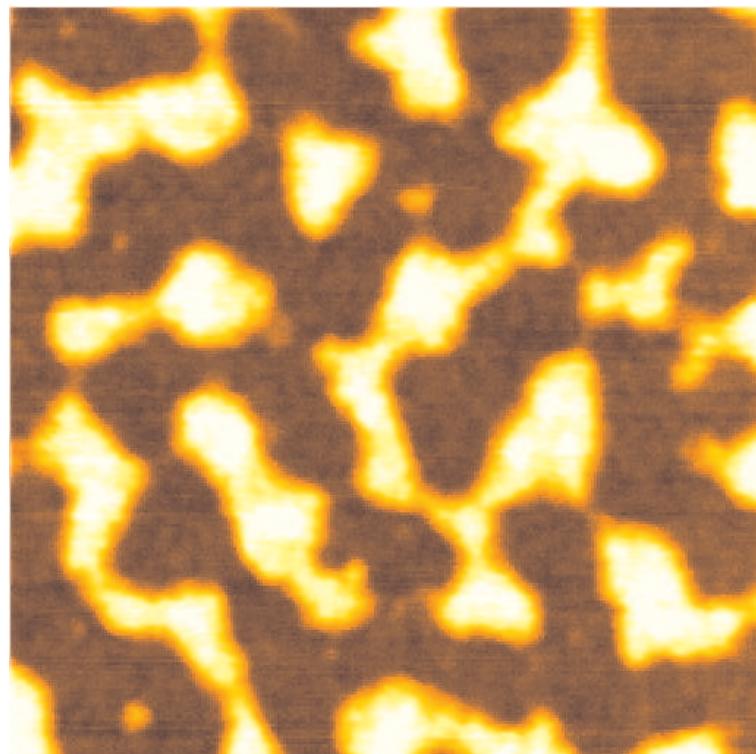


# **Jahresbericht 2001**

**des Lehrstuhls Prof. Dr. W. Petry  
Physik Department E13**



**Technische Universität München**

Lehrstuhl Prof. Dr. W. Petry  
Lehrstuhlvertreter 2000/2001:  
Prof. Dr. H. Schober  
Lehrstuhlvertreter 2001/2002:  
Prof. Dr. A. Schulte  
Physik Department E13  
Technische Universität München  
James-Franck-Straße  
D-85748 Garching

Tel.: 089 289 12452  
Fax: 089 289 12473

Email: [wpetry@ph.tum.de](mailto:wpetry@ph.tum.de)  
[aschulte@ph.tum.de](mailto:aschulte@ph.tum.de)  
WWW: <http://www.e13.physik.tu-muenchen.de>

Oberflächenstruktur eines sub-monomolekularen Diblock-Copolymerfilms gemessen mit dem neuen Rasterkraftmikroskop von E13 (Autoprobe CP Research) im Nichtkontakt-Modus. In dem dargestellten Gebiet ( $500 \times 500 \text{ nm}^2$ ) können Lamellen aufgelöst werden, die senkrecht zur Oberfläche orientiert sind. Der Nichtkontakt-Modus ist wegen der Weichheit des Polymers erforderlich.

## Vorwort

Die folgenden Seiten geben einen Bericht über die Aktivitäten des Lehrstuhls E13 in den vergangenen zwölf Monaten. Alle Institutsmitglieder können wieder auf ein produktives Jahr in den Bereichen Forschung, Lehre und Dienstleistung zurückblicken. Ein wissenschaftlicher und organisatorischer Höhepunkt war die International Conference on Neutron Scattering (ICNS'01) an der Technischen Universität München, an der unser Lehrstuhl unter der Führung von Professor Petry wesentlich beteiligt war. Mehr als 850 Wissenschaftler aus 37 Ländern nahmen teil und präsentierten an die 1000 Beiträge. Das große Interesse an diesem internationalen Forum dokumentiert einmal mehr die dringende Notwendigkeit der baldigen Inbetriebnahme der neuen Neutronenquelle FRM-II.

Die in den einzelnen Beiträgen dargestellten Ergebnisse zeigen, dass die Dynamik kondensierter Materie noch reizvolle Fragestellungen bietet. So wurde mit Lichtstreuexperimenten in der einfachen Flüssigkeit Benzol bis zum Siedepunkt strukturelle Relaxation beobachtet, die derjenigen von glasbildenden Flüssigkeiten ähnlich ist. Dominierende Forschungsthemen sind weiterhin Systeme mit Unordnung wie Gläser, Metallschmelzen und Flüssigkeiten bis hin zu den Polymeren und Biopolymeren. Messungen der Dynamik zäher Alkalischmelzen erweisen sich auch für das Verständnis magmatischer Prozesse im Erdinnern als relevant. Fragestellungen des Transports und der Schwingungsanregungen in ungeordneten Systemen werden von der Theoriegruppe sehr aktiv bearbeitet. Im Bereich der biologischen Physik gilt besonderes Augenmerk dem Verhalten von Proteinen und ihren Funktionseinheiten unter hohem Druck. Diese Thematik ist interdisziplinär in eine DFG-Forschergruppe am Life Science Center der TU München in Weihenstephan eingebunden. Erfreulich ist auch die recht erfolgreiche Einwerbung von Drittmitteln.

Im Bereich der Instrumentierung wurden die am Lehrstuhl etablierten Streumethoden durch Anschaffung eines Step-Scan-FTIR-Spektrometers und eines Raster-Kraftmikroskops erweitert. Damit eröffnen sich einerseits neue experimentelle Möglichkeiten, Konformationsänderungen in biologischen Systemen spektral und zeitaufgelöst zu verfolgen; andererseits können direkte Abbilder von weicher Materie auf Nanoskalen erzeugt werden. E13-Mitarbeiter sind an innovativen Entwicklungen an Großforschungseinrichtungen (z. B. nukleare Streuung an der European Synchrotron Radiation Facility) beteiligt. Eine wichtige Rolle spielen auch Entwicklung und Bau von neuen Instrumenten für den FRM-II. Hier erweist sich immer wieder der große Wert einer hervorragend arbeitenden Werkstatt.

Im Ausbau des Gebietes der weichen Materie ist das Berufungsverfahren zur Besetzung einer C3-Professur in vollem Gang. Im Oktober gab es hierzu eine Serie eingeladener Vorträge, die auf hohem Niveau Faszination und Reichweite dieser Fachrichtung demonstrierten. In der Lehre war unser Institut durch ein breit gefächertes Studienangebot vertreten. Dies reichte von Physik-Kursvorlesungen über Spezialvorlesungen wie Physik mit Neutronen, Polymerphysik und Physik mit dem Computer bis zur Ausrichtung der attraktiven Fortbildungsveranstaltungen für Physiklehrer an Gymnasien. Diese Edgar-Lüscher Seminare konnten heuer ihr 25-jähriges Jubiläum feiern.

