. Først udføres flg. substitutioner: $\tau_0 = a$, $b = 1/T_n$, $c = 1/T_B$ og $k = \frac{N(0)}{T_B}$. Med disse fås:

$$N_d(\Delta t) = k \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{\Delta t}{a} \exp(-bW)\right) \exp(-cW) dW$$

Der foretages videre flg. substitutioner:

$$x = \exp(-bW) \Rightarrow dx = -b \exp(-bW) \Rightarrow dW = -\frac{1}{b} \exp(bW) dx \Rightarrow \\ \exp(-cW) dW = -\frac{1}{b} \exp((b-c)W) dx$$

, hvor $x(\infty) = 0$ og $x(0) = 1$. Der substitueres yderligere med:

$$x^y = \exp(W(b-c)) \Rightarrow \exp(-byW) = \exp((b-c)W) \Rightarrow \\ byW = (c-b)W \Rightarrow by = c-b \Rightarrow y = c/b - 1 = T_n/T_B - 1 \Rightarrow \\ \exp(W(b-c)) = x^{T_n/T_B - 1}$$

Disse udtr. indsættes, og man får:

$$N_d(\Delta t) = \frac{k}{b} \int_0^1 \exp\left(-\frac{\Delta t}{a} x\right) \cdot x^{T_n/T_B - 1} dx$$

Der substitueres videre med:

$$z = \frac{\Delta t}{a} x \Rightarrow x = \frac{a}{\Delta t} z \Rightarrow dx = \frac{a}{\Delta t} dz \text{ og } z(1) = \frac{\Delta t - \Delta t}{a} \frac{\Delta t}{\tau_0}; z(0) = 0,$$

som indsættes:

$$N_d(\Delta t) = \frac{k}{b} \int_0^{\Delta t/\tau_0} \exp(-z) (a/\Delta t)^{T_n/T_B-1} \cdot z^{T_n/T_B-1} \cdot \frac{a}{t} dz$$

$$(11) = N_d(0) \frac{T_n}{T_B} (\Delta t/\tau_0)^{-T_n/T_B} \int_0^{\Delta t/\tau_0} \exp(-z) \cdot z^{T_n/T_B-1} dz$$

Vi vil igen benytte antagelsen, om at attackfrekvensen $1/\tau_0$ er af samme størrelsesorden som fononfrekvenser, nemlig 10^{12} Hz. Så er tidskonstanten $\tau_0 \approx 10^{-12}$ sek., hvilket er et meget lille tidsinterval i forhold til de relaksationstider, vi betragter. Dette betyder, at $\Delta t/\tau_0 \approx \infty$, hvorved integralet i ligning 11 bliver til gammafunktionen:

$$\Gamma(T_n/T_B) = \int_0^{\infty} \exp(-z) \cdot z^{T_n/T_B-1} dz \quad , \text{ idet } T_n/T_B > 0.$$

Værdien af dette integral er en endelig størrelse, som afhænger af argumentet T_n/T_B . Det kan beregnes ved tabelopslag. I vores eksperimentelle situation viser det sig, $0 < T_n/T_B < 1$. I dette interval afviger $\Gamma(T_n/T_B)$ maksimalt $\pm 11\%$ fra T_B/T_n , hvorfor det reciproke argument kan approksimere gammafunktionsudtrykket. Ved indsættelse i udtr. 11 fås flg. approksimation af antallet af defekter til tiden Δt :

$$(12) \quad N_d(\Delta t) \approx N_d(0) (\Delta t/\tau_0)^{-T_n/T_B}$$

Dette er det forenkledede og endelige udtryk for antallet af defekters aftagen med tiden ved varmenbehandlingstemperaturen T_n i tidsintervallet $[t_{n-1}; t_n]$. I formel 20 længere fremme i denne tekst viser det sig, at den specifikke ledningsevne ved tilstrækkeligt lave temperaturer er lineært afhængig af $N_d(\Delta t)$.

Da den specifikke ledningsevne afbildes i et logaritmisk plot p.g.a. den kraftige variation af potensfunktionen i 12, kommer fejlen på maksimalt $\pm 11\%$ ikke til at spille nogen rolle.

Da det imidlertid i den eksperimentelle sammenhæng er den specifikke ledningsevnes tidslige udvikling, som er interessant, skal det nu vises, at den specifikke ledningsevne ved tilstrækkeligt lave temperaturer er lineært afhængig af antallet af defekter til tiden Δt . I afsn. vil der på grundlag af målingerne af ledningsevnenes temperaturafhængighed blive argumenteret for at:

$$(15) \quad \sigma \propto g(E_F)^{1/3}$$

Desuden antages det, at antallet N_L af lokaliserede tilstande ved E_F i pseudogabet er proportionalt med tætheden af tilstande $g(E_F)$ ved Fermienergien:

$$(16) \quad N_L \propto g(E_F)$$

Denne antagelse vil blive diskuteret senere (se s.).

Idet 16 indsættes i 15, fås:

$$(17) \quad \sigma_L(\Delta t) \propto N_L(\Delta t)^{1/3}$$

Da tilstedeværelsen af lokaliserede tilstande ved E_F i pseudogabet eller defekttilstandene, som de også benævnes, er snævert forbundet med antallet af defekter i det amorf netværk, er det rimeligt at antage proportionalitet. Idet $N_d(\Delta t)$ er antallet af defekter, og idet $N_L(\Delta t)$ er antallet af defekttilstande, fås:

$$(18) \quad N_L(\Delta t) \propto N_d(\Delta t)$$

Ved at indsætte 12 i 18, som så indsættes i 17, fås, idet h er en proportionalitetskonstant, at bidraget til den specifikke ledningsevne hidrørende fra defekttilstandene ved Fermienergien er

$$(19) \quad \sigma_L(\Delta t) \simeq h (\Delta t/\tau_0)^{-T_n/3T_B}$$

Ved tilstrækkeligt lave temperaturer foregår al ledning ved hop over variabel afstand, hvorfor udtr. 19 da bliver et udtr. for den resulterende specifikke ledningsevne.

Vi ser da også, at grænseværdien af den specifikke ledningsevne for uendelige tider ikke er varmebehandlingstemperaturafhængig, idet $\lim_{\Delta t \rightarrow \infty} (\sigma(\Delta t)) = \sigma_\infty(T_n) = 0$.

3.5 Kritik af Theye et al's relaksationsmodel

Indledningsvis skal det nævnes, at der er to hovedkritikpunkter. Det ene er, at Theyes måledata også kan fortolkes ud fra vores relaksationsmodel, som i modsætning til Theye et al's model, kun foreskriver én relaksationsmekanisme for hele det tidslige forløb. Det andet er det diskutabile i at påstå eksistensen af en varmebehandlingstemperaturafhængig σ_∞ .

Hvad angår det første kritikpunkt, kan man bestemme konstanter $\alpha = T_n/3T_B = -0.065$ og $c_2 = 8.6 \cdot 10^3 \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$, således at formel 19 fitter hele målekurven i fig.3.6, idet vi sætter

$$\begin{aligned} \sigma(\Delta t) &\simeq h (\Delta t/\tau_0)^{-T_n/3T_B} = c_2 \left(\frac{\Delta t}{\text{min}}\right)^{-\alpha} \\ &= 8.6 \cdot 10^3 \left(\frac{\Delta t}{\text{min}}\right)^{-0.065} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1} \end{aligned}$$

For små værdier af t bliver denne funktion lineær med negativ hældning ganske som $A \ln(t/\text{min}) + B$, som Theye bruger til at fitte sine data for 1-100 min. Dette skyldes, at for t er $t^{-0.065} = \exp(-0.065 \ln t) \approx 1 - 0.065 \ln t$ (med t underforstås her t/min). I intervallet 1-100 min. afviger denne approksimation højst $\pm 5\%$. Vi kan således gengive hele kurveforløbet, d.v.s. måledata for alle tider, i fig.3.6. Ved betragtning af denne figur ses også, at målekurven krummer som en funktion af typen $\exp(-x)$, hvilket selvfølgelig skyldes, at $t^{-0.065} = \exp(-0.065 \ln t)$.

Grunden, til at en funktion af typen $A \ln t + B$ ikke fitter nøjagtigt til måledata i intervallet 1-2 min., er, at der er usikkerhed om starttidspunktet for relaxsationen. Da filmens strukturelle relaxsation starter under pådampning, bliver følgen, at de tidligst pådampede atomlag allerede har påbegyndt relaxsationsprocessen før filmen er fuldstændigt dannet. Ja, faktisk er pådampningstiden for den pågældende amorfe Ge-film tykkelsen/pådampningshastigheden: $415\text{Å}/3\text{Ås}^{-1} = 2.3 \text{ min.}$, hvilket ikke er ubetydeligt.

Det andet kritikpunkt går på, at Theye et al som nævnt opererer med et varmebehandlingstemperaturafhængigt ligevægtsbegreb. D.v.s. der postuleres eksistensen af kvasimetastabile ligevægtstilstande for uendelige tider op til en vis temperatur T_{ns} . Over denne varmebehandlingstemperatur indfinder der sig en såkaldt sand metastabil ligevægt. Denne grænsetilstand er ifølge Theye således karakteriseret ved et antal defekter $N_{d\infty}(T_n)$ og en specifik ledningsevne $\sigma_{\infty}(T_n)$ som asymptotiske værdier (se også afsn. 3.3 om Theye et al's relaxsationsmodel). Imidlertid kan sådanne varmebehandlingstemperaturafhængige asymptotiske værdier ikke eksistere i vores model, da det for alle T_n gælder at

$$\lim_{\Delta t \rightarrow \infty} N(\Delta t) = 0 \quad \text{og} \quad \lim_{\Delta t \rightarrow \infty} \sigma(\Delta t) \approx 0$$

En opførsel som den Theye et al fremførte er i midlertid velkendt fra teorien om underafkølede væsker, derfor skal Theye's påstand fortolkes i forhold til denne.

Vi betragter nu en ligevægtstilstand i det amorfne materiale for uendelige tider ved temperaturen T_n mellem et antal defekter $N_{d\infty}$ og de defekter, som er elimineret. Hvis antallet af defekter til tiden $t=0$ er N_{d0} , så er antallet af eliminerede defekter til uendelige tider $N_{d0} - N_{d\infty}$. Systemet kan illustreres som herunder i fig.3.8.

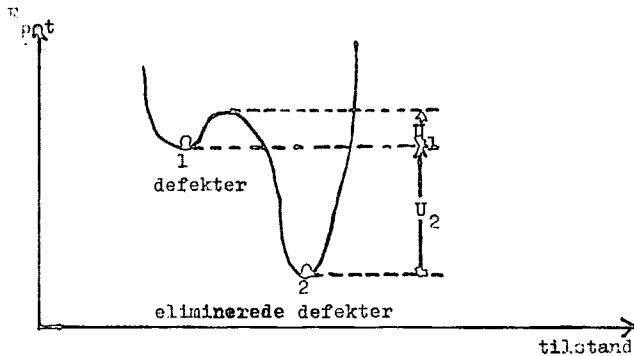


Fig.3.8.

Matematisk beskrives den termisk aktiverede ligevægt således:

$$N_{d\infty} / (N_{d0} - N_{d\infty}) = \exp(-U_2 / k_B T_n) \Rightarrow N_{d\infty} / (\exp(U_2 / k_B T_n) + 1)$$

Hvis ligevægten kommer ud af balance, f.eks. ved at T_n forandres, så tager det tid, før en ny lige-

vægt svarende til det nye T_n har indstillet sig. Ligevægten opretholdes eller omdannes igennem to modsat rettede processer med hver sin tidskonstant. Den tid, det tager at komme fra 1 til 2, er:

$$\tau_{12} = \tau_0 \exp(U_1/k_B T_n)$$

Den tid, det tager at komme fra 2 til 1, er:

$$\tau_{21} = \tau_0 \exp((U_1+U_2)/k_B T_n)$$

Det går derfor hurtigere at komme fra 1 til 2 end omvendt. Hvis vi nu varierer T_n så langsomt, at ligevægten hele tiden kan nå at indstille sig, så vil grafen over antallet af defekter $N_{d\infty}(T_n)$ komme til at tage sig således ud:

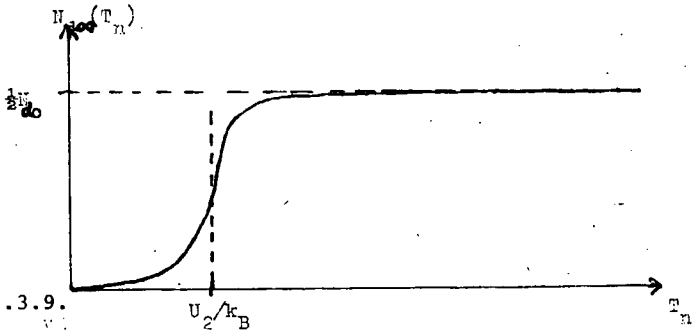


Fig.3.9.

Grafen for en af tidskonstanterne $\tau_{xy}(T_n)$ vil komme til at tage sig således ud:

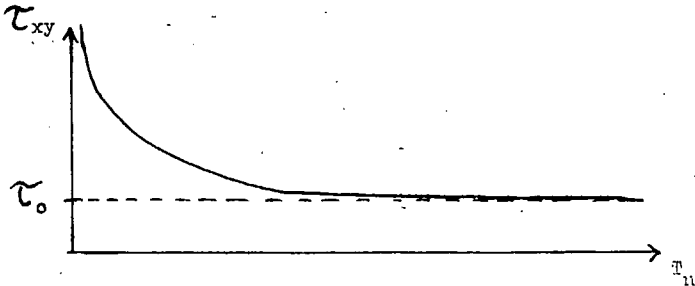


Fig.3.10.

Ved bratkøling vil grafen over antallet af defekter $N_{d\infty}(T_n)$ imidlertid komme til at se anderledes ud. Dette beror på opførslen af tidskonstanten $\tau(T_n)$. Ved store temperaturer T_n kan ligevægten nå at indstille sig under bratkølingen. Men ved relativt små temperaturer ses det af grafen over τ_{xy} , at opretholdelsen af ligevægten foregår mere trægt. Antallet af defekter N_d vil derfor blive "fast-frosset" i en underafkølet tilstand, hvor tidskonstanterne er så langsomme, at ligevægt først indstiller sig efter meget lange tider. Ved langsom opvarmning vil kurven over $N_{d\infty}(T_n)$ dog forholdsvis hurtigt finde tilbage i sit ligevægtsleje. Dette kan illustreres som herunder i fig.3.11.

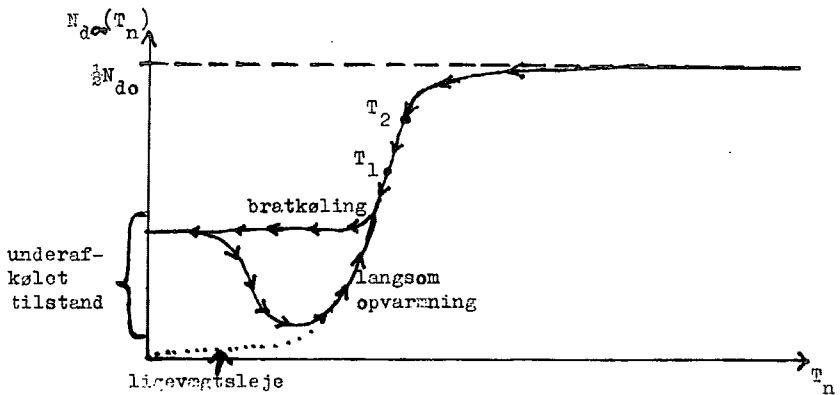


Fig.3.11.

Hvis nu ledningsevnen $\sigma_{\infty}(T_n)$ tages som kvantitativt udtryk for $N_{d\infty}(T_n)$, kan vi konkludere om Theye et al's postulat om en grænseligevægtstilstand med tilhørende ledningsevne. Lad os nu sige, at vi momentant hæver varmebehandlingstemperaturen fra T_1 til T_2 på opvarmningskurven, som anført på ovenstående graf. I overensstemmelse med denne skul-

le størrelsen N_d stige op til $N_{d\infty}(T_2)$ med en tidskonstant $\tau(T_2)$. Hvorfor den specifikke ledningsevne også skulle stige op til $\alpha_{\infty}(T_2)$. I den eksperimentelle praksis sker der imidlertid lige det modsatte. Hvis en amorf Ge-film, der har været varmebehandlet ved en temperatur T_1 , pludselig varmebehandles ved en temperatur T_2 , så falder ledningsevnen. Den stiger ikke, som ovenstående ræsonnement foreskriver. Dette betyder, at Theye et al's postulat om en ligevægtstilstand bliver i modstrid med en fortolkning fra teorien om underafkølede væsker. Theye's fejlfortolkning af måledata grunder sig på, at grafen for potensfunktionen $h(\Delta t/\tau_0)^{-\alpha}$ for store tider er meget "flad" i forhold til det forholdsvis stejle forløb for små tider.

Litteratur til kapitel 3.

Adler, D. "Amorphous semiconductors", Butterworths, London 1972.

Longini & Pansino. J. of Applied Phys. vol.40, nr.6 1969.

Madelung, O. "Introduction to Solid State Theory", Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York 1978.

Theye, M.L. et al. "Struktural relaxation and crystallization of amorphous Ge films", J. of Non-Crystalline Solids no.37, p301, 1980.

4 TEORI FOR RÖNTGENDIFFRAKTION

Den mikroskopiske amorfe faststof-struktur af Ge er i dette arbejde blevet undersøgt v.h.a. Röntgendiffraktionseksperimenter. Gennem kendskab til de relative intensiteter af Röntgen-stråling, der er Rayleigh-spredt i forskellige retninger fra et amorft Ge-sample, er det muligt at foretage konklusioner om atom-strukturen i samplet - der fremstilles en radial distributionsfunktion for atomerne. Denne beskriver middelfaststof-fordelingen af atomer omkr. et atom i stoffet. Altsammen foregår indenfor rammerne af en klassisk fremstilling.

Først og fremmest undersøges hvilke processer en Röntgen-foton på vej gennem en samling af atomare spredere kan blive udsat for. Den til disse eksperimenter anvendelige Rayleigh-spredning adskilles fra de øvrige mulige processer, og der udledes et udtryk for det elektriske felt (amplituden) af den spredte Röntgen-stråling hidrørende fra denne spredningsproces. Dernæst udledes sammenhængen mellem et udtryk proportionalt med den spredte Röntgen-strålings intensitet (som måles i eksperimenterne) og den radiale distributionsfunktion for samplets atomer. Det viser sig, at man beregningsmæssigt kommer fra den ene til den anden v.h.a. en Fourier-transformation.

4.1 Röntgen-stråling og spredningsprocesser

Først nogle facts om Röntgen-stråling. Energien, E , af en Röntgen-foton relateres til dennes bølgelængde, λ , ved:

$$E = h\nu = \frac{hc}{\lambda}$$

, hvor $h=6.62 \cdot 10^{-27}$ erg-sec er Planck's konstant, og ν er Röntgen-fotonens frekvens. Dette kan også udtrykkes:

$$\lambda(\text{Å}) = \frac{12.4}{E(\text{keV})}$$

, hvor λ er bølgelængden udtrykt i Ångström ($1\text{Å}=10^{-10}\text{m}$), og E er energien i kilo-elektron-volt ($1\text{eV}=1.602 \cdot 10^{-12}$ erg). Samtidig kan det ses, at strålingen, der benyttes i Röntgen-diffraktions-eksperimenter, typisk skal være af størrelsesordenen 10 til 50 keV i energi i undersøgelser af samlinger af atomare spredere, da strålingens bølgelængde jo skal være af størrelsesordenen interatomare afstande for at "se" det undersøgte stofs mikroskopiske strukturer. Eller sagt m.a.o. for at se på interessante størrelser, skal de svare til skalaen, man ser med.

Når en snæver parallel stråle af mono-kromatiske Röntgen-stråler, med begyndelsesintensiteten I_0 , passerer igennem et jævnt parallelt lag af homogent og isotropt materiale af tykkelsen t cm. med overfladerne placeret som normaler til stråle-retningen og mere end dækkende det totale stråletværsnit, er den gennemtrængende intensitet givet ved:

$$I = I_0 \cdot \exp(-\mu t)$$

, hvilket definerer den totale lineære absorptionskoefficient μ (cm^{-1}) for primærstrålen.

På differentiel form antager man altså under de givne omstændigheder, at en intensitetsændring dI er proportional med I på et givet sted i stoffet, og at ændringen samtidig er proportional med

Röntgen-strålens tilbagelagte vej over små strækninger dx , d.v.s. at:

$$dI = -\mu \cdot I \cdot dx$$

Dette kan også udtrykkes ved flg. formel:

$$dI = -k \cdot \rho \cdot I \cdot dx$$

, hvori ρ er massetætheden af det bestrålede stof, og hvori k derfor defineres som masseabsorptionskoefficienten (cm^2/kg), der angiver den relative ændring af I over dx bestemt gennem massetætheden af det bestrålede stof. Endvidere kan det atomare spredningstværsnit for absorption, μ_a (cm^2), defineres ved:

$$dI = -\mu_a \frac{\rho N}{A} \cdot I \cdot dx$$

, hvori N er Avogadros tal, og A er det bestrålede stofs atomvægt i atomenheder. μ_a angiver den totale energi spredt per tidsenhed i forhold til den indkommende energi per fladeenhed per tidsenhed.

Når strålingen består af fotoner med bølgelængden af størrelsesordenen 1\AA (som i vores eksperimentelle situation) vil vekselvirkningen mellem det elektro-magnetiske felt (fotonens) og samplets atomer stort set udelukkende foregå som indvirkninger på deres elektronsystemer. Der er to hovedeffekter at skelne imellem i denne forbindelse. Koefficienterne τ og σ , der beskriver absorptionen af stråling i det bestrålede stof til disse to effekter, eftersom der kan ses bort fra alle andre effekter, er tilsammen givet ved μ ($\mu = \tau + \sigma$), og der gælder derfor:

$$dI = -(\tau + \sigma) \cdot I \cdot dx$$

, hvori τ er den lineære foto-elektriske absorptionskoefficient, og σ er den lineære spredningskoefficient.

Den "sande" eller foto-elektriske absorption: Under denne forsvinder Röntgen-fotonen fuldstændigt, d.v.s. den absorberede stråling bruges til at udstøde en bunden elektron hos de enkelte atomer, hvorefter den dannede foto-elektron bærer ev.t. overskudsenergi væk som kinetisk energi.

Når foton-energien er tilpas til at udstøde elektroner og ionisere de indre skaller hos absorbereren, dannes der betydende mængder af Röntgen-stråling, ved at ydre elektroner falder ned i de indre skallers tomrum. Dette er flouescens-stråling. τ beskriver disse processer. τ kaldes også for flouescens-absorptionskoefficienten.

Et mere generelt billede af dannelsen af Röntgen-stråling hos et mange-elektron-atom, kan man danne sig ved at anskue flg. fig.(fig.4.1), der skematisk viser excitation og emission hos et mange-elektron-atom.

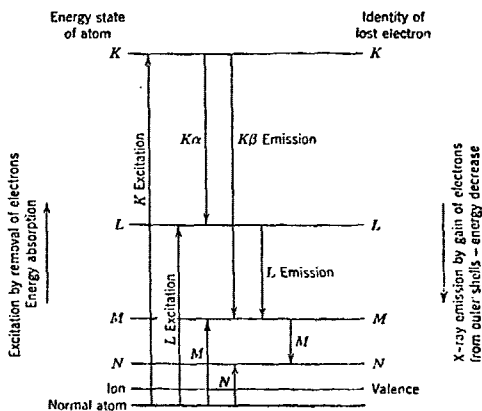


Fig.4.1. Her er skematisk vist excitations-og emissionsprocesser hos et mange-elektron-atom.

/Klug og Alexander, s.85/

Den nederste horisontale linie i diagrammet angiver den ikke-exciterede energi-tilstand hos atomet. De øvrige horisontale linier angiver exciterede energi-tilstande hos atomet. Atomet kan exciteres til sådanne ved, at det absorberer energi (f.eks. i form af et Röntgen-kvant), og at en elektron derved føres bort fra sin hidtidige energi-tilstand. Den første vertikale pil set fra venstre i diagrammet angiver en sådan excitation, K-excitationen. Atomet har i dette tilfælde absorberet en energi-mængde, der har smidt en elektron ud af K-skallen hos atomet, og efterladt atomet i hvad man kunne kalde K-tilstanden. Men denne tilstand efterfølges efter en for stoffet karakteristisk middeltid af L-eller M-tilstanden. Dette sker ved at henholdsvis en elektron fra L- eller M-skallen falder ned i (energi-)tomrummet efter den før udstødte elektron. Og det sker under udsendelse af henholdsvis K_{α} - og K_{β} -Röntgen-stråling. Tilsvarende skitserer figuren yderligere en række excitations-og emissionsprocesser, som kan finde sted. Forekomsten af processerne afhænger af dels hvilket atom, der er under betragtning, dels hvilke energier, atomet bestråles med.

Endvidere må det siges, at fig.4.1 kun giver et groft billede af excitations-og emissionsprocesserne i et mange-elektron atom. F.eks. burde K_{α} -linien være splittet op i to linier, K_{α_1} og K_{α_2} -linien. Indeks 1 og 2 angiver, at elektronen, der overgår fra L-skallen til K-skallen, kan have været i to forskellige kvante-tilstande i L-skallen.

Eftersom en elektron kan blive udstødt fra en indre elektronskal, hvor elektronen f.eks. har energien E_A , dersom energien af den indkommende foton overstiger den energi, der er nødvendig

for at elektronen skal kunne hoppe til den m.h.t. energi nærmeste ikke-besatte plads (med f.eks. energien E_B), afhænger τ diskontinuert af bølgelængden af fotonen. τ som funktion af denne bølgelængde λ tager sig typisk ud som vist i fig.4.2 hos et stof med mange-elektron-atomer.

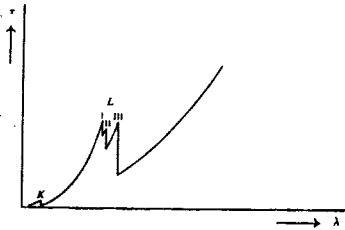


Fig.4.2. Kurven repræsenterer et typisk forløb af τ hos et mange-elektron-atom som fkt. af λ . /International Tables for X-Ray-Crystallography, bd.III, s.158/

Fig.4.2 læses ved at se nærmere på τ 's variation, når man bevæger sig til venstre ad abscisseaksen, altså når man gør bølgelængden λ af Röntgen-fotonerne mindre og mindre (eller m.a.o. gør energien af dem større og større). Når en veldefineret værdi af λ (svarende til $E_{BA}=E_B-E_A$) er nået, er energien blevet tilstrækkeligt stor til i dette tilfælde at excitere L_{III} -elektronerne, og derfor absorberer stoffet foton-energi til denne proces - τ øges. Så snart man har bevæget sig yderligere et stykke til venstre ad abscissen, ses τ igen at aftage. Dette beror på, at sandsynligheden for at excitation (altså her L_{III} -excitationen) finder sted, er størst netop, når energien svarende til E_{BA} er tilstede. Er E_{BA} -energien ikke tilstede og er en ev.t. tilstedeværende energi mindre end denne, finder excitationen slet ikke sted. Og ligeså snart den tilstedeværende energi kommer udover (bliver større end) E_{BA} -energien, bliver excitationen mindre og mindre sandsynlig,

men finder dog stadig sted. - Således fremkommer λ, τ -kurven. Længst tilvenstre ad abscissen forekommer K-excitationen, da det jo er den mest energikrævende af excitationerne.

Flourescens-strålingen, der er et eks. på en incohærent spredningsproces (herom senere), forstyrrer diffraktions-data og må derfor så vidt muligt undgås. Det er derfor vigtigt at benytte Röntgenstrålings-bølgelængder, der tager forbehold for dette. - Der findes ingen fase-korrelationer mellem sådanne sekundære-(flourescens-)strålinger og den oprindelige (indkommende) stråling. De producerer derimod en uønsket, spredt baggrundsstråling, der kan være stærk (intens) nok til at sløre de søgte diffraktionseffekter. F.eks. flourescerer Cr-forbindelser kraftigt, dersom de bestråles med $\text{FeK}_{\alpha} = 1.937\text{\AA}$, der nemlig blot er lidt kortere end K-absorptionskanten for Cr ved 2.07\AA . Af samme grund anses FeK_{α} -stråling for uegnet til studier af Cr-forbindelser (dette og flere eks. findes hos Klug og Alexander).

Løsningen af dette problem er, at vælge en indkommende bølgelængde så langt fra K- og L-absorptionskanterne i de fremtrædende grundstoffer (i det undersøgte stof) som muligt.

I de aktuelle eksperimenter er anvendt et Mo-target, der udsender Röntgen-stråling med $\lambda = 0.7107\text{\AA}$. Denne bølgelængde fremkommer som en midling af $\text{K}_{\alpha 1}$ - ($m. = 0.70926\text{\AA}$) og $\text{K}_{\alpha 2}$ - ($\lambda = 0.71354\text{\AA}$) bidragene, hvori $\text{K}_{\alpha 1}$ -bølgelængden vægtes med $\text{K}_{\alpha 2}$ -bølgelængden som 2:1. (Burger, s.110, og Azaroff, s.102).

Da Ge's mindste absorptionskant (K-kanten) med den dertil hørende mest energikrævende excitation er ved 1.116\AA , er et sådant Mo-target anvendeligt til de aktuelle Röntgen-studier af Ge. Der opstår imidlertid det problem gennem anvendelsen af et af et Mo-target, at Mo udsender dets K_{β} -linie ved

0.63225Å. Denne stråling er blevet reduceret v.h.a. et zirkonium(Zr)-filter, således at forholdet mellem intensiteten af K_{β} -stråling og K_{α} -stråling i den benyttede opstilling er af størrelsesordenen 1:100. Dette filter absorberer effektivt Røntgen-stråling med $\lambda < 0.6874\text{Å}$.

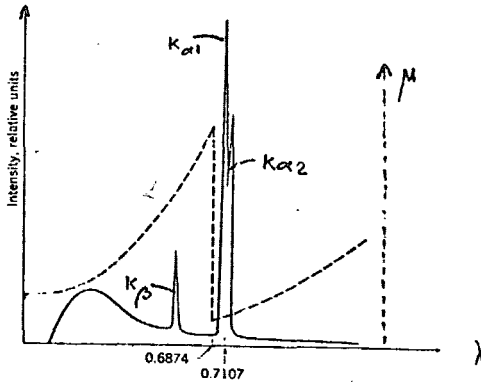


Fig.4.3. Kurver, der angiver den relative intensitet som fkt. af bølgelængden udsendt fra et Mo-target (den fuldt optrukne kurve) og Zr's lineære absorptionskoefficient som fkt. af bølgelængden af strålingen, der absorberes (den stiplede kurve)./Azaroff, s.102/

Den fuldt optrukne kurve angiver den relative intensitet (fordelt på bølgelængder), der udsendes fra et Mo-target, som anvendes i eksperimenterne. I figur 4.3 er også angivet Zr's lineære absorptionskoefficient, μ , ligeledes som funktion af λ . Af disse kurver ses, at med Zr, som filter, i en passende valgt tykkelse i eksperimenter, hvor man, som i de aktuelle eksperimenter, anvender et Mo-target som Røntgen-kilde, kan filtrere uønsket stråling (bl.a. K_{β} -toppen) fra. Da Zr har en absorptionskant ved 0.6874Å, dæmper filtret (med passende valgt tykkelse) Mo-Røntgen-

strålingen med $\lambda < 0.6874\text{\AA}$ effektivt, idet stråling med sådanne bølgelængder deltager i excitationprocesser i Zr-filteret.

Under spredning afbrydes fotonen fra dennes hidtidige bevægelsesretning. Dette kan ske med eller uden overførsel af energi til det spredende atom (d.v.s. som enten Compton- eller Rayleighspredning af fotonen) gennem kollision med en enkelt elektron eller med et atom som et hele. σ kaldes som nævnt den lineære spredningskoefficient, der beskriver disse to processer. Dels den inkohærente eller Compton-spredning. Dels den kohærente eller Rayleigh-spredning. Der ses i det følgende mere detaljeret på disse processer og deres afhængighed af den anvendte strålings bølgelængde (energi).

Compton-spredningen fremkommer ved kollisioner mellem en foton og en relativt løst bunden elektron. En del af energien, der er indblandet i kollisionen overføres til elektronen og bølgelængden af fotonen ændres tilsvarende. Compton-spredningen er dog ikke umiddelbart til at skille sig af med, og i de aktuelle diffraktions-eksperimenter har vi måttet korrigere for denne i Data-behandlingen ifølge tabel-opslag i "International Tables for x-Ray Crystallography", bd. III, s. 251, 1968.

Rayleigh-spredningen opstår som følge af elastiske kollisioner mellem fotoner og hele atomer, d.v.s. under denne spredningsproces forekommer ingen energiudveksling mellem fotonerne og de indre frihedsgrader i atomerne. Dette forhindrer dog ikke, at fotonerne kan udveksle energi med gitteret, atomerne sidder placeret i, og m.a.o. skabe fotoner via atomerne. Herigennem kan fotonerne miste energi, men altså ikke ved at atomerne til-

føres indre energi. Rent faktisk er det summen af denne i nogle tilfælde elastiske, i andre tilfælde inelastiske Rayleigh-spredningsproces på gitteret, der kan måles. Det atomare Rayleigh-tværsnit aftager med aftagende foton-bølgelængder. Rayleigh-spredningen på et enestående isoleret atom vokser monotont med atomnummeret for atomet.

Med netop denne på gitteret såvel elastiske som inelastiske Rayleigh-spredning fremkommer de Røntgen-interferensfænomener, som man betjener sig af i Røntgen-diffraktions-eksperimenter.

I eksperimenterne støder man på alle tre nævnte typer af stråling udsendt fra bestrålet stof - Rayleigh, Compton og flourescens. Rayleigh-strålingen er i modsætning til de andre strålingstyper resultatet af en kohærent spredningsproces. Den kohærente spredningsproces er defineret som en proces, hvorunder den indre energi hos sprederen ikke ændres og dermed som en proces, hvorunder fasen hos den udkommende stråling kun har ændret sig i forhold til fasen hos den indkommende stråling som følge af bevægelsen af hele sprederen.

Under en Compton-spredningsproces afleverer Røntgen-fotonen energi til løst bundne elektroner hos det spredende atom, og derefter fortsætter den spredte foton med den tiloversblevne energi.

Denne spredning er inkohærent, da den indre energi hos det spredende atom ændres ved selve spredningen, og der opstår en faseændring hos fotonen som følge af dennes uelastiske kollision med den løst bundne elektron.

Flourescens-strålingen adskiller sig fra begge de førnævnte strålingstyper. Når fotoner har anslået elektroner i højere energitilstande, henfalder elektronerne kun med en vis stokastisk sandsynlighed og ikke efter et bestemt tidsrum i

den højere energitilstand. Denne inkohærente absorptions-og deraf flg. reemissionsproces adskiller sig kvalitativt fra Rayleigh-og Compton-spretningsprocesserne ved tidsforskydning mellem det indkommende og det udgående signal.

Tab.4.1. Samlende karakteristik af strålingstyperne.

Rayleigh	Compton	Flourescens
Resultat af kohærent spredningsproces.	Resultat af inkohærent spredningsproces.	Inkohærent absorptions-og derafter flg. reemissionsproces.
Spretningsprocessen elastisk - ingen indre energitilstandsforandring hos de spredende atomer i forbindelse med spredningen.	Spretningsprocessen inelastisk - indre energitilstandsforandring hos det spredende atom, da løst bunden elektron modtager kinetisk energi fra foton.	Resultat af to indre energitilstandsændringer hos det bestrålede atom - den første i forbindelse med excitation hos det bestrålede atom - dernæst som følge af emission eller flourescens hos det exciterede atom.

4.1.1 Polarisation

I vore diffraktionseksperimenter anvendes en Røntgen-stråle, der kan opfattes som bestående af enkelte Røntgen-kvant, der hver især kan betragtes som en lineært polariseret plan elektro -mag-

netisk bølge. Orienteringen af de lineært polariserede Røntgen-kvant anses for tilfældig. Det betyder, set i nedenstående figur, at Røntgen-fotonernes elektriske feltvektor (\vec{E}_0) varierer i alle retninger i y-z-planen, vinkelret på udbredelsesretningen, som inden spredningen i koordinatsystemets O-punkt, foregår langs x-aksen. På skitsen betragtes nu en sådan vilkårligt valgt feltvektor, \vec{E}_0 , med en vilkårlig vinkel mellem denne og x-y-planen:

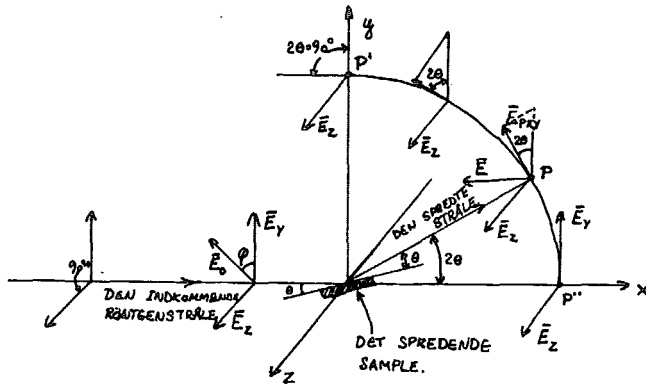


Fig.4.4. Polarisation af en spredt Røntgenstråle. /Efter Klug og Alexander, s.133/

Denne \vec{E}_0 betragtes opsplittet i en y-og en z-komponent, som er \vec{E}_0 's projektion på henholdsvis y-og z-akse (\vec{E}_y og \vec{E}_z). Der gælder, at $\vec{E}_0 = \vec{E}_y + \vec{E}_z$. Problemet er nu, at bestemme den vinkelafhængige faktor, polarisationsfaktoren, som den spredte Røntgenstråles intensitet aftager med i en vilkårlig spredningsvinkel 2θ (ved punkt P) som følge af polarisation. Ved Rayleigh-spredning accelereres spredernes elektronskyer af \vec{E}_0 , og disse vibrerer i skitsen i y-z-planen, når Røntgenstrålens udbredelsesretning som her er langs

x-aksen. Da elektronerne ikke udstråler energi parallelt med deres vibrationsretning, vil man f. x. ved $2\theta = 90^\circ$ (d. v. s. P') slet ikke kunne iagttage elektronernes bevægelse langs y-aksen, og dermed ikke kunne iagttage den indkommende Røntgen-stråles y-komponent, \bar{E}_y .

Der er dog ingen problemer med at iagttage \bar{E}_z ved P', da elektronerne giver fuld energi-udstråling vinkelret på deres vibrationsretning. \bar{E}_z videresendes derfor ideelt ved fuld styrke til P'.

Et andet grænsetilfælde for polarisation af den spredte Røntgen-stråle opstår ved $2\theta = 0^\circ$ (d. v. s. ved P''). Ligesom \bar{E}_z optrådte ved fuld styrke ved P' som følge af Rayleigh-spredning, optræder både \bar{E}_y og \bar{E}_z ved fuld styrke, når Røntgen-strålen ved Rayleigh-spredning spredes og fortsætter strålebevægelsen langs x-aksen til P''.

Herefter udledes polarisationsfaktoren for en vilkårligt valgt spredningsvinkel 2θ gældende ved punktet P, idet intensiteten, I, af Røntgen-strålingen antages at være proportional med kvadratet på den totale \bar{E} -feltvektor ved P. Den resulterende felt-vektor i x-y-planen ved P benævnes \bar{E}_{pxy} , og denne kan udtrykkes ved en projektion af \bar{E}_y ind på normalen til den spredte Røntgen-stråles udbredelsesretning: $\bar{E}_{pxy} = \bar{E}_y \cos 2\theta$. \bar{E}_y i sig selv var jo \bar{E}_0 's komponent i x-y-planen, og da vinklen mellem \bar{E}_0 og \bar{E}_y er φ , gælder der, at:

$$\bar{E}_{pxy} = \bar{E}_0 \cos \varphi \cdot \cos 2\theta$$

\bar{E}_z polariseres slet ikke uanset spredningsvinklen, og findes ved fuld styrke ved P. \bar{E}_z kan udtrykkes ved \bar{E}_0 på flg. form:

$$\bar{E}_z = \bar{E}_0 \sin \varphi$$

Med disse E-felt-komponenter givet ved P, gælder flg. om intensiteten af Røntgen-strålen samme sted. Da $I \propto E^2$, hvor $\bar{E} = \bar{E}_{pxy} + \bar{E}_z$, fås:

$$I \propto \langle E_0^2 (\cos^2 \varphi \cos^2 2\theta + \sin^2 \varphi) \rangle \varphi$$

Der midles m.h.t. φ , da \bar{E}_0 er vilkårligt orienteret i y-z-planen, og lige sandsynlig i alle retninger. Dette udtryk kan forenkles:

$$I \propto E_0^2 (\langle \cos^2 \varphi \rangle \cos^2 2\theta + \langle \sin^2 \varphi \rangle)$$

De to midlinger resulterer begge i $\frac{1}{2}$ og derefter fås:

$$I \propto E_0^2 \left(\frac{1}{2} \cos^2 2\theta + \frac{1}{2} \right)$$

eller

$$I \propto E_0^2 \left(\frac{1 + \cos^2 2\theta}{2} \right)$$

I parentesen står nu polarisationsfaktoren, som intensiteten af de spredte Røntgen-stråler skal korrigeres med.

4.2 Amplituden af Røntgen-stråler Rayleigh-spredt på stof.

Problemet er her, at beskrive størrelsen af (d.v.s. amplituden af) det elektriske felt i et rumpunkt hidrørende fra monokromatiske og kohærente Røntgen-stråler spredt på stof. Denne stør-

relse er den kohærente spredningsamplitude, der afhænger af spredningsvinklen, og angiver interferensforholdene i forskellige punkter i rummet. Interferensen opstår i forbindelse med spredningen som et resultat af spredernes indbyrdes placering.

I teorien betragtes et meget lille stykke stof bestående af uendeligt mange atomare spredere, som befinder sig uendeligt langt (i forhold til udstrækningen af det bestrålede område på samplet) fra rumpunktet for detektion af de spredte Røntgen-stråler. En Røntgen-stråle på vej ind i det spredende stof udbreder sig som en plan bølge, der er lineært polariseret, d.v.s. Røntgen-strålens \vec{E} -felt-vektor beskrives i kompleks notation som $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{i(\omega_0 t \pm \vec{k} \cdot \vec{r})}$, hvori \vec{r} er en stedvektor valgt udfra et arbitrært valgt nulpunkt, t er tiden, \vec{k} er den plane bølges bølgetalsvektor med størrelsen $\frac{2\pi}{\lambda}$ og orienteret parallelt med den plane bølges udbredelsesretning, ω_0 er den indkommende Røntgen-fotons frekvens, og \vec{E}_0 er en konstant vektor, der angiver \vec{E} -felt-vektorens maksimaludslag. \vec{E}_0 er vertikalt orienteret, dersom bølgens udbredelsesretning tænkes sammenfaldende med det horisontale plan. - Et øjebliksbillede af denne bølges \vec{E} -vektorer fås ved at sætte $t=0$ og og tage realdelen af ovenstående udtryk.

Denne plane bølge blev godtnok oprindeligt udsendt fra Røntgen-targetet, som en kuglebølge (se også fig.4.6), men kan i nærheden af sprederne opfattes som en plan bølge, da forholdet mellem udstrækningen af samplet, en lineær størrelse a , der f.eks. er diameteren af et cirkulært udformet sample, og afstanden b fra targetet til samlingen af atomare spredere er karakteriseret ved forholdet $a/b \ll 1$. Samtidig gælder betingelsen $c/a \gg 1$. I denne relation er c afstanden fra samplet til detektor-position.

tionen. Dette forhold bevirker, at interferens i en vilkårlig detektorposition P (se fig.4.6) ikke afhænger af afstanden c, men kun af retningen spredningsvinkelen afstikker (at dette er tilfældet, vises senere).. - Når den plane Röntgen-bølge spredes, udsendes der fotoner som kuglebølger fra de spredende atomer. Denne situation er skitseret i flg. fig.(4.5):

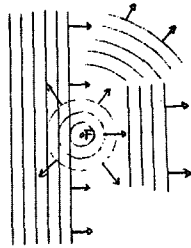


Fig.4.5. Udsendelse af kuglebølge (cirkelbølge i 2 dim.) fra en spredner.