Persönlich möchte ich allen E13-Mitarbeitern, wissenschaftlichen wie nicht wissenschaftlichen, alten wie neuen, für die freundliche Aufnahme und Unterstützung als Vertretung von Professor Petry danken. Sie bilden eine hervorragende Crew zur Bewältigung der anstehenden Aufgaben.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1 Instrumentelle Entwicklungen und Auswertungsmethoden</b>	<b>1</b>
1.1 Das PUMA, thermisches Dreiachsenspektrometer am Strahlrohr SR7 des FRM-II . . . . .	1
1.2 Das Flugzeitspektrometer TOF-TOF mit kalten Neutronen am FRM-II . . . . .	2
<b>2 Polymere</b>	<b>7</b>
2.1 Diblock copolymers confined into isolated pancake shaped droplets . . . . .	7
2.2 Destabilisation mechanisms of thin diblock copolymer films . . . . .	9
2.3 Grazing incidence small angle x-ray scattering: Comparison of the USAX and SAXS set-up . . . . .	11
2.4 Tackiness of polymer surfaces . . . . .	14
2.5 Scanning-microfocus SAXS as a tool to investigate failure at polymer interfaces . . . . .	16
2.6 Polymer blend films with various length scales . . . . .	18
2.7 Off-specular neutron scattering studies of the interface and surface formation in self-assembled polymer multilayers . . . . .	20
<b>3 Dynamik geordneter Kristalle</b>	<b>24</b>
3.1 Anharmonic phonons in FeNi alloys . . . . .	24
3.2 Phononenzustandsdichte in der Nähe eines martensitischen Phasenübergangs in geordnetem Fe <sub>3</sub> Pt . . . . .	26
<b>4 Dynamik in Gläsern und unterkühlten Flüssigkeiten</b>	<b>29</b>
4.1 Glasdynamik bis zum Siedepunkt einer einfachen Flüssigkeit: Lichtstreuung an Benzol . . . . .	29
4.2 Struktur und Dynamik zäher Alkalisilikatschmelzen . . . . .	32
4.3 Atomarer Transport in massivglas–bildenden Metallschmelzen . . . . .	35
4.4 Phonons in confinement and the Boson peak using nuclear inelastic absorption	37
4.5 SRPAC – a new method to study hyperfine interactions and dynamics in soft matter . . . . .	39
4.6 Quasielastic scattering by time domain interferometry: Comparison of the quantum beat and the radiative coupling regimes . . . . .	42

<b>5 Dynamik von Biomolekülen</b>	<b>46</b>
5.1 Druckassoziation und -dissoziation von Proteinen . . . . .	46
5.2 Kinetik der Ligandenbindung von CO- Myoglobin unter Hochdruck . . . . .	48
5.3 Structure and dynamics of crowded protein solutions . . . . .	49
5.4 Structure of protein solutions at the pressure stability limit . . . . .	50
5.5 Interhelix fluctuations in bacteriorhodopsin . . . . .	51
<b>6 Theorie ungeordneter Festkörper</b>	<b>52</b>
6.1 Vektor-CPA zur Berechnung von Schwingungsspektren in ungeordneten Festkörpern . . . . .	52
6.2 Feldtheoretische Beschreibung der anomalen Schwingungseigenschaften von Gläsern . . . . .	54
<b>7 International Conference on Neutron Scattering 9.-13. 9. 2001</b>	<b>57</b>
<b>8 Fortbildungsveranstaltung für Gymnasiallehrer</b>	<b>76</b>
<b>9 Allgemeine Zusammenstellungen</b>	<b>77</b>
9.1 Veröffentlichungen . . . . .	77
9.2 Poster . . . . .	81
9.3 Auswärtige Vorträge von Institutsmitgliedern . . . . .	85
9.4 Eingeladene Vorträge an unserem Institut . . . . .	89
9.5 Diplomarbeiten . . . . .	90
9.6 Doktorarbeiten . . . . .	90
9.7 Mitarbeiter und Gäste . . . . .	91

# 1 Instrumentelle Entwicklungen und Auswertungsmethoden

## 1.1 Das PUMA, thermisches Dreiaachsenspektrometer am Strahlrohr SR7 des FRM-II

P. Link<sup>1</sup>, J. Neuhaus, G. Eckold<sup>1</sup>, W. Petry

<sup>1</sup> Institut für Physikalische Chemie, Georg-August Universität Göttingen

Wir berichteten zuletzt im Jahresbericht des Jahres 1998 über das sich damals in Planung befindliche Spektrometer, welches von der Arbeitsgruppe Eckold des Instituts für physikalische Chemie (IPC) der Universität Göttingen in Kooperation mit dem Lehrstuhl E13 (J. Neuhaus) aufgebaut wird. Finanziert wird dieses Spektrometer durch ein Förderprojekt des BMBF. Wesentlich in der Zielsetzung für dieses Gerät waren die konsequente Nutzung der Fokussierungstechniken zur Intensitätssteigerung bei gleichzeitig bestmöglicher Anpassbarkeit der Geräteauflösung. Daneben sollte durch Optimierung der Strahlführung und dem Einsatz eines Geschwindigkeitsselektors als  $\lambda/2$  Filter ein vergleichsweise niedriger Untergrund erreicht werden.

Diesen Zielen Rechnung tragend, wurden in den vergangenen drei Jahren alle wesentlichen Komponenten des Spektrometers konzipiert und hergestellt. Hierbei wurde sowohl in Kooperation mit Firmen, als auch durch eine Reihe eigener Entwicklungen und Neukonstruktionen eine dem Stand der Technik entsprechende Ausstattung des Geräts erreicht. In Abbildung 1.1.1 ist eine CAD- Darstellung des Instruments zu sehen. Abbildung 1.1.2 zeigt einen Schnitt auf Strahlhöhe.

Zur optimalen Nutzung eines doppelt-fokussierenden Monochromators wurde die Geometrie des Strahlrohrschaftes angepasst und eine horizontal kontinuierlich einstellbare Blende als virtuelle Quelle in den Strahlverschluss integriert. Die Abschirmung des Primärspektrometers, dessen Wandstärke und Materialzusammensetzung durch Monte-Carlo Simulationen bestimmt wurde, beherbergt neben dem Monochromator und seinem 4fach Wechselmagazin, auch den Geschwindigkeitsselektor, sowie Kollimatoren vor und nach dem Monochromator. Der Geschwindigkeitsselektor ist für Nutzwellenlängen von bis zu 1 Å ausgelegt und schränkt die Strahldivergenz vor dem Monochromator nicht ein. Dieses Gerät, von seinen Leistungsdaten derzeit unerreicht, wird von der Fa. Astraum hergestellt. In Weiterentwicklung bestehender Systeme wurde in Zusammenarbeit mit A. Urban (FRM-II) ein neuartiger Monochromatorkristallhalter für 117 Monochromatorkristalle (PG002) entwickelt und gefertigt. Er erlaubt es unabhängig voneinander die horizontale und die vertikale Krümmung kontinuierlich einzustellen. Der mechanische Unterbau des Kristallhalters, Wechsleinrichtungen für die Kollimatoren und ein Wechselmagazin für 4 Kristallhalter wurden von der Mechanikwerkstatt des IPC gebaut. Alle Einheiten sind rechnergestützt steuerbar.

Der Probentisch wurde von den Firmen Huber und AZ-Systems nach unseren Vorgaben konstruiert und hergestellt. Er besteht aus einem 430mm hohen, auf Luftfüssen gelagerten Grundmodul, das aus den beiden Drehachsen und einer Längsverstellung besteht,

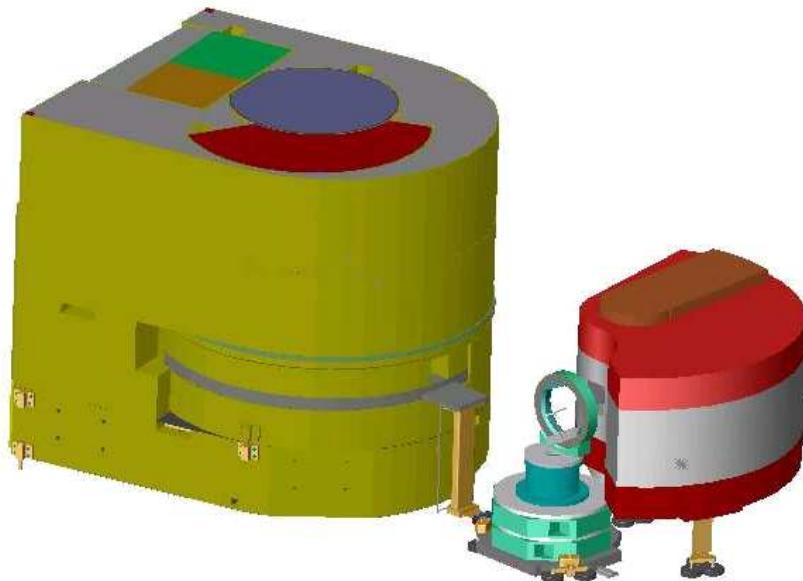


Abbildung 1.1.1:  
CAD Darstellung des Geräts, von links: Abschirmburg, Probentisch und Analysator-Detektorgehäuse

sowie aus zwei wahlweise verwendbaren Aufsätzen, nämlich einer Eulerwiege, bzw. einem Doppelgoniometer mit Kreuztischeinheit. Letztere ist so ausgelegt, dass auch schwere Probenumgebungen, wie z.B. Kryomagnete verwendet werden können.

Analysator und Detektor sind in einem gemeinsamen Abschirmgehäuse untergebracht. Entscheidend hierfür war die Flexibilität in der Anordnung des Detektors. In der Erstausstattung sind zunächst wenige  $^3\text{He}$ -Zählrohre in einem zusätzlichen Abschirmgehäuse vorgesehen, welches auf einer Fahrplatte um den Analysator gedreht werden kann. Das Konzept berücksichtigt bereits die zukünftige Ausstattung mit einem Multi-Analysator-Detektorsystem.

In den kommenden Monaten werden die Baugruppen des Spektrometers zusammengefügt und die Steuerungssoftware vervollständigt. Die Steuerung des PUMA beruht auf dem am FRM-II verwendeten TACO Client-Serverkonzept zur Hardware-ansteuerung. Die Benutzerschnittstelle wird mit Hilfe der Programmiersprache Python mit vorgefertigten Modulen für wiederkehrende Operationen am Gerät realisiert, so dass der Nutzer sowohl den vollen Befehlsumfang einer modernen Programmiersprache als auch die spektrometertypischen Befehle zum Erstellen von Messprogrammen nutzen kann. Nach heutigem Kenntnisstand ist zu erwarten, dass das PUMA bei Aufnahme des Routinebetriebs am FRM-II zur Verfügung steht.

## 1.2 Das Flugzeitspektrometer TOF-TOF mit kalten Neutronen am FRM-II

A. Zirkel<sup>1</sup>, J. Ringe<sup>2</sup>, J. Neuhaus<sup>2</sup>, W. Petry

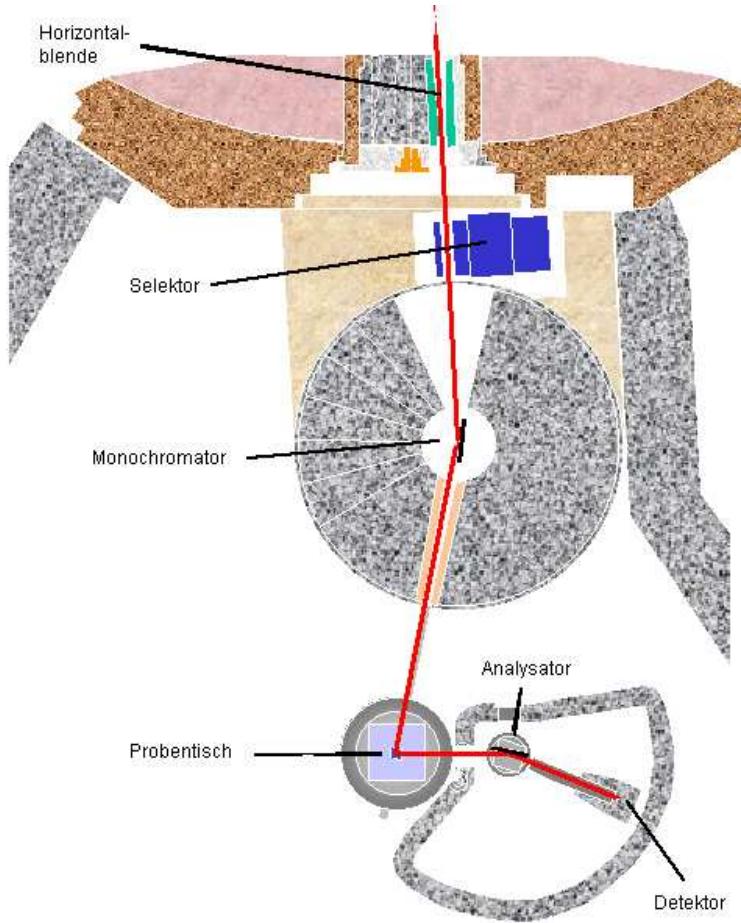


Abbildung 1.1.2:  
Schematische  
Darstellung des  
Spektrometers

<sup>1</sup> jetzt Carl Zeiss Semiconductor Manufacturing Technologies AG, Oberkochen  
<sup>2</sup> E13 und Neue Forschungs-Neutronenquelle, Zentrale Wissenschaftliche Einheit

Der Lehrstuhl E13 baut am FRM-II ein Flugzeitspektrometer für Messungen mit kalten Neutronen auf. Das Gerät wird gemeinsam mit dem Neutronenreflektormeter REFSANS den Neutronenleiter NL-2 nutzen. Typische Einsatzgebiete werden die Glasdynamik, die innere Dynamik von Proteinen und Polymeren und Anregungen in Quantenflüssigkeiten, magnetische Anregungen und Spektroskopie von Katalysatoren sein.