Det skal herefter anskueliggøres, hvorledes Röntgen-stråler bevæger sig gennem stof, når adskillige fotoner spredes netop som sådanne kuglebølger. Den flg. stærkt fortegnede (!!!) skitse betragtes:

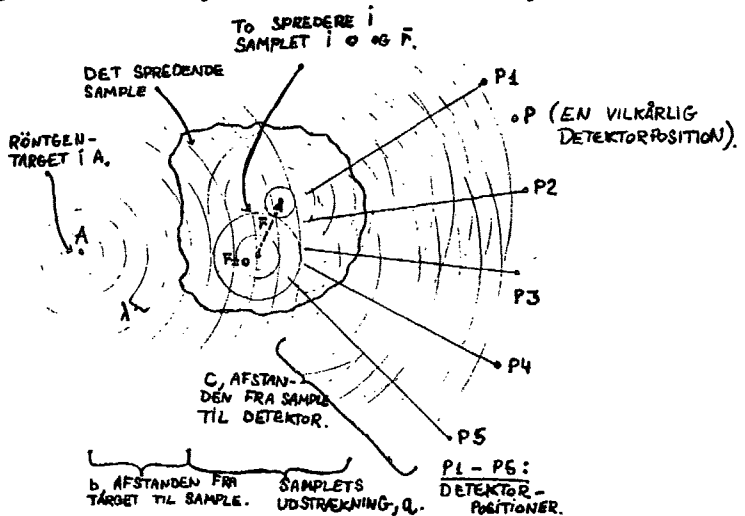


Fig.4.6. Skitse af Röntgen-spredning på to spredere.

I fig.4.6 udsendes en Røntgen-bølge som en kuglebølge fra target til venstre i billedet. Bølgen er karakteriseret ved bølgelængden λ , og buestykkerne i figuren angiver positionerne af bølgetoppe. Denne bølge spredes på to spredere i samplet. Netop når en bølgetop fra denne fra target udsendte bølge passerer en spredere, starter en kuglebølge med bølgetop sin udbredelse fra sprederen med bølgelængden λ . Dette princip er fulgt under tegningen af fig.4.6, og derefter er retningerne, hvori bølgetoppe udsendt fra de to spredere skærer hinanden (og hvori bølgerne dermed interfererer konstruktivt) trukket op. For situationen skitseret i fig.4.6 ses der nu med de to spredere at optræde konstruktiv interferens i detektorpositionerne P1-5.

I det flg. udledes et udtr. (se lign. o) for amplituden E i detektorpunktet P (se fig.4.6) af det resulterende elektriske felt af den Rayleigh-spredte Røntgen-stråling.

Til udledningen er det nødvendigt, at bestemme et udtr. for fasefaktoren i P for en given bølge spredt ved en given atomposition, \vec{r} .

Givet udtrykket for E -feltet af Røntgen-bølgen:
 $E(\vec{r}) = E_0 \exp(i\vec{k}\vec{r} - i t)$, som betragtes for $t=0$, d.v.s.:
 $E(\vec{r}) = E_0 \exp(i\vec{k}\vec{r})$, defineres bølgens fasefaktor som:

$$\frac{E(\vec{r})}{E_0} = \exp(i\vec{k}\vec{r})$$

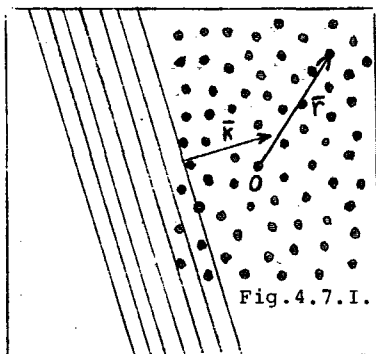


Fig.4.7.I.

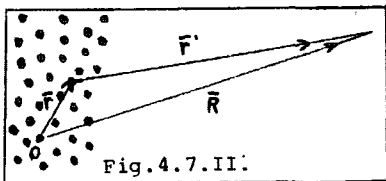


Fig.4.7.II.

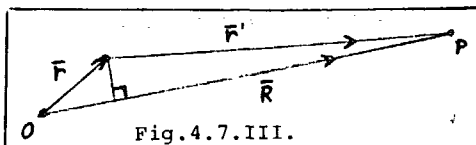


Fig.4.7.III.

Fig.4.7.III. Længden af \vec{r}' er:

$$(\vec{r}')^2 = (\vec{R} - \vec{r})^2 = R^2 + r^2 - 2rR\cos(\vec{r}, \vec{R})$$

Hvis \vec{R} er tilstrækkelig fjern, således at $r/R \ll 1$ (eller set i fig.4.6.: $a/b \ll 1$), kan kvadratroden af højresiden i ovenstående relation Taylorudvikles til:

$$\begin{aligned} r' &\approx R(1 - (2r/R)\cos(\vec{r}, \vec{R}))^{1/2} \\ &\approx R - r \cdot \cos(\vec{r}, \vec{R}) \end{aligned}$$

I fig.4.7.I ses en plan elektro-magnetisk bølge udbredende sig i et fast stof (et atom er udvalgt til nulpunkt). På et givet tidspunkt er fasen af bølgen ved \vec{r} i forhold til bølgen ved 0 givet ved fasevinkelen $\vec{k} \cdot \vec{r} = (2\pi/\lambda)\cos(\vec{r}, \vec{k})$ og bølgeamplituden ved \vec{r} forholder sig til amplituden ved 0 ved $e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}$. Det antages, at atomet placeret ved \vec{r} spreder en del af den indkommende stråling, hvorefter amplituden af den spredte bølge ved P ved $\vec{R} = \vec{r} + \vec{r}'$ (se fig.4.7. II) findes. Her observeres en stråling med amplituden proportional med fasefaktoren $e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}$ af den indkommende bølge ved r og fasefaktoren, $e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}'}$,

af den spredte stråling ved \bar{R} . Den totale fasefaktor for den spredte bølge fra \bar{r} ved \bar{R} er derfor:

$$e^{i\bar{k}\cdot\bar{r}} e^{ik r'} = e^{i(\bar{k}\cdot\bar{r} + k r')}$$

Som det ses af beregningen under fig.4.7.III kan r' udtrykkes ved:

$$r' \approx R - r \cdot \cos(\bar{r}, \bar{R})$$

, hvorefter fasefaktoren fra forrige udtryk kan skrives som:

$$e^{i(\bar{k}\cdot\bar{r} + \bar{K}\cdot\bar{R} - k \cdot r \cdot \cos(\bar{r}, \bar{R}))}$$

Da $\bar{K}\cdot\bar{R}$ blot er et konstant bidrag til den samlede fasefaktor ved \bar{R} , uanset hvor i samlet det betragtede spredende atom befinder sig, kan der ses bort herfra, og man har da:

$$e^{i(\bar{k}\cdot\bar{r} - k r \cos(\bar{r}, \bar{R}))}$$

Og endelig skrives eksponenten i denne eksponentialfunktion mere praktisk som:

$$i(\bar{k}\cdot\bar{r} - k r \cos(\bar{r}, \bar{R})) = i(\bar{k} - \bar{k}')\bar{r}$$

, hvor \bar{k}' som allerede nævnt er bølgetalsvektoren for den spredte bølge.

Vi har dermed forvissat os om, at en nødvendig betingelse for opstillingen af denne eksponent til fasefaktoren er, at samplets udstrækning, a , skal være meget mindre end afstanden b (se fig. 46).

Gennem de ovennævnte antagelser kan man herefter angive et samlet udtryk for den totale størrelse af amplituden, E , af det elektriske felt af den Rayleigh-spredte Røntgen-stråling med bølgetalsvektor \bar{k} for den indkommende stråling.

Dette resulterende E-felt i detektorpunktet fremkommer som en superposition af feltbidragene fra de enkelte spredere i samplet. Disse bidrag er proportionale med fasefaktorerne $e^{i(\bar{k}-\bar{k}')\bar{r}}$ hidrørende fra de enkelte spredere og med elektron-koncentrationen, $n(\bar{r})$, ved \bar{r} sådan som denne er defineret ovenfor. Da elektronerne betragtes som "udsmurte" over rummet, integreres der over hele rummet for at medtage samtlige E-felt-bidrag.]. Der gælder altså:

$$E \propto \int_V n(\bar{r}) \cdot e^{-i(\bar{k}'-\bar{k})\bar{r}} d\bar{r}$$

E er endvidere proportional med E_0 , der er amplituden på den indkommende Røntgen-stråle karakteriseret ved \bar{k} . Ligesom E er omvendt-proportional med afstanden R fra stoffets nulpunkt til detektorpunktet. Ydermere skal udtrykket for E indeholde korrektionen for polarisation af de i diffraktionseksperimentet oprindeligt upolariserede Røntgenstråler.

Denne polarisationsfaktor er allerede givet i

afsn.4.1.1 og sammenholdt med resten af Thomson's ligning findes det samlede udtryk for E. Thomson's ligning, der samtidig definerer 1 elektron unit = 1 eu, for intensiteten af den kohærente spredning fra en enkeltstående og isoleret elektron (i c-g-s-enheder) er givet som:

$$(1) \quad I_e = I_0 \frac{e^4}{R^2 m^2 c^4} \left(\frac{1 + \cos^2 2\theta}{2} \right)$$

, hvori I_0 er strålingens oprindelige intensitet, e er elementarladningen, m er elektronens masse, c er lysets hastighed, og udtrykket i parentes er polarisationsfaktoren. I denne er som nævnt 2θ spredningsvinkelen i eksperimenterne. Der gælder endvidere flg. sammenhæng mellem E og I , der er intensiteten af Röntgen-strålingen:

$$I = \alpha E^2$$

, hvori α er den proportionalitetskonstant, der giver højresiden i udtrykket dimension som en intensitet. I_{eu} angiver fremover i teksten intensiteter målt i enheder af I_e .

Endelig kan vi sammenfatte det ovennævnte til flg. samlede udtryk for E :

$$(2) \quad E = E_0 \frac{e^2}{R \cdot mc^2} \left(\frac{1 + \cos^2 2\theta}{2} \right)^{1/2}$$

$$\cdot \int_V n(\vec{r}) \cdot e^{-i(\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r}} d\vec{r}$$

, hvori V angiver positionen af det spredende infinitesimale volumenelement $d\vec{r}$. Der integreres over hele det spredende sample.

Herefter sættes $\bar{k}' - \bar{k} = \Delta\bar{k}$. Dette er spredningsvektoren, der har størrelsen:

$$|\Delta\bar{k}| = \frac{4\pi \sin\theta}{\lambda}$$

For at simplificere ovenstående udtryk sættes:

$$Q = E_0 i \frac{e^2}{R m c^2} \left(\frac{1 + \cos^2 2\theta}{2} \right)^{1/2}, \text{ og man har derefter:}$$

$$(3) \quad E = Q \int_V n(\bar{r}) \cdot e^{-i\Delta\bar{k}\bar{r}} d\bar{r}$$

Men dette udtryk for E er det muligt at omdanne til en funktion af atomtætheden i samplet i stedet for af $n(\bar{r})$. Elektrontætheden i samplet beskrives ved en sum af tæthedsbidrag, $n_m(\bar{r} - \bar{r}_m)$, hvor n_m i overensstemmelse med de gjorte antagelser er absolutkvadratet af de bølgefunktioner, der hos det m'te atom i samplet kan tilskrives de til spredning aktuelle elektrontilstande. Tætheden afhænger udelukkende af afstanden $|\bar{r} - \bar{r}_m|$ fra det m'te atoms tyngdepunkt \bar{r}_m . Med dette fås:

$$(4) \quad n(\bar{r}) = \sum_m n_m(\bar{r} - \bar{r}_m)$$

Ved indsættelse af 4 i 3 fås:

$$(5) \quad E = Q \cdot \sum_m \int_V n_m(\bar{r} - \bar{r}_m) \cdot e^{-i\Delta\bar{k}\bar{r}} d\bar{r}$$

eller:

$$(6) \quad E = Q \cdot \sum_m e^{-i\Delta\bar{k}\bar{r}_m} \int_V n_m(\bar{r} - \bar{r}_m) \cdot e^{-i\Delta\bar{k}(\bar{r} - \bar{r}_m)} d\bar{r}$$

Her summeres over samtlige m atomer, og indenfor hvert atom opsummeres de enkelte elektroners bidrag til den samlede amplitude ved detektorpositionen. Bidraget hertil, som kommer fra de enkelte atomer, er:

$$(7) \quad f(\Delta\bar{k}) = \int_V n_m(\bar{r}-\bar{r}_m) \cdot e^{-i\Delta\bar{k}(\bar{r}-\bar{r}_m)} d\bar{r}$$

, som er defineret som den atomare spredningsfaktor (en stofkonstant, som også kaldes formfaktoren) for det spredende stof. Denne størrelse afhænger kun af spredningsvektoren $\Delta\bar{k}$, når antagelsen om ens elektronforhold for samtlige atomer gælder. Fra nu af betragtes kun grundstoffer. 7 indsættes i 6, og man får flg. amplitudeudtr., hvor der summeres over spredningsbidragene fra N spredende atomer:

$$(8) \quad E = Q \cdot f(\Delta\bar{k}) \sum_{m=1}^N e^{-i\Delta\bar{k}\bar{r}_m}$$

\bar{r}_m afhænger imidlertid af tiden, t (der tænkes i et klassisk billede til beskrivelsen af positionerne af atomerne). E kan derfor på flg. måde beskrives som en fkt. af tiden:

$$(9) \quad E(t) = Q \cdot f(\Delta\bar{k}) \sum_{m=1}^N e^{-i(\omega_0 \cdot t - \Delta\bar{k}\bar{r}_m(t))}$$

, hvor summationen går over samtlige N atomer i samplet, ω_0 er frekvensen af den indkommende Røntgen-foton, $\bar{r}_m(t)$ angiver placeringen af det m 'te atoms tyngdepunkt som fkt. af tiden forårsaget af termiske bevægelser.

Hermed er præsenteret et udtryk for størrelsen af det elektriske signal af Rayleigh-spredte Røntgen-stråler - målet er herigennem at beskrive det spredende samples mikroskopiske strukturforhold.

I det flg. vises, hvorledes det tidsmidlede kvadrat af E -fkt.'en svarer til en frekvensintegreret

intensitet af signalet. Denne forholder sig til van Hove's korrelationsfunktion ved en Fourier-transformation. - Givet en partikel, m , med en bestemt position i rummet til tiden, t , så angiver van Hove's korrelationsfunktion sandsynlighedstætheden for at finde en vilkårlig partikel, p , i afstanden \bar{r} til tiden $t+\tau$ fra den givne partikel, m . - Endelig vises det, hvorledes van Hove's korrelationsfunktion forholder sig til den radiale distributionsfunktion.

4.3 Sammenhængen mellem den frekvensintegrerede intensitet af den stofspredte Röntgen-stråle og den radiale distributionsfunktion for samplets atomer.

Givet et signal $E(t)$, der er et udtryk for størrelsen af det elektriske felt i et rumpunkt, som udtr. 9, defineres dette signals tidslige autokorrelationsfunktion. Denne autokorrelationsfunktion er en funktion, der fortæller om sammenhængen mellem signalets størrelse til et tidspunkt, t , og til et tidspunkt lidt senere, $t+\tau$. Signalets tidslige autokorrelationsfunktion er:

$$(10) \quad I'(\tau) = \alpha \langle \text{Re}(E(t)) \text{Re}(E(t+\tau)) \rangle_t$$

, hvor den "sædvanlige" korrelationsfunktion er ganget med α for at give funktionen dimension som en intensitet i elektronenheder. Det er real-delene af E -udtrykkene, der giver korrelationsfunktionen, og tidsafhængigheden af det elektriske felt bestemmes af de termiske bevægelser af atomerne i det undersøgte stof, d.v.s. $\bar{r}_m(t)$. - Ovenstående middelværdi kan rent definatorisk omformuleres, så man får:

$$(11) \quad I'(\tau) = \alpha \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T \text{Re}(E(t)) \text{Re}(E(t+\tau)) dt$$

Wiener-Khintchine-teoremet giver (uden at vi her skal komme nærmere ind på hvorfor), at spektralfordelingen er givet ved den Fourier-transformerede af den tidslige autokorrelationsfunktion, $I'(\tau)$. Spektralfordelingen er her givet som intensiteten af strålingen per frekvensområde og benævnes $I'(\omega)$. Man får altså ved brug af Wiener-Khinchine-teoremet:

$$(12) \quad I'(\omega) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} I'(\tau) \cdot e^{-i\omega\tau} d\tau$$

, hvor $I'(\omega)$ er en reel størrelse, da integralet over den komplekse sinus-del giver nul. Ved transformation af udtr.12 fås:

$$(13) \quad I'(\tau) = \frac{1}{2} \int_0^{\infty} I'(\omega) \cdot e^{-i\omega\tau} d\omega$$

eller:

$$(14) \quad I'(\tau=0) = \int_0^{\infty} I'(\omega) \cdot d\omega$$

, d.v.s. den integrerede spektralfordeling er givet ved den tidslige korrelationsfunktion taget for $\tau=0$. Dette er et forhold, der benyttes sidenhen.

Det er allerede vist, at det elektriske signal fra et Rayleigh-spredende sample, $E(t)$, er givet ved udtr.9. Idet $\bar{r}_m(t) \cdot \Delta\bar{k}$ varierer meget langsomt i tiden i forhold til $\omega_0 t$ kan det vises, at den tidslige autokorrelationsfunktion for dette signal, når E^* angiver komplekskonjugeret af E , og det fysiske felt er givet ved realdelen af $E(t)$, kan skrives som:

$$(15) \quad I'(\tau) = \frac{\alpha}{2} \langle E(t) E^*(t+\tau) \rangle_t$$

Idet $1/Q^2 \alpha$ underforstås, erstattes I' nu med I'_{eu} :

$$(16) \quad I'_{eu}(\tau) = \frac{1}{2} \cdot f^2(\Delta\bar{k}) \left\langle \sum_{p=1}^N e^{i(\omega_0(t+\tau) - \Delta\bar{k}r_p(t+\tau))} \cdot \sum_{m=1}^N e^{-i(\omega_0 t - \Delta\bar{k}r_m(t))} \right\rangle_t$$

,hvori såvel p som m nummererer samplers N atomer.

Udtr. 16 kan også skrives:

$$(17) \quad I'_{eu}(\tau) = \frac{1}{2} f^2(\Delta \bar{k}) \left\langle \sum_{mp}^N e^{-i\Delta \bar{k}(\bar{r}_p(t+\tau) - \bar{r}_m(t))} \right\rangle_t e^{i\omega_0 \tau}$$

Udfrå dette udtr. trækkes flg. del, som benævnes $S_p(\Delta \bar{k}, \tau)$, den spredningsvektorafhængige spredningsfunktion i tidsbilledet, som man også kunne kalde den gennemsnitlige fasefaktor for den p^{te} partikel:

$$(18) \quad S_p(\Delta \bar{k}, \tau) = \left\langle e^{-i\Delta \bar{k}(\bar{r}_p(t+\tau) - \bar{r}_m(t))} \right\rangle_{tm}$$

, der er en størrelse, der afhænger af p. Udtr. 18 kan indsættes i 17, idet summationen over p erindres, og middelværdien m.h.t. m tages $\langle N \rangle_t$ gange, hvor $\langle N \rangle_t$ angiver antallet af partikler, der i middel m.h.t. tiden "rammes" af Röntgen-strålingen:

$$(19) \quad I'_{eu}(\Delta \bar{k}, \tau) = \frac{1}{2} f^2(\Delta \bar{k}) \langle N \rangle_t \sum_p S_p(\Delta \bar{k}, \tau) e^{i\omega_0 \tau}$$

- Fremover skrives den summerede spredningsvektorafhængige spredningsfunktion i tidsbilledet som:

$$(20) \quad S(\Delta \bar{k}, \tau) = \sum_p S_p(\Delta \bar{k}, \tau)$$

Ifølge udtr. 12 og 19 kan man herefter skrive den spredningsvektorafhængige spektralfordeling:

$$(21) \quad I'_{eu}(\Delta \bar{k}, \omega) = \frac{1}{2} f^2(\Delta \bar{k}) \langle N \rangle_t \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S(\Delta \bar{k}, \tau) \cdot e^{i(\omega_0 \tau - \omega \tau)} d\tau$$

Eller idet man lader ω angive frekvensafvigelsen, $\omega_0 - \omega$, i forbindelse med spredningsprocessen fra ω_0 , den oprindelige frekvens hos Röntgen-strålingen, fås flg. spredningsvektorafhængige spektralfordeling:

$$(22) \quad I'_{eu}(\Delta k, \omega) = \frac{1}{2} f^2(\Delta k) \langle N \rangle_t \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S(\Delta \bar{k}, \tau) e^{i\omega \tau} d\tau$$

eller idet $S(\Delta\bar{k}, \omega)$ er den Fourier-transformerede af $S(\Delta\bar{k}, \tau)$; kan udtr.22 skrives som:

$$(23) \quad I_{eu}^i(\Delta\bar{k}, \omega) = \frac{1}{2} f^2(\Delta\bar{k}) \cdot \langle N \rangle_t \cdot S(\Delta\bar{k}, \omega)$$

, hvori $S(\Delta\bar{k}, \omega)$ er den spredningsvektorafhængige spredningsfunktion i frekvensbilledet.

Herefter defineres van Hove's korrelationsfunktion, $G(\bar{r}, \tau)$. $G(\bar{r}, \tau)$ har dimensionen partikler x volumen⁻¹, og integreres funktionen over hele rummet, bliver resultatet samplets N atomer, altså: $\int_V G(\bar{r}, \tau) d\bar{r} = N$. I korrelationsfunktionen udtrykkes partikel-tæthed v.h.a. en Dirac- δ -fkt. Denne har den egenskab, at den kun vokser op for argumentet lig nul, mens den for alle andre argumenter giver nul. δ -fkt.én har samtidig den egenskab, at den integreret over hele rummet giver 1, d.v.s. $\int_V \delta(\bar{r}) d\bar{r} = 1$. Dette fortæller samtidig, at $\delta(\bar{r})$ i sig selv har dimensionen, vol.⁻¹. Med definitionen:

$$(24) \quad G(\bar{r}, \tau) = \sum_p \langle \delta(\bar{r} - (\bar{r}_p(t+\tau) - \bar{r}_m(t))) \rangle_{tm}$$

er $G(\bar{r}, \tau)$ derfor for det betragtede system, d.v.s. det spredende sample, sandsynlighedstætheden for at finde en vilkårlig partikel p i \bar{r}_p i afstanden \bar{r} til tiden $t+\tau$ fra en given partikel m, givet at denne partikel m var placeret i \bar{r}_m til tiden t.

Fra udtr.18 og 20 kan nu opskrives flg. udtr.:

$$(25) \quad S(\Delta\bar{k}, \tau) = \left\langle \sum_p e^{-i\Delta\bar{k}(\bar{r}_p(t+\tau) - \bar{r}_m(t))} \right\rangle_{mt}$$

Da $\int_V \delta(\bar{x}-\bar{a}) \cdot f(\bar{x}) \cdot d\bar{x} = f(\bar{a})$, kan man nu af 24 og 25 få:

$$(26) \quad S(\Delta\bar{k}, \tau) = \int_V G(\bar{r}, \tau) \cdot e^{-i\Delta\bar{k}\bar{r}} d\bar{r}$$

Og rigtigheden heraf kan man forvisse sig om ved indsættelse af definitionen for $G(\bar{r}, \tau)$ i 26. Anvendelse af ovenstående regneregler for δ -fkt. ér resulterer derefter i udtr.25.

Af udtr.22, 23 og 26 fås derefter for den spredningsvektor-og frekvensafvigelsesafhængige spredningsfunktion:

$$(27) \quad S(\Delta\bar{k}, \omega) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \int_V G(\bar{r}, \tau) \cdot e^{-i(\Delta\bar{k}\bar{r} - \omega\tau)} \cdot d\bar{r}d\tau$$

eller ved transformation:

$$(28) \quad G(\bar{r}, \tau) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} S(\Delta\bar{k}, \omega) \cdot e^{i(\Delta\bar{k}\bar{r} - \omega\tau)} d\Delta\bar{k}d\omega$$

, hvilket vil sige, at den spredningsvektorafhængige spredningsfunktion i frekvensbilledet og den sted-og tidslige korrelationsfunktion fremkommer entydigt som hinandens Fourier-transformerede.

I de aktuelle diffraktionseksperimenter måles der en strålingsintensitet af de spredte Röntgen-stråler. Som det ses af udtr.28 er det nødvendigt at have kendskab til spredningsfunktionen $S(\Delta\bar{k}, \omega)$ for at få oplysninger om van Hove's korrelationsfunktion, $G(\bar{r}, \tau)$. Med vort apparatur er det imidlertid ikke muligt at måle frekvensafhængigheden af intensiteten. Energiopløsningsevnen på vores proportional-tæller er ca. 1 keV, mens den nødvendige for at måle $S(\Delta\bar{k}, \omega)$ -værdier i frekvensbilledet, er af størrelsesordenen fonon-energi, hvilket vil sige af størrelsesordenen $k_B T$ eller 1/40 eV. Af denne grund må vi i eksperimenterne lade os nøje med at måle den frekvensintegrerede $S(\Delta\bar{k}, \omega)$ -fkt. som en fkt. af $\Delta\bar{k}$.

Dette bevirker dog samtidig, at det kun bliver muligt at anvende et specialtilfælde af van Hove's korrelationsfunktion i vores databehandling.

$G(\bar{r}, \tau)$'s sammenhæng med intensiteten (den målte) søges. - $S(\Delta\bar{k}, \omega)$ er proportional med $I'_{eu}(\Delta\bar{k}, \omega)$ (således som udtrykt i udtr.23), der frekvensintegreret giver $I'_{eu}(\Delta\bar{k}, \tau=0)$.

Ved indsættelse af udtr.26 i 22 og ved derefter flg. anvendelse af udtr.14 fås $I'_{eu}(\Delta\bar{k}, \tau=0)$'s sammenhæng med G-funktionen. Idet 2 underforstås, erstattes I'_{eu} nu med I_{eu} , og $I_{eu}(\Delta\bar{k}, \tau=0)$ angiver da den målte intensitet i elektronenheder:

$$(29) \quad I_{eu}(\Delta\bar{k}, \tau=0) = f^2(\Delta\bar{k}) \langle N \rangle_t \int_V G(\bar{r}, \tau=0) e^{-i\Delta\bar{k}\bar{r}} d\bar{r}$$

Med $I_{eu}(\Delta\bar{k}, \tau=0)$ som den størrelse, der opnås ud fra eksperimentelle intensitetsdata, er det kun muligt at indhente oplysninger om den ikke-tidsafhængige van Hove's korrelationsfunktion, $G(\bar{r}, \tau=0)$, der qua definitionen i udtr. 24 er funktionen, der angiver sandsynlighedstætheden for at finde en vilkårlig partikel p (på nær partiklen m) i \bar{r}_p i afstanden \bar{r} til tiden t fra en given partikel m, der til den samme tid er placeret i \bar{r}_m .

4.4 Temperaturen indvirkning på spredningsfunktionen

Da det er et faktum, at temperaturen indvirker på de positionelle fluktuationer af faste stoffers atomer, vil det i det flg. blive undersøgt, hvorledes og i hvor høj grad dette forhold influerer på spredningsfunktionen $S(\Delta\bar{k}, \tau=0)$, der som det ses af udtr. 26 er den aktuelle spredningsfunktion, når $G(\bar{r}, \tau=0)$ skal findes.

Der gøres flg. antagelser om det faste stofs atomer i den anvendte model: 1) De enkelte atomer antages at bevæge sig om faste ligevægtspunkter i stoffet. 2) Det antages, at atomerne udfører harmoniske bevægelser omkring deres ligevægtspunkter. $\bar{r}_m(t)$, der er den positionelle afvigelse for det m'te atom til tiden t fra dets ligevægtspunkt, \bar{r}_{m0} , i stoffet, er

Gauss-fordelt.

3) Endvidere antages det, at de enkelte atomers bevægelser er ukorrelerede, hvilket betyder, at bevægelserne er uafhængige af hinanden.

4) Endelig gøres den antagelse, at amplituderne for de enkelte atomers harmoniske bevægelser er ens.

Det skal med det samme bemærkes, at der i ovennævnte antagelser optræder flere mere eller mindre grove idealiseringer. Den væsentligste (groveste) er givetvis, at atomernes bevægelser skulle være fuldstændig ukorrelerede. Dette er et problem, der justeres for senere. En mindre idealisering ligger der i antagelse 1. Vore amorfe Ge-film relaxerer i løbet af de enkelte diffraktionseksperimenter. Relaxationen resulterer imidlertid i en så ringe relativ ændring af den målte spredningsfunktion i løbet af et diffraktionseksperiment, at der ses bort herfra.

Ifølge antagelse nummer 1 gælder der, at:

$$(30) \quad \bar{r}_m(t) = \bar{r}_{m0} + \Delta\bar{r}_m(t)$$

Det m'te atoms position til tiden t , $\bar{r}_m(t)$, kan skrives som afvigelsen til t , $\Delta\bar{r}_m(t)$, fra ligevægtspunktet, \bar{r}_{m0} . - Ifølge antagelse 2 giver en tidsmidling af det stedlige afvigelsesled nul, d.v.s.:

$$(31) \quad \langle \Delta\bar{r}_m(t) \rangle_t = 0$$

Udtr. 30 og 31 kan sættes ind i 25, hvilket resulterer i:

$$(32) \quad S(\Delta\bar{k}, f=0) = \left\langle \sum_p e^{-i\Delta\bar{k}(\bar{r}_p(t+0) - \bar{r}_m(t))} \right\rangle_{tm}$$

eller:

$$(33) \quad S(\Delta\bar{k}, f=0) = \left\langle \sum_p e^{-i\Delta\bar{k}(\bar{r}_{po} - \bar{r}_{mo})} e^{-i\Delta\bar{k}(\Delta\bar{r}_p(t) - \Delta\bar{r}_m(t))} \right\rangle_{tm}$$

Under anvendelse af antagelse 1 fås:

$$(34) \quad S(\Delta\bar{k}, f=0) = \left\langle \sum_p e^{-i\Delta\bar{k}(\bar{r}_{po} - \bar{r}_{mo})} \left\langle e^{-i\Delta\bar{k}(\Delta\bar{r}_p(t) - \Delta\bar{r}_m(t))} \right\rangle_t \right\rangle_m$$

Betragter man nu herudfra funktionen, $f(T)$, der defineres som:

$$(35) \quad f(T) = \left\langle e^{-i\Delta\bar{k}(\Delta\bar{r}_p(t) - \Delta\bar{r}_m(t))} \right\rangle_t$$

, og bringer antagelse 3 om ukorreleret bevægelse i brug, kan $f(T)$ skrives som:

$$(36) \quad f(T) = \left\langle e^{-i\Delta\bar{k}\Delta\bar{r}_p(t)} \right\rangle_t \left\langle e^{-i\Delta\bar{k}\Delta\bar{r}_m(t)} \right\rangle_t$$

Da antagelse 4 fortæller os, at dette udtryks faktorer er lige store, fås:

$$(37) \quad f(T) = \left\langle e^{-i\Delta\bar{k}\Delta\bar{r}(t)} \right\rangle_t^2$$

Hermed er det anskueliggjort, at spredningsfunktionen i udtr.32 kan skrives som:

$$(38) \quad S(\Delta\bar{k}, f=0) = f(T) \left\langle \sum_p e^{-i\Delta\bar{k}(\bar{r}_{po} - \bar{r}_{mo})} \right\rangle_m$$

, hvori $f(T)$ er Debye-Waller-faktoren. Denne skal i det flg. estimeres.

Faktoren $e^{-i\Delta\bar{k}\Delta\bar{r}(t)}$ fra udtr.37 forsimples først og fremmest ved at indføre projektionen af $\Delta\bar{r}$ på $\Delta\bar{k}$ i eksponenten. Denne benævnes $\Delta r_{\Delta k}$. Der gøres hermed ingen vold imod antagelse nr.3 én side tilbage, for når $\Delta\bar{r}$ er normalfordelt i tre dimensioner, er $\Delta r_{\Delta k}$ normalfordelt i én dimension. Herefter kan

Debye-Waller-faktoren skrives som:

$$(39) \quad f(T) = \left(\langle e^{-i\Delta k \Delta r_{\Delta k}} \rangle_t \right)^2$$

Dette udtr. rækkeudvikles som: $e^x = 1 + x + \frac{x^2}{2!} + \frac{x^3}{3!} + \dots = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{x^n}{n!}$

Det generelle element i denne rækkeudvikling opskrives:

$$(40) \quad f(T) = \left(\sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \cdot \langle (-i\Delta k \Delta r_{\Delta k})^n \rangle_t \right)^2$$

eller da uligeordens-leddene tidsmidlet giver nul fås:

$$(41) \quad f(T) = \left(\sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n)!} \langle (-i\Delta k \Delta r_{\Delta k})^{2n} \rangle_t \right)^2$$

, hvorefter det i det flg. skal vises, at denne række er identisk med den tilsvarende række af flg. udtr.:

$$(42) \quad f(T) = \left(e^{-i\Delta k^2 \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t} \right)^2$$

Og det generelle element for denne rækkeudvikling er:

$$(43) \quad f(T) = \left(\sum_{n=0}^{\infty} \frac{\left(-\frac{1}{2} \Delta k^2 \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t \right)^n}{n!} \right)^2$$

$$= \left(\sum_{n=0}^{\infty} \left(-\frac{1}{2} \right)^n \cdot \frac{(\Delta k)^{2n} \cdot \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t^n}{n!} \right)^2$$

Det skal altså vises, at udtr.40 er lig udtr.43, da er Debye-Waller-faktoren givet ved udtr.42. M.a.o. skal det vises, at:

$$(44) \quad e^{-\frac{1}{2} \Delta k^2 \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n)!} \langle (-i \Delta k \Delta r_{\Delta k})^{2n} \rangle_t$$

$$= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-i \Delta k)^{2n}}{(2n)!} \langle \Delta r_{\Delta k}^{2n} \rangle_t$$

, hvori $\langle \Delta r_{\Delta k}^{2n} \rangle_t$ omskrives i overensstemmelse med, $\Delta r_{\Delta k}$ er normalfordelt ved normalfordelingsfunktionen:

$$G(\Delta r_{\Delta k}) = \frac{1}{(2\pi \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t)^{1/2}} \cdot e^{-\Delta r_{\Delta k}^2 / 2 \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t}$$

Herigennem udtrykkes $\langle \Delta r_{\Delta k}^{2n} \rangle_t$ ved $\langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t$:

$$(45) \quad \langle \Delta r_{\Delta k}^{2n} \rangle_t = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\Delta r_{\Delta k}^{2n}}{(2\pi \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t)^{1/2}} \cdot e^{-\Delta r_{\Delta k}^2 / 2 \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t} d(\Delta r_{\Delta k})$$

$$= (1 \cdot 3 \cdot 5 \cdot \dots \cdot (2n-1)) \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t^n$$

Dette resultat indsættes i udtr. 44:

$$(46) \quad \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-i \Delta k)^{2n}}{(2n)!} \langle \Delta r_{\Delta k}^{2n} \rangle_t = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-i)^{2n} (\Delta k)^{2n} \cdot 1 \cdot 3 \cdot 5 \cdot \dots \cdot (2n-1)}{(2n)!} \cdot \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t^n$$

$$= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n (\Delta k)^{2n} \cdot 1 \cdot 3 \cdot 5 \cdot \dots \cdot (2n-1)}{1 \cdot 2 \cdot 3 \cdot 4 \cdot \dots \cdot 2n} \cdot \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t^n$$

$$= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n (\Delta k)^{2n}}{2 \cdot 4 \cdot 6 \cdot \dots \cdot 2n} \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t^n = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n (\Delta k)^{2n}}{2^n \cdot n!} \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t^n$$

$$= \sum_{n=0}^{\infty} \left(-\frac{1}{2}\right)^n \cdot \frac{(\Delta k^2)^n \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle_t^n}{n!}$$

,hvilket kvadreret præcis er 43. Derfor kan Debye-Waller-faktoren nu udtrykkes som:

$$(46a) \quad f(T) = \left(e^{-\frac{1}{2} \Delta k^2 \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle} \right)^2 = e^{-\Delta k^2 \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle}$$

Dette er et reelt udtryk for Debye-Waller-faktoren, der angiver temperaturens indflydelse på intensiteten, der måles i diffraktionseksperimenterne. - Denne faktor indsat i 34 resulterer i:

$$(47) \quad S(\Delta \bar{k}, \tau=0, T) = f(T) \left\langle \sum_p e^{-i \Delta \bar{k} \cdot (\bar{r}_{p0} - \bar{r}_{m0})} \right\rangle_{mt}$$

, hvor den midlede faktor i henhold til udtr. 26 er den Fourier-transformerede af gitterpunkts-korrelationsfunktionen, $G_g(\bar{r}, 0)$, d.v.s. van Hove's korrelationsfunktion for de stationære gitterpunkter i samplet. Heraf følger den temperaturafhængige intensitetsfunktion, $I_{eu}(\Delta \bar{k}, \tau=0, T)$:

$$(48) \quad I_{eu}(\Delta \bar{k}, \tau=0, T) = e^{-\Delta k^2 \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle} f^2(\Delta \bar{k}) \langle N \rangle_t \int_V G_g(\bar{r}, 0) \cdot e^{-i \Delta \bar{k} \cdot \bar{r}} d\bar{r}$$

Da spredningsfunktionen $S(\Delta \bar{k}, \tau=0)$ jo er direkte proportional med den spredte Röntgen-intensitet, kan den mulige relative dæmpning af intensiteten i Röntgen-diffraktionseksperimenterne forårsaget af temperaturen estimeres direkte ved beregning af typiske Debye-Waller-faktorer for de aktuelle eksperimenter. - $f(T)$ estimeres:

Hvis $\langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle$ kan bestemmes, er Debye-Waller-faktoren bestemt ved udtr. 46. $\langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle$ angiver middelvadrat-forskydningen af atomerne i 1 dimension. Idet $\langle E_p \rangle$ angiver den midlede potentielle energi

af en harmonisk oscillator, som atomerne her anses for at være placeret i, fås:

$$(49) \quad \langle E_p \rangle = \frac{1}{2} k \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle \Leftrightarrow \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle = \frac{2 \langle E_p \rangle}{k}$$

, hvor k er fjederkonstanten for den harmoniske oscillator. Da den midlede potentielle energi af en klassisk harmonisk oscillator i én dimension er $\frac{1}{2} k_B T$, og $k = m\omega^2$, hvor m er massen af atomet, der oscillerer, og ω er frekvensen, atomet oscillerer med, kan middel-kvadrat-forskydningen nu udtrykkes som:

$$(50) \quad \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle = \frac{k_B T}{m\omega^2}$$

, hvor k_B er Boltzmann's konstant, og ω svarer til ω_E , den fremherskende frekvens for atomare svingninger i det iagttagne stof, Einstein-frekvensen, der er givet ved:

$$(51) \quad \omega_E = \frac{k_B \cdot T_E}{\hbar}$$

, hvori T_E er stoffets Einstein-temperatur. Og derfor kan middel-kvadrat-forskydningen af atomerne skrives som:

$$(52) \quad \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle = \frac{\hbar^2 \cdot T}{mk_B \cdot T_E^2}$$

, som er et udtryk, der kun er en faktor $\frac{2}{3}$ af det ækvivalente udtryk i Debye-modellen, som vi ikke skal komme nærmere ind på her, men som vel at mærke tager forbehold for korrelerede svingende bevægelser af atomerne. Lad os derfor antage at et mere korrekt udtr. for 52 ville være:

$$(53) \quad \langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle = \frac{3 \cdot \hbar^2 \cdot T}{2m \cdot k_B T_D^2}$$

, hvori T_D er stoffets Debye-temperatur. Dette udtr. er gyldigt for $T > \frac{1}{3} T_D$ og benyttes i det flg. Ved stuetemperatur for Ge fås, at $\langle \Delta r_{\Delta k}^2 \rangle \approx 0.00225 \text{ \AA}^2$, når det er antaget, at a-Ge's Debye-temperatur er lig krySTALLINSK Ge's ($T_{D-k-Ge} = 374^\circ \text{K}$). Ved den største spredningsvinkel i de aktuelle eksperimenter på $2\theta_{\text{max}} =$

71.71° fås samtidig:

$$(\Delta k)^2 = \left(\frac{4\pi \sin\theta}{\lambda} \right)^2 \approx 107.263 \text{ \AA}^{-2}.$$

Resultatet er en teoretisk minimalværdi i vores eksperimentelle situation på:

$$e^{-(107.263 \text{ \AA}^{-2}) \cdot (0.00225 \text{ \AA}^2)} \approx 0.79$$

Debye-Waller-faktoren fortæller dermed, at atomernes termiske bevægelser i a-Ge-samplerne ved stuetemperatur giver anledning til en nedtoning af den spredte Röntgen-intensitet på op til godt 20% (ved relativt store 2θ -værdier), set i forhold til spredning på et gitter uden termiske svingninger. De termiske bevægelser af atomerne i den beskrevne situation kan endda tænkes at give anledning til en større intensitetsnedtoning (end den allerede nævnte), da det må formodes, at a-Ge har en lavere T_D end k-Ge, og en lavere T_D (under ellers konstante forhold) resulterer i en mindre Debye-Waller-faktor.

Endelig udsiger Debye-Waller-faktoren, at der i vores eksperimentelle situation ved nedkøling af samplerne kan opnås op til 10-20% øget relativ intensitet i diffraktionseksperimenterne, men det har imidlertid ikke været muligt for os at nedkøle samplerne under Röntgen-diffraktion.

4.5 Sammenhængen mellem den tidslige autokorrelationsfunktion for det Rayleigh-spredte elektriske signal og den radiale distributionsfunktion for samplets atomer

I det flg. udtrykkes sammenhængen mellem den nævnte autokorrelationsfunktion, $I_{eu}(\Delta\bar{k}, \tau=0)$, og den radiale distributionsfunktion (RDF) for samplets atomer. RDF'en er defineret som $D(r) = 4\pi r^2 \rho(r)$, hvori $\rho(r)$ angiver middelantallet af atomer per enhedsvolumen i afstanden r fra et middelatom.

Fra udtr. 26 og 29 haves flg. udtr. for den spredningsvektor-afhængige spredningsfunktion:

$$(54) \quad S(\Delta\bar{k}, \tau=0) = \frac{I_{eu}(\Delta\bar{k}, \tau=0)}{f^2(\Delta\bar{k}) \cdot \langle N \rangle_t} = \int_V G(\bar{r}, 0) \cdot e^{-i\Delta\bar{k}\bar{r}} d\bar{r}$$

Men $G(\bar{r}, 0)$ kan udtrykkes som to korrelationsfunktioner. Selvkorrelationsfunktionen, $G_s(\bar{r}, 0)$, og partikorkorrelationsfunktionen, $G_p(\bar{r}, 0)$. $G_s(\bar{r}, 0)$ angiver sandsynlighedstætheden for at finde en given partikel i \bar{r} til tiden t , givet at den givne partikel befandt sig i $\bar{r}=0$ på det samme tidspunkt t . $G_p(\bar{r}, 0)$ angiver sandsynlighedstætheden for at finde en vilkårlig partikel (på nær den før givne) i \bar{r} til tiden t , givet at den før givne partikel sidder placeret i $\bar{r}=0$ til t . Man har altså:

$$G(\bar{r}, \tau) = G_s(\bar{r}, \tau) + G_p(\bar{r}, \tau)$$

(55) eller:

$$G(\bar{r}, 0) = G_s(\bar{r}, 0) + G_p(\bar{r}, 0)$$

For den givne partikel kan $G_s(\bar{r}, 0)$ udtrykkes

som en delta-funktion. Eftersom en forudsætning for korrelationsfunktionen jo er (se definitionen), at netop denne givne partikel er placeret i $\bar{r}=0$ til t , vokser $G_s(\bar{r}, 0)$ kun op for $\bar{r}=0$. Herefter have vi, at:

$$(56) \quad G(\bar{r}, 0) = \delta(\bar{r}) + G_p(\bar{r}, 0)$$

Da partikel-systemet for bl.a. amorfe stoffer er karakteriseret ved retningsmæssig uafhængighed (og iøvrigt er uendeligt i udstrækning), kan partikkel-korrelationsfunktionen (såvel som de øvrige led i udtr. 56) nu udtrykkes udelukkende som en fkt. af afstanden r . Denne benævnes $\rho(r)$:

$$(57) \quad G(r, 0) = \delta(r) + \rho(r)$$

Herefter indsættes udtr. 57 i 54, og man får så flg. udtr. for den spredningsvektor-afhængige spredningsfunktion:

$$(58) \quad S(\Delta\bar{k}) = 1 + \int_V \rho(r) \cdot e^{-i\Delta\bar{k}\bar{r}} \cdot d\bar{r} \Rightarrow$$

$$I_{eU}(\Delta\bar{k}) = f^2(\Delta\bar{k}) \langle N \rangle_t + f^2(\Delta\bar{k}) \langle N \rangle_t \int_V \rho(r) e^{-i\Delta\bar{k}\bar{r}} d\bar{r}$$

, hvori det første led er den ukorrelerede stråling fra de "isolerede" individuelle atomer. Denne kaldes gasspredningen, og er som det ses $f^2(\Delta\bar{k}) \langle N \rangle_t$.

Integral-leddet i 58 er proportionalt med intensiteten af interfererende Röntgen-stråling i rumlige detektions-punkter. Dette led indeholder imidlertid en problematisk singularitet. For $\Delta\bar{k}=0$, for spredningsvinkelen lig nul, giver 58 nemlig:

$$(59) \quad S(0) = 1 + \int_V \rho(r) \cdot d\bar{r}$$

, hvilket for denne såkaldte forward-scattering betyder, at $\lim_{\Delta\bar{k} \rightarrow 0} S(\Delta\bar{k}) = \infty$, når det betragtede

sample er uendeligt i udstrækning, og $\rho(r)$ som ovenfor antaget er en konst. fkt. for vort amorfte sample. Denne divergens forsøges fjernet. Til dette formål dannes flg. fkt.:

$$(60) \quad S^*(\Delta\bar{k}) = S(\Delta\bar{k}) - S_0(\Delta\bar{k})$$

, hvor $S_0(\Delta\bar{k}) \equiv \int \rho_0 e^{-i \bar{k} \bar{r}} d\bar{r} = \rho_0 \delta(\bar{k})$, hvilket endvidere betyder, at $S^*(\Delta\bar{k}) = S(\Delta\bar{k})$ for alle $\Delta\bar{k} \neq 0$. Værdien af $S^*(0)$ undersøges:

Betragtes et endeligt sample-volumen V hases der fra udtr.17, at:

$$(61) \quad I_{eu}(0, t=0) = f^2(0) \cdot \langle N^2 \rangle_t$$

Og fra udtr.19 og 20 fås for S-funktionen:

$$(62) \quad S(0) = \frac{I_{eu}(0)}{f^2(0) \cdot \langle N \rangle_t} = \frac{\langle N^2 \rangle_t}{\langle N \rangle_t}$$

Herefter beregnes $S_0(0)$. - Der gælder om middeltomtæthed, ρ_0 , at: $\rho_0 = \frac{\langle N \rangle_t}{V}$, hvorefter man har:

$$(63) \quad S_0(0) = \int_V \rho_0 \cdot d\bar{r} = \langle N \rangle_t \implies$$

$$(64) \quad S^*(0) = \frac{\langle N^2 \rangle_t}{\langle N \rangle_t} - \langle N \rangle_t$$

eller ved anvendelse af 54:

$$(65) \quad I_{eu}^*(0) = f^2(0) \cdot \left[\langle (N - \langle N \rangle_t)^2 \rangle_t \right]$$

Men for et fuldstændigt fast gitter (som et amorf fast stof) afhænger N ikke af tiden, og fluktuationskvadratet i 65 er lig nul, d.v.s.:

$$(66) \quad I_{eu}^*(0) = 0$$

Det ses hermed, at singulariteten fra udtr. 58 v.h.a. hjælpefunktionen, S_0 , er fjernet i S^* -funktionen, uden at der iøvrigt er ændret på S -funktionen gennem S^* . Om S^* gælder der altså:

$$(67) \quad S^*(\Delta\bar{k}) = S(\Delta\bar{k}) - S_0(\Delta\bar{k}) = 1 + \int_V (\rho(r) - \rho_0) e^{-i\Delta\bar{k}\bar{r}} d\bar{r}$$

Der skiftes til polære koordinater i 67:

$$(68) \quad S^*(\Delta\bar{k}) = 1 + \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^\pi (\rho(r) - \rho_0) e^{-i\Delta\bar{k} \cdot \cos\theta} r^2 \sin\theta d\theta d\phi dr$$

En del af dette integral løses, og man får:

$$(69) \quad S^*(\Delta\bar{k}) = 1 + 4\pi \int_0^\infty r^2 (\rho(r) - \rho_0) \frac{\sin(\Delta kr)}{\Delta kr} dr$$

eller formuleret gennem den til denne spredningsfunktion knyttede intensitetsfunktion, $I_{eu}^*(\Delta\bar{k})$ ved 54:

$$(70) \quad \frac{I_{eu}^*(\Delta k) / N - f^2(\Delta k)}{f^2(\Delta k)} = \int_0^\infty 4\pi r^2 (\rho(r) - \rho_0) \frac{\sin \Delta kr}{\Delta kr} dr$$

, hvori $\langle N \rangle_c = N$ betragtes som en konstant. Her er det bekvemt at indføre flg. forkortelse:

$$(71) \quad i(\Delta k) = \frac{I_{eu}^*(\Delta k) / N - f^2(\Delta k)}{f^2(\Delta k)} \\ = \frac{I_{eu}^*(\Delta k) / N}{f^2(\Delta k)} - 1$$

Ved Fourier-transformation finder man da dette udtr. for den radiale distributionsfunktion, $D(r)$:

$$(72) \quad D(r) = 4\pi r^2 \rho(r) = 4\pi r^2 \rho_0 + \frac{2r}{\pi} \int_0^\infty \Delta k \cdot i(\Delta k) \sin(\Delta kr) d\Delta k$$

Det er her bekvemt at definere den reducerede interferensfunktion, $F(\Delta k) = \Delta k \cdot i(\Delta k)$, der indsat i 71 giver:

$$(73) \quad F(\Delta k) = \int_0^{\infty} 4\pi r \cdot (\rho(r) - \rho_0) \cdot \sin(\Delta k r) \cdot dr$$

Og endvidere defineres den reducerede RDF, $g(r) = 4\pi r (\rho(r) - \rho_0)$, der indsat i 73 giver flg. kompakte udtr.:

$$(74) \quad F(\Delta k) = \int_0^{\infty} g(r) \cdot \sin(\Delta k r) \cdot dr$$

, som der vendes tilbage til.

Endelig vil det være praktisk at vide, hvorledes I_{eu}^* går imod 0 for Δk gående imod 0. Det er nemlig vanskeligt at skaffe sig sande intensitetsværdier for meget små Δk i Röntgen-diffraktionseksperimenter. $I_{eu/N}^*$'s forløb mod 0 bestemmes på flg. måde: Integralet i udtr. 71 rækkeudvikles v.h.a.:

$$\sin(\Delta k r) = \Delta k r - \frac{(\Delta k r)^3}{3!} + \frac{(\Delta k r)^5}{5!} - \frac{(\Delta k r)^7}{7!} + \dots$$

$$\frac{\sin(\Delta k r)}{\Delta k r} = 1 - \frac{(\Delta k r)^2}{6} + \frac{(\Delta k r)^4}{120} - \dots$$

, hvilket medfører: $\lim_{\Delta k \rightarrow 0} \frac{\sin(\Delta k r)}{\Delta k r} = 1$

Op da det gennem udtr. 66 og 71 ses, at:

$$(75) \quad \int_0^{\infty} 4\pi r^2 (\rho(r) - \rho_0) \cdot dr = -1$$

Herefter kan rækkeudviklingen af $I_{eu/N}^*$ udføres, idet vi benytter:

$$J(r) = 4\pi r^2 (\rho(r) - \rho_0)$$

Da fås:

$$\begin{aligned}
 (76) \quad I_{eu/N}^* &= f^2(\Delta k) \cdot \left(1 + \int_0^\infty J(r) dr - \left(\int_0^\infty J(r) \frac{r^2}{6} dr \right) \Delta k^2 + \right. \\
 &\quad \left. \left(\int_0^\infty J(r) \frac{r^4}{120} dr \right) \Delta k^4 - \dots \right) \\
 &= f^2(\Delta k) \cdot \left(- \int_0^\infty J(r) \frac{r^2}{6} dr \Delta k^2 + \int_0^\infty J(r) \frac{r^4}{120} dr \Delta k^4 - \dots \right)
 \end{aligned}$$

Det gælder, at $I_{eu/N}^*(0) = 0$. For tilstrækkeligt små værdier af Δk vil det første led i rækkeudviklingen være dominerende. Dette led er kvadratisk af typen $-a\Delta k^2$. Koefficienten a må da være negativ. For større værdier af Δk vil de højere ordens led være dominerende. For små værdier af Δk har $I_{eu/N}^*$ således et kvadratisk forløb. Og hvis man ikke har måleværdier for små k , kan man da som en approksimation for målekurvens forløb ekstrapolere $I_{eu/N}$ til $(0,0)$ parabolisk.

Opførselen af $I_{eu/N}^*$ for store Δk kan afledes fra en omskrivning af formel 70:

$$(77) \quad I_{eu/N}^* = f^2(\Delta k) + \frac{f^2(\Delta k)}{\Delta k} \int_0^\infty 4\pi r^2 (\rho(r) - \rho_0) \frac{\sin(\Delta kr)}{r} dr$$

Når Δk vokser, ser man, at $I_{eu/N}^*$ går mod $f^2(\Delta k)$. Denne egenskab for store værdier af Δk anvendes længere fremme i teksten i normaliseringsproceduren.

4.6 Operationalisering af teorien og normaliseringsprocedure

Herefter vender vi os mod det eksperimentelle problem, der består i at bestemme den reducerede interferens-funktion, $F(k)=k \cdot i(k)$ (N.B! Fra nu af benævnes Δk med k), som det ifølge udtr.74 er nødvendigt at have kendskab til for at beregne RDF'en for de aktuelle Ge-samplers atomkonfiguration.

Da den eksperimentelt målte intensitet, I_{exp} , fremstår i arbitrære enheder, drejer det sig hovedsageligt om at oversætte til I_{eu}^* , der er givet som intensiteten i elektronenheder. Man betjener sig her bl.a. af egenskaberne udtrykt i udtr.77: I_{eu}^*/N går imod $f^2(k)$ for voksende k .

Der opstilles først et udtryk for I_{eu}^* ud fra I_c , som er det i eksperimenterne målte fotontalletal, givet i tællinger per tidsenhed, efter korrektion for absorption, uønsket spredning og baggrundsstråling (se også afsn. om data-behandling og appendices).

Talletallet (en intensitet i arbitrære enheder) omsættes til en intensitet i absolutte enheder v.h.a. normaliseringskonstanten, A , der er givet ved:

$$(78) \quad A = \frac{c^5 \cdot h \cdot R \cdot m^2}{e^4 \cdot h' \cdot l' \cdot N \cdot I_0 \cdot \lambda}$$

, hvori c er lyshastigheden, h er Planck's konstant, R er afstanden mellem sample og detektor, m er elektronmassen, e er elementarladningen, N er antallet af atomare spredere i samplet, I_0 er den oprindelige intensitet i eksperimenterne, h' og l' er henholdsvis højde og længde af den anvendte kollimatorspalte, og λ er bølgelængden af Röntgen-fotonerne.

Dernæst må talletallet divideres med polarisationsfaktoren, $(1+\cos^2 2\theta)/2$, da der i eksperimenterne benyttes en oprindeligt upolariseret Röntgen-stråle, der polariseres under spredningsprocessen. - Med de to ovenfor nævnte faktorer oversættes I_c til $I_{m,eu}$.

Her kan man da oversætte $I_{m,eu}$ til I_{eu}^* , idet $I_{m,eu}$ er en sum af I_{eu}^* , den kohærente spredte intensitet, og den inkohærent (Compton-) spredte intensitet. \mathcal{P}/R er Compton-spredningsintensiteten per atomar speder. Denne er tabuleret for Ge i "International Tables for X-Ray-Crystallography", vol.III, s.251 i e.u. som fkt. af k . - Heri er R rekylfaktoren, der er givet ved $(\nu'/\nu)^3$, hvori ν' og ν er frekvensen af henholdsvis den indkommende og den Compton-spredte Röntgen-stråling. Men det kan vises i vores eksperimentelle sammenhæng, at $\mathcal{P}/R \approx \mathcal{P}$, da $R \approx 1$:

Bølgelængde-forskydningen hos Röntgen-fotoner under Compton-spredning er givet ved:

$$(79) \quad \Delta \lambda = \lambda' - \lambda = \frac{h}{m c} (1 - \cos 2\theta) \\ = 0.02426 \text{Å} (1 - \cos 2\theta)$$

, hvori λ er bølgelængden af den indkommende foton, og λ' er bølgelængden af den Compton-spredte foton. For den største spredningsvinkel (og dermed den største bølgelængde-forskydning) i den anvendte opstilling, $2\theta_{\max} = 71.71^\circ$, fås flg. bølgelængde-forskydning:

$$\Delta \lambda = 0.02426 \text{Å} (1 - \cos(71.71^\circ)) \approx 0.0167 \text{Å}$$

, hvilket medfører med $\lambda = 0.7107 \text{Å}$, at $\lambda' \approx 0.7274 \text{Å}$, og minimal-værdien for rekylfaktoren under de givne omstændigheder bliver da:

$$R_{\min} \approx \frac{0.7107}{0.7274}^3 \approx 0.9328$$

R_{\max} , der er rekylfaktoren for $2\theta_{\min} = 4.36^\circ$, kan beregnes til ≈ 0.9997 , hvorfor R i den givne eksperimentelle sammenhæng varierer fra ≈ 1 til ≈ 0.93 for voksende spredningsvinkel. Men i det flg. sættes $R \approx 1$ for alle benyttede 2θ -værdier, da dette kun indebærer en fejl ved store 2θ -værdier (på op til 7%), i hvilket vinkelområde usikkerheden på intensitetsbestemmelsen i forvejen er i størrelsesordenen 10% p.g.a. det relativt lave talletal. Endvidere formindskes den fejl, der er begået ved at approksimere R til 1, under normaliseringsproceduren (se appendix).

$I_{m,eu}$ kan nu udtrykkes som:

$$(80) \quad I_{m,eu} = I_{eu}^* + N\mathcal{J}$$

Ved indsættelse af 80 i 71 fås nu:

$$(81) \quad i(k) = \frac{I_{m,eu}/N - \mathcal{J} - f^2(k)}{f^2(k)}$$

, hvori \mathcal{J} og $f(k)$ kendes fra tabelopslag, og $I_{m,eu}/N$ i eksperimenterne består af I_c , polarisationsfaktoren og den allerede beskrevne normaliseringskonstant:

$$(82) \quad I_{m,eu}/N = \frac{A \cdot I_c}{\left(\frac{1 + \cos^2 2\theta}{2}\right)}$$

A bestemmes ved flg. fitteprocedure: På nedenstående fig.(4.8), en spredningskurve for en én-atomig væske, ses en arbitrær intensitetsakse, som gennem flg. procedure bliver absolut. $N\mathcal{J}$ er den samlede Compton-spredning som fkt. af $k \cdot N \cdot f^2(k)$

er summen af Rayleigh-spredning fra N isolerede atomer. Endvidere er vist $I_{\text{tot}} = Nf^2(k) + N\mathcal{I}$ og $I_{m,eu}$.

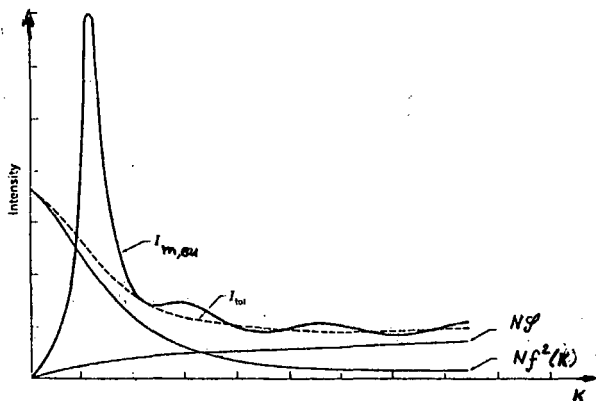


Fig.4.8. Spredningskurve for en én-atomig væske. Den stiplede kurve viser k -afhængigheden for $I_{\text{tot}} = N f^2(k) + N\mathcal{I}$ for N uafhængigt spredende atomer. Bemærk at den virkelige spredningskurve, $I_{m,eu}$, ved store spredningsvinkler går asymptotisk mod I_{tot} . /Azároff efter Klug og Alexander, s.180/.

Ved at variere A fittes $\frac{I_c}{\left(\frac{1+\cos^2 2\theta}{2}\right)}$ i arbitrære

enheder til I_{tot} . Fitningen udføres ved at lade I_c -kurven nærme sig asymptotisk til I_{tot} for voksende k -værdier. Hermed er kendskabet (se udtr. 77) til grænseværdien af $I_{eu}(k)$ for store k benyttet.

Ved denne normaliseringsprocedure gives A en endelig værdi, og intensitetsaksen bliver følgende absolut. Rent praktisk udføres denne normaliseringsprocedure bekvemt v.h.a. computer.

Hvorefter $F(k)$ er bestemt. Om normaliseringspro-
ceduren iøvrigt: se appendix A, "En normaliserings-
procedure".

Litteratur til kap.4.

Azáróff, L.V. "Elements of X-Ray-Crystallography",
McGraw-Hill, 1968.

Buerger, M.J. "Contemporary Crystallography",
McGraw-Hill, 1970.

"International Tables for X-Ray-Crystallography",
Bd.I-IV. The Kynoch Press, England, 1968.

Kittel, C. "Introduction to Solid State Physics",
2.-5. udg., Wiley.

Klug og Alexander. "X-Ray Diffraction Procedures",
Wiley, 1954.

Kohler, F. "The Liquid State", Verlage Chemie GmbH
Weinheim 1972.

Pings, C.J. "Structure of Simple Liquids by X-Ray-
Diffraction". Denne artikel er 10. kap. i bogen,
"Physics of Simple Liquids", ved Temperley, Rowlin-
son og Rushbrooke. North-Holland Publishing Company-
Amsterdam, 1968.

van Hove, L. "Correlations in Space and Time and Born
Approximation Scattering in Systems of Interacting
Particles", Phys.Rev., vol.95, nr.1, 1954.

5 FREMSTILLING AF a-Ge-FILM

De amorfe Ge-film dannes ved pådampning af (oprindeligt krystallinsk) Ge under højvakuum på et nedkølet substrat.

Apparaturet: På de fig. figurer skitseres det til filmfremstillingen benyttede apparatur. Hele opstillingen i vakuum-kammer er præsenteret i fig.5.1.

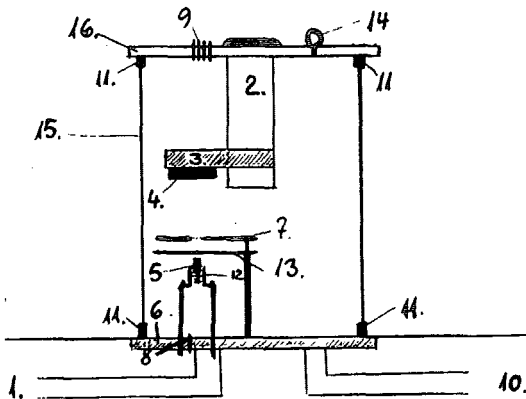


Fig.5.1. Vakuum-apparaturet til fremstilling og undersøgelse af a-Ge-film: Udtag til olie-diffusionspumpe(1). Kvalstofbeholder(2). Kontaktkasseholder(3). Kontaktkasse(4) (se også fig.5.4). Grafit-digel(5). Base af rustfrit stål(6). Tantal(Ta)-skærm(7). Vakuum-gennemføring for glødestrøm og accl.-spænding(8). Vakuum-gennemføringer for ledningsevne-og termiske målinger samt gennemføring af strøm til kontaktkassens varmelegeme(9). Udtag til kapselpumpe til den grove evakuering af rummet(10). Gummiringe til lufttætning(11). Glødetråd omkr. diglen

(12). Drejelig metal-skærm(13). Manometer(14). Cylinderglas(15). Stålblade(16).

Selve pådampningskammeret består af et cylinderglas(15) ca.40 cm. langt (diam. ca.30 cm.) påmonteret gummiringe(11) i begge ender. Som låg herpå er lagt en ca.2 cm. tyk plade af stål(6) (der er foretaget vakuum-tætning v.h.a. vakuum-fedt mellem gummilisterne og glasset og mellem lister og stål). Igennem kammerets låg er vakuum-tæt ført en cylindrisk beholder af stål(2). Dette er en beholder til flydende kvælstof, hvorpå en holder (af materiale med stor varmeledningsevne) til kontaktkassen(4), en massiv Cu-klods(3) er fastspændt med god termisk kontakt til kvælstof-beholderens indhold. Selve kontaktkassen er beskrevet længere fremme i teksten. Afstanden mellem diglen og substratet placeret i kontaktkassen er 10.5 cm.

I bunden af vakuum-kammeret findes udtag til både oliediffusionspumpen(1), der udfører den fine evakuering af rummet til tryk under 10^{-7} Torr, og til kapselpumpen, der udfører den grove evakuering af rummet til ca. 10^{-2} Torr. Under pådampningerne blev fastholdt et tryk på mindre end $1.0 \cdot 10^{-5}$ Torr. Dette lave tryk blev fastholdt for at undgå kontaminering af filmene. Under de elektriske målinger blev dette tryk også fastholdt. Trykket i pådampningskammeret blev målt ved pirani og penning. I bunden af vakuum-kammeret findes også en vakuumgennemføring for glødestrøm og accelerations-spænding(8). Glødestrømmen (100 mA ved 1 kV) trækkes gennem gløde-tråden(12). - Herved emitteres elektroner fra gløde-tråden. Disse accelereres fra tråden imod diglen v.h.a. en accelerations-spænding (1 kV) påtrykt mellem tråd og digel. Elektronernes energi afsættes som termisk energi i diglen. Herved for-

dampes diglens indhold af Ge. En del af de fordampede Ge-atomer opsamles på substratet, der er placeret i kontaktkassen(4), og fixeres dér til en amorf film af Ge.

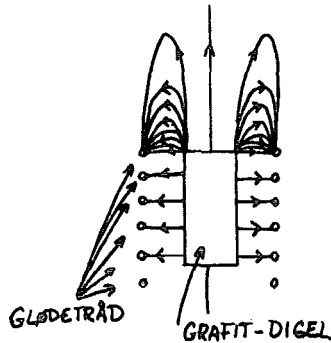


Fig.5.2. En mere detaljeret skitse i tværsnit af grafit-digel og glødetråd omkr. diglen (5 og 12 i fig.5.1). Her er også skitseret en del E-felt-linier for feltet mellem digel og tråd.

I fig.5.2 ses en forstørret skitse (i tværsnit) af grafit-diglen og glødetråden omkr. diglen, sådan som disse er placeret i opstillingen i fig.5.1 (5 og 12). Opvarmningen af diglen sker som nævnt ved elektron-bombardement. Det kan af de indtegnede E-felt-linier af feltet mellem diglen og glødetråden ses, at elektroner vil accelereres direkte ned i diglen mod diglens indhold af Ge under opvarmning af diglen. Elektronerne har her (i diglen og i området over diglen) tilstrækkelig energi til at ionisere Ge-atomerne. Hvorfor det må formodes, at den indbyrdes relative placering af digel og glødetråd har en indflydelse på koncentrationen af Ge-ioner i de amorf Ge-film og dermed på disse films elektriske egenskaber.

Mellem diglen og kontaktkassen er både placeret en tantal-skærm(7 i fig.5.1) til afskærmning af varmestrålingen under pådampning fra glødetråden imod det nedkølede sample på substratet og en drejelig metal-skærm(13), der gør det muligt at igangsætte og stoppe pådampning instantant.

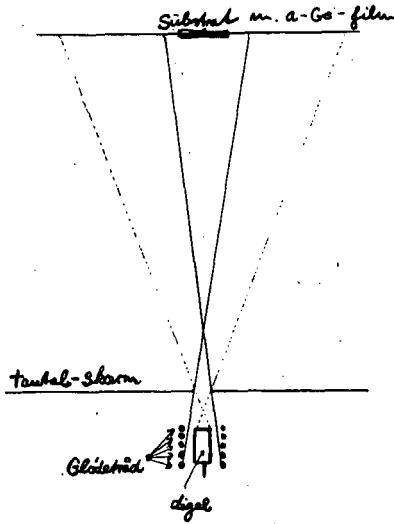


Fig.5.3.

I fig.5.3 er præsenteret en principskitse for afskærmningen med tantal-skærmen for varmestråling fra glødetråden under pådampning. Som det ses af strålegangen for varmestråling (angivet ved de fuldt optrukne linier) fra glødetråden mod substratet og for Ge-atomer (angivet ved de stiplede linier) fra diglen mod substratet, skærmes substrat med Ge-film imod direkte varmestråling fra glødetråden.

Vi vender os igen mod hele opstillingen som vist i fig.5.1. - Igennem låget til pådampningskammeret er lavet vakuumbgennemføringer(9) for ledningsevne- og termiske målinger samt gennemføring af strøm til kontaktkassens varmelegeme. Endelig er der også

med gennemføring i låget placeret et manometer(14) (på låget), der angiver trykket under den indledende grove evakuering af kammeret.

Kontaktkassen er i snit skitseret i den flg. fig.(5.4).

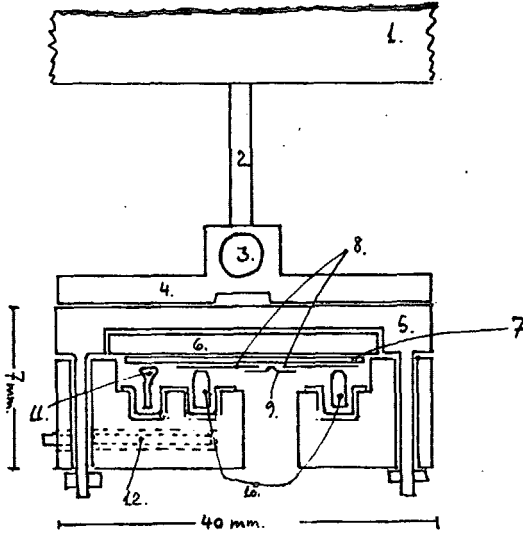


Fig.5.4. Skitseagtigt snit af kontaktkassen. Kobberklods(1). Varmemodstand af rustfrit stål(2). Varmelegeme(3). Messingplade(4). Plade af rustfrit stål(5). Substratpladen(6). Substrat(7). Au-film(8). a-Ge-film(9). Forgylde fjederkontakter(10). Thermo-element(11). Platin-modstand(12).

I fig.5.4 ses øverst kobberklodsen(1), der er i thermisk kontakt med flydende kvælstof i kvælstof-beholderen. Selve kontaktkassen er hængt op i kobberklodsen v.h.a. en stang af rustfrit stål(2), der fungerer som varmemodstand mellem kontaktkassen og kvælstofreservoiret.

Øverst i kontaktkassen er placeret et varmelegeme(3), der gør det muligt at kontrollere varmebehandling (annealing) af Ge-filmene. Selve varmele-

gemet består af en elektrisk modstand (med strøm-forsyning udenfor pådampningskammeret) indstøbt i varmeledende cement. (4) er en for kassen samlende plade af messing, og (5) er en tilsvarende af rustfrit stål. Inde i kontaktkassen er substratpladen af rustfrit stål (6) fastspændt. På denne er selve substratet (7) påklæbet v.h.a. vakuum-fedt. I fig. 5.4 er Ge-samplet fremstillet m.h.p. elektriske målinger indtegnet. Først er der blevet pådampet to stykker film af guld (8), der benyttes som elektroder til de elektriske målinger. Ovenpå (d.v.s. nedenunder i fig. 5.4) er a-Ge-filmen (9) blevet pådampet. Den elektriske D.C.-modstand af den smalle strimmel af denne film placeret mellem guldelektroderne kan nu måles gennem de forgyldte fjederkontaktter (10). Der er strømgennemføring til disse gennem låget til vakuum-kammeret.

Endvidere indeholder kontaktkassen et NiCr-Ni-thermoelement med det ene loddested placeret ved 11 i fig. 5.4. Det andet loddested var placeret på kvælstofbeholderen med en given reference-temperatur nemlig 77°K ved kvælstofs kogepunkt. Imidlertid var det vanskeligt at sikre dette loddesteds temperatur, og derfor blev thermoelementet opgivet til fordel for en platin-modstand (12) som temperatur-måler.

Temperatur-målingen på Ge-samplet er imidlertid stadigvæk problematisk, og har været det under samtlige termiske målinger (disse er præsenteret i a kap. 6). Platinmodstanden er placeret forholdsvis langt fra Ge-samplet i kontaktkassen. Hermed menes, at den termiske vej mellem det kolde reservoir (kvælstoffet) og samplet ikke har samme størrelse som den termiske vej mellem det kolde reservoir og platinmodstanden. Når kontaktkassens temperatur ændres i eksperimenterne, opstår der derfor

en temperaturforskel mellem sample og platinmodstand. Under nedkøling vil det punkt, der er tættest på det kolde reservoir, (Ge-samplet) være koldest, og jo hurtigere nedkølingen foregår, jo større vil temperaturforskellen være.

Vi har undersøgt denne temperaturforskels indflydelse på vore målinger. Vi har under en bratkøling med ledningsevne-målinger (resultatet er vist som kurve nr.4 i fig.6.2 i afsn.6.1) bremsset nedkølingen tre gange. Når nedkølingen bremses vil den målte temperatur nærme sig den sande. Undersøgelsen viser, at målepunktet forskydes relativt mod højere i det nævnte plot, når nedkølingshastigheden mindskes, og mod venstre, når nedkølingshastigheden igen øges. Altså er den målte temperatur højere end den sande under nedkøling. I slutningen af bratkølingen er nedkølingshastigheden praktisk taget lig nul, og det betyder, at den målte temperatur her er lig den sande. Det samme gælder inden nedkølingen påbegyndes. Imellem disse yderpunkter vil den målte temperatur hele tiden være højere end den sande. Hvis kurven for den sande temperatur er en ret linie, vil den målte derfor have et "svaj nedad", eller sagt mere præcist: den anden afledte af den målte kurve bliver større end den anden afledte af den sande kurve. - Ovennævnte forhold er medtaget i behandlingen af måledata i kap.6.

Substratet for filmene: Substratet var film af tykkelsen 0.01 mm. af polyethylenteraphtalat (eller i daglig tale: stegefilm til brug i husholdningsovne). Om substratet skal yderligere bemærkes, at det har været genstand for en del undersøgelser hos os. Forskellige glasser og glimmer er blevet testet som substrat. Fælles for disse gjaldt imidlertid, at intensitetsbidragene fra disse under Röntgen-diffraktionseksperimenter var store i forhold til Ge-intensitetsbidragene, som skulle iso-

leres. Med stegefilmen har vi fundet et substrat som grundet tykkelse og atomernes tilstrækkeligt små Rayleigh-spredningstværsnit kun bidrager næglingerbart (d.v.s. så lidt at det bliver muligt at korrigere herfor) i Röntgen-diffraktions-data. Det antages endvidere, at stegefilmen udgør en jævn, men uordnet overflade for Ge-laget. Stegefilmens atomare opbygning er amorf og inducerer derfor ikke krystallinsk orden i Ge-filmen ved overfladepåvirkning. Endelig har vi med stegefilmen som substrat undgået problemet med at tage filmen af substratet. Inden opstilling af substratet i kontaktkassen blev dette rengjort i et ultralyd-kar (og derefter ikke berørt).

Pådam্পningen af Au-elektroder: Inden pådam্পningen af Ge-filmen m.h.p. ledningsevne-målingerne, pådam্পedes film af guld, der skulle fungere som elektroder på Ge-filmen. For at frembringe to ens elektroder på substratet i løbet af én pådam্পning med guld, skærmes der med en 0.05 mm. Cu-tråd ved at placere denne klods op ad substratet som vist på fig. 5.5.

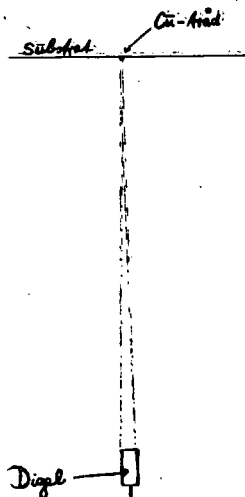


Fig. 5.5. Elektrode-
fremstilling under
Au-pådam্পning.

Mikroskopering af Au-elektroder har vist, at den skitserede procedure frembringer en veldefineret/skarp spalte mellem de to elektroder, selv om den med stiplede linier tegnede strålegang for Au-atomer i fig.5.5 antyder, at der vil kunne opstå områder på substratet med halvskygge for Au-atomer.

a-Ge-filmene: Filmene blev fremstillet ved pådampning af 99.999% rent krystallinsk Ge. Da filmen m.h.p. Röntgen-undersøgelse fremstilledes, blev Ge dampet direkte på stegefilmen. For denne film var der flg. fremstillingsbetingelser:

Pådampningens varighed: 5 pådampninger af 10 min.
Sample-tykkelse: $\approx 5 \cdot 10^{-6} \text{ m}$.
Pådampningshastighed: $\approx 17 \text{ \AA s}^{-1}$.

Grunden til at pådampningen blev delt op i fem relativt kortvarige pådampninger var, at filmen ville være krakeleret under én pådampning af samme varighed som de fem relativt kortvarige tilsammen.

Inden filmen, der skulle foretages ledningsevneundersøgelser på, blev pådampet substratet, var der pådampet Au-elektroder herpå. For denne a-Ge-film gjorde flg. sig gældende under fremstillingen:

Pådampningens varighed: 10 min.
Sample-tykkelse: $\approx 1 \cdot 10^{-6} \text{ m}$.
Pådampningshastighed: $\approx 17 \text{ \AA s}^{-1}$
Dimensionerne af a-Ge-filmene, der målttes på, var:
 $1 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\cdot 50 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\cdot 6 \cdot 10^{-3} \text{ m}$.

Grunden til, at filmen m.h.p. Röntgen-undersøgelser blev fremstillet med relativt stor tykkelse, var, at Röntgen-spredningen herigennem kunne optimeres.

Om Ge-lagets temperatur under pådampning: se appendix C.

6 JÆVNSTRØMSLEDNINGSEVNE - EKSPERIMENT OG DISKUSSION

6.1 Eksperiment

Jævnstrømsledningsevne målingerne skal tjene to formål. For det første: en test af Mott-loven. For det andet: en test af vores relaksationsmodel.

Formålene stiller to forskellige krav til målingerne, idet det første fordrer, at ledningsevnen måles ved varierende temperatur i en fastholdt struktur, mens det andet fordrer en fastholdt temperatur og en varierende struktur.

Ved temperaturer under varmebehandlingstemperaturen vil relaksationsprocessen forløbe meget langsomt, og derfor kan man undersøge ledningsevns temperaturafhængighed for en fastholdt struktur ved alle temperaturer under varmebehandlingstemperaturen.

Det andet krav, om at måle ledningsevnen mens strukturen relaxerer ved en fastholdt temperatur, er simpelt at opfylde, men relaksationsprocessen viser sig at forløbe meget langsomt efter ca. en times varmebehandling. For at måle et længere relaksationsforløb på kortere tid og for at teste den afhængighed af varmebehandlingstemperaturen, som vores relaksationsmodel forudsiger, har vi derfor valgt at øge varmebehandlingstemperaturen med mellemrum.

Begge krav til ledningsevne målingen er opfyldt med det temperaturforløb vi har bebygget. Se fig. 6.1. Under "bratkølingerne" måles ledningsevns temperaturafhængighed for en fastholdt struktur.

log. til Specifik Ledningsevne[1/(Ohm*cm)] som fkt. af Tid[Min.]

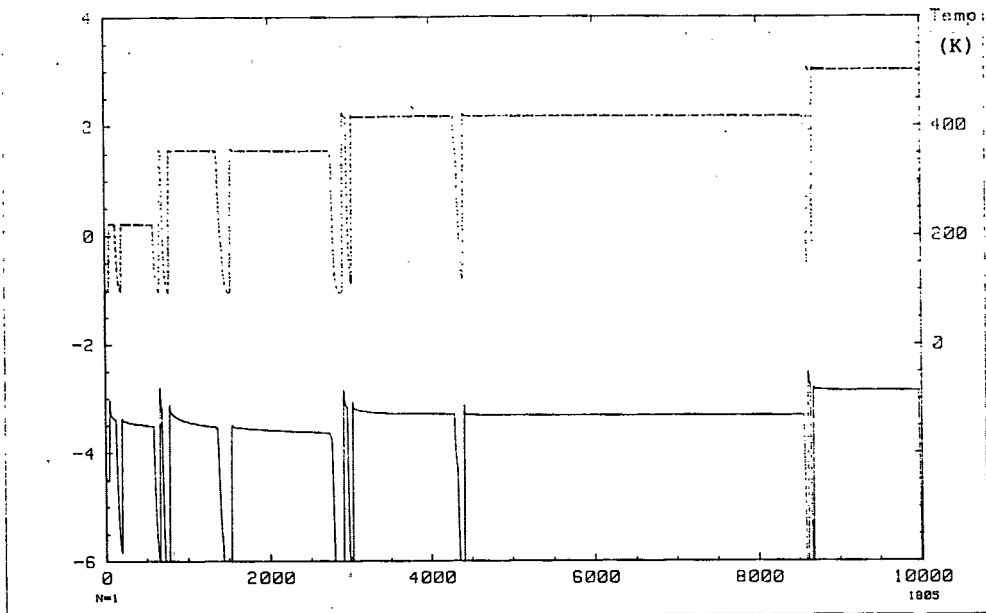
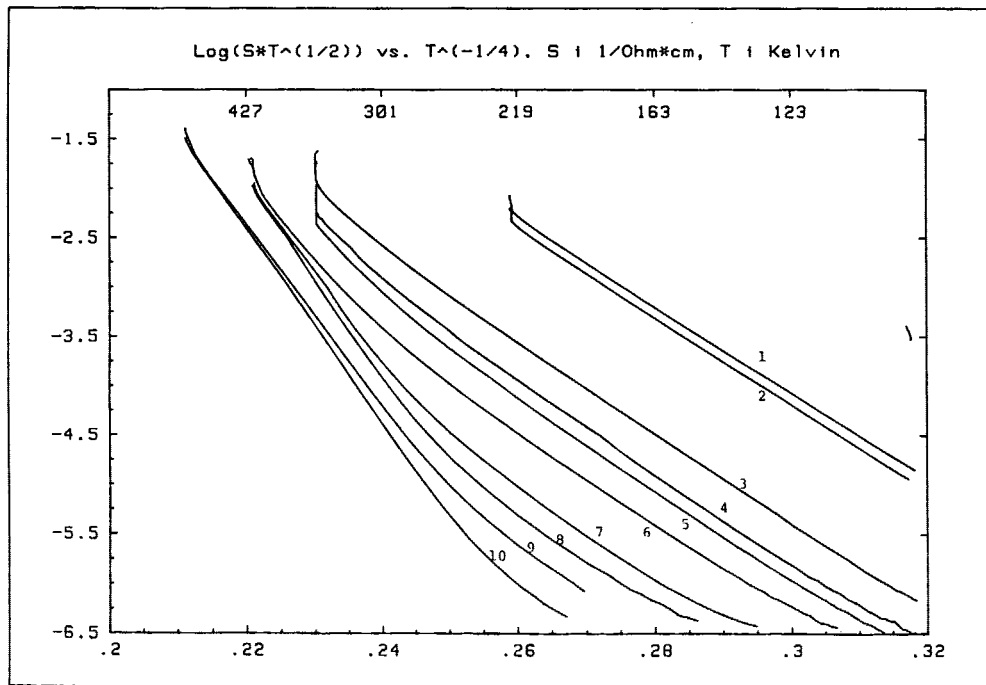


Fig.6.1.

Fig.6.2.



6.1.1 Jævnstrømsledningsevnenes temperaturafhængighed

Resultatet af bratkølingerne er vist i fig.6.2. Mott-loven forventes at gælde ved lave temperaturer.

Da :

$$\sigma(T) \propto T^{-1/2} \cdot \exp \left(-(T_0/T)^{1/4} \right) \Rightarrow$$

$$\log(\sigma(T)) - \log(T^{-1/2}) = T_0^{1/4} \cdot T^{1/4} + \text{konst.},$$

giver Mott-loven rette linjer med hældningen $T_0^{1/4}$ i det valgte plot.

De små "lodrette" dele af kurverne skyldes relaxation ved fastholdt temperatur, mens de "skrå" dele viser ledningsevnenes variation med temperaturen. Kurverne for de første bratkølinger, 1-5, er tilmærmelsesvist rette linjer, mens kurverne for de senere bratkølinger nærmere er sammensat af to linjestykker. Dette kan forklares ved to mekanismer for elektrisk ledning med hver deres temperaturafhængighed.

I kap.5 konstaterede vi, at den målte temperatur er højere end den sande under nedkøling. Der ved får den målte kurve et "lille svaj nedad" i forhold til den sande, eller sagt mere præcist: den anden afledte af den målte kurve bliver større end den anden afledte af den sande kurve.

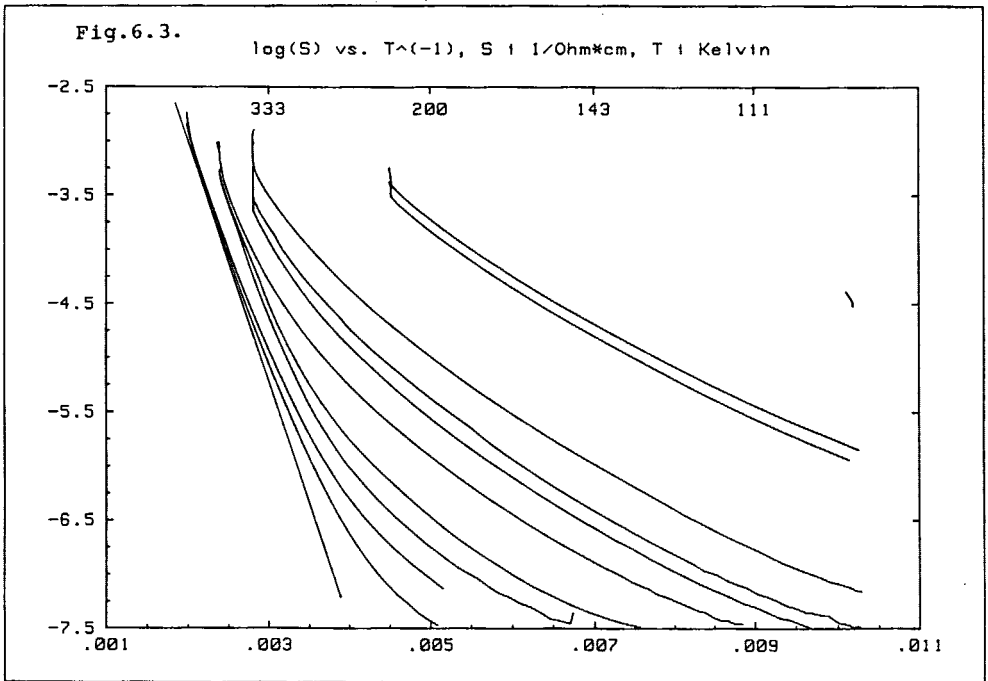
Kurverne for lavtemperaturmekanismen er næsten rette linjer med et lille svaj nedad, tydeligst i nr. 1-5, mens højtemperaturmekanismen giver "rette" linjer med et lille svaj opad, tydeligst i nr. 8-10.

Ved nærmere eftersyn er det altså kun lavtemperaturmekanismen, hvis sande kurver er rette linjer. Tolket indenfor rammerne af Mott-loven er lavtemperaturmekanismen dermed ledning ved hop over variabel afstand.

Hældningen på de rette linjer for lavtemperaturmekanismen er nogenlunde konstant og giver

$T_0 \approx 1,0 \cdot 10^8$ K. Præfaktoren, σ_0 , ændres under den målte del af relaxationsforløbet med en faktor på 4 dekader fra ca. $1 \cdot 10^{13}$ til $1 \cdot 10^9$ (Ohm·cm)⁻¹.

Højtemperaturmekanismen kan være en af de tre øvrige mekanismer, som blev nævnt i afsnit 2.3.1.3. Fælles for disse gælder, at eksponentialfaktoren er en Boltzmannfaktor: $\exp(-W/k_B T)$. Disse funktioner giver rette linjer med hældningen $-W \cdot \log(e)/k_B$ i et $\log(1/T)$, $\log(\delta)$ -plot. Dette plot er vist i fig.6.3.



Det ses at højtemperaturmekanismen faktisk giver "rette" linjer. Aktiveringsenergien, W , bestemmes til 0.44eV og præfaktoren, σ_0 , til ca. $200(\text{Ohm}\cdot\text{cm})^{-1}$.