Die Auslegung des Instruments mit Monte-Carlo-Methoden einschliesslich der Berechnungen der elastischen und inelastischen Auflösung ist in den vergangenen Jahresberichten eingehend beschrieben worden. Hier sollen die Fortschritte der beiden Baugruppen Primärspektrometer und Sekundärspektrometer beschrieben werden.

## Das Primärspektrometer

### Das Choppersystem

Schwerpunkt beim Choppersystem war auch in diesem Jahr die Weiterentwicklung der schnell rotierenden Chopperscheiben. Zur Steigerung der Energieauflösung sollen Chop-



Abbildung 1.2.1:  
Testscheibe mit natürlichem Bor

perscheiben mit einer maximalen Drehzahl von etwa 26000 U/min verwendet werden. Diese Scheiben werden in Zusammenarbeit mit dem Lehrstuhl für Leichtbau (LLB) der TUM entwickelt. Sie bestehen aus kohlefaserverstärktem Verbundmaterial (CFK). Dadurch kann die maximale Drehzahl um etwa 25% gegenüber optimiertem Aluminium gesteigert werden, was wiederum, in Abhängigkeit von der Wellenlänge die Auflösung um bis zu 30% verbessert. Der Durchmesser der Scheiben beträgt 600 mm.

Das Enddesign der Scheiben ist in diesem Berichtsjahr fertiggestellt worden. Nach umfangreichen Test hat sich gezeigt, dass die Option mit zwei verschiedenen Schlitzgrößen sowohl beim pulsierenden als auch beim monochromatisierenden Chopperpaar realisiert werden kann. Abbildung 1.2.1 zeigt den Prototyp des M-Paars im endgültigen Design. Dass diese Option auch bautechnisch realisierbar ist, macht das Instrument zum vielseitigsten seiner Art. Das Verhältnis zwischen Auflösung und Intensität kann somit in weiten Bereichen eingestellt werden.

Beschichtet werden die Scheiben mit hochangereichertem Bor (ca. 96%  $^{10}\text{B}$ ) als Neutronenabsorber. Auch hier waren viele Tests nötig, um die Realisierbarkeit zu gewährleisten. Die komplette Serie von insgesamt 10 Scheiben wird Anfang 2002 ausgeliefert werden. Ein Dauertest der Scheiben unter Vollast steht noch aus.

### **Das NL-System**

Die Firma S-DH hat im Mai 2001 das Wechselleitersystem geliefert, mit dem das letzte Stück des Neutronenleiters optional gegen einen Kollimator ausgetauscht werden kann. Weiterhin sind die sogenannten  $m = 2$ -Beschichtungen der Glasplatten im Berichtsjahr abgeschlossen worden. Die Reflektivitäten liegen dabei teilweise über den Spezifikationen

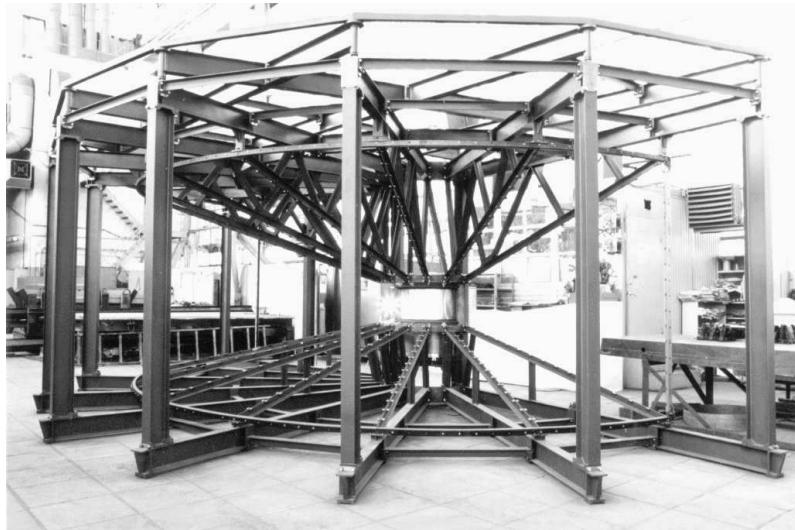


Abbildung 1.2.2: Aufbau des Sekundärspektrometers am JINR

von  $R=0.88$ , wie Bild 1.2.2 zeigt. Die fokussierenden Abschnitte mit höheren Reflektionswinkeln ( $m > 3$ ) sind noch nicht gefertigt. Das gesamte NL-System soll bis Mitte 2002 in der NL-Halle aufgebaut werden.

## Das Sekundärspektrometer

### Flugkammer und Probenkammer

Der Bau des gesamten Sekundärspektrometers (Flugkammer, Probenkammer, Gerüst für PE-Platten etc.) wurde im Mai 2001 an die Zentralwerkstatt des Joint Institute of Nuclear Research (JINR), Dubna vergeben. Die Fertigung wurde im Berichtsjahr abgeschlossen. Abbildung 1.2.2 zeigt den Probeaufbau in der Zentralwerkstatt des JINR in Dubna. Im Januar 2002 wird das komplette Sekundärspektrometer nach Garching geliefert und in der NL-Halle aufgebaut.

### Detektoren und Detektorracks

Der Auftrag zum Bau von 500  ${}^3\text{He}$ -Zählrohren wurde an die Firma Canberra-Eurisys vergeben. Dem Auftrag vorausgegangen waren umfangreiche Tests von Herrn Zeitelhack vom FRM-II an neuartigen Zählrohren, gefertigt von potentiellen Lieferanten gemäß unseren Spezifikationen. Endgültig bestellt wurden gequetschte Zählrohre mit einer aktiven Länge von 400 mm, einer Tiefe von etwa 15 mm und einem Fülldruck von 10 bar (9,7 bar  ${}^3\text{He}$  und 0,3 bar  $\text{CF}_4$ ). Es hat sich herausgestellt, dass diese neuartigen Rohre insbesondere bei kurzen Wellenlängen eine deutlich verbesserte Nachweiswahrscheinlichkeit gegenüber Standard 6-bar-Zählrohren aufwiesen.

Die Detektorracks wurden von der Zentralwerkstatt des Physikdepartments und der E13-Werkstatt gebaut. 31 Aluminiumplatten bilden das Traggerüst für die Detektoren, die auf Debye-Scherrer-Kegeln auf diesen angeordnet sind. Abbildung 1.2.3 zeigt ein solches Detektorrack im Aufbau.

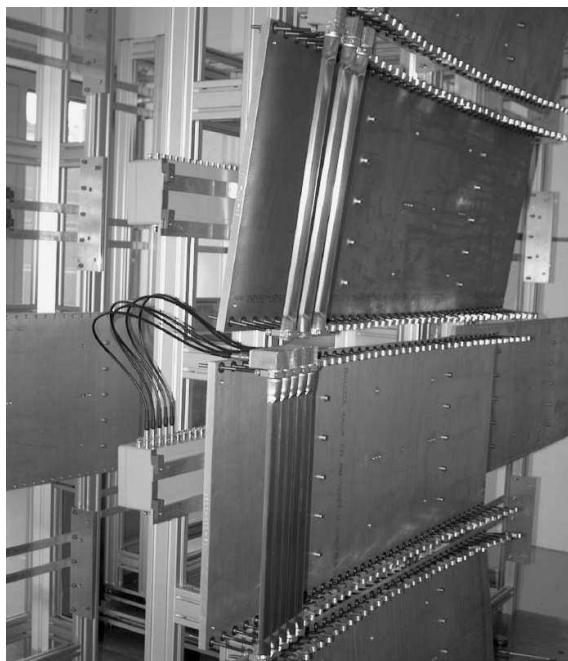


Abbildung 1.2.3:  
Detektorracks mit Canberra-Eurisys  
Zählrohren und Vorverstärkerelektronik  
im Testaufbau

## 2 Polymere

### 2.1 Diblock copolymers confined into isolated pancake shaped droplets

P. Müller-Buschbaum, R. Cubitt<sup>1</sup>, W. Petry

<sup>1</sup> ILL, Grenoble (France)

Usually experimental investigations of polymers consider chains in the bulk. In terms of applications this is the most natural situation; however, many recent high-tech applications demand low-dimensional polymer systems. In thin films the deviation from bulk behaviour increases with decreasing film thickness. With decreasing film thickness, the spatial restriction gets a growing influence on the physical properties of the polymer films. Polymers confined in spaces smaller or comparable to their typical dimensions, like the radius of gyration of the unperturbed chain, dramatically differ in important physical properties from the equivalent bulk material. Changes result from structural deviations in the conformation as well as in modified dynamics. Many theoretical as well as experimental investigations are limited to amorphous homopolymers which depict the most simple system for fundamental questions. In addition to the pure topological constraint, the interaction between polymer molecules and the boundary atoms get of growing importance. Thus turning from homopolymer systems towards more complex systems like polymer blends or diblock copolymers increases the degree of complexity. In addition further processes like microphase separation [1] become possible in case of diblock copolymer films. The thin film geometry favours the creation of lamellae in contrast to the bulk system. The lamellae in thin films are typically oriented parallel to the solid support [2]. With decreasing film thickness the confinement gives rise to an interplay between the intrinsic length scale of the bulk structure and the geometry of the film. Consequently, transitions between phases of identical symmetry but different orientation with respect to the confining walls become energetically possible, and lamellar domains reorient from a parallel to a perpendicular arrangement [3]. With respect to applications these arrays of nanoscopic structures with a controlled spatial orientation of the micro-domains are desirable. The perpendicular arrangement especially attracts considerable attention due to its potential use for nano-lithographic templates.

In general, polymer chains in a thin film geometry tend to orient parallel to the substrate surface. Chains in a region close to the wall have a tendency to an elongated, flattened structure. The structural deviations from the bulk behaviour become more pronounced with decreasing film thickness and temperature. However, a thin film introduces only a spatial restriction in one direction. One way to introduce a second spatial constraint is the replacement of a thin film by a drop structure. Experimentally this is realised by preparing pancake shaped droplet structures on top of a solid support. Due to the asymmetries in the parameters defining the droplet shape (height  $\ll$  diameter) the imposed confinement is asymmetric as well. In addition to the inherent lengths introduced due to geometry, important length introduced by the diblock copolymer molecules are the radius of gyration and the bulk lamellar spacing. In terms of length scales the film thickness and the drop

diameter are key parameters. Comparing these parameters, it is evident that the mean drop diameters have to be below the optical resolution limit. Thus advanced scattering techniques are required to obtain a signal not dominated by the solid support. Because the amount of polymer is extremely small, the common transmission geometry is less advantageous and grazing incidence small angle scattering (GISAS) has to be applied. GISAS overcomes problems related with the small sample volume and the heterogeneity of the samples due to the drop structure [4]. The grazing incidence small angle x-ray scattering (GISAXS) measurements were performed at the BW4 USAX beamline of the DORIS III storage ring at HASYLAB/DESY in Hamburg. The selected wavelength was 0.138 nm. Due to the sample-detector distance of 12.12 m a high resolution was achieved. The grazing incidence small angle neutron scattering experiments (GISANS) were performed at the D22 beamline at the ILL (sample-detector distance 17.6 m and wavelength 0.7 nm). The beam divergence in and out of the plane of reflection was set by two entrance cross-slits. The scattered intensity was recorded with a two dimensional detector. At one fixed angle of incident the two-dimensional intensity distribution can be cut in several vertical and horizontal slices with respect to the sample surface. Vertical slices contain mainly scattering information from structures perpendicular to the sample surface, whereas horizontal slices contain only scattering contributions with an in-plane information. Thus for the investigation of surface morphologies we restrict ourselves to horizontal slices, which are frequently called 'out-of plane-scans'.