6.1.2 Måling af relaxationsprocessen med ledningsevnen som strukturparameter

For at kunne kontrollere vores relaxationsmodel:

$$N_d(\Delta t_n) \approx N_d(0) \cdot (\Delta t_n / \tau_0)^{-(T_n/T_B)}, \quad \Delta t_n / \tau_0 > 1,$$

må vi kende sammenhængen mellem antallet af lokaliserede tilstande omkring Fermi-energien, N_d og ledningsevnen, σ . I diskussionen vil det blive vist, at Mott-loven sammenholdt med vores måling af ledningsevnen temperaturafhængighed fører til at:

$$\sigma \propto N_d^{1/3}.$$

Med denne oversættelse får relaxationsmodellen følgende form:

$$(1) \quad \sigma(\Delta t_n) \approx \sigma(0) \cdot (\Delta t_n / \tau_0)^{-(T_n/3T_B)}, \quad \Delta t_n / \tau_0 > 1.$$

σ kan dog ikke umiddelbart bruges som strukturparameter, fordi den også er en funktion af temperaturen. For at kunne sammenligne strukturen ved forskellige varmebehandlingstemperaturer, må ledningsevnen oversættes til ledningsevnen ved en fast lav referencetemperatur, T_R . Denne oversættelse er mulig så længe Mott-loven gælder. Af fig.6.2 fremgår, at dette er tilfældet for de første 5 bratkølinger. Et hvilket som helst $\sigma(T)$ til og med 5. bratkøling kan med andre ord oversættes til $\sigma(T_R)$. Ved brug af Mott-loven fås:

$$\sigma(T_R) = \sigma_0 \cdot T_R^{-1/2} \cdot \exp(-(T_0/T_R)^{1/4}), \text{ hvor}$$

$$\sigma_0 = \sigma(T) \cdot T^{1/2} \cdot \exp((T_0/T)^{1/4}).$$

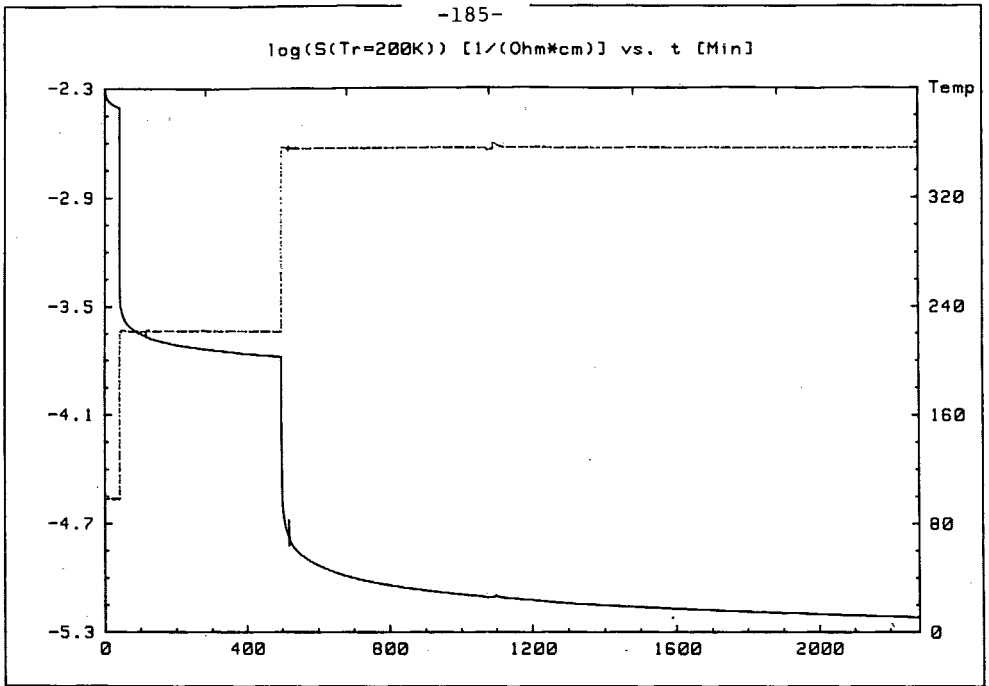


Fig.6.4.

I fig.6.4 er logaritmen til $\sigma(T_R)$ afbildet som funktion af Δt , det vil sige den tid hvori stoffet relaxerer.

Oversættelsen til $\sigma(T_R)$ er kun mulig for de første tre varmebehandlingsintervaller (98 K, 222K og 356 K), hvorfor kun disse er indtegnet.

Hvis relaxationsprocessen følger tidsekspont-loven (1), skal måledata udvise en ret linie når $\log \sigma(\Delta t_n)$ plottes versus $\log \Delta t_n$, og dette er også tilfældet. Se fig.6.5. Kurverne er ganske vist ikke fuldstændigt rette linjer, men det skyldes, at temperaturen ikke har været helt konstant. I begyndelsen af første varmebehandlingsinterval har temperaturen været lidt højere end varmebehandlingstemperaturen på grund af varmetilførsel under pådampningen. Osvillationerne på kurverne for andet og tredje varmebehandlingsinterval skyldes temperatursvingninger umiddelbart efter en brat opvarmning. Den tid bratkølingerne varer er ikke medregnet i Δt ,

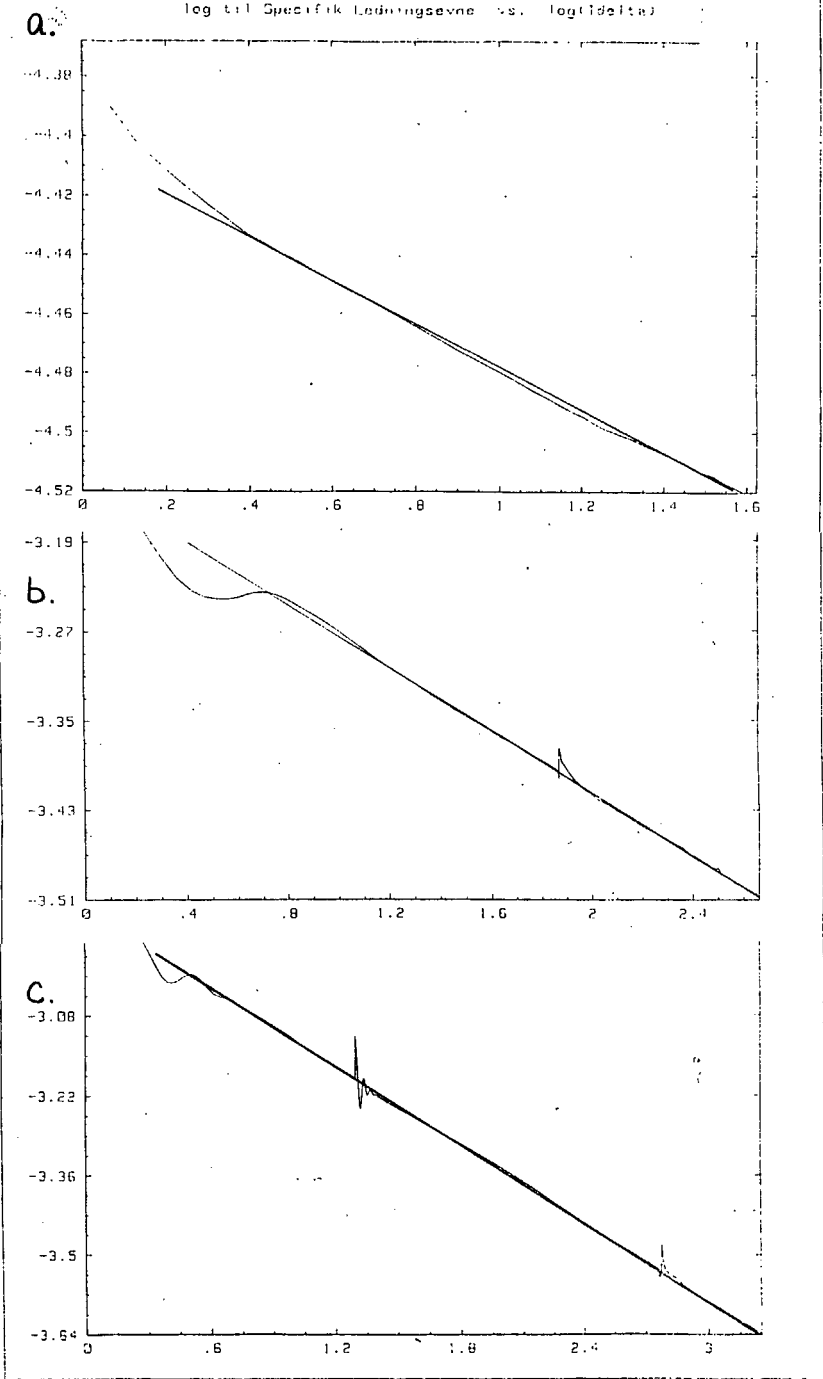


Fig.6.5. $\log(\sigma)$ (Ohm·cm)⁻¹ vs. $\log(\sigma t_n)$ (Min.)
for henholdsvis 1., 2. og 3. varmebehandlings-
interval.

fordi der ikke sker nogen relaksation her.

Det har ikke været muligt at korrigere for temperaturafvigelserne, fordi forskellen mellem den målte og den sande temperatur ikke er konstant i tiden.

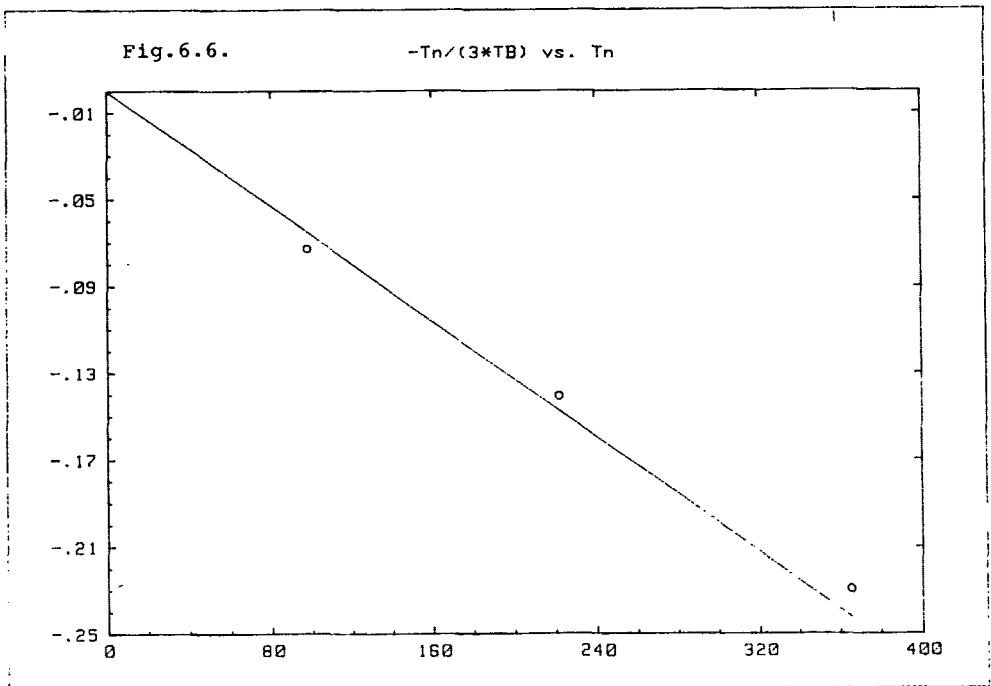
Af (1) fås:

$$\log \delta(\Delta t_n) = -T_n/3T_B \cdot \log(\Delta t_n) \cdot \text{konstant},$$

hvorfor T_B kan bestemmes ud fra hældningen, α , i det dobbeltlogaritmiske plot.

$$\alpha_n = (-1/3T_B) \cdot T_n.$$

I fig.6.6 er α_n tegnet som funktion af varmebehandlingstemperaturen T_n . Udfra hældningen i dette plot bestemmes T_B til 521 K.



τ_0 kan findes udfra forholdet mellem lednings-
evnerne i to forskellige varmebehandlingsintervaller:

$$\frac{\delta(\Delta t_n)}{\delta(\Delta t_{n+1})} = \frac{(\Delta t_n / \tau_0)^a}{(\Delta t_{n+1} / \tau_0)^b} \Rightarrow \tau_0 = \left(\frac{\delta(\Delta t_n)}{\delta(\Delta t_{n+1})} \right)^{\frac{1}{b-a}} \cdot \left(\frac{\Delta t_n}{\Delta t_{n+1}} \right)^{\frac{-b}{b-a}} \cdot \Delta t_n$$

hvor $a = -T_n / 3T_B$ og $b = -T_{n+1} / 3T_B$: Udfra grafen i fig. 6.4 bestemmes:

2. varmebehandlingsinterval:

$$\delta(\Delta t_{1_{\max}}) / \delta(\Delta t_{2_{\max}}) = 23.$$

3. varmebehandlingsinterval:

$$\delta(\Delta t_{2_{\max}}) / \delta(\Delta t_{3_{\max}}) = 30.$$

τ_0 giver henholdsvis $1 \cdot 10^{-12}$ s og $6 \cdot 10^{-12}$ s.

6.2 Diskussion

6.2.1 Ledningsevnenes temperaturafhængighed

Lavtemperaturmekanismen. Den værdi af T_0 vi finder, stemmer godt overens med andres målinger: Ambegaokar et. al. refererer til målinger, der har givet $T_0 \approx 7 \cdot 10^7$ K og Theye et.al. har i en senere artikel målt $T_0 = 1.7 \cdot 10^8$ K. Præfaktoren lader sig vanskeligt sammenligne med andres målinger, fordi den er meget afhængig af pådampningsbetingelserne og varmebehandlingen. I samme artikel får Theye et.al. for en pådampet film, der har relaxeret ved 620 K, et σ_0 på 10^{10} (Ohm·cm)⁻¹. Denne værdi ligger indenfor det interval, vi konstaterer, og de store forbehold taget i betragtning, kan gyldigheden af vore måleresultater derfor slet ikke anfægtes på dette punkt.

Lavtemperaturmekanismen opfylder den $T^{-1/4}$ -afhængighed, som Mott-loven forudsiger. Tolket indenfor rammerne af Mott's model er lavtemperaturmekanismen derfor ledning ved hop over variabel afstand. Der er endnu et argument for netop denne mekanisme, og det er netværksmodellerne. Perkolationsteori anvendt på disse modeller giver nemlig den samme $T^{-1/4}$ -afhængighed, og dette argument er nok vigtigere, fordi, som det senere skal vises, Mott-loven sammenholdt med vore data fører til en række inkonsistenser. Perkolationesmodellerne sammenholdt med vore målinger fører derimod ikke til indkosistenser, fordi de kun gør rede for eksponentialfaktoren, $\exp((T_0/T)^{1/4})$, i modsætning til Mott-loven der også inddrager præfaktoren.

Indenfor det tidsrum målingen har stået på mindskes ledningsevnen med en faktor på 4 dekader. Årsagen hertil er sandsynligvis, at tætheden af tilstande omkring Fermienergien mindskes under relaxationsprocessen.

Højtemperaturmekanismen. Den aktiveringsenergi vi finder for højtemperaturmekanismen, $W=0.44\text{eV}$, er i god overensstemmelse med andres resultater. Theye et.al. får i deres målinger $W=0.47-0.50\text{ eV}$. Det samme gælder præfaktoren, som vi bestemmer til $200\text{ (Ohm}\cdot\text{cm)}^{-1}$ og Theye et.al. til $10^3\text{ (Ohm}\cdot\text{cm)}^{-1}$.

Højtemperaturmekanismen kan være hop til nærmeste nabo omkring Fermienergien, hop til nærmeste nabo lige under E_C eller ledning i de udstrakte tilstande lige over E_C . Jævnfør 2.3.1.3 er aktiveringsenergien for den første mulighed af størrelsesordenen $k_B T$. Ved stuetemperatur er $k_B T$ lig 0.03 eV . Aktiveringsenergien for hop til nærmeste nabo ved E_F er altså en størrelsesorden mindre end den målte. Højtemperaturmekanismen må derfor nok søges blandt de to andre mekanismer.

Pseudobåndgabet anslås bl. a. på grundlag af målinger af det optiske gab, at have størrelsen $0.8-1.0\text{ eV}$ (Theye, Viscor). Den aktiveringsenergi vi måler (0.44 eV) er altså den halve bredde af pseudobåndgabet. Dette tyder på at elektrontransporten hovedsageligt foregår i tilstande i nærheden af mobilitetskanten og, at E_F ligger omtrent midt i båndgabet. Problemet er nu om det dominerende bidrag til ledningsevnen kommer fra de lokaliserede tilstande lige under E_C eller fra de udstrakte tilstande lige over E_C . Ifølge Mott er præfaktoren for ledning via de udstrakte tilstande af størrelsen $100 - 500\text{ (Ohm}\cdot\text{cm)}^{-1}$, mens han gætter på, at præfaktoren for ledning lige under E_C er en faktor $10^2 - 10^4$ mindre. Med vores præfaktor på ca. $200\text{ (Ohm}\cdot\text{cm)}^{-1}$ skulle den dominerende mekanisme altså være ledning via udstrakte tilstande over E_C .

Men dette gæt er langt fra så kvalificeret, at vi kan udelukke den anden mulighed.

Endnu en iagttagelse skal drages ind, og det er, at ledningsevnen for højtemperaturmekanismer aftager når stoffet relaxerer. Dette ses tydeligt i fig. 6.3, hvor højtemperaturdelen af bratkølingskurverne for det sidste varmebehandlingsinterval ligger under kurverne for det næst sidste varmebehandlingsinterval.

Begge mekanismer kan forklare denne opførsel: Antager vi ledning via tilstande over E_C bliver forklaringen, at E_C under relaxationsprocessen forskydes opefter. Herved bliver antallet af ledningsbærere, og dermed ledningsevnen, ved en given høj temperatur mindre. Når E_C vokser, så vokser også aktiveringsenergien, og man skulle derfor i princippet observere en stigning i hældningskoefficienten i $1/T$ - plottet. Men vores målinger er for upræcise til at afsløre denne stigning, og måske er der tale om så små ændringer, at de ikke kan konstateres eksperimentelt overhovedet.

Antager vi derimod ledning via tilstandene lige under E_C bliver forklaringen, at båndhalerne mindskes under relaxationsprocessen. Færre tilstande under E_C betyder færre ubesatte tilstande for elektronerne at hoppe til - dermed lavere mobilitet og dermed lavere ledningsevne.

Vi kan ikke afgøre, om den ene eller den anden mekanisme er dominerende og slet ikke i hvilken grad de eventuelt blander. Vi begrænser os til at slutte, at højtemperaturmekanismen med stor sandsynlighed er ledning via tilstande i nærheden af mobilitetskanten E_C .

6.2.1.1 Mott-loven sammenholdt med vore målinger.

Mott-loven indeholder 3 strukturafhængige variable, nemlig fononfrekvensen, P_{V_0} , lokaliseringsslængden af de lokaliserede tilstande omkring Fermienergien, λ , og tætheden af tilstande ved Fermienergien, $g(E_F)$.

Fononfrekvensen ændrer sig kun lidt og er af størrelsesordenen 10^{12} . Ud fra måledata har vi bestemt σ_0 og T_0 , og dette sætter os i stand til at beregne de to andre strukturafhængige variable, λ og $g(E_F)$.

Mott-loven giver to ligninger med λ og $g(E_F)$ som eneste ubekendte:

$$\sigma_0 = e^2 \cdot P_{V_0} \cdot (9\lambda \cdot g(E_F) / (8\pi \cdot k_B T))^{1/2}$$

$$T_0 = 512 / (9\pi \cdot \lambda^3 \cdot k_B).$$

Ved indsættelse af $T_0 = 10^8$, $\sigma_0 = 10^{13}$ og $T = 100$ fås:

$$\lambda = 10^{-3} \text{Å} \text{ og } g(E_F) = 10^{49} \text{cm}^{-3}.$$

Disse værdier er mildt sagt urealistiske. Til sammenligning er atomkernernes dimensioner af størrelsesorden 10^{-4} Å, brintatomets Bohrradius 0.53 Å og Bohrradius for en donortilstand i krystallinsk germanium 80 Å. Værdien af $g(E_F)$ er lige så meget ude af proportioner: I svært p-dopet krystallinsk germanium, har de oprindeligt lokaliserede acceptortilstande allerede dannet et bånd af udstrakte tilstande ved en tæthed af tilstande på $3 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$, og herfra er der mildt sagt langt op til 10^{49}cm^{-3} .

Vi får også et problematisk resultat når vi undersøger, hvordan afstanden mellem nærmeste nabolokaliserede tilstande, a_L , scaler med σ :

Ifølge vore målinger er T_0 konstant og det betyder, at eksponentialfaktoren, $\exp(-(T_0/T)^{1/4})$, i Mott-loven,

$$\sigma = \sigma_0 \cdot \exp(-(T_0/T)^{1/4}),$$

er konstant ved fastholdt lav temperatur. Når temperaturen er konstant gælder derfor at:

$$\sigma \propto \sigma_0 \propto (\lambda \cdot g(E_F))^{1/2}.$$

T_0 er konstant og $T_0 \propto (\lambda^3 \cdot g(E_F))^{-1}$, det medfører at $\lambda \propto g(E_F)^{-1/3}$. Ved indsættelse i ovenstående udtryk fås:

$$\sigma \propto g(E_F)^{1/3}.$$

Vi søger et udtryk for a_L . Derfor skal vi kende antallet, N_L , af lokaliserede tilstande pr. volumenenhed, som elektronerne hopper imellem. Kun tilstande med energier i intervallet $[E_F - k_B T; E_F + k_B T]$ benyttes af elektronerne til at hoppe imellem. Da der indfor Mott's model gælder: $g(E) = g(E_F)$ fås:

$$N_d = g(E_F) \cdot \int_{E_F - k_B T}^{E_F + k_B T} dE,$$

eller med andre ord:

$$N_d \propto g(E_F).$$

Endvidere gælder: $a_L \propto N_d^{-1/3}$ og $\sigma \propto g(E_F)^{1/3}$
og dermed følgende scaling mellem a_L og σ :

$$a_L \propto \sigma^{-1}.$$

Det er vanskeligt at forestille sig, at a_L kan være mindre end afstanden mellem nærmeste nabo-atomer, d.v.s. af størrelsesordenen 1 Å. Et realistisk bud er nok $a_{Lmin} \approx 10$ Å.

Af fig.6.22 fremgår, at ledningsevnen ved en lav referencetemperatur under den målte del af relaxationsforløbet mindskes med en faktor på 4 dekader. Det betyder at a_L øges med en faktor på 4 dekader. a_L ender altså med at være af størrelsesordenen 10 μ m eller mere. Dette er samme størrelsesorden som afstanden mellem elektroderne (50 μ m) og en størrelsesorden mere end filmens tykkelse (1 μ m).

Denne store afstand mellem nærmeste nabo-lokaliserede tilstande er afgjort på kanten af det realistiske. Men det vil føre for vidt at gå ind i en nærmere analyse, hvorfor vi nøjes med denne konstatering.

6.2.2 Relaksationsmodellen

Ledningsevnen følger den foreslåede tids-eksponentlov. Det mest overbevisende argument herfor er, at ledningsevnen i fig.6.5.c viser et retlinet forløb i det dobbelt-logaritmiske plot i et tidsrum på over 30 timer. Resultatet bekræftes yderligere af, at tidseksponent-love kendes fra beslægtede problemstillinger som f.ex. stress-relaksation i seje væsker og dielektrisk relaxation.

Tidskonstanten τ_0 har den forventede værdi af størrelseordenen fonontider. Vanskeligere er det at forklare, hvorfor T_B netop er lig godt 500 K. Dette svarer til en middelaktiveringsenergi, W , på 0.12eV.

6.2.3 Relaksationsmekanismer

Vi skelner mellem to typer af lokaliserede tilstande, nemlig defekt-tilstande og Anderson-lokaliserede tilstande. Defekt-tilstandene er forårsaget af store lokale afvigelser i det amorf netværk, mens Anderson-lokaliserede tilstande skyldes den positionelle uorden i gitteret. Frie bindinger er det mest udbredte eksempel i litteraturen på defekter. Frie bindinger forårsager så store lokale afvigelser i gitterpotentialet, at der opstår en lokaliseret tilstand dybt inde i båndgabets. Dette er en anden form for uorden end positionel uorden, som, lokalt set, kun forårsager små afvigelser fra det periodiske gitter.

De Anderson-lokaliserede tilstande udgør båndhalerne, og defekt-tilstandene udgør toppen af tilstande omkring E_F . Ved oversættelsen af strukturparametren N_d til σ blev det underforstået, at alle de lokaliserede tilstande omkring E_F var defekttilstande. Dette er selvfølgelig kun sandt, hvis der ikke er noget bidrag fra båndhalerne. Sandsynligvis strækker båndgabene sig ikke særligt langt ind i båndgabets (jævnfør modellerne citeret i afs. 2.2.3) og derfor er mekanismen i det relaksationsforløb vi følger i de tre første varmebehandlingsintervaller (fig.6.5) eliminering af defekter.

Når det gælder eliminering af defekter som frie bindinger, er den mest nærliggende forestilling om

den mikroskopiske relaxationsmekanisme, at de frie bindinger diffunderer rundt i gitteret og elimineres ved enten at møde en anden fri binding eller at nå ud til overfladen af stoffet. Denne forestilling er imidlertid i modstrid med grundlaget for vores relaxationsmodel, hvor en defekt elimineres ved et enkelt termiske aktiveret hop. Vi opfatter modstriden mere som en kritik af relaxationsmodellen end af vores forestillingsevne.

Ud fra Mott-loven og vores målinger har vi sluttet, at $\lambda \propto g(E_F)^{-1/3}$, d.v.s., at λ er en aftagende funktion af $g(E_F)$ og dermed af N_d . Lokaliseringsslængden vokser altså efterhånden som defekterne relaxerer ud. Det betyder at de "store" defekter med stærkt lokaliserede tilstande (d.v.s. lille λ) relaxerer hurtigst ud. Med andre ord skulle de store defekter have små relaxations-aktiveringsenergier. Eksempelvis er en fri gitterposition (vacance) med 3 eller 4 frie bindinger fra de omgivende atomer en større fejl end en enkelt fri binding. Men aktiveringsenergien for diffusion af vacancer er stor (størrelsesordenen 1 eV) og sandsynligvis større end for diffusion af frie bindinger. En fri binding kan nemlig hoppe ved at bryde en enkelt binding, mens en vacance må bryde flere. Dette er altså endnu et argument mod Mott-loven.

Hvad angår udrelaxering af de Anderson-lokaliserede tilstande, er det ikke svært at forestille sig en relaxationsmekanisme: Den positionelle uorden må primært mindskes ved at vriddet og strækningen af bindingerne mindskes. Som det blev nævnt i diskussionen af højtemperaturmekanismen, er det ikke muligt at afgøre om denne relaxationsproces afspejles i ledningsevne målingerne.

Litteratur til kapitel 6.

Ambegaokar, Halperin & Langer: "Hopping Conductivity in disordered Systems", Phys. Rev. B, vol.4, nr.8, 1971, p.2612.

Mott & Davis: "Electronic Processes in Non-Chrystalline Materials", Oxford University Press, Belfast 1978.

Theye et. al. "Transport properties of evaporated versus sputtered amorphous germanium films". J.Physique 41 1980, p.1173.

Viscor, P.: "New model for one-electron states in amorphous germanium", Phys Rev.B, vol.28, no.2 15.7.1983.

7 RÖNTGEN-DIFFRAKTIONS-EKSPERIMENTET

7.1 Röntgen-diffraktionsapparatet.

Röntgen-struktur-analyserne i dette arbejde er blevet foretaget v.h.a. et ombygget Leybold-Röntgen-diffraktometer egentlig designet til gymnasieundervisningsbrug. Selve apparatet og opstillingen til eksperimenterne er skitseret i figuren herunder.

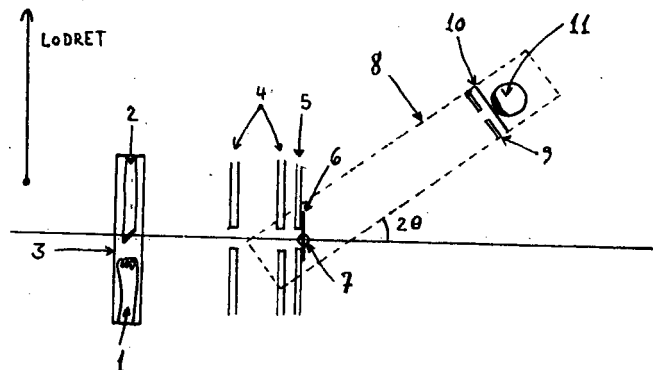


Fig. 7.1. Skitseagtigt ses her: Glødekathode (1). Anode af molybdæn (2). Röntgen-rør under højvakuum indeholdende både glødekathode og anode (3). Kollimator-spalter (4). Anti-spredningsblænder (5). a-Ge-film (6). Cirkel, der markerer omdrejningsaksen for tællerøret under eksperimenterne. Centret for denne omdrejningsakse er sammenfaldende med samplæts center (7). Skinne, der fungerer som holder for tællerøret (8). Tællerspalte (9). Zirkonium-filter (10). Tællerør (11).

Röntgen-strålingen dannedes i Röntgen-røret (3) ved at elektroner emitteret fra glødekathoden (1) v.h.a. en accelerationsspænding accelereres mod anoden (2). I anodens ydre lag anslås elektroner i Mo-atomerne til højere energi-tilstande end disse allerede befandt sig i. Herefter falder andre elek-

troner i atomerne ned i de dannede energi-tomrum under udsendelse af Röntgen-stråling. To kollimatorspalter (4) indskudt mellem Röntgen-røret og Ge-prøven (6) bevirker, at prøven kun rammes af en vel-kollimeret ikke-diffus primær-stråling. Ge-prøven er placeret op ad anti-spredningsblenden (5), der spærrer for kantspredning hidrørende fra 2. kollimatorspalte.

Spalte-dimensioner:

Afstand mellem Röntgen-kilde og den "første" kollimatorspalte: 80 mm.

Afstanden mellem de to kollimatorspalter: 80 mm.

Afstanden fra den "anden" kollimator-spalte til Ge-prøven: 5 mm.

Afstanden fra Ge-prøven til tællerøret: 160 mm.

Röntgen-strålen spredes derefter under bevægelsen fra venstre mod højre i fig. 7.1 på Ge-prøven, og den relative intensitet af Röntgen-stråling måles v.h.a. tælle-røret (11), der er monteret på en metalskinne (8). Foran tællerøret er tællerspalt (9) placeret. Formålet med tællerspalt og kollimatorspalter er at opnå bestemmelse af vinkelen af den spredte Röntgen-stråling i forhold til den indkomne.

I eksperimentet, kan man forestille sig gennem figuren, foregår dannelsen af Röntgen-strålen i Röntgen-røret, stråle-gangen mellem rør og tællerør og selve tællingen af Röntgen-fotonerne altsammen i papirets plan. Tællerøret bevæges under eksperimentet også i papirets plan og scanner cirkulært i rummet omkr. en akse vinkelret på denne plan. Denne akse gennemskærer den del af Ge-samplet, der spreder, i centrum. Hele metalskinnen med tælle-røret er sikret jævn bevægelse rundt i forsk. spredningsvinkeler (20) gennem en step-motor påmonteret opstillingen. Scanneområdet for tælle-røret går

fra 4.36° til 71.71° .

Selve tælle-røret fungerer principielt som et Geiger-Müller-rør, og består af en cylinder af metal og en derfra isoleret metaltråd placeret i cylinderen sammenfaldende med cylinder-aksen - i princippet en cylinder-kapacitor. Røret indeholder en gas bestående af 97% argon og 3% CO_2 ved 76 cm Hg. Under målinger påtrykkes en spændingsforskel mellem tråd og cylinder, og når Röntgen-stråling rammer røret, ioniseres gassen, og ionerne accelereres i det elektriske felt. Når disse derefter opsamles på kapacitoren, fremkommer der en spændingsændring over kapacitoren. Den herved fremkomne impuls forstærkes og registreres af en tæller. Energi-opløsningsevnen for tælle-røret er ca. 1 keV.

I opstillingen indgår også et zirkonium-filter (10), som sier uønsket stråling bort fra Röntgen-strålen inden denne når frem til tælle-røret. De nærmere omstændigheder omkr. Zn-filteret og dets virkemåde er beskrevet i teori-afsnittet for Röntgen-diffraktion.

7.2 Röntgendiffraktion. Eksperiment og diskussion.

I Röntgendatanalysen vil vi undersøge, om måledatas kvalitet tillader os at konkludere 1) om vi kan reproducere måledata fra sample til sample, 2) om de pådampede Ge-film er amorfe, 3) om der kan konstateres strukturforandringer i Ge-filmene forårsaget af varmebehandling i 5 timer ved 200°C , 4) og såfremt der kan konstateres strukturforandringer, hvilke finder da sted?

For at besvare disse spørgsmål er det nødvendigt at fremstille følgende kurver: 1) den eksperimentelt målte ukorrigerede intensitet I_{exp} spredt fra det samlede sample (bestående af germanium og stegefilm) som funktion af spredningsvinklen $\varphi = 2\theta$, 2) den for absorption, uønsket spredning og baggrundsstråling korrigerede intensitetsfunktion $I_{\text{c}}(k)$ (se også s. 165), 3) den radiale distributionsfunktion (se siderne 162-163).

Til fremstillingen af disse funktioner er der foretaget målinger på to sampler: sample 0 og sample 1, som begge er fremstillet ud fra det samme modersample, som beskrevet i appendix D. Som beskrevet i dette appendix er den samlede tykkelse af Ge-lagene anslået til $25\mu\text{m}$ for hver af samplerne. Hvilket er tæt på den ønskede optimaltykkelse på $25.5\mu\text{m}$ (se også appendix B). Modersamplet blev fremstillet ved stuetemperatur $22^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}$ (se appendices C og D).

Varmebehandlingstemperaturen valgtes til 200°C , fordi stegefilmen begyndte at blive skrøbelig ved 210°C , for så at smelte ved ca. 230°C . Krystallisation af sådanne Ge-film finder først.

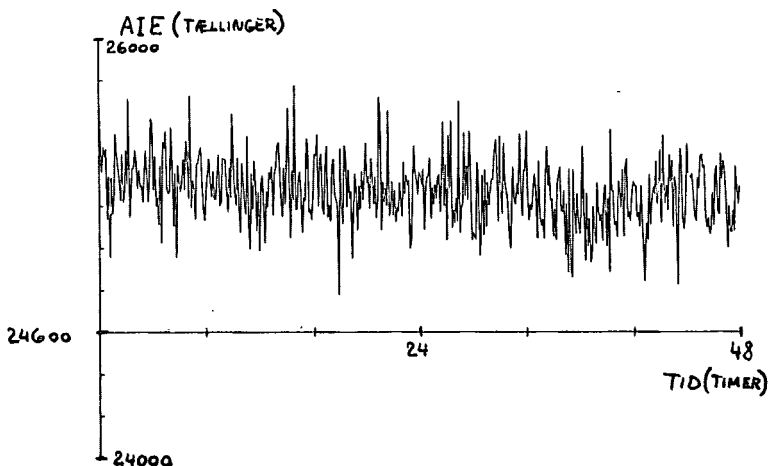
sted noget over 400°C .

For at kunne foretage de ønskede korrektioner (se appendix B) og undersøgelser, er der foretaget følgende målinger af:

- kantspredning
- substratspredning før og efter varmebehandling
- baggrundsstråling
- ukorrigeret spredning fra sample 0; 1 måling før og 1 måling efter varmebehandling
- ukorrigeret spredning fra sample 1; 2 målinger før og 2 målinger efter varmebehandling

I alle tilfælde er målingerne foretaget stepvis i et interval fra $\varphi_{\min} = 4.36^{\circ}$ til $\varphi_{\max} = 71.71^{\circ}$. Stepene er ækvivalente på 0.15° . Intensiteten måles i 450 positioner, og der måles i 15 min. i hver vinkel. Dvs. i alt 4.7 døgn pr. kørsel. Målingernes enhed er derfor antal N tællinger af Röntgenfotoner pr. 15 min., altså arbitrære intensitetsenheder (AIE). Ud over usikkerheden angivet ved spredningen $\pm \sqrt{N}$ på målingerne hidrørende fra strålingsstatistiske fejl, indeholder den eksperimentelt målte intensitet et usikkerhedsbidrag hidrørende fra drift af Röntgenkilden. Størrelsen af dette bidrag er vurderet ved at foretage 480 målinger a 6min. af spredningen i en fast vinkel φ hidrørende fra et sample. De $480 \times 6\text{min.} = 48$ timer er valgt som en realistisk størrelsesorden for tidsvarigheden af en kørsel på Röntgendiffraktionsapparatet. Dette giver

følgende sekvens af fotontælletal som funktion af tiden:



Det ses, at kurven består af statistiske intensitetsfejl, som er overlejret en langsomt varierende intensitetsfejl. Denne langsomme intensitetsfejl eller drift anslås til at bevæge sig inden for et interval med bredden 250 tællinger pr. kanal. Den procentuelle størrelse af denne fejl er $\pm 100\% \cdot \Delta I/I \approx \pm 0.5\%$. Bidragene til denne langsomme variation af forsyningsspændingen kan deles op i to typer årsager: netspændingsvariationer og apparatinterne variationer. Hovedårsagen er formodentlig netspændingsvariationer, da test med variotrafo viste en tæt kobling mellem svage variationer i forsyningsspænding og intensitet.

Reproducerbarhed.

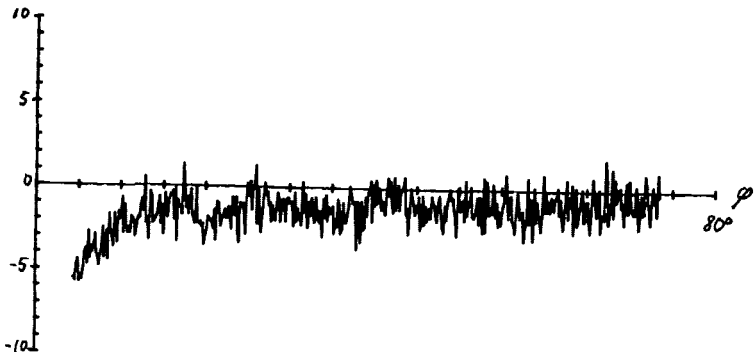
Der blev foretaget to forskellige typer målinger, for at undersøge reproducerbarheden af den eksperimentelt målte intensitetskurve ($2\theta, I_{\text{exp}}(2\theta)$).

Den første type måling skulle konstatere, hvorvidt drift af Röntgenkilden indvirkede på reproducerbarheden af den eksperimentelle intensitetskurve for et sample. Undersøgelsen blev foretaget på det ikke varmebehandlede sample 1, på hvilket der blev foretaget to kørsler, hvorved der fremkom to intensitetskurver. Herunder er afbildet forholdet mellem differensen af disse og spredningen på differensen som funktion af spredningsvinklen φ . Spredningen på differensen er givet som kvadratroden af summen af de to tælleter.



Hvis de to intensitetskurver i AIE skal være identiske iden for de gældende usikkerheder, skal 68% af værdierne i den opstillede graf ligge inden for -1 og 1 på 2.-aksen. Dette er tilfældet. Hvis vi betragter summerne af talletallene for alle vinkler og spredningen derpå, fås det for hhv. den ene kørsel og den anden, at $\sum I_{\text{exp}}(\varphi)$ er hhv. $197 \cdot 10^4 \pm 10^4$ og $196 \cdot 10^4 \pm 10^4$. Der er således inden for de gældende usikkerheder signifikans for, at drift ikke forhindrer reproduktion af intensitetskurverne.

Den anden type reproducerbarhedsundersøgelse skulle konstatere, om det var muligt at reproducere intensitetskurven fra sample 0 til 1. Til dette formål sammenlignes kurven for sample 1 før varmebehandling, kørsel 1, med intensitetskurven for sample 0 før varmebehandling. Herunder er afbildet forholdet mellem differensen mellem kurven for sample 1 og 0 og spredningen på differensen. Dette forhold er afbildet som en funktion af spredningsvinklen φ . Spredningen på differensen er kvadratroden af summen af talletallene.

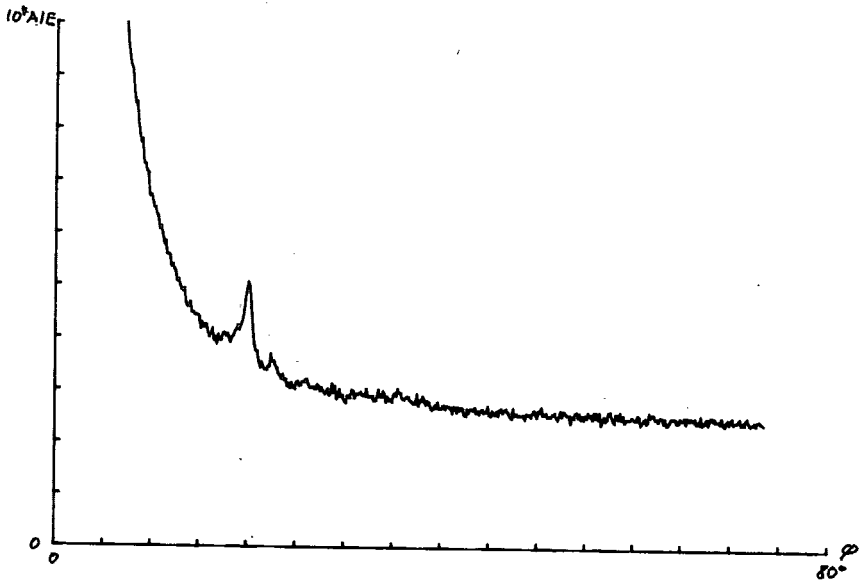


Det ses, at der er en svag men systematisk forskydning af kurven nedad. Mellem 25 og 75° er kurven forskudt $1\frac{1}{2}$ -2 enheder ned. Med svag positiv hældning. I intervallet fra 5 - 25° er forskydningen endnu mere udtalt. Her har kurven større positiv, men aftagende hældning. Der er således en svag signifikans for, at vi ikke kan reproducere den eksperimentelle intensitetskurve fra sample 0 til sample 1. Denne svage forskel beror på at sample 0 er en lille brøkdel tykkere end sample 1 i det område hvor Röntgenstrålen passerer. Hældningen af kurven kan derfor begrundes ved, at tykkelsesforskellen giver ophav til en forskellig absorption som funktion af spredningsvinklen i de to tilfælde. Begrundelsen for, at der er en mindre tykkelsesforskel, er, 1) at den i appendix D nævnte midling af tykkelsen af Ge-lagene, således at den samlede tykkelse bliver $25\mu\text{m}$, ikke er helt præcis, 2) problemer med at reproducere den gennemstrålede position. Vi skal vende tilbage til dette problem længere fremme i teksten under behandlingen af $I_c(k)$.

Vi skal nu på de kommende sider behandle kantspredningen fra 2. kollimatorspalte i Röntgendiffraktionsapparatet, samt substratspredningen fra stegefilmen. Det er disse intensiteter og baggrundstrålingen, begge som funktion af scannevinklen, der korrigeres for i appendix B.

Kantspredningsbidraget.

Intensitetskurven for kantspredningen som funktion af spredningsvinklen \varnothing er afbildet på næste side. Toppen midt i spektret mellem 16 og 22° må være en

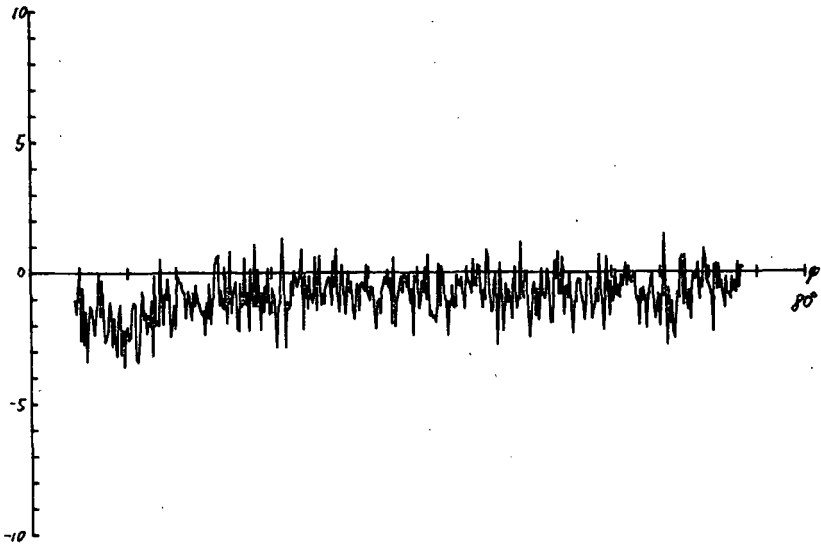


en diffraktionstop, som fremkommer ved spredning af den indkomne stråle på kollimatorspalterne (se også s. 198) Oprindelsen til denne er ikke identificeret præcist, og den er derfor ikke fjernet. Det er imidlertid heller ikke nødvendigt at fjerne den, da der korrigeres for denne, idet den jo er en del af kantspredningen (se også appendix B).