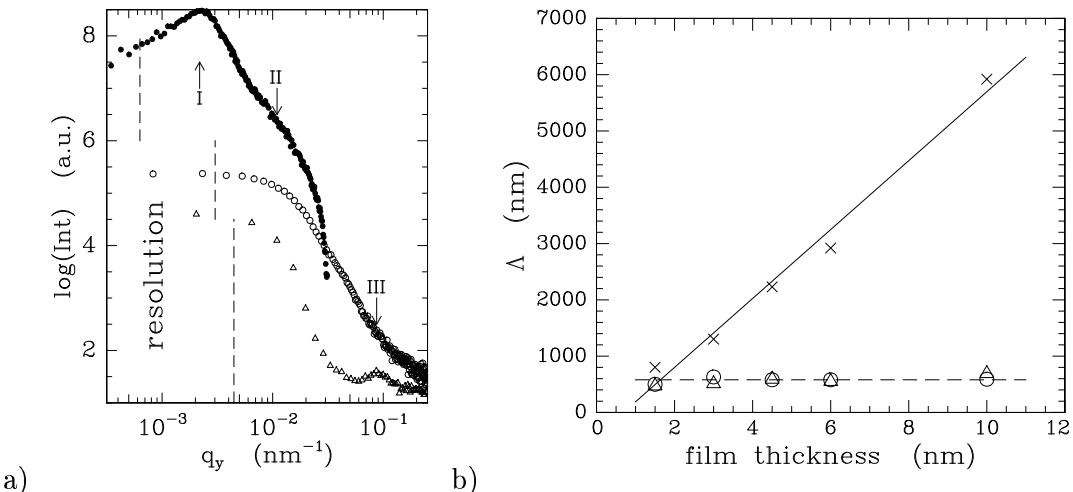


Figure 2.1.1:

- a) Out-of plane scans for surface structure determination as measured with AFM, x-ray and neutron techniques. b) Resulting most prominent in-plane length as a function of the originally prepared film thickness exhibiting two topographic lengths. [5]

Figure 2.1.1a exhibits a double logarithmic plot of horizontal slices from the two dimensional intensity distribution measured at poly(styrene-block-paramethylstyrene) diblock copolymer molecules confined into pancake shaped droplets (film thickness 6 nm). From top to bottom the measurements have been performed using AFM, x-rays and neutrons. The dashed lines indicate the resolution limits of these techniques. The position of cha-

racteristic peaks is marked with 'I', 'II' and 'III'. The data are shifted on the intensity axis for clarity. The structure factor corresponding to the droplet distance causes the peak at the position marked with 'I'. From the form factor of the smaller individual droplets the second peak marked with 'II' results. It is only weakly visible in the AFM data. The third peak (marked 'III') is only detectable with neutrons. Thus it results from contrast generated by deuteration of one block of the diblock copolymer. With x-rays due to the missing contrast between both blocks no substructure inside the droplets is detected [5]. Figure 2.1.1b shows lateral lengths L as a function of the initially homogeneous film thickness: The largest in-plane distances (related to peak 'I') only visible in the master curves calculated from the AFM data are plotted with crosses. The additionally observed most prominent in-plane lengths related to the peak marked 'II' are shown with circles (GIS-ANS), triangles (GISAXS) and filled circles (AFM). The solid line is a linear fit to the data, the dashed line a fit assuming a constant. Different structural features in these films thus depend very differently on film thickness.

- [1] I. W. Hamley, 'The Physics of Block Copolymers', Oxford University Press (1998)
- [2] S. H. Anastasiadis, T. P. Russell, S. K. Satija, C. F. Majkrzak; Phys. Rev. Lett. 62, 1852 (1989)
- [3] T. Geisinger, M. Müller, K. Binder; J. Chem. Phys. 111, 5241 (1999)
- [4] P. Müller-Buschbaum, J. S. Gutmann, M. Stamm, R. Cubitt, S. Cunis, G. von Krosigk, R. Gehrke, W. Petry; Physica B 283, 53 (2000)
- [5] P. Müller-Buschbaum, M. Wolkenhauer, O. Wunnicke, M. Stamm, R. Cubitt, W. Petry; Langmuir 17, 5567 (2001)

## 2.2 Destabilisation mechanisms of thin diblock copolymer films

P. Müller-Buschbaum, A. Zirkel, W. Petry, N. Hermsdorf<sup>1</sup>, G. Pfütze<sup>1</sup>, I. Tokarev<sup>1</sup>, P. Volodin<sup>1</sup>, M. Stamm<sup>1</sup>,

<sup>1</sup> Institut für Polymerforschung, Dresden

The stability of thin films on top of solid supports is important for many technological applications such as coatings, dielectrics or lubrication. Thus the destabilisation was investigated theoretically as well as experimentally for several different model systems. Two underlying mechanisms were proposed to give rise to the failure of film homogeneity. On the one hand nucleation and growth originating from material heterogeneities creates holes in the film which grow and destroy the film stability [1]. On the other hand thermal fluctuations at the film surface are amplified and above a critical fluctuation amplitude destabilise the homogeneous surface. The latter dewetting mechanism is called spinodal dewetting [2]. The capillary instability mechanism of the film break-up by thermal fluctuations is mathematically analogous to the spinodal decomposition in binary fluids, where decomposition fluctuations are replaced by height fluctuations. Experimental evidence for the break-up of films by spinodal dewetting was reported for thin liquid metal films, homopolymer films, soft-solid liquid crystal films or liquid crystal films. In contrast thin diblock copolymer films show basically no tendency towards destabilisation [3].

In most cases diblock copolymers are built-up from two not miscible polymers which are chemically linked together. In order to reduce the number of energetically unfavourable interactions between distinct blocks the molecules organise into complex morphologies. The morphology is selected by minimising the free energy for the built-up of internal interfaces compared to the conformational entropy to adopt this morphology. In thin films the internal interfaces are preferentially aligned parallel to the substrate surface. Thus a lamellar stack on top of the solid substrate is build up. With decreasing film thickness the spatial constraint gives rise to an interplay between the intrinsic length scale of the bulk structure and the geometry of the film. This leads to transitions between phases of identical symmetry but different orientation with respect to the confining walls. As an example lamellar domains reorient from a parallel to a perpendicular arrangement. Independent of the type of morphology installed the presence of additional internal interfaces prevents diblock copolymer films from destabilisation via spinodal dewetting. However, nucleation and growth still can force a film to break-up due to local defects [4]. Annealing above the microphase separation temperature offers a possibility to remove the internal stabilising morphology and to investigate the tendency towards film failure in the disordered phase.

As shown by simulations an investigation of final dewetting stages can provide no information about the underlying dewetting mechanism. The scaling behaviour of characteristic topographical features, like drop distances or drop diameters as a function of initially prepared film thickness, can give no insight into the kinetics, although the structures might be explainable within a spinodal dewetting model. Time dependent studies of the film break-up are required to give evidence for the failure mechanism. Thus in the present investigation we focus on the early stages of film destabilisation in thin diblock copolymer films. The annealing of the samples was performed in a vacuum furnace at a temperature well above the microphase separation temperature of the investigated diblock copolymer (e. g poly(styrene-block-paramethylstyrene) has a microphase separation temperature of 426 K). Thus the copolymer is annealed in its disordered state. After the chosen annealing time the samples were quenched down to room temperature, which is well below the glass transition temperature of both copolymers, and examined. The rather high molecular weight together with the annealing temperature chosen yield slow kinetics, which offer a possibility to detect the first stages of film rupture. Thereby annealing over more than 4000 hours was required to reach late dewetting stages.

The off-specular scattering experiments were performed at the BW4 USAX beamline of the DORIS III storage ring at HASYLAB/DESY in Hamburg. The sample was placed horizontally on a two-circle goniometer with a z-translation table. We used a set-up of high quality entrance slits and a completely evacuated pathway. At the selected wavelength 0.138 nm due to the sample-detector distance of 2.87 m with the two-dimensional detector consisting of a 512x512 pixel array one detector scan and several off-detector scans were measured together. At a fixed incident angle of 1.02° the prominent features in a detector scan, the specular as well as the Yoneda peak are well separated. Figure 2.2.1a shows examples of corresponding detector scans in the sample system poly(styrene-block-paramethylstyrene) [5]. The curves were shifted for clarity. With respect to the annealing times within the first 284.5 hours the film stays stable, which corresponds to an unchanged detector scan. With increasing annealing time the diffusely scattered intensity changes markedly. After 1874 hours of annealing no further changes were detected. A detailed data analysis is in progress. To obtain additional information the rms surface roughness was calculated from scanning force microscopy (SFM) data. From the x-ray reflectivity

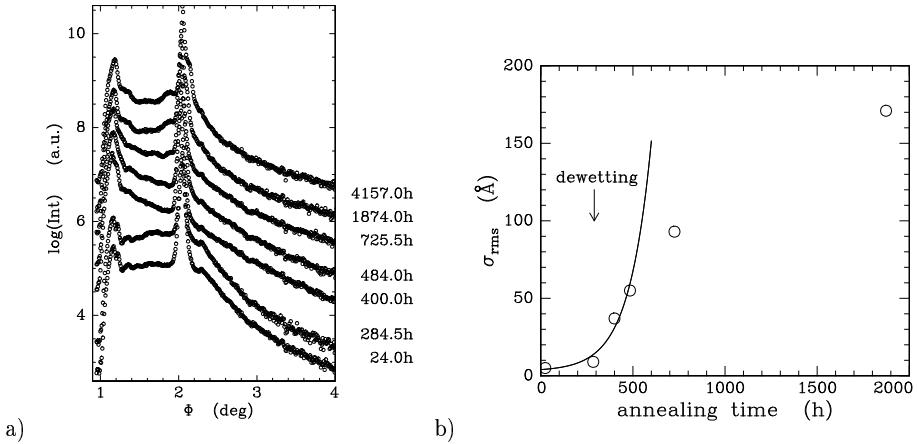


Figure 2.2.1:

a) Detector scans measured after different annealing times. b) Corresponding rms-surface roughness as determined with SFM as a function of the annealing time. [5]

data only the values at shorter annealing times are yielded, due to the drastic increase in surface roughness. Figure 2.2.1b shows the surface roughness as a function of annealing time [5]. After about 300 hours the surface roughness starts to increase significantly. For the initial stages of the dewetting the experimental data show a non-linear growth. The solid line in figure 1b follows an exponential growth in accordance with the predictions of the spinodal dewetting model. A slowing down of the exponential growth occurs when the total average height variation approaches half the film thickness as observed previously in homopolymer films as well. However, due to the limited number of data points other non-linear growth models cannot be excluded.

- [1] T. Kerle, R. Yerushalmi-Rozen, J. Klein, L. J. Fetters; *Europhys. Lett.* 44, 484 (1998)
- [2] F. Brochard-Wyart, J. Daillant; *Can. J. Phys.* 68, 1084 (1990)
- [3] T. L. Morkved, H. M. Jaeger; *Europhys. Lett.* 40, 643 (1997)
- [4] I. W. Hamley, E. L. Hiscutt, Y. W. Yang, C. Booth; *J. Colloid. Int. Sci.* 209, 255 (1999)
- [5] P. Müller-Buschbaum, J. S. Gutmann, C. Lorenz-Haas, O. Wunnicke, M. Stamm, W. Petry; *Macromolecules*, at press

### 2.3 Grazing incidence small angle x-ray scattering: Comparison of the USAX and SAXS set-up

P. Müller-Buschbaum, H. Kim<sup>1</sup>, M. Foster<sup>1</sup>, S. Cunis<sup>2</sup>, R. Gehrke<sup>2</sup>

<sup>1</sup> University of Akron, Dep. Polymer Science, Akron, OH 44325-3909 (USA)

<sup>2</sup> HASYLAB at DESY, Hamburg

Grazing incidence small angle x-ray scattering (GISAXS) can be understood as a transformation of the well known small angle x-ray scattering (SAXS) from the transmission geometry into a reflection geometry. In terms of surface sensitive scattering, GISAXS is the extension of the grazing incidence diffraction (GID) [1, 2] into the small angle regime. Consequently GISAXS is well suited for the investigation of mesoscopic surface structures. Compared to a transmission experiment the contribution of a supporting substrate is strongly reduced by the enhancement of surface sensitivity. In addition the geometric limitations imposed in the transmission geometry by the beam (and/or the beam stop) size are overcome in the reflection geometry.

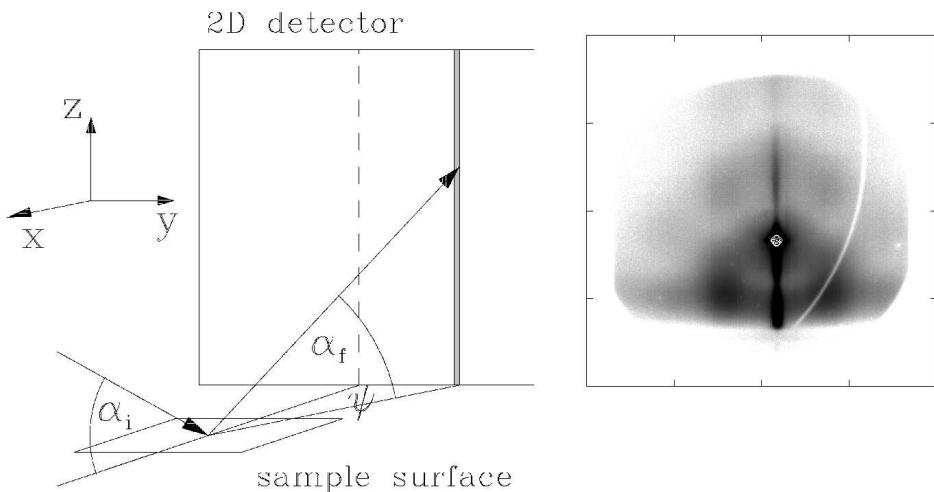


Figure 2.3.1:  
Schematic drawing of the GISAXS set-up (left) and possible resulting two-dimensional scattering distribution exhibiting the Yoneda and the specular peak (right).