Substratspredning.

Da vi skal korrigere for substratspredning fra stegefilmsunderlaget både før og efter varmebehandling,

er det nødvendigt at undersøge om varmebehandlingen influerer på spredningen i substratet. I overensstemmelse med diskussionen af spredning og absorption i stegefilm i appendix B ser vi bort fra absorption i substratet. Et sample bestående af 5 lag stegefilm varmebehandlede ved 200°C i 5 timer. Både før og efter varmebehandling blev der optaget intensitetsspektre. Herunder er afbildet differensen mellem intensitetskurverne efter og før varmebehandling, divideret med spredningen på denne differens, angivet ved kvadratroden af summen af intensiteterne i AIE. Dette forhold fremstilles som funktion af spredningsvinklen φ .



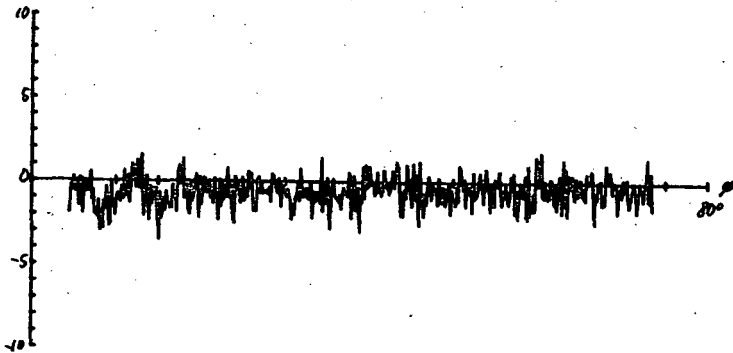
Ved betragtning af denne kurve ses det, at det er på kanten af, at kravet om de 68% af målepunkterne inden for intervallet $[-1;1]$ på 2.-aksen, er opfyldt. Samtidigt er det muligt at konstatere en systematisk forskydning af kurven 1-2 enheder ned under 1.-aksen. Midteraksen af kurven har svag positiv hældning. Ved sammenligning af summerne af talletallene for de to kørsler og spredningen derpå, er det muligt at konstatere en forandring i talletallet fra $188 \cdot 10^4 \pm 10^4$ til $183 \cdot 10^4 \pm 10^4$. Det hele taget i betragtning må det betyde, at kurvernes svage men systematiske afvigelse fra hinanden er et udtryk for at der er sket en svag reduktion af talletallene over hele det betragtede område af spredningsvinkler. Da den svage reduktion stort set er af samme størrelse for alle spredningsvinkler, kan der ikke være tale om strukturforandringer, da disse har en tendens til at optræde som lokale forskydninger af spekteret. En sandsynlig årsag, som bekræftes af, at vi befinder os i nærheden af stegefilmens smeltepunkt, er at en lille brøkdel af substratet fordampes under varmebehandlingen.

Sammenligning af de eksperimentelle spektre før og efter varmebehandling.

Det skal nu undersøges, om der sker strukturforandringer i det pådampede germanium i samplerne 0 og 1, der er så tydelige, at de kan ses som forandringer i de eksperimentelle intensitetsspektre på trods af den svage, men systematiske nedgang i intensiteten fra stegefilmssubstratet. Til dette for-

mål sammenlignes kurven for sample 0 før varmebehandling med kurven for sample 0 efter varmebehandling. Ligeledes sammenlignes kørsel 1 før varmebehandling med kørsel 1 efter varmebehandling for sample 1. Herunder er afbildet forholdet mellem differensen og spredningen på differensen for de pågældende kurver. Det er kurverne før varmebeh. som trækkes fra kurverne efter. Kvotienten afbildes som funktion af spredningsvinklen .

Sample 0:



Sample 1:



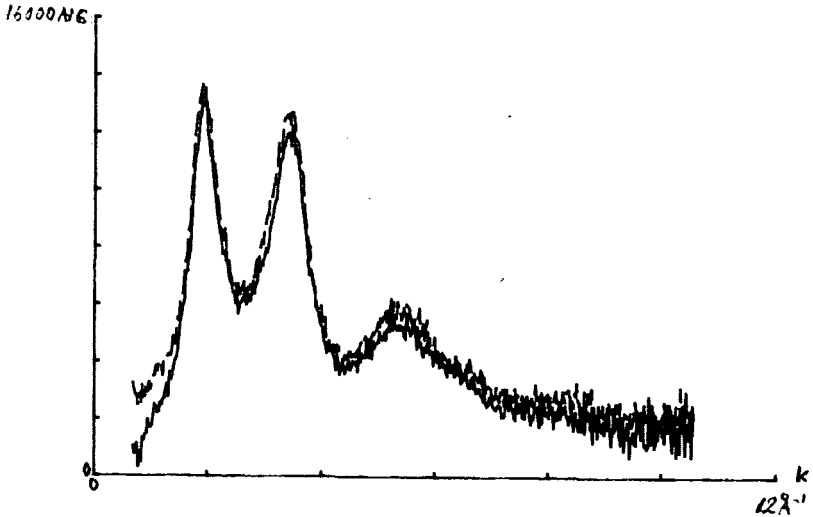
Disse to kurver opfylder lige netop kriteriet om, at 68% af målepunkterne ligger inden for intervallet $-1;1$ på 2.-aksen. Der er en meget lille forskydning af kurvens midterakse på $\frac{1}{2}$ -1 enhed på 2.-aksen. I intervallerne fra $5-10^\circ$ og fra $13-20^\circ$ er der forskydninger på omkring 2 enheder. Disse er mere tydelige men dog stadigvæk svagt signifikante. Ved sammenligning af summerne af tællertallene er det muligt at konstatere en forandring fra før varmebehandling til efter på $204 \cdot 10^4 \pm 10^4$ til $201 \cdot 10^4 \pm 10^4$ for sample 0. For sample 1 bliver det fra $197 \cdot 10^4 \pm 10^4$ til $194 \cdot 10^4 \pm 10^4$. Hvilket betyder en generel, men svag sænkning af den spredte intensitet i hele det betragtede vinkelområde. Den nævnte meget svage forskydning på $\frac{1}{2}$ -1 enhed kan forstås som om, at der er sket en generel, men temmelig svag sænkning af intensitetsniveauet for alle betragtede spredningsvinkler, suppleret af en lidt mere udtalt sænkning i de øvrige nævnte interval-

ler. Den generelle, men svage sækning, kan fortolkes som forårsaget af en sækning, omend svag, i spredningen hidrørende fra substratet. Denne sækning er således den tidligere påviste svage sækning forårsaget af, at en lille brøkdél af stegefilmen forsvinder under varmebehandling ved fordampning. Denne sækning i substratspredningsspekteret bliver så yderligere dæmpet af absorptionen i Ge-lagene. Dette er årsagen til, at forskydningen nedad er forholdsvis svagere for samplerne 0 og 1 end forskydningen nedad i substratspredningsspekteret. Hvad angår den svage, men alligevel mere udtalte sækning af niveauerne i intervallet fra 5 til 10° og fra 13 til 20° , kan disse opfattes som svage udtryk for strukturforandringer. Om dette er tilfældet vil vi vende tilbage til under behandlingen af $I_c(k)$.

Den korrigerede intensitetsfunktion.

Når vi korrigerer for baggrundstråling, kantspredning og substratspredning fås den korrigerede intensitetsfunktion (se også s. 165). Når denne korrigeres for polarisation fremkommer en intensitetsfunktion i arbitrære intensitetsenheder, som er summen af Rayleighspredningen og Comptonspredningen. Den største og mest betydningsfulde komponent i den korrigerede intensitetsfunktion er således Rayleighspredningen, som er et direkte udtryk for strukturen. Denne funktion I_c kan således anvendes til at påvise strukturforandringer, samt til at skelne mellem amorf og krystallinsk struktur.

I de følgende figurer er I_c fremstillet som en funktion af spredningsvektoren $k = 4\pi \sin\theta / \lambda$. Først skal reproducerbarheden af denne funktion undersøges. Den punkterede linie er sample 0 før varmebehandling. Den ikke punkterede linie er sample 1 før varmebehandling, kørsel 1:



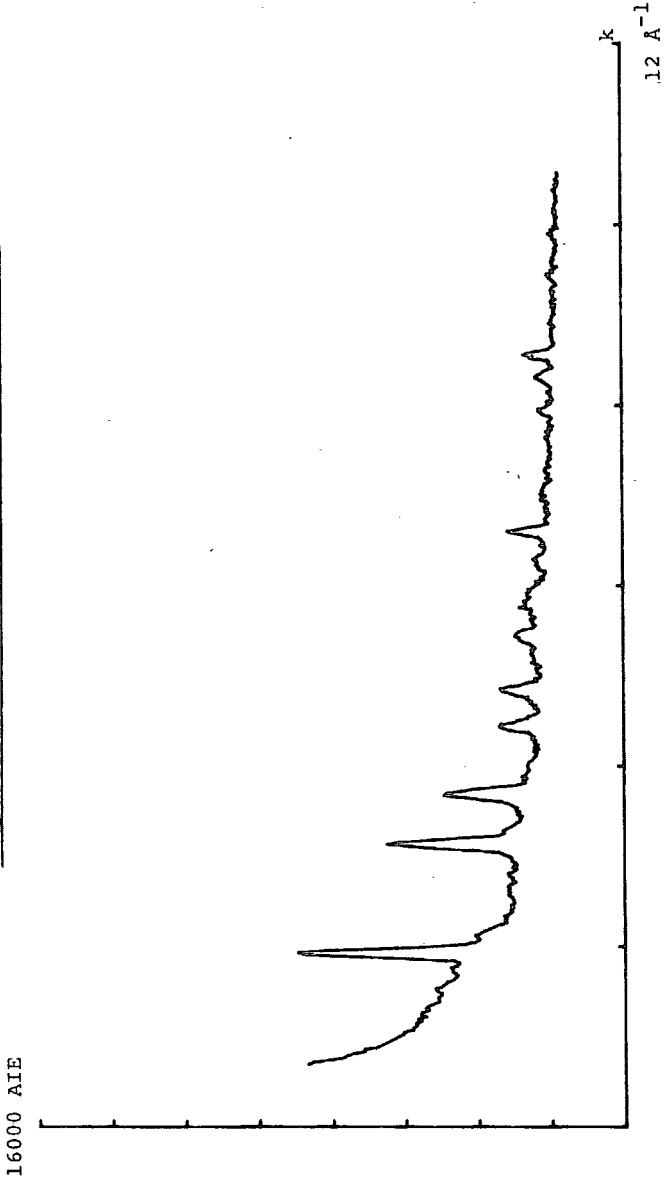
Som det ses ligger kurven for sample 0 en anelse over kurven for sample 1 for alle k -værdier. Dette kan i overensstemmelse med det tidligere sagte fortolkes, som forårsaget af, at sample 0 er en lille brøkdelen tykkere end sample 1 på det gennemstrålede areal. Dette grunder sig på de allerede nævnte problemer med præcis fastlæggelse af tykkelsen af det gennemstrålede areal.

Opløsningen af grafen over $I_C(k)$ er ud fra et polykrystallinsk Ge-spektrum (se næste side) anslået til at være af størrelsen 0.1 \AA^{-1} . Opløsningen er angivet ved halvverdibredden af toppe. Ved betragtning af graferne for $I_C(k)$ for sample 0 og 1, som har toppe med halvverdibredder af størrelsen 1 \AA^{-1} , må dette betyde, at toppenes bredder i det væsentlige ikke skyldes udbredning hidrørende fra kollimatorspalternes endelige bredde. I **stedet må det** skyldes, at det pådampede Ge-lag ikke er krystallinsk. Det pådampede germaniumlag kan heller ikke være mikrokrySTALLINSK, idet det gælder approximativt, at middelstørrelsen D af mikrokrySTALLER vinkelret på de reflekterende planer er givet ved følgende udtryk. Når 2θ er spredningsvinklen, λ er bølgelængden af Röntgenstrålingen og β er halvverdibredden af en diffraktionstop i vinklen 2θ målt i radianer (se også Azaroff) så fås:

$$D = \lambda / (\beta \cos\theta)$$

For første diffraktionstop i I_C -spekteret giver dette en mikrokrySTALLSTØRRELSE på 13 \AA , hvilket er en for lille mikrokrySTALLITSTØRRELSE til at den kan eksistere i praksis; idet det meste af en sådan krySTALL ville være overflade. Graferne over $I_C(k)$ svarer ganske nøje til den kurve som andre forfattere har fået i det tilsvarende k -interval ved diffraktion af amorf Ge. Dette må betyde at det pådampede germaniumlag er amorft. Sådanne kurver fra andre forfattere er vist to sider længere fremme. Den første figur, som er øverst på siden,

Ekperimentelt målt intensitetskurve for Ge-x.



viser I_c som funktion af $\sin\theta/\lambda$ for hhv. $MoK\alpha$ og $CuK\alpha$ hos Richter og Breitling (Z. Naturforschung 13a, 988-996, 1958):

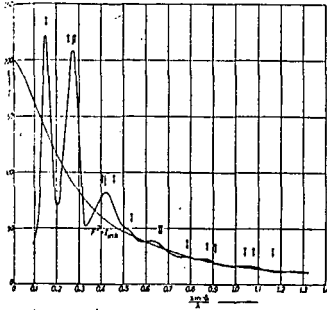


Abb. 2. Korrigierte Intensitätskurve von amorphem Germanium mit angeglichener Atomformfaktorkurve und inkohärenter Streuung ($MoK\alpha$ -Aufnahme, Präparat VI, frisch hergestellt, Picile \Rightarrow berechnete Interferenzlagen).

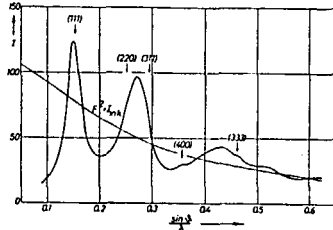
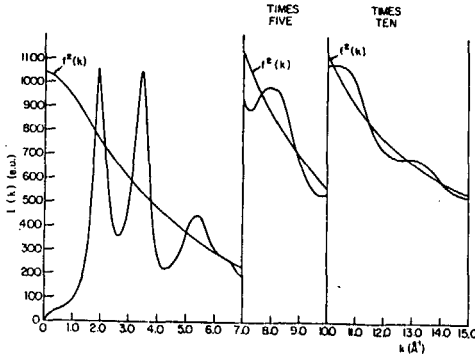


Abb. 3. Korrigierte Intensitätskurve von amorphem Germanium mit angeglichener Atomformfaktorkurve und inkohärenter Streuung ($CuK\alpha$ -Aufnahme, Präparat III, getempert bei 250 °C).

Den anden viser Rayleighspredningen i elektronheder som funktion af k (Temkin et al., Adv. in Physics, vol XXII Nos. 1-6, p. 581, 1973):



Coherent X-ray scattering intensity, $I(k)$, in electron units (e.u.), for a a -Ge film with $T_s = 150^\circ C$. Also shown is $f^2(k)$, the square of the dispersion corrected atomic scattering factor of Ge.

På de to næstfølgende sider er der vist to figurer der sammenligner I_c før varmebehandling (den ikke-punkterede linie) med I_c efter varmebehandling (den punkterede linie). Den første figur viser kurver for sample 0. Den anden figur viser kurver for sample 1 (før varmebeh., kørsel 1 og efter varmebeh. kørsel 1). For sample 1 kan man konstatere en meget svag sænkning af 1. og 2. top, samt en uddybning af kløften mellem disse toppe. For sample 0 kan man derimod konstatere en meget svaghævning af 1. top, samt en svag sænkning af kløften mellem 1. og 2. top og ligeledes en meget svag hævnning af 2. og 3. top. Disse indikationer er imidlertid så lidt signifikante og forskellige fra sample til sample, at det ikke er muligt at påvise nogen systematiske forandringer i $I_c(k)$ som følge af varmebehandlingen.

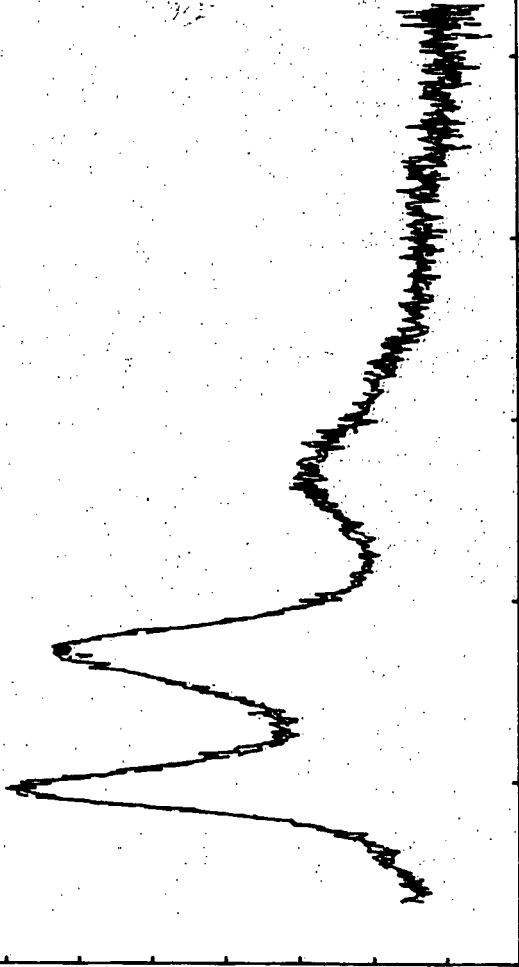
Pga. den lave signifikans og den lave værdi af k_{max} , hvilket resulterer i en ringe opløsning af radialdistributionsfunktionen, skal det ikke forsøges at fremstille mere end en radialdistributionsfunktion. Denne vil nemlig ikke kunne vise nogen forandring af strukturen på denne baggrund.

Den korrigerede intensitetsfunktion for sample 0.

16000 A/E

Før varmebeh.:-----

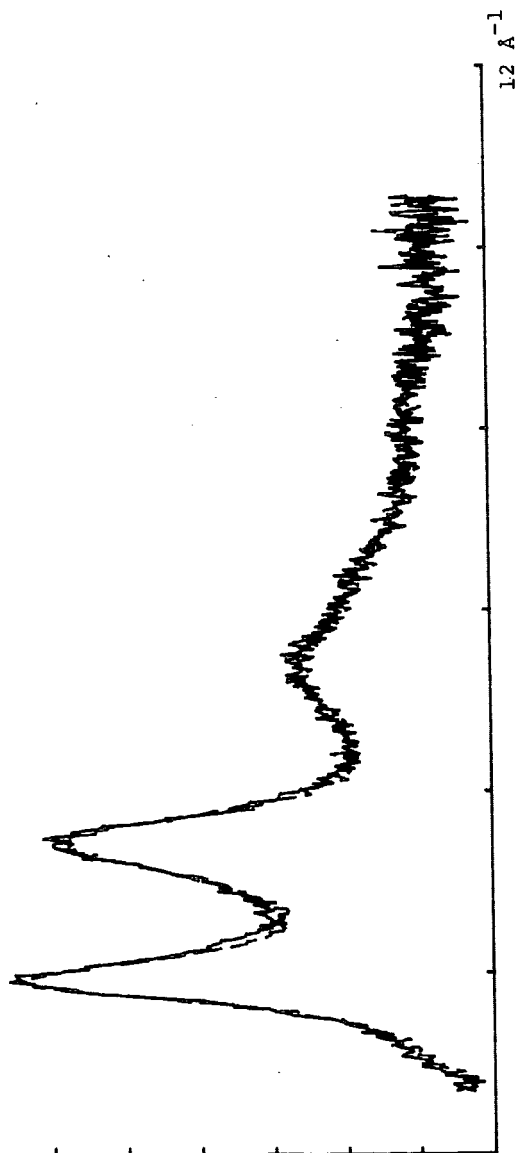
Efter varmebeh.:-----



Den korrigerede intensitetsfunktion for sample 1.

16000 AIE

før varmebeh.: _____
efter varmebeh.:-----



Fremstilling af RDF.

For at fremstille den reducerede RDF (se side 163) er det i første omgang nødvendigt at korrigere for arbitrære intensitetsenheder ved normalisering (se side 165). Her benyttes normaliseringsproceduren fra appendix A. Dernæst er det nødvendigt at korrigere for polarisation og Comptonspredning (se side 165), hvorved vi får Rayleighspredningen fragermaniumlagene i elektronenheder. Denne bruges så til at opnå den reducerede interferensfunktion (se side 163), som Fouriertransformeres for at opnå den reducerede RDF $g(r)$.

Imidlertid kan der pga. centralstrålens tilstedeværelse ikke opnås data for k mindre end $k_{\min} = 0.9 \text{ \AA}^{-1}$. Af matematiske årsager er k_{\max} maksimalt lig med $4\pi/\lambda$. Pga. utilstrækkelig intensitet (se side 156 om Debye-Waller faktoren) for store k er vores $k_{\max} = 10.4 \text{ \AA}^{-1} < 4\pi/\lambda = 17.7 \text{ \AA}^{-1}$. Mangelen på data for små værdier af k betyder, at de mest langbølgede af Fourierkomponenterne vil mangle i $g(r)$, dvs. komponenter med bølgelængder $\Delta r > 2\pi/k_{\min} = 7.0 \text{ \AA}$. Denne mangel på langbølgede komponenter er ikke særlig vigtig, da det kun er en ubetydelig del af arealet under integranden: $i(k) \cdot k \cdot \text{sindr}$ (se s. 162), som ligger i intervallet $[0; k_{\min}[$. For at reducere denne i forvejen ikke særlig alvorlige fejl, ekstrapoleres måledata kvadratisk i k mod 0 (se side 164).

En mangel på anvendelige data større end $k_{\max} = 10.4 \text{ \AA}^{-1}$ betyder, at de mest kortbølgede Fourierkomponenter med bølgelængder $\Delta r < 2\pi/k_{\max}$ mangler i $g(r)$. Der gælder derfor, at opløsningen bliver af størrelsesorden $2\pi/k_{\max} = 0.6 \text{ \AA}$. Hvor-

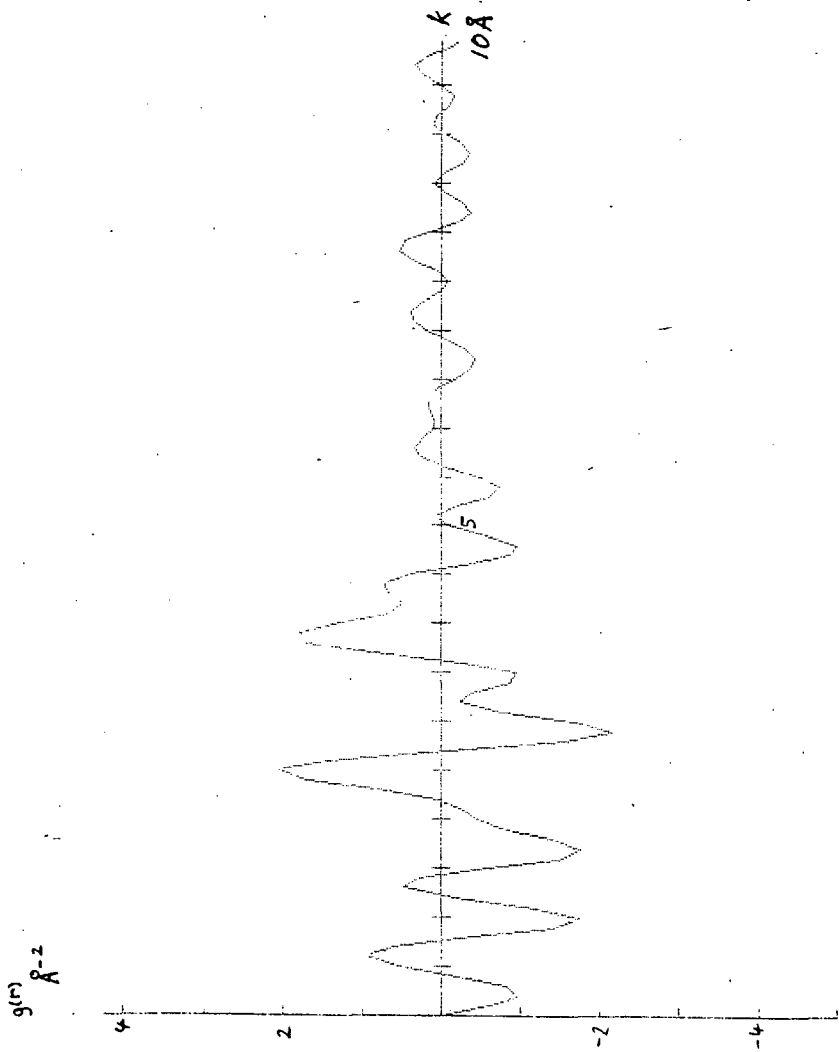
for man ikke kan tillægge svingninger af denne størrelse eller mindre nogen fysisk betydning. Fejlen på $g(r)$ grundet mangel på data større end k_{\max} er behandlet i appendix E. Her påvises det, at afslutning ved k_{\max} resulterer i, at den resulterende $g_r(r)$ kan forstås som en foldning af den sande $g(r)$ med en udbredningsfunktion $P(r')$. Denne er kendetegnet ved en halvverdibredde af den centrale top, som angiver opløsningen af $g_r(r)$, samt af en række svingninger med aftagende amplitude på hver side af denne centrale top. I vores tilfælde er der tale om en halvverdibredde på 0.4 Å (se graf i appendix E).

Forsøg på at reducere afslutningsfejlsens forstyrrende virkning ved ekstrapolation af data ud over k_{\max} eller ved afbødning af det bratte knæk ved k_{\max} skal ikke gøres her, da opløsningen er for ringe pga. et lille k_{\max} .

Der beregnes, som allerede nævnt, kun en RDF. Denne beregnes ud fra kørsel 1 på sample 1 før varmebehandling. Den reducerede RDF beregnes ved numerisk integration mht spredningsvinklen 2θ :

$$g_r(r) = \frac{8\pi}{\lambda^2} \sum i(k(\theta)) \cdot \text{sinkr} \cdot \sin 2\theta \cdot \Delta 2\theta$$

Der summeres fra $2\theta_{\min}$ til $2\theta_{\max}$ og $\Delta 2\theta = 0.15 \frac{\pi}{180}$. Dette giver en reduceret RDF, $g(r)$ som afbildet i figuren på næste side. Normaliseringskonstanten er vha. proceduren i appendix A bestemt til 0.076.



Idet vi vælger en atomtæthed $\rho_0 = 0.044 \text{ \AA}^{-3}$ som i det krystallinske tilfælde, fås den totale korrelationsfunktion $4\pi r \rho(r) = g(r) + 4\pi \rho_0 r$. Denne er afbildet på næste side. Ifølge appendix E har denne graf en opløsning angivet ved halvvardibredden 0.4 \AA på opløsningsfunktionen $P(r')$. Den 1. top med centrum i 2.5 \AA kan identificeres som 1. koordinationsstoppen udbredt af opløsningsfunktionen $P(r')$. Denne top har halvvardibredden 0.4 \AA . En δ -funktion anbragt i $r=2.5 \text{ \AA}$ vil ved foldning med $P(r')$ blive udbredt til $P(r-2.5 \text{ \AA})$. Førstekoordinationstoppens sande udseende må da være nært på at være en δ -top i $r=2.5 \text{ \AA}$. Dette er i overensstemmelse med Etherington et al. (Journal of Non-Crystalline solids 48 (1982) 265-289), som er det hidtil seneste forsøg på at bestemme den totale korrelationsfunktion for amorf germanium vha. neutronspreddning. I deres måling er $k_{\text{max}} = 23.2 \text{ \AA}^{-1}$. Denne er afbildet herunder (den fuldt optrukne graf):

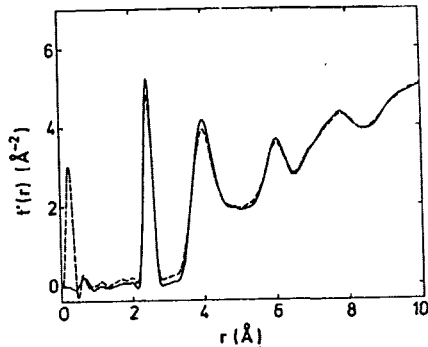
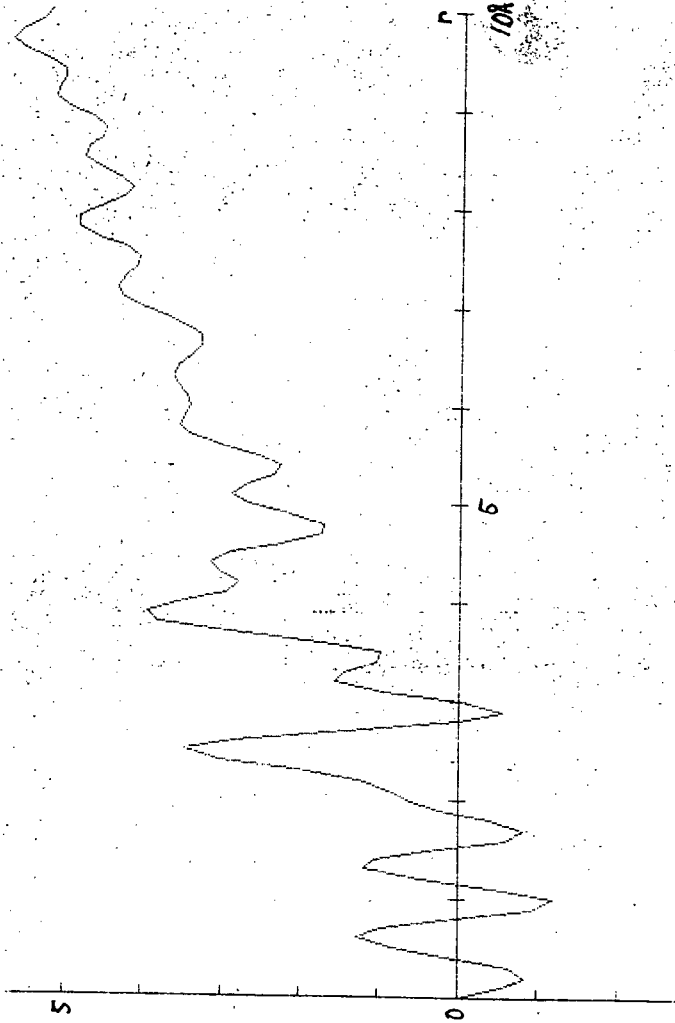


Fig. 6. The correlation function $r'(r)$ with (—) and without (-----) water correction. $Q_{\text{max}} = 23.2 \text{ \AA}^{-1}$.

SKRIF FOR DEN TUTHLE KORRELLATI FÖRSJUNKTION

$4m \cdot \rho(r)$
A-2



10A

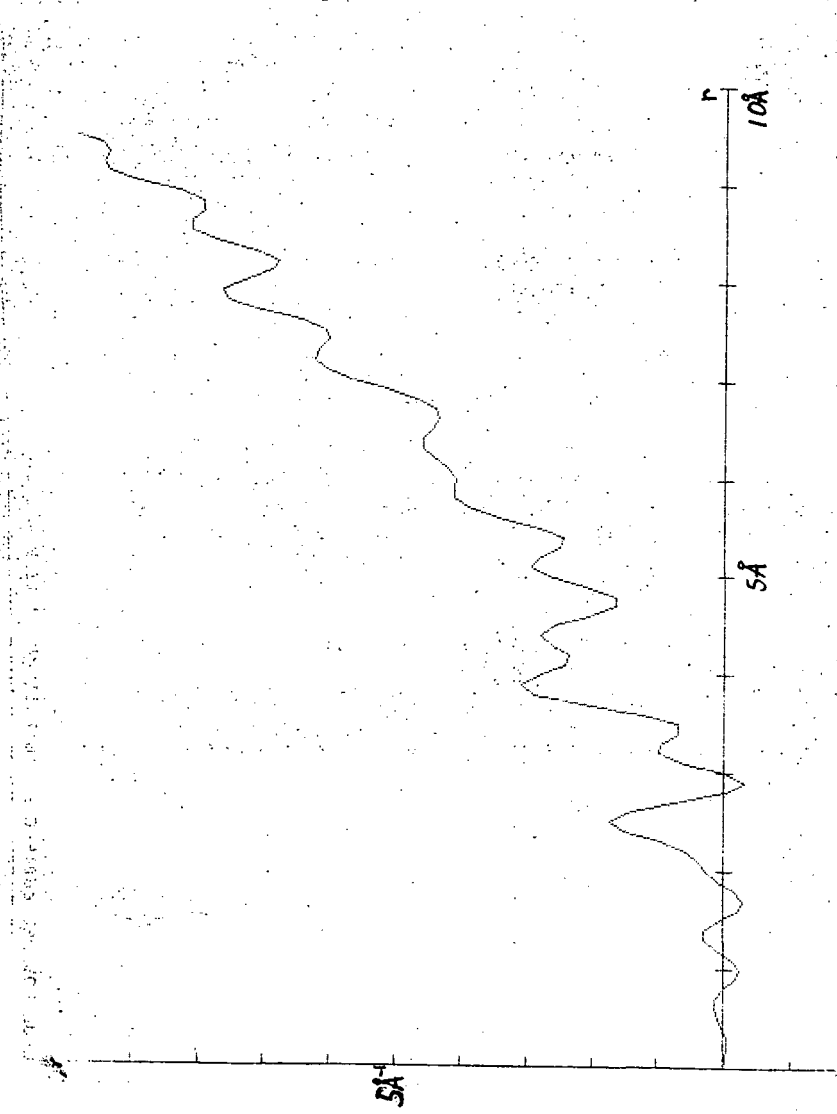
Den sande halvværdibredde af 1. koordinationsstoppen estimeres til 0.174 Å hos Etherington, hvilket er en relativt lille halvværdibredde. Den sande position bestemmes til 2.463 Å, hvilket heller ikke er i strid med vores resultater. Den overlejlrede svingning i vores kurve for den totale korrelationsfunktion, som især er tydelig for radier mindre end 2 Å, er en støjbølge, der hidrører fra afslutning ved k_{\max} . Det er de subsidiære svingninger i $P(r')$, som er ansvarlig for denne.

Vores resultater er således ikke i modstrid med Etheringtons. Vi har blot dårligere opløsning pga. lavere k_{\max} . Højere k_{\max} kan opnås både ved højere intensitet og ved at måle strålingskvanter i længere ti pr. scannevinkel. Højere maksimalværdi af k_{\max} kan opnås ved at gøre bølgelængden λ af strålingen mindre.

Endelig skal det nævnes, at den radiale distributionsfunktion $4\pi r^2 \rho(r) = r g(r) + 4\pi r^2 \rho_0$ er afbildet på næste side.

Röntgendiffraktion og relaxationsmodellen.

Man kan konkludere, at man stort set ikke kan se nogen forandring i den korrigerede intensitetsfunktion $I_c(k)$. Dette er endnu en bekræftelse på den i dette arbejde udarbejdede relaxationsmodel (se side 103), som forudsiger at der ikke kan ses nogen strukturforandringer, da de væsentligste strukturforandringer faktisk allerede er fundet sted umiddelbart efter pådampningen. Dette kan anskueliggøres således ud fra den på side 113 udledte potensfunktions-lov, som er opbygget på følgende måde: Idet N_{d0} er antallet af defekter



til tiden τ_0 , som er dannelses-tidspunktet for Ge-filmen. Idet T_B er en konstant med enhed af temperatur og idet T er varmebehandlingstemperaturen. Så gælder det at antallet af defekter N_d til tiden t er givet ved

$$N_d = N_{do} (t/\tau_0)^{-T/T_B}$$

Størrelserne i denne lov er fastlagt (se side 195). til $\tau_0 = 10^{-12}$ sek og $T_B = 521^\circ$. Hvis T er stuetemperatur og N_{do} sættes til det absolut maksimale, nemlig antallet af atomer i samplets Ge-lag, så gælder det at allerede efter 10^{-10} sek så er $N_d = N_{do}/10$. Dvs. der er en defekt for hver tiende atom. Når koncentrationen af defekter aftager videre under denne værdi er den blevet så lille, at man ikke kan iagttage nogen forandringer mere i radialdistributionsfunktionen. Relaxationsprocessen løber nu uhyre meget langsommere : efter 1 sek er der $N_{do}/10^6$ defekter tilbage. Efter 1 minut er der $N_{do}/10^7$ defekter tilbage osv.

Konklusionen må da være, at hvis man skal gøre sig forhåbninger om at se relationsprocessen vha. Röntgendiffraktion må man for det første nedkøle samplerne, så relaxationen forløber langsommere. Hvis $T = 90^\circ K$ så er $N_d = N_{do}/10$ efter 10^{-6} sek. For det andet er det således nødvendigt at have ganske kortvarige kørsler i størrelsesordenen mikrosekunder med høj intensitet in situ umiddelbart efter pådampning. Dette kan realiseres med "white beam" eksperimenter med en bred fordeling af energier og en fasholdt scannevinkel.

8 KONKLUSION .

Modellen af tætheden af tilstande, fig.8.1, der efterhånden er almindeligt anerkendt, har vist sig som en brugbar fortolkningsramme for vore eksperimenter.

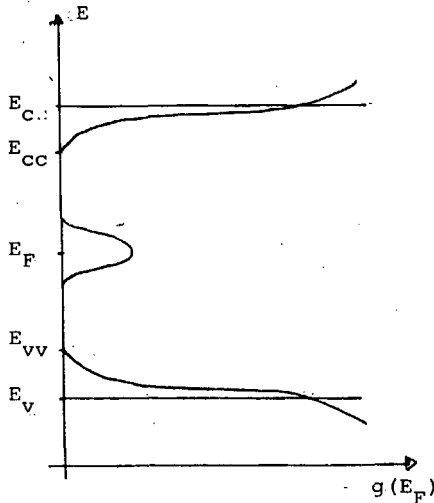


Fig.8.1. Mobilitetskanterne E_C og E_V markerer overgangene mellem udstrakte og lokaliserede tilstande. Tilstande i pseudobåndgabet mellem E_C og E_V er lokaliserede, mens tilstandene over E_C og under E_V er udstrakte. Båndhalerne ligger i intervallerne $[E_V; E_{VV}]$ og $[E_{CC}; E_C]$. Disse udgøres af Anderson-lokaliserede tilstande, d.v.s. tilstande lokaliserede som følge af positionel uorden i gitteret. Tilstandene omkring E_F er forårsaget af defekter i det amorf netværk, som f.eks. frie bindinger.

Ge-filmene fremstillet til eksperimenterne har en amorf struktur. Röntgen-diffraktionseksperimenterne har vist, at Ge-filmene hverken er krystallinske eller mikrokrystallinske, og at den korrigerede intensitetsfunktion stemmer overens med andre forfatteres kurver. Altså er det pådampede Ge-lag amorf.

Endvidere udviser ledningsevnen den samme afhængighed af temperaturen, som andre har konstateret for germanium i den amorfe fase.

Undersøgelsen af jævnstrømsledningsevnenes temperaturafhængighed har vist to ledningsevne mekanismer: ca. ved stuetemperatur og derunder foregår den elektriske ledning ved, at elektronerne foretager hop af variabel afstand mellem de lokaliserede tilstande omkr. Fermienergien. Ved temperaturer højere end stuetemperatur foregår transporten formentlig i tilstande i nærheden af E_c .

Ved brug af ledningsevnen ved lave temperaturer som strukturparameter har vi sandsynliggjort, at defekterne relaxerer ud efter en tidsekspontlov. Vores relaxationsmodel viser overordentlig god overensstemmelse med måledata: både hvad angår ledningsevne målingerne og Röntgendiffraktionsdata. Den korrigerede intensitetskurve, som er et udtryk for strukturens tilstand ændrer sig praktisk taget ikke som følge af varmebehandlingen (i 5 timer ved 200°C). Dette bekræfter vores relaxationsmodels forudsigelse, at 9/10 af defekterne er relaxeret bort efter 10^{-10} sek ved stuetemperatur. Hvis man skal gøre sig forhåbninger om at iagttage relaxationen med denne målemetode, må man for det første nedkøle til 90°K . For det andet må man bruge white beam eksperimenter af mikrosekundvarighed umiddelbart efter pådampning, da 9/10 af defekterne er relaxeret bort efter et mikrosekund ved denne temperatur.

Hvad angår Mott-loven, viser målingerne den $T^{-1/4}$ -afhængighed, som Mott-loven forudsiger: $\sigma \propto \exp(-(T_0/T)^{1/4})$. Men hvis man tager modellen for pålydende i sin helhed ved at inddrage udtrykket for proportionalitetsfaktoren, opstår der inkonsistenser, når modellen anvendes på måldata. Grunden hertil er nok, at Mott's fremgangsmåde med at benytte en middelhoplængde og et middelenergispørgsmål er for grov. Spørgsmålet om elektrontransport mellem lokaliserede tilstande skulle nok snarere formuleres som et perkolationsproblem.

APPENDIX A

En normaliseringsprocedure.

På trods af at den tidligere beskrevne normaliseringsprocedure gennemføres på den måde som er anført s.168, kan man have valgt den forkerte normaliseringskonstant p.g.a. fejlkilder og usikkerhedsmomenter forbundet med proceduren. Disse består i at

- data ophører ved k_{\max} . Der kan således være problemer med at tilfredsstille den tidligere nævnte procedures krav om ved valg af en passende normaliseringsfaktor A, at få $I_c(k)/((1+\cos^2 2\theta)/2)$ til at svinge om $(f(k))^2 + \mathcal{J}$ med denne som asymptote-kurve for $k \rightarrow \infty$ (se også s.168).
- den relative usikkerhed på bestemmelsen af strålingsintensiteten $I_c(k)/((1+\cos^2 2\theta)/2)$ vokser med k for store k, idet intensitetens størrelse aftager tendentielt.
- den ikke-normaliserede intensitet kan indeholde fejl af forskellige slags. Tilstedeværelsen af disse vil få indvirkning på valget af skaleringsfaktor A.

Det er derfor nødvendigt at indføre et normaliseringskriterium som i højere grad tager højde for de ovennævnte momenter.

Vi sætter $I' = I_c(k)/((1+\cos^2 2\theta)/2)$, \mathcal{J} er som nævnt Compton-spredningen per atomar spreder, og I er intensiteten normaliseret med faktoren A:

$$I = I' A - \mathcal{J} \Rightarrow I' = (\mathcal{J} + I)/A$$

Den relative fejl $e(k)$ på I' defineres ud fra fejlen $\Delta I'$ som:

$$e(k) = \Delta I' / I'$$

, hvor e er en passende valgt funktion af k . Den samlede fejl hidrørende fra intensitetsfejl $\Delta I'$ og normaliseringsfejl ΔA er givet ved det totale differential:

$$\Delta I = A \cdot \Delta I' + I' \Delta A = A \Delta I' \cdot e(k) + I' \Delta A = (I' + I) (e(k) + \Delta A/A)$$

Denne fejl introducerer en fejl i $F(k)$ (se side 163) på $F(k)$:

$$\begin{aligned} F(k) + \Delta F(k) &= ((I + \Delta I) / f^2 - 1) k \\ &= (1 + e(k) / \Delta A / A) F(k) + (I' / f^2 + 1) (\Delta A / A + e(k)) k \end{aligned}$$

Da $I' / f^2 \ll 1$ for $k \leq k_{\max}$ fås

$$\Delta F(k) \approx (e(k) + \Delta A / A) F(k) + (\Delta A / A + e(k)) k$$

Hvis det yderligere viser sig, at $e(k)$ varierer langsomt om et konstant niveau, hvilket f.eks. kan skyldes absorptionskorrektionsfejl eller fejl ved korrektion for uønsket spredning, så er det muligt at opstille et udtryk for fejlen på den reducerede RDF hidrørende fra fejlnormalisering og langsomt varierende intensitetsfejl. Idet $g_r(r)$ er den resulterende reducerede RDF fremkommet ved afslutning ved k_m , fås den endelige reducerede RDF, $g_n(r)$, som inkluderer intensitets- og normaliseringsfejl, til:

$$g_n(r) = g_r(r) + \frac{2}{\pi} \int_0^{k_m} ((\Delta A/A + e(k)) (F(k) + k) \sin kr) dk$$

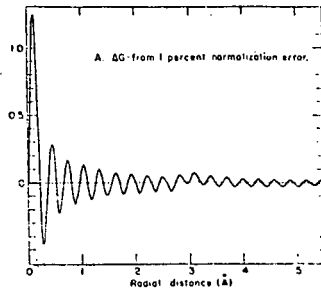
$$\approx g_r(r) + \frac{2}{\pi} (\Delta A/A + e(k)) \int_0^{k_m} (F(k) + k) \sin kr) dk$$

$$\approx (1 + \Delta A/A + e(k)) g_r(r) + \Delta g_n(r)$$

Den resulterende $g_n(r)$ er da funktionen $g_r(r)$ skalaforandret med en faktor $1 + \Delta A/A + e(k)$ plus den sinustransformerede af den tilnærmelsesvis lineære funktion $(\Delta A/A + e(k))k$. Fejlfunktionen

$$\Delta g_n(r) = \text{konst.} \left(\frac{\sin(k_m r)}{r^2} - \frac{k_m \cos(k_m r)}{r} \right)$$

udviser skarpe oscillationer ved værdier af r tæt ved 0, og fraværet af disse skarpe oscillationer er da et brugbart kriterium for bestemmelsen af den korrekte værdi af ΔA .



Nemlig en værdi som på bedste måde kompenserer for den langsomt varierende fejl $e(k)$. For en delvist kompenserende effekt må der gælde, at $e(k)$ og $-\Delta A/A$ er af samme størrelsesorden.

(se R.Kaplow, S.L.Strong og B.L.Averbach, Phys.Rev. 138, 1336 (1965)).

APPENDIX B

Röntgen-korrektioner og sample-tykkelsesoptimering.

Formålet med dette afsn. er at løse flg. problemer:

1)Hvorledes korrigerer vi for kantspredning hidrørende fra den anden kollimatorspalte (se s.198), samt baggrundsstråling og absorption af Röntgenstråling med bølgelængden 0.7107\AA , når denne sendes igennem et sample bestående af n lag? Hver af disse lag er dobbelte og består af et substratlag bestående af stegefilm og et pådampet lag bestående af Ge-film.

2)Hvorledes optimerer vi tykkelsen af de n lag Ge-film, således at det målbare bidrag fra spredning i de n lag Ge-film bliver størst muligt?

For at løse disse problemstillinger er det nødvendigt at vurdere spredningen og absorptionen i stegefilm i forhold til spredningen og absorptionen i det pådampede Ge-lag. Det vil vise sig, at vi kan se bort fra absorptionen i stegefilmen, hvilket letter beregningerne. Absorptionen i et sample vokser med den afstand som strålingen skal tilbagelægge i dette. Dette gør den sande spredning ligeledes. Denne modsætning mellem sand spredning og absorption fører til ovennævnte optimeringsproblem. Resultatet af den optimeringsprocedure som opstilles i dette afsnit er formel 1, s.242. Udfra denne formel besvares spørgsmål 2. Den endelige korrektionsformel for uønsket spredning, absorption og baggrundsstråling er udtr.2 s.245. Denne er svaret på spørgsmål 1.

Spredning og absorption i germanium-film.

Ved bølgelængder af størrelsesordenen 1\AA vekselvirker det elektromagnetiske felt praktisk taget

udelukkende med atomets elektronsystem. Der skelnes mellem to hovedtyper af vekselvirkning.

- 1) "Sand" eller photoelektrisk absorption.
- 2) Spredning.

(Se også "International Tables for X-Ray Crystallography", vol.III, s.157-161)

Under antagelse at andre tab er negligérbare er den totale lineære absorptionskoefficient μ givet ved:

$$\mu = \tau + \sigma$$

τ er koefficienten for sand absorption, og σ er spredningskoefficienten. Der er to slags spredningsprocesser, inkohærent eller Comptonspredning, og kohærent eller Rayleigh-spredning. Masseabsorptionskoefficienten er givet ved en empirisk relation (s.161 i "Int.Tab."). Heri indsættes $\lambda = 0.7107\text{\AA}$ for Mo K_{α} .

$$\begin{aligned} \mu/\rho &= \tau/\rho + \sigma/\rho \\ \tau/\rho &= C\lambda^3 - D\lambda^4 \\ \sigma/\rho &= \sigma_{K-N} \cdot N \cdot Z/A \end{aligned}$$

Disse konstanter er tabuleret. For Ge er $\tau/\rho = 64.7$ og $\sigma/\rho = 0.1$. Spredningskoefficienten er derfor meget lille, hvilket gør det muligt at bortse for multipel spredning, idet det for absorptionstykkelser af vores størrelsesorden (fra 0 til 100 my) gælder, at deres spredning kan approksimeres på flg. måde. En Ge-absorber med tykkelsen n my vil, idet massetætheder per flade for en lagtykkelse på 1 my er $m/A = 5.35 \cdot 10^{-4}$ g, sprede:

$$\begin{aligned} ((I_0 - I)/I_0) \cdot 100\% &= (1 - \exp(-(\sigma/\rho)n(m/A))) \cdot 100\% \\ &\approx 1 - (1 + (-\sigma/\rho)n(m/A)) \cdot 100\% \\ &\approx n \cdot 0.005\% \end{aligned}$$

Ydermere vil den sande absorption i en absorber med en tykkelse på 5 my, hvilket er lagtykkelsen af et

enkelt Ge-lag i vores eksperimentelle situation, være:

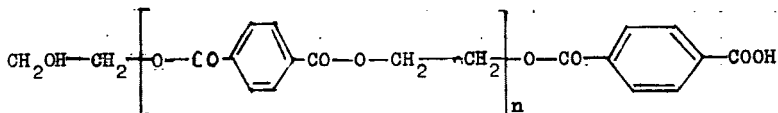
$$\begin{aligned} ((I_0 - I)/I_0) 100\% &= (1 - \exp(-(\tau/\rho)n(m/A))) \cdot 100\% \\ &= (1 - \exp(-64.7 \cdot 5 \cdot 5.35 \cdot 10^{-4})) \cdot 100\% \\ &\approx 16\% \end{aligned}$$

Da $16 \gg 0.025$ gælder det, at al sekundær vekselvirkning mellem Röntgen-strålen og Ge-filmene kan beskrives ved sand absorption. Vi kan da i praksis sige at $\mu = \tau$. Endeligt kan det nævnes, at for en lagtykkelse på 5 my er

$$K_{Ge} = \mu \cdot t = (\mu/\sigma)n(m/A) = 64.8 \cdot 5 \cdot 5.35 \cdot 10^{-4} = 1.735 \cdot 10^{-1}$$

Spredning og absorption i stegefilm.

Vores viden om stegefilmens kemiske sammensætning begrænser sig til, hvad vi ved fra varedeklarationen. Her står der, at denne er fremstillet "på basis af polyethylenteraphtalat". Dette polymere organiske stof har flg. konstitutionsformel:



, hvor enheden i parantesen er den enhed, der gentager sig. I denne enhed indgår der 8 brintatomer, 10 kulatomer og 4 iltatomer. Ud fra dette talmæssige forhold er det muligt at bestemme stegefilmens masseabsorptionskoefficient, under antagelse af at dette er stegefilmens kemiske sammensætning.

Hvis vi blot antager, at filmen består af H, C og O atomer i et ukendt talmæssigt forhold, kan vi anslå inden for hvilke grænser koefficienterne for spredning og sand absorption befinder sig. Det viser sig, at for Mo K_{α} er:

$$\text{H: } \mu/\rho = 0.380 \quad \sigma/\rho = 0.375 \quad \tau/\rho = 0.005$$

$$\text{C: } \mu/\rho = 0.625 \quad \sigma/\rho = 0.195 \quad \tau/\rho = 0.430$$

$$\text{O: } \mu/\rho = 1.31 \quad \sigma/\rho = 0.19 \quad \tau/\rho = 1.12$$

Hvis filmen udelukkende består af H-atomer, vil vi opnå den maksimale spredning, der kan tænkes at komme fra stegefilmen. Stegefilmen har en massetæthed på $1.64 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^2$. Størrelsesordenen af de vejlængder som Röntgenstrålingen kan tænkes at tilbagelægge i stegefilmen vil være 0 til 100 lagtykkelser. For denne størrelsesorden vil det gælde, at spredningen i n lagtykkelser kan approximeres som:

$$\begin{aligned} ((I_0 - I)/I_0) 100\% &= (1 - \exp(-0.375 \cdot n \cdot 1.64 \cdot 10^{-3})) \cdot 100\% \\ &\approx n \cdot 0.06\% \end{aligned}$$

D.v.s. at selv i det allermest pessimistiske tilfælde, nemlig når filmen består af ren brint, og tykkelsen er 100 lag, så er det muligt at se bort fra multipel spredning, idet spredningen maksimalt vil være 6%.

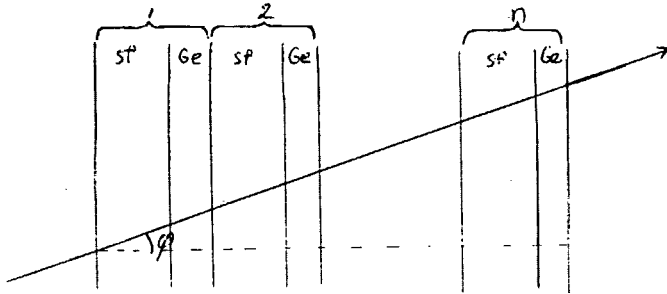
I tilfældet, hvor stegefilmen består af ren ilt, vil vi opnå den maksimale absorption = spredning + sand absorption. Der gælder da for absorption gennem en lagtykkelse, at:

$$K_{sf} = (\mu/\rho) \cdot (m/A) = 1.31 \cdot 1.64 \cdot 10^{-3} = 2.15 \cdot 10^{-3}$$

for Mo K_{α} .

Sammenligning af absorption i stegefilm og i Ge-film.

Vi forestiller os nu flg. geometri for strålingspassage gennem en absorber bestående af n dobbeltlag stegefilm/Ge-film:



Hvis $1 - \exp(-nK)$ er den brøkdel af Röntgenstrålingen, der bliver absorberet ved passage vinkelret gennem absorberen, så er $1 - \exp(-nK/\cos\varphi)$ den brøkdel, der bliver absorberet ved gennemgang i vinkelen φ i forhold til vinkelret. Vi forestiller os nu den mest pessimistiske situation, hvad angår absorption. Denne indtræder, når stegefilmens bidrag til absorption er størst muligt. Det er den, hvis stegefilmen består af ren ilt, og når forholdet mellem de absorberede brøkdele er største muligt:

$$R(\varphi) = \frac{1 - \exp(-nK_{sf}/\cos\varphi)}{1 - \exp(-nK_{Ge}/\cos\varphi)} \approx \frac{n \cdot K_{sf}/\cos\varphi}{nK_{Ge}/\cos\varphi} = \frac{K_{sf}}{K_{Ge}} = 0.012$$

Der er altså tale om, at der, uafhængigt af den vinkel φ strålen passerer gennem absorberer på, er et fast forhold mellem de absorberede brøkdele. Brøkdele på 1.2%, som er opnået ved at betragte det mest pessimistiske tilfælde; nemlig når filmen er af ren ilt, er sikkert for højt sat. En mere præcis værdi kunne sikkert opnås ved at måle absorptionen eksperimentelt.

Hvis vi skal vurdere størrelsesordenen af den fejl, vi begår ved at se bort fra absorption i stegefilmen, er det nødvendigt at undersøge den %-vise afvigelse af absorptionsfaktoren $\exp(-nK_{sf}/\cos\varphi)$ fra 1. Denne er maksimal for $\varphi = \varphi_{\max} = 71.71^\circ$. Hvis vi sætter $n=5$, som er det antal dobbeltlag, vi benytter i Röntgen-

diffractionseksperimentet (se s.198), så fås:

$$\begin{aligned}
 (1 - \exp(-n \cdot K_{sf} / \cos \varphi_{\max})) \cdot 100\% &\approx n \cdot K_{sf} / \cos \varphi_{\max} \cdot 100\% \\
 &\approx 5 \cdot 2.15 \cdot 10^{-3} / \cos 71.71^\circ \\
 &\approx 3\%
 \end{aligned}$$

Som allerede nævnt er dette tal opnået ved at betragte det mest pessimistiske tilfælde. Det forventes derfor, at $\%$ -satsen er en del mindre. For $\varphi = 0^\circ$ er:

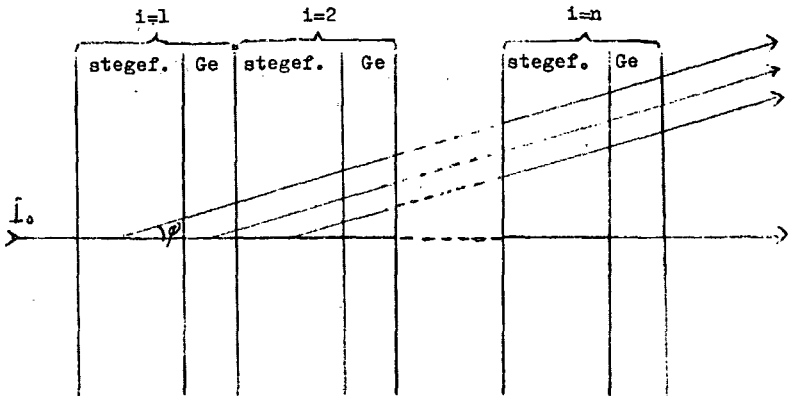
$$\begin{aligned}
 (1 - \exp(-n \cdot K_{sf} / \cos 0^\circ)) \cdot 100\% &\approx n \cdot K_{sf} \cdot 100\% \\
 &\approx 5 \cdot 2.15 \cdot 10^{-3} \cdot 100\% \\
 &\approx 1\%
 \end{aligned}$$

I det beskrevne tilfælde varierer fejlen fra 1% til 3%. Fejlen vil dermed variere omkr. en middelværdi i dette interval. Denne fejl er i samme størrelsesorden som de øvrige fejl og usikkerheder på den målte intensitet, som er i spil. Det drejer sig bl.a. om usikkerheden på bestemmelsen af talletallet hidrørende fra strålingsstatistiske fejl og drift af forsyningsspænding.

Yderligere må vi regne med, at fejlen fra 1 til 3% er for pessimistisk sat, da stegefilmen jo ikke er af ren ilt, hvorfor det bliver muligt at se bort fra absorption i stegefilm.

Spredning og absorption i n stegefilm/Ge-film.

Vores sample består af n dobbeltlag stegefilm/Ge-film, hvor n er 5. Den eksperimentelle situation kan skitseres således:



Den eksperimentelt målte intensitet I_{exp} kan op-
 løses i flg. komponenter, nemlig et bidrag I_1 hid-
 rørende fra spredning i de n lag germanium, og et
 bidrag I_2 hidrørende fra spredning i de n substrat-
 lag af stegefilm, samt endelig et bidrag fra baggrunds-
 strålingen I_b og et bidrag fra spredning på kolli-
 matorspalternes kanter I_{ka} .

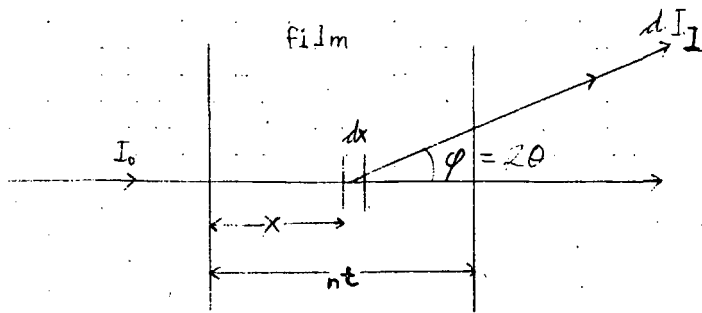
$$I_{\text{exp}} = I_1 + I_2 + I_b + I_{ka}$$

Da vi ser bort fra absorption i substratet kan vi slå
 alle n Ge-lag sammen, når vi skal beregne bidraget
 I_1 fra Ge til den eksperimentelt målte intensitet
 I_{exp} .

Vi vil nu benytte os af flg. procedure:

(se også N.S.Gingrich, Rev.Mod.Phys., vol.15 nr.1, 1943)

Vi opdeler nu de n Ge-lag med samlet tykkelse $n\tau$ op
 i infinitesimale lag med tykkelsen dx . Det antages
 ydermere, at spredningen per indtrængningsdybde i en
 given vinkel er $K(\varphi)$.



Spredningsbidraget fra et sådant lag er:

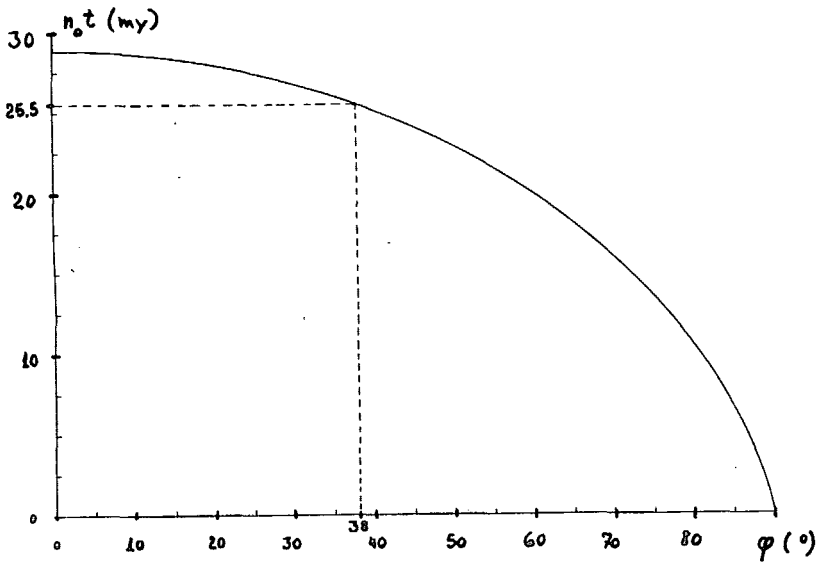
$$\begin{aligned}
 dI_1 &= I_0 \cdot \exp(-\mu x) K(\varphi) \cdot \exp(-\mu(nt-x)/\cos\varphi) dx \\
 &= I_0 \cdot K(\varphi) \cdot \exp(-\mu nt/\cos\varphi) \cdot \exp(\mu(1/\cos\varphi - 1)x) dx \Rightarrow \\
 I_1 &= I_0 K(\varphi) \cdot \exp(-\mu nt/\cos\varphi) \int_0^{nt} \exp(\mu(1/\cos\varphi - 1)x) dx \\
 &= \frac{I_0 K(\varphi)}{\mu(1/\cos\varphi - 1)} (\exp(-\mu nt) - \exp(-\mu nt/\cos\varphi))
 \end{aligned}$$

Vi kan nu optimere spredningsbidraget fra n Ge-lag med tykkelse t . Dette gøres ved differentiering af I_1 . ($C = I_0 K(\varphi) / (\mu(1/\cos\varphi - 1))$).

$$\begin{aligned}
 dI_1/d(nt) &= C(-\mu \cdot \exp(-\mu n_0 t) + (\mu t/\cos\varphi) \cdot \exp(-\mu n_0 t/\cos\varphi)) \\
 &= 0 \Rightarrow
 \end{aligned}$$

$$(1) \quad n_0 t = (1/\mu) (-(\cos\varphi \ln(\cos\varphi)) / (1 - \cos\varphi))$$

Nedenstående er grafen for den optimale værdi $n_0 t$ af den samlede lagtykkelse af n Ge-lag som funktion af scannevinkelen $\varphi = 2\theta$:



Vores scanneinterval i Röntgendiffraktionseksperimentet strækker sig fra 4.36° til 71.71° . Midt i dette interval ligger scannevinkelen 38° . Optimaltykkelsen for denne vinkel fås ved aflæsning af grafen til 25.5 my.

Korrektion for uønsket spredning og absorption.

I Röntgenspredningsteorien antages det, at alle atomare spredere rammes af den samme intensitet, og at der ikke finder nogen yderligere absorption sted efter spredning. For den af germaniumlagene teoretisk spredte intensitet I gælder derfor:

$$dI = I_0 = K(\varphi) \cdot dx$$

$$I = \int_0^{nt} dI = I_0 K(\varphi) \int_0^{nt} dx = I_0 \cdot K(\varphi) \cdot nt$$

Spredningsbidraget fra Ge-lagene til den eksperimentelt målte intensitet I_{exp} er derfor:

$$I_1 = I (\exp(-\mu nt) - \exp(-\mu nt/\cos\varphi)) / \mu nt (1/\cos\varphi - 1)$$

Bidraget I_2 fra de n substratlag kan opskrives som en n -leddet sum af bidragene fra de enkelte substratlag:

$$\begin{aligned} I_2 &= \sum_{i=1}^n \exp(-\mu(i-1)t) \cdot \frac{I_s}{n} \cdot \exp(-\mu(n+1-i)t/\cos\varphi) \\ &= \frac{I_s}{nt} \exp(-\mu nt/\cos\varphi) \sum_{i=1}^n \exp(-\mu(1-i/\cos\varphi) \cdot (i-1) \cdot t) \cdot t \end{aligned}$$

I_s er bidraget fra et sample bestående af n lag stegefilmssubstrat. Idet vi sætter $(i-1)t = x$ og $t = x$, ser man at ovenstående sum er en n -leddet undersum for et integral:

$$\sum_{i=1}^n \exp(-\mu(1-1/\cos\varphi)x) \cdot \Delta x \approx \int_0^{nt} \exp(-\mu(1-1/\cos\varphi)x) dx$$

Jo større n er, jo finere er inddelingen, og jo bedre en approximation er undersummen. For $n=26$ er summen en god approximation.

I_2 er nu udtrykt ved et integral, som er analogt til udtrykket for spredningsbidraget I_1 fra Ge-lagene to sider tilbage. Dette giver et udtr. ligeledes analogt med ovenstående udtr. for I_1 :

$$I_2 = I_s \cdot (\exp(-\mu nt) - \exp(-\mu nt/\cos\varphi)) / \mu nt (1/\cos\varphi - 1)$$

Det fysiske indhold i den approximation, vi har udført, kan dermed fortolkes som, at vi har "smurt" stegefilmen ud i Ge-filmen i en homogen blanding, hvor både stegefilm og Ge-film spreder, men kun Ge-film absorberer sandt. Den samlede eksperimentelt målte intensitet er dermed:

$$I_{\text{exp}} = I_1 + I_2 + I_b + I_{ka}$$

$$= (I + I_s) (\exp(-\mu nt) - \exp(-\mu nt / \cos \varphi)) / \mu nt (1 / \cos \varphi - 1) + I_b + I_{ka}$$

Vi løser nu m.h.t. den teoretiske Ge-intensitet I . Denne udgøres af den Rayleigh- og Compton-spredte intensitet. Vi vil nu fremover betegne denne som den korrigerede intensitet I_c :

$$I_c = \frac{(I_{\text{exp}} - I_b - I_{ka}) \mu nt (1 / \cos \varphi - 1)}{\exp(-\mu nt) - \exp(-\mu nt / \cos \varphi)} - I_s$$

Stegefilmens bidrag fremkommer ved at trække den eksperimentelt målte kantspredningsfordeling I_{kx} fra det eksperimentelt målte stegefilmsbidrag I_{sx} , og I_{ka} bestemmes ved at korrigere det målte kantspredningsbidrag I_{kx} for baggrundsstråling og absorption i Ge-lagene:

$$I_{ka} = (I_{kx} - I_b) \exp(-\mu nt / \cos \varphi)$$

$$I_s = I_{sx} - I_{kx}$$

Disse indsættes, og man får:

$$(2) \quad I_c =$$

$$\frac{(I_{\text{exp}} - (I_{kx} - I_b) \exp(-\mu nt / \cos \varphi) - I_b) \mu nt (1 / \cos \varphi - 1)}{\exp(-\mu nt) - \exp(-\mu nt / \cos \varphi)} - (I_{sx} - I_{kx})$$

Dette er den endelige korrektion for absorption, uønsket spredning og baggrundsstråling. Den totale lineære absorptionskoefficient for amorf germanium, sættes lig absorptionskoefficienten for krystallinsk Ge, nemlig $\mu = 3.47 \cdot 10^{-2} \text{ my}^{-1}$. I vores eksperimentelle situation haves 5 dobbeltlag af stegefilm og Ge-

film. D.v.s. $n=5$. Gennemsnitstykkelsen af disse anslås til $t = 5$ my (se også s.252). Denne samlede tykkelse $n_0 t = 25$ my er således meget tæt på den optimale, som vi har beregnet til 25.5 my (se s.243). Disse værdier indsættes i den endelige korrektion, som er indlagt i computer-programmet til fremstilling af radialdistributionsfunktionen ud fra Röntgendiffraktionsdata (se s.237).

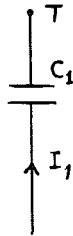
Litteratur til dette appendix:

- International Tables for X-Ray Crystallography, vol.III.
- N.S.Gingrich, Rev.Mod.Phys., vol.15, nr.1, 1943.
- Materials and Technology (ed.L.W.Codd et al), vol.IV&VI.

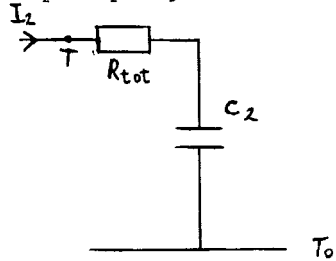
APPENDIX C

Estimering af Ge-lagets temperatur under pådampning.

Ækvivalentdiagram
for temperaturmåling:



Ækvivalentdiagram for
pådampningssituation.



Estimering af den varmeenergistrømtæthed, der modtages af germaniumlaget under pådampning:

Varmefylden af glas $c_g = 0.8 \text{ J/g K}$
Massefylden ---"--- $\rho_g = 3\text{g/cm}^3$

Som temperaturmåler i måleopstillingen bruges en platinmodstand, som stort set består af glas. Funktionen af denne platinmodstand kan således som i ækvivalentdiagrammet for temperaturmåling beskrives som en varmekapacitet C_1 . Temperaturføleren er cylinderformet med længde 3cm. og diameter 0.3 cm.

$$C_1 = V_1 \rho_g c_g = L \cdot r^2 \rho_g c_g = 3\pi (1.5 \cdot 10^{-1})^2 \cdot 3 \cdot 0.8 \text{ J/K}$$

$$= 0.51 \text{ J/K}$$

I opstillingen af ækvivalentdiagrammet for temperaturmåling bortses der 1) fra den thermiske udstråling som finder sted fra temperaturføleren p.g.a. den har større temperatur end sine omgivelser, og 2) fra den varmestrøm, der foregår væk fra platin-modstanden igennem dennes tilledninger. Det antages nemlig, at disse dræn ikke har nogen

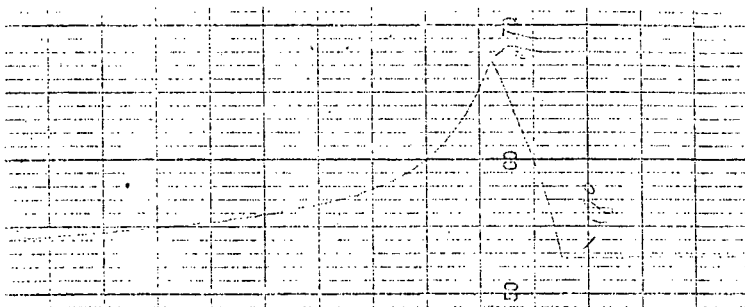
nævneværdig betydning, idet de er af lavere størrelsesorden end tilstrømningen fra varmekilden. Denne antagelse kontrolleres v.h.a. den følgende lignings overensstemmelse med måledata. Ækvivalentdiagrammet for temperaturmåling modsvares af ligningen:

$$I_1 = \frac{dQ}{dt} = C_f \frac{dT}{dt} = 0.51 \text{ J K}^{-1} \frac{dT}{dt}$$

$$\Delta T = \frac{I_1}{0.51 \text{ J K}^{-1}} \Delta t$$

Modellen foreskriver således en lineær vækst af T med tiden t. Dette er med god tilnærmelse i overensstemmelse med måledata:

Graf over T som fkt. af t (l.-aksens skala er 2.5 mm. per min.). Det retlinede forløb er under pådampningssituationen:



Hældningener givet ved

$$\frac{\Delta T}{\Delta t} = \frac{70 \text{ K}}{300 \text{ sek}}$$

$$I_1 = \frac{\Delta T}{\Delta t} 0.51 \text{ J/K} = \frac{70}{300} 0.51 \text{ J/sek} = 0.12 \text{ J/sek}$$

Da temperaturføleren sidder i stort set samme position som germaniumlaget i forhold til varmekilden, nemlig i afstanden $R=10.5\text{cm}$. lodret over denne, kan den i denne afstand under pådampningen af germaniumlaget modtagne varmeenergistrømtæthed beregnes:

$$i_1 = \frac{I_1}{L \cdot 2 \cdot r} = \frac{0.12}{3 \cdot 0.3} \text{ J/sek cm}^2 = 0.13 \text{ J/sek cm}^2$$

Dette resultat skal sammenlignes med den effekt, som sendes ind i varmekilden. Denne er en glødespole, som opvarmer diglen, hvor germanium smeltes i, og denne spole forsynes med spændingen 1 kV og strømmen 100mA.

$$P = U \cdot I = 1 \text{ kV} \cdot 100 \text{ mA} = 100 \text{ W}$$

Den gennemsnitlige varmeenergistrømtæthed bort fra kilden i afstanden $R=10.5\text{cm}$ er givet ved

$$i_2 = \frac{P}{A} = \frac{100}{4\pi (10.5)^2} \text{ W/cm}^2 = 0.07 \text{ W/cm}^2$$

Grunden til at den af temperaturføleren modtagne varmeenergistrømtæthed er en faktor 2 større end den gennemsnitlige i en radius af 10.5 cm fra kilden, er, at der sker en fokusering af varmeenergistrømmen. Ud over at der udstråles energi jævnt i alle retninger fra kilden, foregår der en fokusering af varmetransporten igennem keglen af fordampet germanium, der både afsætter sin smelte- og fordampningsvarme på substratet.

Estimering af germaniumlagets temperatur som funktion af tiden under pådampning:

$$\text{jerns varmekapacitet: } c_{\text{Fe}} = 0.107 \text{ cal/g K}$$

$$\text{--- massefylde: } \rho_{\text{Fe}} = 7.86 \text{ g/cm}^3$$

Som kuldereservoir under pådampningen bruges to kasseformede jernklodser begge med dimensionerne

1.5 cm·3 cm·6 cm. Dette kuldereservoirs varmekapacitet kan i overensstemmelse med ækvivalentdiagrammet for pådampningssituationen sættes til C_2 . Dette beregnes til:

$$C_2 = V_2 \cdot \rho_{\text{Fe}} \cdot c_{\text{Fe}} = 3 \cdot 3 \cdot 6 \cdot 7.86 \cdot 0.107 \cdot 4.12 \text{ J/K} = 187 \text{ J/K}$$

Den i ækvivalentdiagrammet anførte varmemodstand R_{tot} består af tre serieforbundne modstande R_x, R_y og R_z . Modstand x består af et germaniumlag med tykkelse $\leq 5 \mu\text{m}$ og specifik varmemodstand $R_{\text{Ge}} = 2 \text{ cm sek K/J}$, modstand y består af et lag stegefilm med tykkelse $10 \mu\text{m}$ og specifik varmemodstand $R_{\text{sf}} = 3.5 \cdot 10^2 \text{ cm sek K/J}$, endelig består modstand z af et lag vakuumfedt med tykkelse af samme størrelsesorden som stegefilmlaget og med en specifik varmemodstand, som allerhøjest adskiller sig en størrelsesorden fra stegefilms. Vi kan således se bort fra den seriemodstand R_x , som Ge-laget bidrager med overfor varmetransport. Pessimistisk anslås temperaturfaldet over R_{tot} , hvor A er det bestrålede areal, til:

$$\begin{aligned} \Delta_1 T &= 10 \cdot R_y \cdot i_1 \cdot A = 10 \frac{R_{\text{sf}} \cdot d}{A} i_1 \cdot A = 10 \cdot R_{\text{sf}} \cdot d \cdot i_1 \\ &= 10 \cdot 3.5 \cdot 10^2 \cdot 10^{-3} \cdot 0.13 \text{ K} = 0.455 \text{ K} \end{aligned}$$

Det samlede temperaturfald over varmemodstanden R_{tot} ligger således et eller andet sted i intervallet fra 0.0455 K til 0.455 K. Vi kan således sætte ubestemthedsintervallet til værende fra 0 til 0.5 K grundet manglende kendskab til de relevante parametre hos vakuumfedtet.

Vi opstiller nu i overensstemmelse med ækvivalentdiagrammet for pådampningssituationen ligningen for temperaturen af germaniumlaget som funktion af tiden. I lighed med beregningerne for temperaturføleren ses der bort fra eventuelle dræn i systemet som 1) den termiske udstråling, der fore-

går, og 2) den varmekapacitet som det til C_2 forbundne chassis udgør. Hvad angår 1) har denne ikke nogen nævneværdig betydning, og hvad 2) angår vil konsekvensen af at se bort fra denne blive behandlet senere i teksten.

$$I_2 = i_2 \cdot A = \frac{dQ}{dt} = C_2 \frac{dT}{dt} \Rightarrow$$

$$T = \frac{i_2 \cdot A}{C_2} \Delta t + T_0 \Rightarrow (T_0 \text{ er stuetemperatur})$$

$$T = \frac{0.13 \cdot 3 \cdot 6}{187} \text{ K sek}^{-1} \cdot \Delta t + T_0$$

$$= 0.0125 \text{ K sek}^{-1} \cdot \Delta t + T_0$$

Når vi iberegner den fundne usikkerhed fås:

$$T = 0.0125 \text{ K sek}^{-1} \cdot \Delta t + T_0 + 0.25 \text{ K} \pm 0.25 \text{ K}$$

Pådampningsstrategi for Röntgen-sample.

Hvis kravet til pådampningssituationen er, at den skal foregå under nogenlunde konstant temperatur, kan vi vælge at pådampe et lag med tykkelsen $1 \mu\text{m}$ i fire tempi á $2\frac{1}{2}$ minut. Imellem disse fire pådampninger afkøles til stuetemperatur T_0 . Dette betyder, at den maksimale temperatur bliver:

$$T_{\text{max}} = 0.0125 \text{ K} \cdot 150 + 0.25 \text{ K} + T_0 \pm 0.25 \text{ K}$$

$$= 2.1 \text{ K} + T_0 \pm 0.25 \text{ K}$$

Imidlertid er varmekapaciteten C_2 udstyret med et dræn i form af chassiset på pådampningsapparatet.

Dette dræn betyder, at T_{max} formentlig ligger lidt nærmere på stuetemperatur T_0 .

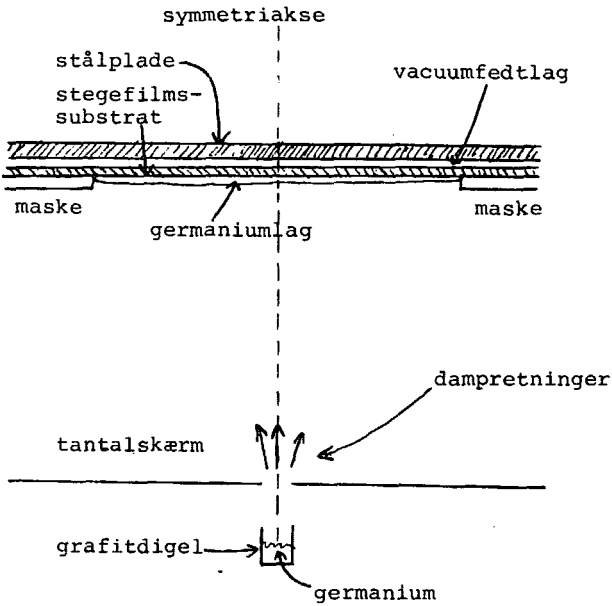
Ved fremstillingen af samplet m.h.p. Röntgen-analyse blev ovennævnte pådampningsprocedure fulgt 5 gange, således at en gennemsnitstykkelse på $5 \mu\text{m}$ opnåedes.

APPENDIX D

Fremstilling af Röntgensampler.

Modersamplet blev fremstillet ud fra den pådampningsstrategi, som er beskrevet i appendix C. I korthed går denne ud på at begrænsetemperaturstigningen i modersamplet under pådampningen til at være i samme størrelsesorden som døgnvariationerne i stuetemperatur. Temperaturstigningen begrænsedes ved at pådampe germanium i i alt 20 tempi a $2\frac{1}{2}$ minut. Under hvert tempi tilførtes varme til modersamplet hidrørende fra diglen. Mellem hvert tempi ventedes der en time for at sikre, at den tilførte varmeenergi ledtes bort igen (se appendix C). Dette medførte, at temperaturen kunne fastholdes på $22^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}$. Efter fjernelse af vacuumfedtet fra bagsiden af modersamplet bestemtes gennemsnitstykkelsen af det til $5\mu\text{m} \pm 2\%$. Denne usikkerhed er fastslået ud fra sammenligning af massen af 5 stegefilms-substrater før påføring af vacuumfedt med massen af de samme 5 efter aftagning af den påførte vacuumfedt med æther. Årsagerne til denne ubestemthed må være 1) at en lille del af substratet opløses under ætherbehandlingen, 2) at det ikke lykkes at opløse al vacuumfedtet.

Modersamplet som skitseret på næste side blev fremstillet ved pådampning i vacuum fra en cylinderformet grafitdigel, hvis vandrette snit var cirkulært med en diameter på 5mm. Mellem denne digel og samplet var der monteret en tantalskærm med et cirkulært hul på 5mm.



Figur: fortegnet skitse af pådampningssituationen under fremstilling af modersamplet.

Pga. diglens og tantalskærmens fokusering af Ge-dampen under pådampning på stegefilmssubstratet bliver overfladen ikke plan, men svagt bakkeformet med grafitdiglens lodrette akse som symmetriakse. Hvorfor germaniumlagets tykkelse varierer omkring sin gennemsnitstykkelse med toppen af "bakken" i den nævnte symmetriakse.

Modersamplet, som havde dimensionerne 30mm x 60mm, halveredes i to lige store dele på 15mm x 60mm. Hver af disse dele opdelttes igen i 5 stykker på 15mm x 12mm.

Ved stabling af hver sæt af fem stykker, stabledes disse på en måde, så den svagt bakkeformede tykkelsesvariation på den bedste måde midledes ud for at opnå en samlet tykkelse af Ge-lagene på fem gange gennemsnitstykkelsen på 5 μ m, dvs. i alt 25 μ m. Disse to stabler, som udgør samplerne 0 og 1, anbragtes i hver sin sampleholder med et centralhul på 6mm x 10mm.

APPENDIX E

Fejl grundet afslutning ved k_{\max} :

Ifølge udtryk kræver sinustransformationen af den reducerede interferensfunktion, F , data fra $k=0$ til $k=\infty$. Imidlertid kan dette ikke opnås, da k er bestemt af spredningsvinkelen $\varphi=2\theta$, ved at $k = \frac{4\pi}{\lambda}\sin\theta$, hvorved den maksimalt opnåelige k -værdi er $\frac{4\pi}{\lambda}$ for $\varphi=\pi$. For $\lambda=0.7107\text{\AA}$ fås da $4\pi/0.7107\text{\AA} = 17.68\text{\AA}^{-1}$. Imidlertid kan denne maksimalt opnåelige k -værdi ikke opnås i vores eksperimentelle situation p.g.a. apparaturets opbygning og samplets geometri (se side 198). Istedet opnås en $\varphi_{\max} = 71.71^\circ$, hvilket betyder en $k_{\max} = k_m = 10.4\text{\AA}^{-1}$. Som omtalt andetsteds (s.220) betyder en mangel på k -værdier større end k_m , at de mest kortbølgede Fourier-komponenter med bølgelængder $\Delta r < 2\pi/k_m$ mangler i den sinustransformerede af $F(k)$, som er den reducerede RDF betegnet $g(r)$. Hvorfor opløsningen bliver af størrelsen $2\pi/k_m$. I vores eksperimentelle situation bliver opløsningen således af størrelsen $2\pi/10.4\text{\AA}^{-1} \approx 0.6\text{\AA}$. Hvorfor man ikke kan tillægge svingninger i $g(r)$ af denne størrelsesorden eller mindre nogen fysisk betydning.

Det skal nu vises, at afslutning af Fourier-integrationen ved k_m betyder, at den herved opnåede resulterende $g_r(r)$ kan forstås som en foldning af den sande reducerede RDF, $g(r)$, med en opløsningsfunktion $P(r')$. Denne er kendetegnet ved en halvværdibredde af den centrale top, som angiver opløsningen af $g_r(r)$, samt af en række svingninger med aftagende amplitude på hver side af denne centrale top. En sådan opløsningsfunktion er også afbildet længere fremme i teksten.

Virksomheden af afslutningen ved k_m kan udtrykkes ved at indføre en faktor $U(k)$, som er defineret ved:

$$U(k) = \begin{cases} 0 & \text{for } k > k_m \\ 1 & \text{for } 0 \leq k \leq k_m \end{cases}$$

Den med afslutningsfejl befængte resulterende $g_r(r)$ kan da udfra udtr. 74 s. 463 skrives:

$$g_r(r) = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} F(k) U(k) \sin(kr) dk$$

Dette integral kan omskrives ifølge et specialtilfælde af en regneregul for Fourier-transformation. Denne regel er, at den Fouriertransformerede af et produkt er foldningen af de Fouriertransformerede af faktorerne. Vi sætter dermed hjælpefunktionerne f og u til:

$$f(R) = \sqrt{2/\pi} \int_0^{\infty} F(k) \sin(kr) dk = g(r) / \sqrt{2/\pi}$$

$$u(r') = \sqrt{2/\pi} \int_0^{\infty} U(k) \cos(kr') dk = \sqrt{2/\pi} \sin(k_m r') / r'$$

Specialtilfældet af regnereglen giver da:

$$\begin{aligned} g_r(r) &= \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} f(R) (u(|r-R|) - u(r+R)) dR \\ &= \int_0^{\infty} g(r) \frac{k_m}{\pi} \left(\frac{\sin(k_m(r-R))}{k_m(r-R)} - \frac{\sin(k_m(r+R))}{k_m(r+R)} \right) dR \end{aligned}$$

Vi sætter desuden:

$$\tilde{p}(r') = \frac{k_m}{\pi} \frac{\sin(k_m r')}{k_m r'}$$

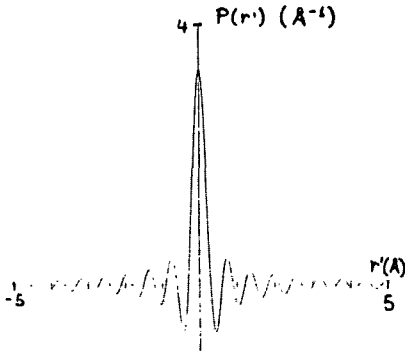
, og får følgende forenklede udtryk:

$$g_r(r) = \int_0^{\infty} g(R) (P(r-R) - P(r+R)) dR$$

Vi har nu udtrykt den resulterende $g_r(r)$ som fremkommet ved foldning af den sande $g(r)$ med en opløsningsfunktion $P(r-R) - P(r+R)$. Det er imidlertid muligt at forenkle udtrykket for $g_r(r)$ yderligere ved at lave en approximation: Som det ses er de to led $P(r-R)$ og $P(r+R)$ i opløsningsfunktionen hinandens spejlinger i 2.-aksen i et koordinatsystem med r -aksen som 1.-akse. Disse har maksimum i h.h.v. R og $-R$. På hver side af disse maksimumspunkter aftager funktionerne, der begge er af typen $\sin x/x$, hurtigt. Man kan således for R -værdier større end en given minimal R -værdi, se bort fra leddet $P(r+R)$. Det gælder da med god tilnærmelse, at det at afslutte sin integration ved k_m er ensbetydende med at folde den sande reducerede radialdistributionsfunktion $g(r)$ med en opløsningsfunktion P :

$$g_r(r) \approx \int_0^{\infty} g(R) P(r-R) dR$$

Opløsningsfunktionen $P(r')$ er afbildet for $k_m = 10.4 \text{ \AA}^{-1}$ herunder:



Det er denne opløsningsfunktion, der med sin karakteristiske form er ansvarlig for de falske detaljer i $g_r(r)$. Disse har form af udbredning af toppe og bunde i den sande $g(r)$, samt introduktion af overlejlrede svingninger (ripple). Halvårsbredden af den centrale top i opløsningsfunktionen angiver opløsningen i r -rummet.

APPENDIX F

DIMENSIONERING AF SPALTER OG KOLLIMATORAFSTAND.

Som tidligere nævnt (se side 198) er Röntgenstruktur-analyserne i dette arbejde foretaget vha. et ombygget Leybold-Röntgendiffraktionsapparat oprindeligt designet til gymnasiedemonstrationsforsøg. Som afbildet i skitsen på side 198 dannes Röntgenstrålingen på anoden i Röntgenrøret. Anoden er derfor strålingskilden. I den beskrevne dimensioneringsprocedure i denne tekst er det en bagved liggende antagelse, at Röntgenkilden har væsentlig større udstrækning end end kollimatorspalternes arealer. Det skal bemærkes, at denne antagelse er et problem, da vi ikke kender den præcise størrelse af den Röntgenudsendende flade på anoden. På grund af den mekaniske konstruktion af dette apparat var følgende dimensioner på forhånd givet: 1) Afstanden d mellem Röntgenkilden og 2. kollimator på $r=160$ mm. 2) Afstanden a_0 mellem 1. og 2. kollimator kunne ikke overstige 80 mm. 3) Afstanden mellem samlet, som er anbragt ved 2. kollimatorspalte, og tællerspaltens som er anbragt ved tællerrøret, er 160mm. De tre spalter valgtes alle rektangulære med dimensionerne $h_1 \times L_1$, $h_2 \times L_2$ og $h_3 \times L_3$. Størrelserne h er højderne af spalterne og størrelserne L er bredderne. Index 1 og 2 svarer til hhv. 1. og 2. kollimatorspalte. Index 3 svarer til tællerspaltens. De størrelser, der kunne varieres under dimensioneringen af Röntgenapparatet, var således kollimatorafstanden a_0 og spaltedimensionerne. Ydermere er det muligt at justere kollimatorspalternes position i lodret retning i forhold til

den vandrette akse gennem Röntgenkildens og sam-
plets centre (se skitsen sidel98). Formålet med
en sådan justering er uplining af kollimator-
spalterne efter den nævnte akse, sådan at den
strålingséffekt, der passerer direkte gennem de
to kollimatorsalter, maksimeres. Endeligt skal
det nævnes at de to kollimatorsalter efter
ombygning af kollimatorsystemet i Röntgenappa-
ratet havde en dybde på 3 mm. For at forhindre
kantspredning ved 2. kollimatorsalte påmonté-
redes en antikantspredningsblænde 5mm efter 2.
kollimatorsalte. På denne blænde monteres sam-
plet. Som en forenkende antagelse i de følgende
udregninger ses der bort fra denne antikant-
spredningsblænde, og samplet antages anbragt di-
rekte på 2. kollimator. Baggrunden for dette er
at $a_0 \gg 5\text{mm}$.

Kravene til dimensioneringen var

- 1) at vinkelopløsningen $\Delta\varphi$ i spredningsvinkel-
bestemmelsen havde et konstant niveau for
alle scånevinkler θ_0 .
- 2) at vinkelopløsningen $\Delta\varphi$ havde en tilstræk-
keligt lille værdi i forhold til de karakte-
ristiske bredder af toppene i Rayleighspred-
ningsspekteret for amorf germanium. Den
karakteristiske halvvardibredde af sådanne
toppe er 4° . En opløsning på $1/5$ af dette
eller derunder er tilfredsstillende.
- 3) at den af tælleren målte strålingseffekt
skulle maksimeres.

- 4) at kantspredningsfænomener så vidt muligt skulle undgås ikke bare i 2. kollimatorspalte, men også i 1., således at den af tælleren målte strålingseffekt og opløsningen på spredningsvinkelbestemmelsen defineres af den direkte stråling gennem spalterne.
- 5) at uplining af kollimatorspalterne i forhold til den vandrette akse gennem Röntgenkildens og samplets centre skulle være så præcis som muligt.

Med udgangspunkt i opstillede begrænsninger og krav er det muligt at opdele dimensioneringsproceduren for spalter og kollimatorafstand i to dele svarende til, at a_0 henholdsvis fastholdes og varieres. Dette giver de to følgende optimeringsproblemer, som skal løses i resten af dette afsnit.

- 1) Givet opløsningen af spredningsvinkelbestemmelsen og givet kollimatorafstanden a_0 . Hvorledes dimensionerer vi de tre rektangulære spalter, sådan at vinkelbestemmelsen får denne ønskede opløsning for alle scannevinkler θ_0 fra $\theta_{\text{omin}} = 4.36^\circ$ til $\theta_{\text{omax}} = 71.71^\circ$, samtidig med at den af tælleren målte strålingseffekt maksimeres?
- 2) Givet opløsningen af vinkelbestemmelsen. Hvilken værdi skal kollimatorafstanden a_0 have for at det relative bidrag til den af tælleren målte strålingseffekt er mindst mulig, samtidig med at justeringen af spalternes lodrette position skal være så præcis som mulig?

I de næste fem delafsnit vil der blive udledt og opstillet en optimeringsprocedure, som sætter os i stand til at løse problem nr. 1. I det sjette delafsnit vil optimeringsproblemet nr. 2 blive løst. I det syvende efterfølgende delafsnit vil det endelige resultat af optimeringen blive behandlet.

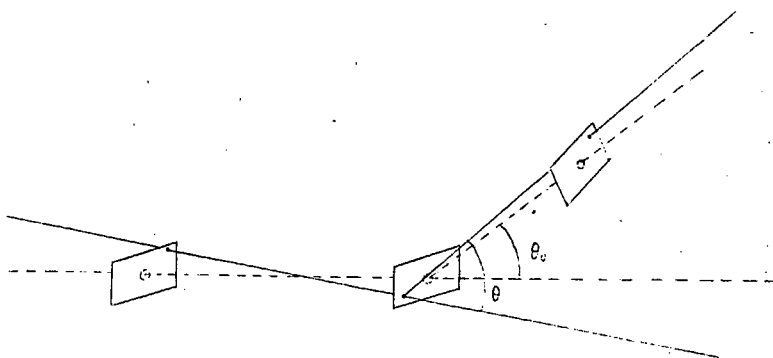


Fig.1. Skitse af de tre spalter i en given position. Den punkterede linie går gennem spalternes centre, og θ_0 er en scannevinkel. Den ubrudte linie angiver spredningsretningen for en foton ifht. retningen af den indkomne foton. Vinklen θ bliver så den virkelige spredningsvinkel.

Løsning af optimeringsproblem 1.

Det opstillede optimeringsproblem viser sig at være meget kompliceret at løse matematisk eksakt. For

det første involverer løsningen af problemet analysen af en geometri, som er mere kompleks end den umiddelbart ser ud til. For det andet er retnings- og intensitetsfordelingen af de fra Röntgenkilden udsendte stråler ukendt. I stedet vil vi benytte en tilnærmelse, hvor spalternes geometri forenkles til at være formet som kryds (se figuren nedenfor). Vi vil da opløse problemet i en lodret og i en vandret variant. I den lodrette foretages et lodret snit sammenfaldende med spalternes lodrette symmetriplan. I den vandrette foretages snit gennem spalternes symmetriakser vinkelret på det foregående snit. Som yderligere beskrivelse er de to typer snit illustreret herunder. Spalterne betragtes således som retlinede i de to varianter.

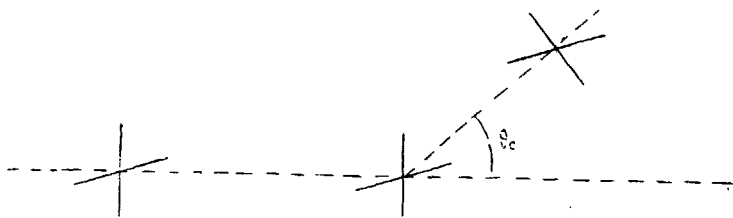


Fig.2. Illustration af "kryds"-approximationen.

En følge af at vælge denne approximation er, at vi kommer til at undervurdere ekstremalusikkerheden, idet vi bortser fra den maksimale afvigelse af strålens retning fra vandret, som kan optræde ved passage gennem spalternes hjørner. Imidlertid kommer vi også til at overvurdere usikkerheden ved at se bort fra, at strålebundet ud over at være fordelt i retning også er fordelt i intensitet. Hvis vi betragter intensitetsfordelingen som funktion af en spaltes to dimensioner, gælder det, at strålebundets intensitet vokser ind imod spalternes centre (se fig.3). Et mere rimeligt udtryk for usikkerheden på strålens retning vil således være forbundet med den nævnte intensitetsfordelings halvværdibredde. En undervurderet ekstremalusikkerhed ligger således nærmere den effektive usikkerhed angivet ved halvværdibredden af fordelingen af intensitet som funktion af en spaltes to dimensioner end selve ekstremalusikkerheden. Dette er således også begrundelsen for valget af den nævnte model, samt fravalget af en model, der reducerer de tre spalter til f.eks. diagonal kryds.

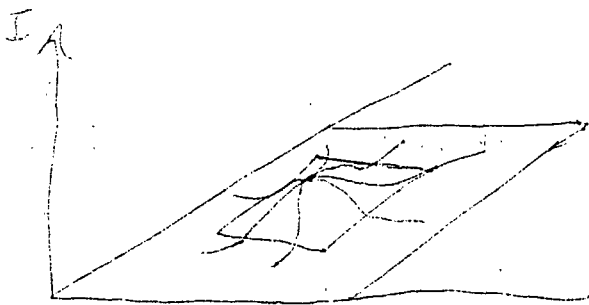


Fig.3. Eksempel på fordelingen af intensitet som funktion af en spaltes to dimensioner.

Vi vil i det næste bestemme ekstremalusikkerheden h.h.v. i det lodrette snit og i det vandrette snit. Det viser sig, at både i det lodrette snit og i det vandrette snit kan vi fremstille ekstremalusikkerheden som en funktion af bl.a. spalternes dimensioner. Nærmere bestemt bliver der tale om to uafhængige ligninger, hvor den lodrette ekstremalusikkerhed bliver afhængig af bl.a. spalternes højder, og den vandrette bliver afhængig af bl.a. spalternes bredder. Disse ligninger, som udtrykker sammenhængen mellem ekstremalusikkerhed, scannevinkel og spaltdimensioner bliver dernæst anvendt som betingelser i optimeringen af den funktion, som udtrykker størrelsen af den af tælleren målbare strålingseffekt.

Ekstremalusikkerheden i det lodrette snit.

Lodret snit.

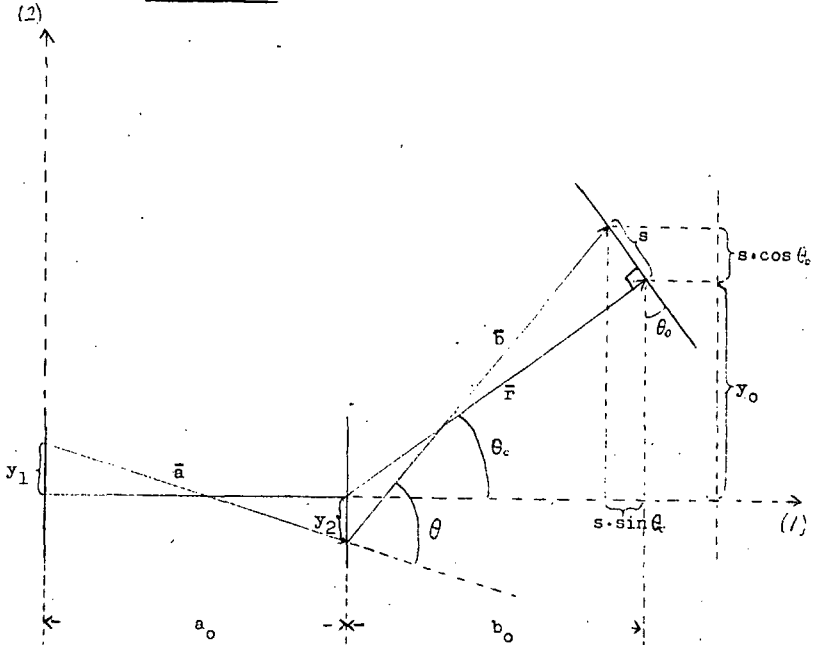


Fig.4.

Der gælder flg. sammenhænge:

$$\operatorname{tg} \theta_0 = y_0 / b_0$$

$$\vec{a} = (a_0, y_2 - y_1)$$

$$\vec{b} = (b_0 - s \sin \theta_0, y_0 + s \cos \theta_0 - y_2)$$

Vi kan skrive, at:

$$\cos \theta_0 (1 + \xi) = \cos \theta$$

For $\Delta \theta = \theta - \theta_0$ lille fås ved rækkeudvikling og bortkastning af led, at:

$$\cos \theta \approx \cos \theta_0 - \sin \theta_0 \Delta \theta - \frac{1}{2} \cos \theta_0 \Delta \theta^2$$

$$\approx \cos \theta_0 - \sin \theta_0 \Delta \theta$$

Denne approximation er god, når:

$$|\sin\theta_0 \cdot \Delta\theta| \gg |\cos\theta_0 \cdot \frac{1}{2} \Delta\theta^2| \Rightarrow$$

$$2 \cdot \text{tg}\theta_0 \gg |\Delta\theta|$$

I den eksperimentelle situation er denne relation altid opfyldt for store θ_0 , hvorimod for små θ_0 gælder der:

$$2\theta_0 \approx 2 \cdot \text{tg}\theta_0 \gg |\Delta\theta|$$

Betingelsen for at ovennævnte approximation er god, er derfor, at $2\theta_0 \gg |\Delta\theta|$. Videre fås, at:

$$\Delta\theta \approx -\epsilon \cdot \cot\theta_0$$

Vi vil nu søge at få $\cos\theta$ bragt på formen $\cos\theta_0 (1+\epsilon)$ for at bestemme ϵ og dermed afvigelsen på θ : $\Delta\theta$,

$$\cos\theta = \frac{\bar{a} \bar{b}}{|\bar{a}| |\bar{b}|} = \frac{a_0 (b_0 - s \sin\theta_0) + (y_2 - y_1) (y_0 + s \cos\theta_0 - y_2)}{\sqrt{(a_0^2 + (y_2 - y_1)^2) ((b_0 - s \sin\theta_0)^2 + (y_0 + s \cos\theta_0 - y_2)^2)}}$$

og idet

$$\cos\theta_0 = \frac{a_0 b_0}{\sqrt{a_0^2 (b_0^2 + y_0^2)}} = \frac{a_0 b_0}{\sqrt{a_0^2 r^2}} = \frac{b_0}{r}$$

Så fås

$$\cos\theta = \cos\theta_0 \frac{1 - \frac{s}{b_0} \sin\theta_0 + \frac{y_2 - y_1}{a_0} \cdot \frac{y_0 + s \cos\theta_0 - y_2}{b_0}}{\sqrt{\left(1 + \left(\frac{y_2 - y_1}{a_0}\right)^2\right) \left(1 + \frac{(s \sin\theta_0)^2 - 2b_0 s \sin\theta_0 + (s \cos\theta_0 - y_2)^2 + 2y_0 (s \cos\theta_0 - y_2)}{r^2}\right)}}$$

For at få et mere simpelt udtr. approximeres nævneren v.h.a. flg. rækkeudvikling:

$$\frac{1}{\sqrt{1+x}} = 1 - \frac{1}{2}x + \frac{1 \cdot 3}{2 \cdot 4} x^2 - \frac{1 \cdot 3 \cdot 5}{2 \cdot 4 \cdot 6} x^3 + \dots - \dots$$

$$\text{Approximationen } \frac{1}{\sqrt{1+x}} \approx 1 - \frac{1}{2}x$$

er god når $x \ll 1$, og dette er tilfældet, idet at x kommer til at bestå af en sum af produkter af relative længder, der alle er $\ll 1$. Derudover medtages led i denne sum kun til første orden:

$$\begin{aligned} \cos\theta &\approx \cos\theta_0 \left(1 - \frac{s}{b_0} \sin\theta_0 + \frac{y_2 - y_1}{a_0} \frac{y_0 + s \cos\theta_0 - y_2}{b_0} \right) \\ &\quad \left(1 - \frac{1}{2r^2} (2y_0 (s \cos\theta_0 - y_2) - 2b_0 s \sin\theta_0) \right) \\ &\approx \cos\theta_0 \left(1 - \frac{s}{b_0} \sin\theta_0 + \frac{y_2 - y_1}{a_0} \left(\frac{s \cdot \cos\theta_0 - y_2}{b_0} + \frac{y_0}{b_0} \right) \right) \\ &\quad \left(1 - \frac{1}{2} (y_0 (s \cdot \cos\theta_0 - y_2) - b_0 s \cdot \sin\theta_0) \right) \\ &\approx \cos\theta_0 \left(1 - \frac{s}{b_0} \sin\theta_0 + \frac{y_0 (y_2 - y_1)}{a_0 \cdot b_0} - \frac{1}{2} (y_0 (s \cos\theta_0 - y_2) - b_0 s \sin\theta_0) \right) \end{aligned}$$

Vi har nu opnået et udtryk analogt til det ønskede

$\cos\theta = \cos\theta_0 (1 + \epsilon)$ hvorfor

$$\begin{aligned} \Delta\theta &\approx -\cot\theta_0 \left(-\frac{s}{b_0} \sin\theta_0 + \frac{y_2 - y_1}{a_0} \operatorname{tg}\theta_0 - \frac{1}{r} \sin\theta_0 (s \cdot \cos\theta_0 - y_2) + \frac{s}{r} \cos\theta_0 \sin\theta_0 \right) \\ &\approx \frac{s}{b_0} \cos\theta_0 + \frac{y_1 - y_2}{a_0} + \frac{1}{r} \cos\theta_0 (s \cos\theta_0 - y_2) - \cos^2\theta_0 \cdot \frac{s}{r} \\ &\approx \frac{y_1 - y_2}{a_0} + \left(\frac{s}{b_0} - \frac{y_2}{r} \right) \cos\theta_0 \\ &\approx \frac{y_1 - y_2}{a_0} + (s - y_2 \cos\theta_0) / r \end{aligned}$$

Det viser sig at vinkelusikkerheden ved en scannevinkel på θ i det lodrette snit ligger symmetrisk omkring θ_0 . Vi vil nu bestemme $\max(\Delta\theta)$ samt $\min(\Delta\theta)$ for givne værdier af θ_0 og spaltehøjderne h_1 , h_2 og h_3 . Grænsebetingelserne er givet ved:

$$h_1/2 \geq y_1 \geq -h_1/2 \wedge h_2/2 \geq y_2 \geq -h_2/2 \wedge h_3/2 \geq s \geq -h_3/2$$

Det gælder dermed, at ekstremalusikkerhederne er:

$$\max(\Delta\theta) = (h_1+h_2)/2a_0 + (h_2\cos\theta_0+h_3)/2r$$

$$\min(\Delta\theta) = -(h_1+h_2)/2a_0 - (h_2\cos\theta_0 + h_3)/2r = -\max(\Delta\theta)$$

Det ses, at $|\max(\Delta\theta)| = |\min(\Delta\theta)|$ falder, når θ_0 vokser.

Bidraget fra lodret til opløsningsevnen er givet ved:

$$\begin{aligned} \text{I: } \Delta\varphi_1 &= \max(\Delta\theta) - \min(\Delta\theta) = 2 \max(\Delta\theta) \\ &= \underline{(h_1+h_2)/a_0 + (h_2\cos\theta_0 + h_3)/r} \end{aligned}$$

Hvorfor det lodrette opløsningsbidrag er den dobbelte ekstremalusikkerhed. Denne approximations gyldighedsområde er som allerede nævnt bestemt af betingelsen:

$$2\theta_0 \gg |\theta| \Rightarrow \left. \begin{array}{l} 2\theta_0 \gg |\max(\Delta\theta)| \\ 2\theta_0 \gg |\min(\theta)| \end{array} \right\} \Rightarrow 4\theta_0 \gg |\max(\Delta\theta)| + |\min(\Delta\theta)|$$

$$\Rightarrow \underline{\Delta\varphi_1 \ll 4\theta_0}$$

Ekstremalusikkerheden i det vandrette snit.

Vandret snit.

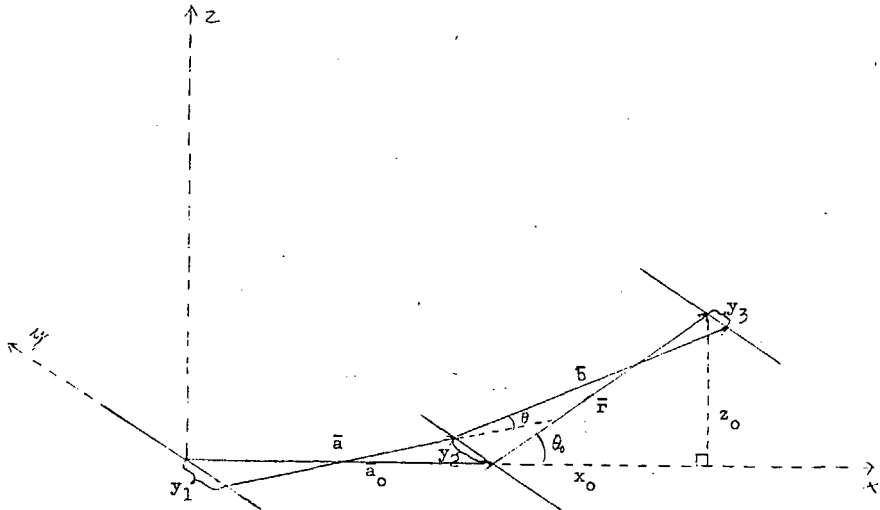


Fig.5.

$$\vec{a} = (a_0, y_2 - y_1, 0)$$

$$\vec{b} = (x_0, y_3 - y_2, z_0)$$

$$\cos \theta = \frac{\vec{a} \cdot \vec{b}}{|\vec{a}| \cdot |\vec{b}|}$$

$$= \frac{a_0 x_0 + (y_2 - y_1)(y_3 - y_2)}{\sqrt{(a_0^2 + (y_2 - y_1)^2)(x_0^2 + (y_3 - y_2)^2 + z_0^2)}}$$

$$\cos \theta_0 = \frac{x_0^2}{\sqrt{x_0^2 + z_0^2}} = \frac{x_0}{r}$$

Herved er

$$\cos \theta = \cos \theta_0 \frac{1 + \frac{y_2 - y_1}{a_0} \frac{y_3 - y_2}{x_0}}{\sqrt{\left(1 + \left(\frac{y_2 - y_1}{a_0}\right)^2\right) \left(1 + \left(\frac{y_3 - y_2}{r}\right)^2\right)}}$$

Vi sætter

$$\Delta a = \frac{y_2 - y_1}{a_0} \quad ; \quad \Delta b = \frac{y_3 - y_2}{r_0}$$

Da nævneren i udtrykket for $\cos\theta$ kan skrives som kvadratroden af 1 plus summen af produkter af relative længder, som alle er $\ll 1$, kan vi igen benytte:

$$\frac{1}{\sqrt{1+x}} = 1 - \frac{1}{2}x + \frac{3}{8}x^2 \dots$$

Og vi approximerer til og med anden-ordens-leddene:

$$\begin{aligned} \cos\theta &\approx \cos\theta_0 (1 + \Delta a \Delta b / \cos\theta_0) \cdot (1 - \frac{1}{2}(\Delta a^2 + \Delta b^2)) \\ &\approx \cos\theta_0 (1 + \Delta a \Delta b / \cos\theta_0 - \frac{1}{2}(\Delta a^2 + \Delta b^2)) \end{aligned}$$

Vi rækkeudvikler ligeledes $\cos\theta$ til og med 2.orden:

$$\cos\theta \approx \cos\theta_0 - \sin\theta_0 \Delta\theta - \frac{1}{2} \cos\theta_0 \Delta\theta^2$$

og ved substitution fås:

$$-\sin\theta_0 \Delta\theta - \frac{1}{2} \cos\theta_0 \Delta\theta^2 \approx \Delta a \Delta b - \frac{1}{2} (\Delta a^2 + \Delta b^2) \cos\theta_0 \Rightarrow$$

$$\text{tg}\theta_0 \Delta\theta + \frac{1}{2} \Delta\theta^2 \approx -\frac{\Delta a \cdot \Delta b}{\cos\theta_0} + \frac{1}{2} (\Delta a^2 + \Delta b^2)$$

For $2\text{tg}\theta_0 \gg |\Delta\theta|$, hvilket allerede er forudsat i beregningerne for det lodrette snit, kan vi bortkaste $\frac{1}{2} \Delta\theta^2$:

$$\underline{\Delta\theta \approx \frac{1}{2} \cot\theta_0 (\Delta a^2 + \Delta b^2) - \Delta a \Delta b / \sin\theta_0}$$

Det viser sig, at vinkelusikkerheden ved en scannevinkel på θ_0 i det vandrette snit ligger asymmetrisk omkring θ_0 . Vi vil nu bestemme ekstremalusikkerhederne $\text{MAX}(\Delta\theta)$ samt $\text{MIN}(\Delta\theta)$ for givne værdier af L_1 , L_2 , L_3 og θ_0 . Randbetingelserne er da givet ved

$$L_1/2 \geq |y_1| \wedge L_2/2 \geq |y_2| \wedge L_3/2 \geq |y_3| \Rightarrow$$

$$\frac{L_1+L_2}{2a_0} \geq |\Delta a| \wedge \frac{L_2+L_3}{2r} \geq |\Delta b|$$

Vi skal da bestemme ekstrema for

$$\Delta\theta(\Delta a, \Delta b) = \frac{1}{2} \cot\theta_0 (\Delta a^2 + \Delta b^2) - \Delta a \Delta b / \sin\theta_0$$

Denne funktion har ekstremalpunkter, hvor gradienten er $\vec{0}$:

$$\text{grad}(\Delta\theta(\Delta a, \Delta b)) = \vec{0} \Leftrightarrow$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \Delta\theta}{\partial \Delta a} = \cot\theta_0 \Delta a - \Delta b / \sin\theta_0 = 0 \\ \frac{\partial \Delta\theta}{\partial \Delta b} = \cot\theta_0 \Delta b - \Delta a / \sin\theta_0 = 0 \end{array} \right\} \Leftrightarrow$$

$$\cos\theta_0 \Delta a = \Delta b \wedge \cos\theta_0 \Delta b = \Delta a \wedge \sin\theta_0 \neq 0 \Rightarrow$$

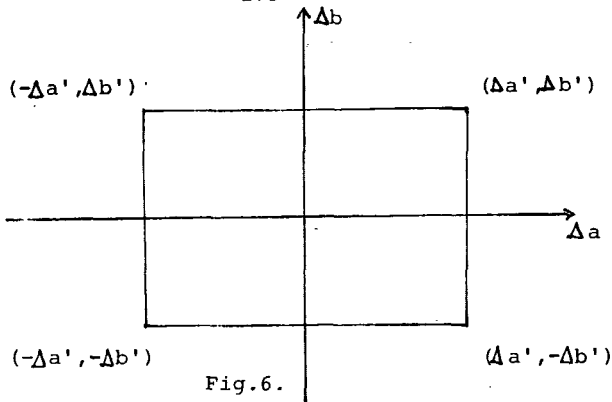
$$\cos^2\theta_0 \Delta a = \Delta a \wedge \cos^2\theta_0 \Delta b = \Delta b \wedge \sin\theta_0 \neq 0 \Rightarrow$$

$$(\Delta a, \Delta b) = (0, 0)$$

Ved omskrivning ses at:

$$\Delta\theta(\Delta a, \Delta b) = \frac{1}{\sin\theta_0} \left(\frac{1}{2} \cos\theta_0 (\Delta a^2 + \Delta b^2) - \Delta a \Delta b \right)$$

Ved indsættelse ses både, at $\Delta\theta(0,0) = 0$, og at $\Delta\theta$ kan have negative og positive funktionsværdier for fastholdt θ_0 . Derfor er ekstremalpunktet $(0,0)$ hverken et maksimal-eller minimalpunkt. $\Delta\theta$ må da have maksima og minima på randkurven af sin definitionsmængde, der er et rektangel:



$$\Delta a' = \frac{L_1 + L_2}{2a_0}$$

og

$$\Delta b' = \frac{L_2 + L_3}{2r}$$

Først ønsker vi at finde ekstremalpunkter for $\Delta\theta$ på de vandrette sider i rektanglet, og sætter $\Delta b'' = \pm \Delta b'$:

$$\frac{d\Delta\theta}{d\Delta a} = \cot\theta_0 \cdot \Delta a - \frac{\Delta b''}{\sin\theta_0} = 0 \quad \Delta a = \Delta b'' / \cos\theta_0$$

Hvorfor $\Delta\theta$ har ekstremalpunktet $(\Delta b'' / \cos\theta_0, \Delta b'')$ på disse liniestykker. Ekstremum er da

$$\begin{aligned} \text{EXT}_1(\Delta\theta) &= \frac{1}{2} \cot\theta_0 \left(\frac{\Delta b''}{\cos\theta_0} \right)^2 + (\Delta b'')^2 - \frac{(\Delta b'')^2}{\sin\theta_0 \cdot \cos\theta_0} \\ &= \frac{1}{2} \cot\theta_0 \left(\frac{\Delta b''}{\cos\theta_0} \right)^2 + (\Delta b'')^2 - \frac{(\Delta b'')^2}{\sin\theta_0 \cdot \cos\theta_0} \\ &= \frac{1}{2} (\Delta b'')^2 \left(\cot\theta_0 - \frac{1}{\sin\theta_0 \cdot \cos\theta_0} \right) \\ &= \frac{1}{2} (\Delta b'')^2 \left(\cot\theta_0 - \frac{\sin^2\theta_0 + \cos^2\theta_0}{\sin\theta_0 \cdot \cos\theta_0} \right) \\ &= \frac{1}{2} (\Delta b'')^2 (\cot\theta_0 - (\text{tg}\theta_0 + \cot\theta_0)) \\ &= -\frac{1}{2} (\Delta b'')^2 \text{tg}\theta_0 \end{aligned}$$

Dernæst får vi at ekstremalpunkterne for de lodrette sider i rektanglet af symmetri Grunde er:

$$(\Delta a'', \Delta a'' / \cos\theta_0) \quad \text{for } \Delta a'' = \pm \Delta a'$$

Samt at:

$$\begin{aligned} \text{EXT}_2(\Delta\theta) &= \frac{1}{2} \cot\theta_0 ((\Delta a')^2 + (\Delta a'/\cos\theta_0)^2) - \frac{(\Delta a')^2}{\sin\theta_0 \cos\theta_0} \\ &= -\frac{1}{2} (\Delta a')^2 \operatorname{tg}\theta_0 \end{aligned}$$

Vi sammenligner nu $\text{EXT}_1(\Delta\theta)$ og $\text{EXT}_2(\Delta\theta)$ med hjørneværdierne af $\Delta\theta$ for at bestemme om $\Delta\theta(\Delta a)$ h.h.v. $\Delta\theta(\Delta b)$ har optima eller vendetangenter i $\Delta b'/\cos\theta_0$ og $\Delta a'/\cos\theta_0$.

Hjørneværdier for $(\Delta a', -\Delta b')$ og $(-\Delta a', \Delta b')$:

$$H_1(\Delta\theta) = \frac{1}{2} \cot\theta_0 ((\Delta a')^2 + (\Delta b')^2) + \Delta a' \Delta b' / \sin\theta_0$$

I det betragtede vinkelinterval $]0; \pi/2[$ er $H_1(\Delta\theta) > 0 > \text{EXT}_1(\Delta\theta) \wedge H_1(\Delta\theta) > 0 > \text{EXT}_2(\Delta\theta)$. Det gælder derfor, at maksimalusikkerheden er:

$$\text{MAX}(\Delta\theta) = \frac{1}{2} \cot\theta_0 \left(\left(\frac{L_1+L_2}{2a_0} \right)^2 + \left(\frac{L_2+L_3}{2r} \right)^2 \right) + \frac{(L_1+L_2)(L_2+L_3)}{4 a_0 r \sin\theta_0}$$

Hjørneværdier for $(\Delta a', \Delta b')$ og $(-\Delta a', -\Delta b')$

$$H_2(\Delta\theta) = \frac{1}{2} \cot\theta_0 ((\Delta a')^2 + (\Delta b')^2) - \Delta a' \Delta b' / \sin\theta_0$$

Vi sammenligner nu $\text{EXT}_1(\Delta\theta)$ med $H_2(\Delta\theta)$ og antager, at $\text{EXT}_1(\Delta\theta)$ er minimum:

$$H_2(\Delta\theta) \geq \text{EXT}_1(\Delta\theta) \Rightarrow$$

$$\frac{1}{2} \cot\theta_0 ((\Delta a')^2 + (\Delta b')^2) - \Delta a' \Delta b' / \sin\theta_0 \geq$$

$$\frac{1}{2} \cot\theta_0 ((\Delta b'/\cos\theta_0)^2 + (\Delta b')^2) - \frac{(\Delta b')^2}{\sin\theta_0 \cos\theta_0} \Rightarrow$$

$$\frac{1}{2} \cot\theta_0 (\Delta a')^2 - \frac{\Delta a' \Delta b'}{\sin\theta_0} \geq \frac{1}{2} \cot\theta_0 (\Delta b'/\cos\theta_0)^2 - (\Delta b')^2 / \sin\theta_0 \cos\theta_0$$

\Rightarrow

$$\frac{1}{2} \cdot (\Delta a')^2 - \Delta a' \cdot \Delta b' / \cos \theta_0 \geq -\frac{1}{2} \cdot (\Delta b' / \cos \theta_0)^2 \Rightarrow$$

$$(\Delta a')^2 + (\Delta b' / \cos \theta_0)^2 - 2\Delta a' \cdot (\Delta b' / \cos \theta_0) \geq 0 \Rightarrow$$

$$(\Delta a' - \Delta b' / \cos \theta_0)^2 \geq 0 \quad \text{Q.E.D.}$$

Af symmetri Grunde gælder ligeledes, at $H_2(\Delta\theta) \geq \text{EXT}_2(\Delta\theta)$ og dermed at $\text{EXT}_2(\Delta\theta)$ er minimum. Vi er imidlertid interesseret det globale minimum. Dette er givet ved minimalusikkerheden:

$$\text{MIN}(\Delta\theta) = \begin{cases} -\frac{1}{2} (\Delta a')^2 \text{tg} \theta_0 & \text{for } \Delta a' \geq \Delta b' \\ -\frac{1}{2} (\Delta b')^2 \text{tg} \theta_0 & \text{for } \Delta a' < \Delta b' \end{cases}$$

Hvor $\Delta a' = (L_1 + L_2) / 2a_0$ og $\Delta b' = (L_2 + L_3) / 2r$

Det asymmetriske bidrag omkr. θ_0 fra vandret til opløsningsevnen er givet ved differensen mellem ekstremalusikkerhederne:

II: $\Delta\varphi_2 = \text{MAX}(\Delta\theta) - \text{MIN}(\Delta\theta) =$

$$\frac{1}{2} \cot \theta_0 \left(\left(\frac{L_1 + L_2}{2a_0} \right)^2 + \left(\frac{L_2 + L_3}{2r} \right)^2 \right) + \frac{(L_1 + L_2)(L_2 + L_3)}{4a_0 r \sin \theta_0} + \frac{1}{2} (\max(\Delta a', \Delta b'))^2 \text{tg} \theta_0$$

Hvor funktionen (lille)max udvælger det største element i et talpar. - Analogt med $\Delta\varphi_1$ er denne approximations gyldighedsområde bestemt af:

$$\Delta\varphi_2 \ll 4\theta_0$$

Maksimering af strålingseffekt.

Det resulterende bidrag til opløsningsevnen kan pessimistisk anslås til

$$\text{III: } \Delta\varphi(\theta_0) = \sqrt{(\Delta\varphi_1(\theta_0))^2 + (\Delta\varphi_2(\theta_0))^2}$$

Som beskrevet under I og II er disse approximationer gode, når $\Delta\varphi_1 \ll 4\theta_0$ og $\Delta\varphi_2 \ll 4\theta_0$. Dette betyder, at kvadratroden af kvadratsummen er en god approximation, når $\Delta\varphi(\theta_0) \ll \sqrt{32} \cdot \theta_0 \approx 5.6 \cdot \theta_0$.

Vi har nu et udtr. III, der for en given a_0 og en ønsket opløsningsevne $\Delta\varphi$ i en vinkel $\theta_0 = \theta_{\text{fix}}$ giver en ligning med seks ubekendte h_1, h_2, h_3, L_1, L_2 og L_3 . For fuldstændigt at bestemme værdien af disse seks ubekendte er vi nødt til at optimere den samlede målbare strålingseffekt, der kan beskrives ved flg. proportionalitet:

$$\text{IV: } P = k \cdot h_1 \cdot h_2 \cdot h_3 \cdot L_1 \cdot L_2 \cdot L_3$$

Denne skal så maksimeres med III som bibetingelse. Imidlertid kan vi med kravet om, at $\Delta\varphi_1 = \Delta\varphi_2$ for $\theta_0 = \theta_{\text{fix}}$ simplificere optimeringsproblemet, idet III reduceres til

$$\Delta\varphi = \sqrt{2} \Delta\varphi_1 = \sqrt{2} \Delta\varphi_2$$

Vi får da de to flg. bibetingelser:

$$\text{V: } \Delta\varphi = \sqrt{2} \Delta\varphi_1(\theta_0, h_1, h_2, h_3)$$

$$\text{VI: } \Delta\varphi = \sqrt{2} \Delta\varphi_2(\theta_0, L_1, L_2, L_3)$$

For givet $\theta_0 = \theta_{\text{fix}}$ og givet a_0 har vi nu en funktion af seks variable, der skal maksimeres. Således at bibetingelserne V og VI, er ligninger i hver sit sæt af ubekendte (h_1, h_2, h_3) og (L_1, L_2, L_3) , er opfyldt. Vi kan derfor omskrive:

$$P = k \cdot f(h_1, h_2, h_3) \cdot g(L_1, L_2, L_3)$$

, hvor faktorerne er:

$$f(h_1, h_2, h_3) = h_1 h_2 h_3$$

$$g(L_1, L_2, L_3) = L_1 L_2 L_3$$

Disse kan nu maksimeres hver for sig. Først maksimeres f analytisk med V som bibetingelse, idet funktionen u og variabelen c indføres. Stationære punkter er givet af de partielle afledede af:

$$u(h_1, h_2, h_3, c) = h_1 h_2 h_3 + c(\sqrt{2} \cdot (h_1 + h_2)/a_0 + (h_2 \cos \theta_0 + h_3)/r) - \Delta \varphi \Rightarrow$$

$$\frac{\partial u}{\partial h_1} = h_2 h_3 + \sqrt{2} \cdot c/a_0 = 0$$

$$\frac{\partial u}{\partial h_2} = h_1 h_3 + \sqrt{2} \cdot c(1/a_0 + \cos \theta_0/r) = 0$$

$$\frac{\partial u}{\partial h_3} = h_1 h_2 + \sqrt{2} \cdot c/r = 0$$

$$\frac{\partial u}{\partial c} = \sqrt{2} \cdot (h_1 + h_2)/a_0 + (h_2 \cos \theta_0 + h_3)/r - \Delta \varphi = 0$$

Disse har løsningen:

$$h_1 = \frac{1}{3\sqrt{2}} \cdot a_0 \cdot \Delta \varphi$$

$$h_2 = \frac{1}{3\sqrt{2}} \cdot \frac{a_0 r}{a_0 \cos \theta_0 + r} \cdot \Delta \varphi$$

$$h_3 = \frac{1}{3\sqrt{2}} \cdot r \cdot \Delta \varphi$$

Det viser sig, at det fundne (h_1, h_2, h_3) er et maksimalpunkt.

Dernæst maksimeres funktionen g med bibetingelse VI numerisk. Først løses VI med hensyn til L_1 . Den-

ne løsning bruges så til at bortsubstituere L_1 i g 's funktionsudtryk:

Ligning VI omformes og løses som andengrads:

$$\alpha L_1^2 + \beta L_1 + \gamma = 0$$

Løsningen for tilfældet, hvor $\Delta a' \geq \Delta b'$, fås af:

$$\alpha_1 = \frac{\cot\theta_0}{8 a_0^2} + \frac{\operatorname{tg}\theta_0}{8 a_0^2}$$

$$\beta_1 = \frac{\cot\theta_0 L_2}{4 a_0^2} + \frac{\operatorname{tg}\theta_0 L_2}{4 a_0^2} + \frac{L_2 + L_3}{4 a_0 r \sin\theta_0}$$

$$\gamma_1 = \frac{\cot\theta_0}{2} \left(\frac{L_2^2}{4 a_0^2} + \frac{(L_2 + L_3)^2}{4 r^2} \right) + \frac{L_2^2 + L_2 L_3}{4 a_0 r \sin\theta_0} + \frac{\operatorname{tg}\theta_0 L_2^2}{8 a_0^2} - \Delta\varphi \sqrt{2}$$

For tilfældet, hvor $\Delta a' < \Delta b'$, fås den af:

$$\alpha_2 = \frac{\cot\theta_0}{8 a_0^2}$$

$$\beta_2 = \frac{\cot\theta_0 L_2}{4 a_0^2} + \frac{L_2 + L_3}{4 a_0 r \sin\theta_0}$$

$$\gamma_2 = \frac{\cot\theta_0}{2} \left(\frac{L_2^2}{4 a_0^2} + \frac{(L_2 + L_3)^2}{4 r^2} \right) + \frac{L_2^2 + L_2 L_3}{4 a_0 r \sin\theta_0} + \operatorname{tg}\theta_0 \frac{(L_2 + L_3)^2}{8 r^2} - \Delta\varphi \sqrt{2}$$

Hhv. løsningssæt 1 og 2 kan så indsættes i

$$L_1 = \frac{1}{2\alpha} (\sqrt{\beta^2 - 4\alpha\gamma} - \beta)$$

Ved at substituere med dette udtryk for L_1 , kan vi nu omforme g fra at være en funktion af tre variable til at være en funktion af to variable, nemlig $g_s(L_2, L_3)$. Vi får to versioner af g_s , nemlig g_{s1} for $(\alpha_1, \beta_1, \delta_1)$ og g_{s2} for $(\alpha_2, \beta_2, \delta_2)$. Der laves nu niveau-kurver over h.h.v. g_{s1} og g_{s2} ved kontinuert at variere den ene L -variabel og trinvis at variere den anden i L_2 - og L_3 -intervallerne omkring maksimumspunktet for h.h.v. g_{s1} og g_{s2} . Det undersøges nu, om maksimumspunkterne for g_{s1} og g_{s2} begge er konsistente med de respektive betingelser: $\Delta a' \geq \Delta b'$ og $\Delta a' < \Delta b'$. Hvis det ikke er muligt at bestemme det globale maksimum for g med bibetingelse VI ud fra denne kontrol, vælges det største af de to maksima som det globale maksimum.

Vi har nu bestemt det globale maksimum med tilhørende maksimumspunkt for $g(L_1, L_2, L_3)$ med bibetingelse VI.

Afprøvning af maksimeringsproceduren.

Ved passende valg af $\Delta\varphi(\theta_{\text{fix}})$, a_0 og $\theta_0 = \theta_{\text{fix}}$, kan optimeringsproceduren udføres og et løsningssæt $(h_1, h_2, h_3, L_1, L_2, L_3)$ bestemmes. Hvis θ_{fix} vælges midt i scanneintervallet, fås et løsningssæt, der bevirker, at den resulterende opløsning $\Delta\varphi(\theta_0)$ givet ved indsættelse af I og II i III kommer i modsætning til krav nr. 1 side 260. Dette beror ifølge udtryk II på at $\Delta\varphi_2$ er en stejlt aftagende funktion for små værdier af θ_0 grundet variationen af $\cot\theta_0$ og $\sin\theta_0$. Det viser sig ved EDB-kørsler, at først for værdier af $\theta_0 > \theta_{\text{fix}}$ får $\Delta\varphi_2(\theta_0)$ og $\Delta\varphi(\theta_0)$ et konstant forløb. Dette betyder at hvis θ_{fix} derimod væl-

ges i begyndelsen af scanneintervallet, sådan at θ_{fix} ligger tæt på θ_{omin} , som er mindste scannevinkel, så tilfredstilles kravet om et ønsket niveau for den resulterende opløsning i hele scanneintervallet. En sådan graf for den resulterende opløsning som funktion af scannevinklen er afbildet nederst på siden.

Før kollimatorsystemet blev ombygget på Leybold-diffraktionsapparatet var kollimatorafstanden $a_0 = 50\text{mm}$. Det samlede spaltesystem optimeredes ud fra den beskrevne procedur, idet $\Delta\varphi(\theta_{fix}) = 2.8^\circ$ og $\theta_{fix} = 10.5^\circ$ valgtes. Værdien af θ_{fix} tilfredsstillede kravet om at være tæt på θ_{omin} . Dette gav løsningerne

$$(h_1, h_2, h_3) = (0.6, 0.4, 1.8)\text{mm}$$

$$(L_1, L_2, L_3) = (3.7, 2.8, 12.3)\text{mm}$$

Ved afbildning af $\Delta\varphi(\theta_0)$ for disse værdier opnåedes nedenstående graf:

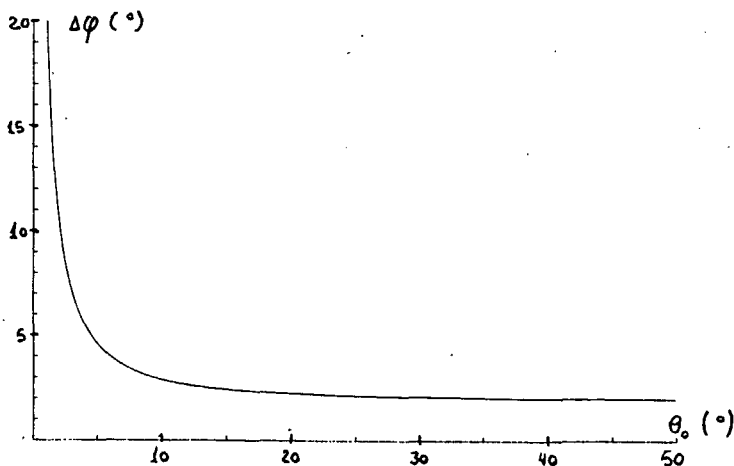


Fig. 7.

Ved fremstilling af en intensitetsprofil for polykrystallinsk Ge med det oprindelige kollimatorarrangement bestemmes den eksperimentelt målte vinkelopløsning angivet som halvværdibredden af de enkelte Ge-toppe som funktion af θ_0 .

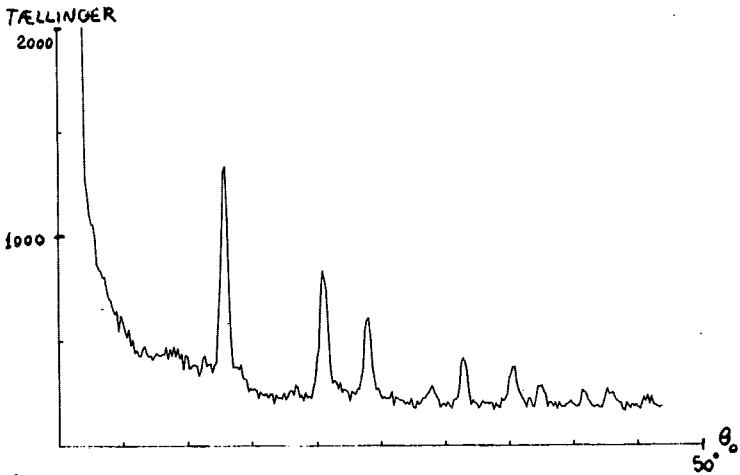


Fig.8.

Ved aflæsning af halvværdibredden af de markante toppe konstateres det ud fra ovenstående intensitetsprofil, at den eksperimentelt målte vin-

kelopløsning er 0.6° i et interval fra 13° til 36° . Dette skal sammenlignes med grafen for den resulterende opløsning i figur 7. Her er opløsningen tilnærmelsesvis konstant i det samme interval med en størrelse der i middel er 2.3° . Det viser sig derfor, at modellen giver en resulterende opløsning som er 3.8 gange større end den eksperimentelt målte. Hvilket ikke er uventet da $\Delta\phi(\theta_0)$ er pessimistisk sat som kvadratroden af kvadratsummen af ekstremalusikkerhederne.

I de øvrige modelberegninger vælges da følgende approximative oversættelse mellem $\Delta\phi(\theta_0)$ og den eksperimentelt målte opløsning $\Delta\phi_{\text{exp}}$:

$$\Delta\phi(\theta_0) = 3.8 \Delta\phi_{\text{exp}}(\theta_0)$$

Den karakteristiske halvværdibredde af toppene i intensitetsprofilen indeholdende Rayleigh- og Comptonspredning fra amorf germanium er af størrelsen 4° . En vinkelopløsning på 0.6° er dermed fuldt tilfredsstillende for at kunne "se" disse toppe. Et krav til et forbedret kollimatorarrangement vil da være en eksperimentel vinkelopløsning af samme størrelse.

Løsning af optimeringsproblem 2.

Givet en fast vinkelopløsning. Så scaler kollimatordimensionerne h_1, L_1, h_2, L_2 approximativt med kollimatorafstanden a_0 . Hvilket ses af udtrykkene I, II og III, idet h_3 og L_3 er omkring en faktor 3 større end de tilsvarende dimensioner for kollimatorspalterne. Det er som nævnt en forudsæt-

ning, at Röntgenkildens udstrækning er væsentlig større en kollimatoråbningernes. En lille kollimatorafstand vil pga. scalingen betyde små kollimatordimensioner, hvorfor den lodrette positionering af spalterne bliver meget følsom og derfor svær at indstille nøjagtigt. Hvorimod en stor kollimatorafstand vil betyde, at man bedre kan finjustere upliningen af kollimatorspalterne i forhold til vandret. Maksimal a_0 er således optimal mht. til uplining.

Hvad angår kantspredning kan følgende ræsonnement laves: Givet konstant vinkelopløsning. Det må da gælde at arealet af 1. kollimatorspalte vokser kvadratisk med a_0 . Hvorimod arealet af 1. kollimators kant, som er overfladen inden i selve spalten, kun vokser proportionalt med a_0 . Det betyder, at maksimal a_0 er den optimale værdi med hensyn til kantspredning fra 1. kollimator, idet forholdet mellem den strålingseffekt, som passerer direkte gennem spalten, og den strålingseffekt, som passerer indirekte via kanten, scaler med a_0 .

Både optimeringen af upliningsbetingelserne og minimeringen af den relative strålingseffekt hidrørende fra kantspredningen stiller således krav om at a_0 skal være maksimal, nemlig 80 mm.

Den endelige kørsel af optimeringsproceduren.

Den beskrevne optimeringsprocedure køres nu ud fra værdierne $\Delta\varphi(\theta_{\text{fix}}) = 2.8^\circ$, $a_0 = 80\text{mm}$ og $\theta_{\text{fix}} = 10.5^\circ$. Denne værdi af θ_{fix} vælges igen.

fordi $\Delta\varphi(\theta_0)$ får et konstant forløb for $\theta_0 > \theta_{\text{fix}} = 10.5^\circ$, hvilket netop er i det område hvor toppene er i intensitetsprofilen for Rayleigh- og Comptonspredning fra amorf germanium. De to første toppe befinder sig mellem 10° og 16° , samt mellem 20° og 25° , hvilket ses af nedenstående figur fra Temkin et al. (Advances in Physics, vol 22, no. 1-6, 1973, p.597). Ud af denne kan også aflæses de karakteristiske halvværdibredder, der er omkring 4° .

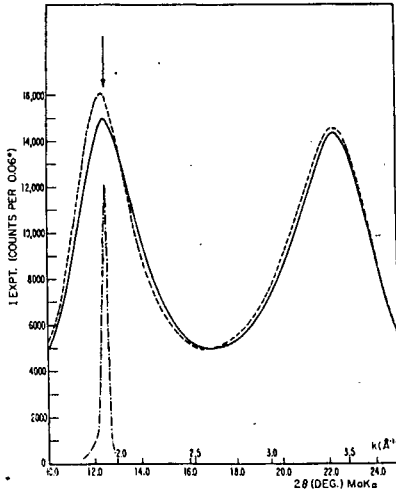


Fig. 9.

Experimental MoK α scattering intensity, $I_{\text{expt}}(k)$, recorded as counts at 0.06° step intervals in 2θ for samples of $T_s = 150^\circ\text{C}$ (—) and $T_s = 350^\circ\text{C}$ (---). The experimental scattering from a crystalline Ge sample (---) at the (111) reflection peaks at $2\theta = 12.49^\circ$, which is marked by an arrow. The scattered intensity from crystalline Ge is reduced by a factor of about 10.

Kørslen af optimeringsproceduren giver følgende spaltedimensioner:

$$(h_1, h_2, h_3) = (0.9\text{mm}, 0.6\text{mm}, 1.8\text{mm})$$

$$(L_1, L_2, L_3) = (5.9\text{mm}, 4.0\text{mm}, 12.0\text{mm})$$

Disse værdier indsat i I og II giver en graf for den resulterende opløsningsevne (givet ved III), som er nøjagtig magen til grafen for det første løsningsæt i fig.7. Den eksperimentelle opløsning bestemmes ud fra et polykrystallinsk Ge-spektrum:

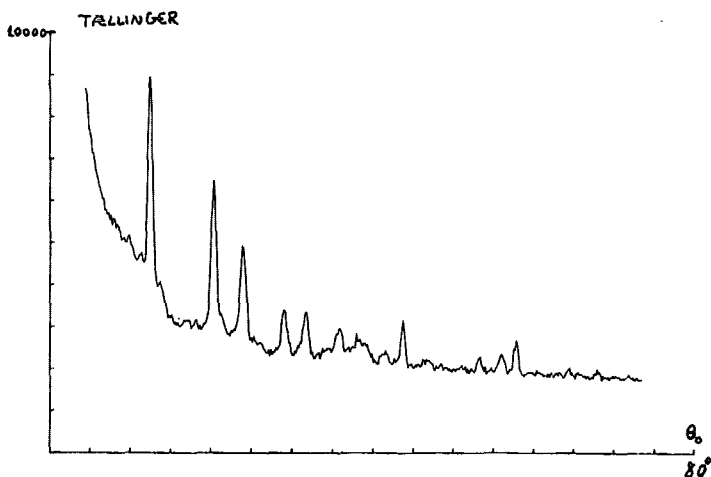


Fig.10.

Ved aflæsning af halvværdibredderne af de markante toppe bestemmes opløsningen i et interval fra 13° til 58° . Denne er konstant 0.6° - 0.7° , hvorved vi

for det første har bekræftet valget af den empiriske oversættelsesfaktor på 3.8, og for det andet har opnået det ønskede konstante niveau af værdien af opløsningen på spredningsvinkelbestemmelsen i det betragtede scanneinterval.

Vi har nu på bedste måde tilfredsstillet de fem krav som blev opstillet i indledningen.

```

-- : .....
20 !
30 !           "PDF"
40 !           HANS, FRANK, FINN, AF 17. AUG 82
50 !           PROGRAM TIL BEHANDLING AF DIFFRAKTIONSDATA.
60 !
70 ! *****
80 PRINTER IS 16
90 STANDARD
100 DEG
110 U=PI/180
120 L=.71069
130 Dz=.153
140 ! *****
150 OPTION BASE 0
160 COM T1(16),T2(7),F1(16),F2(16),F3(7),B(450)
170 COM A(450),C(450),Gr(101),C(101)
180 COM Q(-29:449),K(-29:449),Dz(-29:449),Ia(-29:449)
190 COM Ir(-29:449),Z(-29:449),Fnum(-29:449)
200 ! GOTO 1870
210 ! *****
220 ! INDLAESNINGSPROCEDURE
230 !
240 SET TIMEOUT 3;500
250 ON INT #3 GOTO Check
260 CONVERT 3;"I"." " TO ",",0
270 READ IO 3,4;Pead4
280 WAIT 500
290 Om: STATUS 3;Stape
300 READ IO 3,5;Readio
310 IF (IOFLAG(3)=0) AND (Stape>49) OR (Readio<46) THEN DISP "POWER ON TAPE-RE
DER"
320 IF (IOFLAG(3)=0) AND (Stape>49) OR (Readio<46) THEN BEEP
330 IF (IOFLAG(3)=0) AND (Stape>49) OR (Readio<46) THEN PAUSE
340 IF (IOFLAG(3)=0) AND (Stape>49) OR (Readio<46) THEN Om
350 IF Stape<49 THEN DISP "ANBRING TAPEN KORREKT I TAPERADER!!!!";
360 IF Stape<49 THEN BEEP
370 IF Stape<49 THEN PAUSE
380 IF Stape<49 THEN Om
390 DISP
400 MAT B=ZER
410 B(3)=-1
420 ENTER 3 USING "F";B(*)
430 Check: IF B(3)=-1 THEN Om
440 ! *****
450 ! B(334)=3045
460 !
470 ASSIGN "KANTS1" TO #1
480 ASSIGN "SUBSC1" TO #2
490 READ #1,1
500 READ #1;A(*)
510 ASSIGN #1 TO *
520 ! Laesning af filer
530 READ #2,1

```


580 ! HER FØLGER TABELVÆRDIER FOR DEN INKOHERENT SPREDT INTENSITET
590 !

- 600 T1(0)=0
- 610 T1(1)=2.036
- 620 T1(2)=4.075
- 630 T1(3)=6.120
- 640 T1(4)=8.172
- 650 T1(5)=10.234
- 660 T1(6)=12.311
- 670 T1(7)=14.403
- 680 T1(8)=16.516
- 690 T1(9)=20.815
- 700 T1(10)=25.241
- 710 T1(11)=29.834
- 720 T1(12)=34.650
- 730 T1(13)=39.764
- 740 T1(14)=45.292
- 750 T1(15)=51.423

760 !
770 ! HER FØLGER TABELVÆRDIER FOR DEN INDIVIDUELLE KOHERENT SPREDTE INTENSITET
780 !

- 790 F1(0)=1024
- 800 F1(1)=978.43
- 810 F1(2)=871.43
- 820 F1(3)=755.15
- 830 F1(4)=651.78
- 840 F1(5)=564.54
- 850 F1(6)=488.85
- 860 F1(7)=421.89
- 870 F1(8)=361.76
- 880 F1(9)=262.12
- 890 F1(10)=188.24
- 900 F1(11)=136.42
- 910 F1(12)=101.61
- 920 F1(13)=78.68
- 930 F1(14)=63.36
- 940 F1(15)=53.14

950 !
960 ! HER FØLGER TABELVÆRDIER FOR DEN INKOHERENT SPREDTE INTENSITET
970 !

- 980 F2(0)=0
- 990 F2(1)=1
- 1000 F2(2)=2
- 1010 F2(3)=4
- 1020 F2(4)=5
- 1030 F2(5)=6
- 1040 F2(6)=7
- 1050 F2(7)=9
- 1060 F2(8)=10
- 1070 F2(9)=13
- 1080 F2(10)=15
- 1090 F2(11)=17
- 1100 F2(12)=19
- 1110 F2(13)=20

```
1170 F3(0)=4233/2
1180 F3(1)=4355/2
1190 F3(2)=4521/2
1200 F3(3)=4481/2
1210 F3(4)=4765/2
1220 F3(5)=4673/2
1230 F3(6)=4655/2
1240 !
1250 ! TABEL FOR TILHØRENDE VINKLER
1260 !
1270 FOR I=0 TO 6
1280 T2(I)=4.36+.15*75*I
1290 NEXT I
1300 ! *****
1310 ! UDTEGNING AF NORMALISERINGSKURVE
1320 !
1330 PRINT "ØNSKES UDTEGNING AF NORMALISERINGSKURVEN:"
1340 PRINT "SUMMEN AF COMPTONSPREDNING OG SPREDNINGEN FRA"
1350 PRINT "N ATOMARE SPREDERE ?"
1360 INPUT "HVIS JA, SKRIV 1; HVIS NEJ, SKRIV 2",V
1370 IF V=2 THEN 1480
1380 PRINT "S-AKSEN GAAR FRA 0 TIL 2.4 OG I-AKSEN GAAR FRA 0 TIL 3000"
1390 PLOTTER IS "GRAPHICS"
1400 GRAPHICS
1410 SCALE 0,1.2,0,1000
1420 AXES .1,100
1430 FOR N=0 TO 15
1440 DRAW 2*SIN(T1(N))/L,F1(N)+F2(N)
1450 NEXT N
1460 ! DUMP GRAPHICS
1470 GCLEAR
1480 PRINT CHR$(12)
1490 ! *****
1500 ! TABULERING AF KORREKTIONER PAA MAALEDATA
1510 !
1520 EXIT GRAPHICS
1530 DISP "TABULERING AF KORREKTIONER PAA MAALEDATA"
1540 M=64.8*5.35*25*10^(-4)
1550 FOR D=-29 TO 449
1560 Arg=4.36+.15*D
1570 R=160
1580 Fc=5
1590 Z(D)=ATN(R*SIN(Arg)/(R*COS(Arg)-Fc))
1600 Z=Z(D)
1610 ! Arg1=4.36+.15*D
1620 ! Arg2=4.36+.15*(D+1)
1630 ! F11=ATH(R*SIN(Arg1)/(R*COS(Arg1)-Fc))
1640 ! F12=ATH(R*SIN(Arg2)/(R*COS(Arg2)-Fc))
1650 ! Dz(D)=.153 !F12-F11
1660 Q(D)=SIN(Z)*(FNF1(Z/2)+FNF2(Z/2))*Dz*U/FNF1(Z/2)
1670 K(D)=4*PI*SIN(Z/2)/L
1680 NEXT D
1690 ! *****
1700 ! TABULERING AF ELASTISK SPREDT INTENSITET
1710 !
1720 EXIT GRAPHICS
1730 ! *****
1740 ! TABULERING AF ELASTISK SPREDT INTENSITET"
```

```
1700 V0=PI*(1/COS(Z)-1)
1750 V05=(A(D)-Ib)*EXP(-M/COS(Z))
1800 V1=(B(D)-Ib-V05)*V0
1810 V2=EXP(-M)-EXP(-M/COS(Z))
1820 V3=5/6*(C(D)-A(D))
1830 V4=V1/V2-V3
1840 C(D)=V4/((1+COS(Z)^2)/2)
1850 NEXT D
1860 DISP
1870 ! *****
1880 ! HER UDTEGHES DEN ELASTISK SPREDTE INTENSITET
1890 !
1900 PRINT "ØNSKES UDTEGNING AF DEN ELASTISK SPREDTE INTENSITET "
1910 PRINT "PLOTTEJ IMOD S ?"
1920 INPUT "HVIS JA, SKRIV 1; HVIS NEJ, SKRIV 2",P
1930 IF P=2 THEN 2070
1940 PLOTTER IS "GRAPHICS"
1950 GRAPHICS
1960 SCALE 0,12,0,16000
1970 AXES 2,2000
1980 ! PEN 3
1990 ! LINE TYPE 3,1
2000 MOVE K(0),C(0)
2010 FOR D=0 TO 449
2020 DRAW K(D),C(D)
2030 NEXT D
2040 PENUP
2050 ! PAUSE
2060 DUMP GRAPHICS
2070 PRINT CHR$(12)
2080 ! *****
2090 ! HER APPROXIMERES INTENSITETSKURVEH FOR LAVE K
2100 !
2110 PRINT "ØNSKES APPROXIMERING FOR LAVE K-VAERDIER ?"
2120 INPUT "HVIS JA, ISÆT PAPIR OG SKRIV 1; HVIS NEJ, SKRIV 2",P
2130 PLOTTER IS ON
2140 IF P=2 THEN 2470
2150 POINTER K,Int,2
2160 DIGITIZE K,Int
2170 Zx=2*ASN(K*L/(4*PI))
2180 Dx=(Zx/1.04-4.36)/.15
2190 PRINTER IS 0
2200 FIXED 3
2210 PRINT
2220 PRINT "Dx=";Dx;" K=";K;" Int";Int
2230 PRINT
2240 STANDARD
2250 PRINTER IS 16
2260 FOR D=-29 TO INT(Dx)
2270 Ia(D)=Int/K(Dx)^2*K(D)^2
2280 NEXT D
2290 ! CLEAR
2300 PLOTTER IS "GRAPHICS" !"98720"
2310 GRAPHICS
2320 PEN 3
2330 SCALE 0,12,0,16000
2340 AXES 2,2000
2350 MOVE 0,0
2360 FOR D=-29 TO INT(Dx)
```

```
2410 DRAW K(D),C(D)
2420 NEXT D
2430 DUMP GRAPHICS
2440 PENUP
2450 PRINT CHR$(12)
2460 GOTO 2110
2470 PRINT CHR$(12)
2480 ! *****
2490 ! TABULERING AF KORRIGERET ELASTISK INTENSITET
2500 !
2510 EXIT GRAPHICS
2520 FOR D=INT(Dx)+1 TO 449
2530 Ia(D)=C(D)
2540 NEXT D
2550 !
2560 ! *****
2570 ! HER FITTES NORMALISERINGSKURVER
2580 !
2590 PRINT "ØNSKES NORMALISERING?"
2600 INPUT "HVIS JA, SKRIV 1; HVIS NEJ, SKRIV 2",V
2610 IF V=2 THEN 2800
2620 INPUT "HVAD ER NORMALISERINGSKONSTANTEN?",A
2630 PRINTER IS 0
2640 PRINT
2650 PRINT
2660 PRINT
2670 PRINT "NORMALISERINGSKONSTANTEN ER ",A
2680 PRINT
2690 PRINT
2700 PRINTER IS 16
2710 GRAPHICS
2720 MOVE 4*PI*SIN(T1(1))/L,(F1(1)+F2(1))/A
2730 FOR N=0 TO 15
2740 DRAW 4*PI*SIN(T1(N))/L,(F1(N)+F2(N))/A
2750 NEXT N
2760 DUMP GRAPHICS
2770 PRINT CHR$(12)
2780 GOTO 2590
2790 GCLEAR
2800 PRINT CHR$(12)
2810 ! GOTO 2850
2820 ! *****
2830 ! TABULERING AF REDUCERET INTERFERENSFUNKTION
2840 !
2850 ! INPUT "HVAD ER DEN ENDELIGE NORMALISERINGSKONSTANT ?",A
2860 PRINT CHR$(12)
2870 FOR Turn=-8 TO 8
2880 A=.002*Turn+.080
2890 PRINTER IS 0
2900 PRINT
2910 PRINT
2920 PRINT "DEN ENDELIGE NORMALISERINGSKONSTANT ER ";A
2930 PRINT
2940 PRINT
2950 PRINTER IS 16
2960 EXIT GRAPHICS
2970 DISP "TABULERING AF REDUCERET INTERFERENSFUNKTION"
2980 FOR D=-29 TO 449
2990 ! Con=EXP(-.03*(D)^2)
3000 Fnum(D)=A*SIN(2*D)+Ia(D)*D+U*FNF1(Z(D)/2)-Q(D)
3010 In(D)=K(D)+(A*Ia(D)-(FNF1(Z(D)/2)+FNF2(Z(D)/2))/FNF1(Z(D)/2)
```

```

3090 ! HER UDTEGNERES DEN REDUCEREDE INTERFERENSFUNKTION
3080 !
3090 PRINT "ØNSKES UDTEGNING AF DEN REDUCEREDE INTERFERENSFUNKTION ?"
3100 ! INPUT "HVIS JA, SKRIV 1; HVIS NEJ SKRIV 2",V
3110 ! IF V=2 THEN 3570
3120 PRINTER IS 0
3130 PRINT
3140 PRINT "GRAF FOR DEN REDUCEREDE INTERFERENSFUNKTION"
3150 PRINT
3160 PRINTER IS 16
3170 PLOTTER IS "GRAPHICS"      17,5,"9872A"
3180 GRAPHICS
3190 SCALE 0,15,-10,10
3200 AXES 2.5,2
3210 MOVE K(-29),Ic(-29)
3220 FOR D=-29 TO 449
3230 DRAW K(D),Ic(D)
3240 NEXT D
3250 PRINT CHR$(12)
3260 DUMP GRAPHICS
3270 ! *****
3280 ! HER TABULERES DISTRIBUTIONSFUNKTIONEN Gr
3290 !
3300 EXIT GRAPHICS
3310 DISP "TABULERING AF DEN RADIALE DISTRIBUTIONSFUNKTION"
3320 FOR I=0 TO 100
3330 F=0
3340 FOR D=-29 TO 449
3350 R=I/10
3360 F=F+Fnum(D)*SIN(R*K(D))/U
3370 NEXT D
3380 Gr(I)=8*PI/L^2*F
3390 NEXT I
3400 DISP
3410 !
3420 !
3430 ! *****
3440 PRINTER IS 0
3450 PRINT
3460 PRINT
3470 PRINT "GRAF FOR DISTRIBUTIONSFUNKTIONEN G"
3480 PRINT
3490 PRINTER IS 16
3500 PLOTTER IS "GRAPHICS"! "9872A"
3510 GRAPHICS
3520 PEN 3
3530 SCALE 0,10,-5,5
3540 AXES .5,1
3550 MOVE 0,Gr(0)
3560 FOR I=0 TO 100
3570 R=I/10
3580 DRAW R,Gr(I)
3590 NEXT I
3600 DUMP GRAPHICS
3610 PRINTER IS 0
3620 PRINT
3630 PRINT
3640 ! PAUSE
3650 ! GOTO 3680
3660 ! *****
3670 ! GRAF FOR DEN TOTALE KORRELLATIONSFUNKTION
3680 !
3690 PRINT "GRAF FOR DEN TOTALE KORRELLATIONSFUNKTION"
3700 PRINT
3710 PLOTTER IS "GRAPHICS"
3720 GRAPHICS

```

```
3780 DRAW R,Gr(I)+4*PI*.044*R
3790 NEXT I
3800 DUMP GRAPHICS
3810 GCLEAR
3820 ! *****
3830 !
3840 PRINT
3850 PRINT
3860 PRINT "GRAF FOR DEN RADIALE DISTRIBUTIONSFUNKTION"
3870 PRINT
3880 FOR I=0 TO 100
3890 R=I/10
3900 G(I)=G(I)*R+4*PI*R^2*.044
3910 NEXT I
3920 PRINTER IS 16
3930 PLOTTER IS "GRAPHICS"! "9872A"
3940 GRAPHICS
3950 PEN 3
3960 SCALE 0,10,-10,50
3970 AXES 1,5
3980 FOR I=0 TO 100
3990 DRAW I/10,G(I)
4000 NEXT I
4010 PENUP
4020 DUMP GRAPHICS
4030 PRINT
4040 NEXT Turn
4050 STOP
4060 END
4070 ! *****
4080 DEF FNF1(Z)
4090 COM T1(16),T2(7),F1(16),F2(16)
4100 IF (Z<T1(0)) OR (Z>T1(15)) THEN PRINT "FNF1 IKKE DEFINERET"
4110 N=0
4120 IF T1(N)>Z THEN 4150
4130 N=N+1
4140 GOTO 4120
4150 Y=(Z-T1(N-1))*(F1(N)-F1(N-1))/(T1(N)-T1(N-1))+F1(N-1)
4160 RETURN Y
4170 FNF1
4180 DEF FNF2(Z)
4190 COM T1(16),T2(7),F1(16),F2(16)
4200 IF (Z<T1(0)) OR (Z>T1(15)) THEN PRINT "FNF2 IKKE DEFINERET"
4210 N=0
4220 IF T1(N)>Z THEN 4250
4230 N=N+1
4240 GOTO 4220
4250 V=(Z-T1(N-1))*(F2(N)-F2(N-1))/(T1(N)-T1(N-1))+F2(N-1)
4260 RETURN V
4270 FNF2
4280 DEF FNF3(Arg)
4290 COM T1(16),T2(7),F1(16),F2(16),F3(7)
4300 IF (Arg<T2(0)) OR (Arg>T2(6)) THEN PRINT "FNF3 IKKE DEFINERET"
4310 N=0
4320 IF T2(N)>Arg THEN 4350
4330 N=N+1
4340 GOTO 4320
4350 W=(Arg-T2(N-1))*(F3(N)-F3(N-1))/(T2(N)-T2(N-1))+F3(N-1)
4360 RETURN W
4370 FNF3
```


- 1/78 "TANKER OM EN PRAKSIS" - et matematikprojekt.
Projektrapport af Anne Jensen, Lena Lindenskov, Marianne Kesselhahn og Nicolai Lomholt.
Vejleder: Anders Madsen.
- 2/78 "OPTIMERING" - Menneskets forøgede beherskelsesmuligheder af natur og samfund.
Projektrapport af Tom J. Andersen, Tommy R. Andersen, Gert Kreinoe og Peter H. Lassen.
Vejleder: Bernhelm Booss.
- 3/78 "OPGAVESAMLING", breddekursus i fysik. Nr. 3 er a jour ført i marts 1984
Lasse Rasmussen, Aage Bonde Kræmmer, Jens Højgaard Jensen.
- 4/78 "TRE ESSAYS" - om matematikundervisning, matematiklæreruddannelsen og videnskabsrindalismen. Nr. 4 er p.t. udgået.
Mogens Niss.
- 5/78 "BIBLIOGRAFISK VEJLEDNING til studiet af DEN MØDERNE FYSIKS HISTORIE". Nr. 5 er p.t. udgået.
Helge Kragh.
- 6/78 "NOGLE ARTIKLER OG DEBATINDLÆG OM - læreruddannelse og undervisning i fysik, og - de naturvidenskabelige fags situation efter studenteroprøret".
Karin Beyer, Jens Højgaard Jensen og Bent C. Jørgensen.
- 7/78 "MATEMATIKKENS FORHOLD TIL SAMFUNDSØKONOMIEN". Nr. 7 er udgået.
B.V. Gnedenko.
- 8/78 "DYNAMIK OG DIAGRAMMER". Introduktion til energy-bound-graph formalismen.
Peder Voetmann Christiansen.
- 9/78 "OM PRAKSIS' INDFLYDELSE PÅ MATEMATIKKENS UDVIKLING". - Motiver til Kepler's: "Nova Stereometria Doliorum Vinariorum".
Projektrapport af Lasse Rasmussen.
Vejleder: Anders Madsen.
-
- 10/79 "TERMODYNAMIK I GYMNASIET".
Projektrapport af Jan Christensen og Jeanne Mortensen.
Vejledere: Karin Beyer og Peder Voetmann Christiansen.
- 11/79 "STATISTISKE MATERIALER"
red. Jørgen Larsen
- 12/79 "LINEÆRE DIFFERENTIALLIGNINGER OG DIFFERENTIALLIGNINGSSYSTEMER". Nr. 12 er udgået
Mogens Brun Heefelt
- 13/79 "CAVENDISH'S FORSØG I GYMNASIET".
Projektrapport af Gert Kreinoe.
Vejleder: Albert Chr. Paulsen

- 14/79 "BOOKS ABOUT MATHEMATICS: History, Philosophy, Education, Models, System Theory, and Works of Reference etc. A Bibliography".
Else Høyrup.
- 15/79 "STRUKTUREL STABILITET OG KATASTROFER i systemer i og udenfor termodynamisk ligevægt".
Specialeopgave af Leif S. Striegler.
Vejleder: Peder Voetmann Christiansen.
- 16/79 "STATISTIK I KRÆFTFORSKNINGEN".
Projektrapport af Michael Olsen og Jørn Jensen.
Vejleder: Jørgen Larsen.
- 17/79 "AT SPØRGE OG AT SVARE i fysikundervisningen".
Albert Christian Paulsen.
- 18/79 "MATHEMATICS AND THE REAL WORLD", Proceedings of an International Workshop, Roskilde University Centre, Denmark, 1978. Preprint.
Bernhelm Booss & Mogens Niss (eds.).
- 19/79 "GEOMETRI, SKOLE OG VIRKELIGHED".
Projektrapport af Tom J. Andersen, Tommy R. Andersen og Per H.H. Larsen.
Vejleder: Mogens Niss.
- 20/79 "STATISTISKE MODELLER TIL BESTEMMELSE AF SIKRE DOSER FOR CARCINOGENE STOFFER".
Projektrapport af Michael Olsen og Jørn Jensen.
Vejleder: Jørgen Larsen.
- 21/79 "KONTROL I GYMNASIET - FORMAL OG KONSEKVENSER".
Projektrapport af Crilles Bacher, Per S. Jensen, Preben Jensen og Torben Nysteen.
- 22/79 "SEMIOTIK OG SYSTEMEGENSKABER (1)".
1-port lineært response og støj i fysikken.
Peder Voetmann Christiansen.
- 23/79 "ON THE HISTORY OF EARLY WAVE MECHANICS - with special emphasis on the role of reality".
-
- 24/80 "MATEMATIKOPFATTELSE HOS 2.G'ERE".
a+b 1. En analyse. 2. Interviewmateriale.
Projektrapport af Jan Christensen og Knud Lindhardt Rasmussen.
Vejleder: Mogens Niss.
- 25/80 "EKSAMENSOPGAVER", Dybdemodulet/fysik 1974-79.
- 26/80 "OM MATEMATISKE MODELLER".
En projektrapport og to artikler.
Jens Hojgaard Jensen m.fl.
- 27/80 "METHODOLOGY AND PHILOSOPHY OF SCIENCE IN PAUL DIRAC'S PHYSICS".
Helge Kragh.
- 28/80 "DIELEKTRISK RELAXATION - et forslag til en ny model bygget på væskernes viscoelastiske egenskaber".
Projektrapport, speciale i fysik, af Gert Kreinoe.
Vejleder: Niels Boye Olsen.

Nr. 14 er p.t. udgået.

Nr. 24 a+b er p.t. udgået.

- 29/80 "ODIN - undervisningsmateriale til et kursus i differentialligningsmodeller".
 Projekt rapport af Tommy R. Andersen, Per H.H. Larsen og Peter H. Lassen.
 Vejleder: Mogens Brun Heefelt
- 30/80 "FUSIONSENERGIEN - - - ATOMSAMFUNDETS ENDESTATION".
 Oluf Danielsen. Nr. 30 er udgået.
 Udkommer medio 1982 på Fysik-, Matematik- og Kemilærer-
 nes forlag.
- 31/80 "VIDENSKABSTEORETISKE PROBLEMER VED UNDERVISNINGSSY-
 STEMER BASERET PÅ MENGDÆLERE". Nr. 31 er p.t. udgået
 Projekt rapport af Troels Lange og Jørgen Kærrebæk.
 Vejleder: Stig Andur Pedersen.
- 32/80 "POLYMERE STOFFERS VISCOELASTISKE EGENSKABER - BELYST
 VED HJÆLP AF MEKANISKE IMPEDANSMALINGER OG MOSSBAUER-
 EFFEKTMALINGER".
 Projekt rapport, speciale i fysik, af Crilles Bacher og
 Preben Jensen.
 Vejledere: Niels Boye Olsen og Peder Voetmann Chri-
 stiensen.
- 33/80 "KONSTITUERING AF FAG INDEN FOR TEKNISK-NATURVIDENSKA-
 BELIGE UDDANNELSER. I-II".
 Arne Jakobsen.
- 34/80 "ENVIRONMENTAL IMPACT OF WIND ENERGY UTILIZATION".
 ENERGY SERIES NO.1. Nr. 34 er udgået.
 Bent Sørensen. Publ. i "Renewable Sources of Energy and the Environment",
 Tycooli International Press, Dublin, 1981.
- 35/80 "HISTORISKE STUDIER I DEN NYERE ATOMFYSIKS UDVIKLING".
 Helge Kragh.
- 36/80 "HVAD ER MENINGEN MED MATEMATIKUNDERVISNINGEN ?".
 Fire artikler.
 Mogens Niss.
- 37/80 "RENEWABLE ENERGY AND ENERGY STORAGE".
 ENERGY SERIES NO.2.
 Bent Sørensen.
-
- 38/81 "TIL EN HISTORIE TEORI OM NATURERKENDELSE, TEKNOLOGI
 OG SAMFUND". Nr. 38 er p.t. udgået
 Projekt rapport af Erik Gade, Hans Hedal, Henrik Lau
 og Finn Physant.
 Vejledere: Stig Andur Pedersen, Helge Kragh og
 Ib Thiersen.
- 39/81 "TIL KRITIKKEN AF VÆKSTOKONOMIEN".
 Jens Højgaard Jensen.
- 40/81 "TELEKOMMUNIKATION I DANMARK - oplæg til en teknolo-
 givurdering". Nr. 40 er p.t. udgået
 Projekt rapport af Arne Jørgensen, Bruno Petersen og
 Jan Vedde.
 Vejleder: Per Nørgaard.
- 41/81 "PLANNING AND POLICY CONSIDERATIONS RELATED TO THE
 INTRODUCTION OF RENEWABLE ENERGY SOURCES INTO ENERGY
 SUPPLY SYSTEMS".
 ENERGY SERIES NO.3.
 Bent Sørensen.

42/81 "VIDENSKAB TEORI SAMFUND - En introduktion til materialistiske videnskabsopfattelser".
Helge Kragh og Stig Andur Pedersen.

43/81 1. "COMPARATIVE RISK ASSESSMENT OF TOTAL ENERGY SYSTEMS".
2. "ADVANTAGES AND DISADVANTAGES OF DECENTRALIZATION".
ENERGY SERIES NO.4.
Bent Sørensen.

44/81 "HISTORISK UNDERSØGELSE AF DE EKSPERIMENTELLE FORUDSÆTNINGER FOR RUTHERFORDS ATOMMODEL".
Projektrapport af Niels Thor-Nielsen.
Vejleder: Bent C. Jørgensen.

45/82

46/82 "EKSEMPLARISK UNDERVISNING OG FYSISK ERKENDELSE - I+II ILLUSTRERET VED TO EKSEMPLER".
Projektrapport af Torben O. Olsen, Lasse Rasmussen og Niels Dreyer Sørensen.
Vejleder: Bent C. Jørgensen.

47/82 "BARSEBACK OG DET VÆRST OFFICIELT-TÆNKELIGE UHELD".
ENERGY SERIES NO.5.
Bent Sørensen.

48/82 "EN UNDERSØGELSE AF MATEMATIKUNDERVISNINGEN PÅ ADGANGSKURSUS TIL KØBENHAVNS TEKNIKUM".
Projektrapport af Lis Eilertzen, Jørgen Karrebæk, Troels Lange, Preben Norregaard, Lissi Pedersen, Laust Rishøj, Lill Ron, Isac Showiki.
Vejleder: Mogens Niss.

49/82 "ANALYSE AF MULTISPEKTRALE SATELLITBILLEDER".
Projektrapport af Preben Norregaard.
Vejledere: Jørgen Larsen & Rasmus Ole Rasmussen.

50/82 "HÆRSLEV - MULIGHEDER FOR VEDVARENDE ENERGI I EN LANDSBY". ENERGY SERIES NO.6.
Rapport af Bent Christensen, Bent Hove Jensen, Dennis B. Møller, Bjarne Laursen, Bjarne Lillethorup og Jacob Mørch Pedersen.
Vejleder: Bent Sørensen.

51/82 "HVAD KAN DER GØRES FOR AT AFHJÆLPE PIGERS BLOKERING OVERFOR MATEMATIK?"
Projektrapport af Lis Eilertzen, Lissi Pedersen, Lill Ron og Susanne Stender.

52/82 "DESUSPENSION OF SPLITTING ELLIPTIC SYMBOLS"
Bernhelm Booss & Krzysztof Wojciechowski.

53/82 "THE CONSTITUTION OF SUBJECTS IN ENGINEERING EDUCATION".
Arne Jakobsen & Stig Andur Pedersen.

54/82 "FUTURES RESEARCH" - A Philosophical Analysis of Its Subject-Matter and Methods.
Stig Andur Pedersen & Johannes Witt-Hansen.

- 55/82 "MATEMATISKE MODELLER" - Litteratur på Roskilde
Universitetsbibliotek.
En bibliografi.
Else Høyrup.
- 56/82 "ÉN - TO - MANGE" -
En undersøgelse af matematisk økologi.
Projektrapport af Troels Lange.
Vejleder: Anders Madsen.
-
- 57/83 "ASPECT EKSPERIMENTET" -
Skjulte variable i kvantemekanikken?
Projektrapport af Tom Juul Andersen.
Vejleder: Peder Voetmann Christiansen.
- 58/83 "MATEMATISKE VANDRINGER" - Modelbetragtninger
over spredning af dyr mellem småbiotoper i
agerlandet.
Projektrapport af Per Hammershøj Jensen &
Lene Vagn Rasmussen.
Vejleder: Jørgen Larsen.
- 59/83 "THE METHODOLOGY OF ENERGY PLANNING".
ENERGY SERIES NO. 7.
Bent Sørensen.
- 50/83 "MATEMATISK MODEKSPERTISE" - et eksempel.
Projektrapport af Erik O. Gade, Jørgen Karrebæk og
Preben Norregaard.
Vejleder: Anders Madsen.
- 51/83 "FYSIKS IDEOLOGISKE FUNKTION", som et eksempel på
en naturvidenskab - historisk set.
Projektrapport af Annette Post Nielsen.
Vejledere: Jens Høyrup, Jens Højgaard Jensen og
Jørgen Vogelius.
- 52/83 "MATEMATISKE MODELLER" - Litteratur på Roskilde
Universitetsbibliotek.
En bibliografi. 2. rev. udgave
Else Høyrup
- 53/83 "CREATING ENERGY FUTURES: A SHORT GUIDE TO
ENERGY PLANNING".
ENERGY SERIES No. 8
David Crossley & Bent Sørensen
- 54/83 "VON MATHEMATIK UND KRIEG".
Bernhelm Booss og Jens Høyrup
- 55/83 "ANVENDT MATEMATIK - TEORI ELLER PRAKSIS".
Projektrapport af Per Hedegård Andersen, Kirsten
Håbekost, Carsten Holst-Jensen, Annelise von Moos,
Else Marie Pedersen, Erling Møller Pedersen.
Vejledere: Bernhelm Booss & Klaus Grünbaum
- 56/83 "MATEMATISKE MODELLER FOR PERIODISK SELEKTION I
ESCHERICHIA COLI".
Projektrapport af Hanne Lisbet Andersen, Ole
Richard Jensen og Klavs Frisdahl.
Vejledere: Jørgen Larsen og Anders Hede Madsen
- Vedr. tekst nr. 55/82:
Se også tekst 62/83.
- Nr. 57 er udgået.

- 67/83 "ELIPSOIDE METODEN - EN NY METODE TIL LINEÆR PROGRAMMERING?"
Projektrapport af Lone Biilmann og Lars Boye
Vejleder: Mogens Brun Heefelt
- 68/83 "STOKASTISKE MODELLER I POPULATIONSGENETIK"
- til kritikken af teoriladede modeller.
Projektrapport af Lise Odgård Gade, Susanne Hansen, Michael Hviid, Frank Mølgård Olsen.
Vejleder: Jørgen Larsen.
- 69/83 "ELEVFORUDSÆTNINGER I FYSIK"
- en test i l.g. med kommentarer
Albert Chr. Paulsen
- 70/83 "INDLÆRINGS- OG FORMIDLINGSPROBLEMER I MATEMATIK PÅ VOKSEHUNDERVISNINGSNIVEAU"
Projektrapport af Hanne Lisbet Andersen, Torben J. Andreasen, Svend Age Houmann, Helle Glerup Jensen, Keld Fl. Nielsen, Lene Vagn Rasmussen.
Vejleder: Klaus Grünbaum & Anders H. Madsen
- 71/83 "PIGER OG FYSIK"
- et problem og en udfordring for skolen?
Karin Beyer, Sussanne Blegaa, Birthe Olsen, Jette Reich & Mette Vedelsby
- 72/83 "VERDEN IFOLGE PEIRCE" - to metafysiske essays, om og af C.S. Peirce.
Peder Voetmann Christiansen
- 73/83 "EN ENERGIANALYSE AF LANDBRUG"
- økologisk contra traditionelt
ENERGY SERIES No. 9
Specialeopgave i fysik af Bent Hove Jensen
Vejleder: Bent Sørensen
-
- 74/84 "MINIATURISERING AF MIKROELEKTRONIK" - om videnskabeliggjort teknologi og nytten af at lære fysik
Projektrapport af Bodil Harder og Linda Szkotak Jensen.
Vejledere: Jens Højgaard Jensen og Bent C. Jørgensen
- 75/84 "MATEMATIKUNDERVISNINGEN I FREMTIDENS GYMNASIUM"
- Case: Lineær programmering
Projektrapport af Morten Blomhøj, Klavs Frisdahl, Frank Mølgård Olsen
Vejledere: Mogens Brun Heefelt & Jens Bjørneboe
- 76/84 "KERNEKRAFT I DANMARK?" - Et høringsvar indkaldt af miljøministeriet, med kritik af miljøstyrelsens rapporter af 15. marts 1984.
ENERGY SERIES No. 10
Af Niels Boye Olsen og Bent Sørensen
- 77/84 "POLITISKE INDEKS - FUP ELLER FAKTA?"
Opinionsundersøgelser belyst ved statistiske modeller
Projektrapport af Svend Age Houmann, Keld Nielsen, Susanne Stønder
Vejledere: Jørgen Larsen & Jens Bjørneboe

ISSN 0106-6242