The GISAXS measurements were performed at the BW4 USAX beamline of the DORIS III storage ring at HASYLAB/DESY in Hamburg. The selected wavelength was set to 0.138 nm. For further details concerning the beamline see [3]. The instrument is normally used in transmission geometry. With the installation of a two-circle goniometer with a z-translation table we employed a reflection geometry to realise diffuse x-ray scattering under the conditions of small-angle scattering with a set-up of high quality entrance slits and a completely evacuated pathway. The beam divergence in and out of the plane of reflection was set by two entrance cross-slits. At an incident angle of  $1^\circ$  the coherently illuminated length on the sample surface is approximately on the order of 500 mm and perpendicular to surface the coherence length is 8 mm. The non-specular as well as the specular intensity is recorded with a two-dimensional detector consisting of a 512x512 pixel array. For the SAXS configuration of the GISAXS measurement a sample-detector distance on the order of 3 m is chosen whereas the USAX configuration requires a distance of 12 m. Due to the fixed active area of the two-dimensional detector a switch from the SAXS to the USAX configuration corresponds to an increase of resolution on one hand but to a decrease of the accessible angular range on the other hand as well [4, 5].

At one fixed angle of incident the two-dimensional intensity distribution can be understood as an arrangement of several vertical and horizontal slices (with respect to the sample

surface). A schematic drawing is shown in In figure 2.3.1. Usually vertical slices correspond to 'detector scans' and 'off-detector scans' while horizontal slices correspond to so called 'out-of plane-scans'.

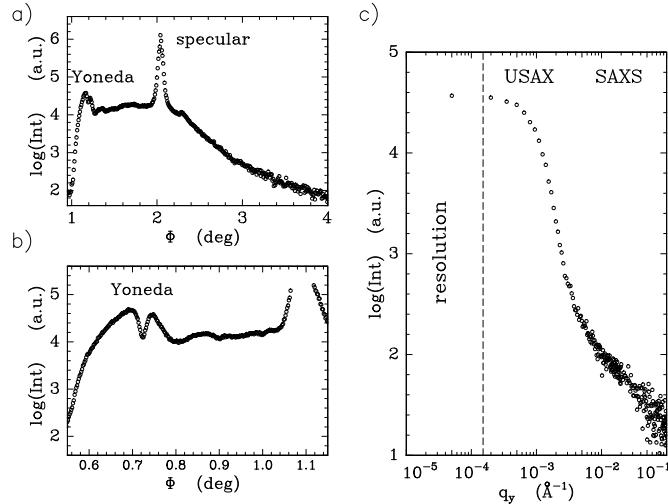


Figure 2.3.2:

a) Detector scan measured in the SAXS configuration of the GISAXS set-up at an angle of incidence of  $1.012^\circ$ . b) Corresponding detector scan measured with the USAX configuration at an angle of incidence of  $0.534^\circ$ . c) Out-of plane scan merged together from the SAXS and the USAX set-up.

In a common detector scan the sample is held fixed at one angle of incidence and the detector position is varied around the specular peak. In this type of scan the changes in the exit angle will mainly result in a change of  $q_z$  and only very small changes in  $q_x$ . The  $(xy)$ -plane denotes the sample surface and  $\vec{q} = (q_x, q_y, q_z)$  the scattering vector. In a  $q_x q_z$ -map a detector scan is a parabolic path through the reciprocal space, which cuts the Yoneda as well as the specular streak. In a typical scan both are visible as the specular and the Yoneda peak. The intensity depends on the roughness of the sample and the chosen incident angle. In figure 2.3.2 a) and b) show detector scans as measured in the SAXS and in the USAX configuration. With respect to the individual shape of the Yoneda peak the enhanced resolution in the USAX configuration enables a more detailed determination. In the out-of plane scan the in-plane morphology is probed by a direct determination of the power spectral density function as a function of  $q_y$ . In figure 2.3.2c shows a combination of these scans from the SAXS and the USAX configuration which increases the range of resolvable in-plane lengths. For the presented example in-plane distance from 5 nm up to 4150 nm would become detectable within a combined SAXS-USAX GISAXS experiment.

- [1] V. Holy, T. Baumbach; Phys. Rev. B 49, 10668 (1994)
- [2] T. Salditt, T. H. Metzger, J. Peisl, G. Goerigk; J. Phys. D: Appl. Phys. 28, A236 (1995)
- [3] R. Gehrke; Rev. Sci. Instrum. 63, 455 (1992)
- [4] P. Müller-Buschbaum, P. Vanhoorne, V. Scheumann, M. Stamm; Europhys. Lett. 40, 655 (1997)

- [5] P. Müller-Buschbaum, M. Casagrande, J. Gutmann, T. Kuhlmann, M. Stamm, S. Cunis, G. von Krosigk, U. Lode, R. Gehrke; *Europhys. Lett.* 42, 517 (1998)
- [6] P. Müller-Buschbaum, J. S. Gutmann, M. Stamm, R. Cubitt, S. Cunis, G. von Krosigk, R. Gehrke, W. Petry; *Physica B* 283, 53 (2000)

## 2.4 Tackiness of polymer surfaces

P. Müller-Buschbaum, T. Ittner, W. Petry

Controlling the tackiness of polymer surfaces is of great importance in many applications. The surface of a polymer painting or coating for example is ought not to be sticky. On the other hand high tack is desired in pressure sensitive adhesives, which are used in many day-to-day products as adhesive notes or labels. In order to improve the tack of polymer surfaces it is necessary to understand the mechanisms of bond formation and debonding between them. Tack between two substrates can be defined as the maximal tension force  $F_{max}$  the connection of the two materials can withstand before separation sets in. Another measurable quantity is the debonding energy  $W$  which is dissipated during the debonding process. One of the aims of the development of adhesives for technical applications consists in controlling and maximizing those two quantities. They can be observed experimentally by measuring the debonding force and the sample distance simultaneously during the debonding process. The debonding energy is obtained by an integrating of the area of the debonding force curve. The form of this curve additionally allows predictions about the debonding process. In glassy polymers the energy dissipation is due to crack formation and propagation along the substrate. In viscoelastic polymers above the glass transition temperature, another debonding process has been identified [1, 2]: As the material can flow slowly, the formation of fibrils causes a strong energy dissipation. The fibrils thereby transmit a remarkable bonding force between the substrates over a long distance while being elongated. Due to the hardening of the polymer material under tension, those fibrils become relatively stable and instead of simply being deformed, they are elongated by drawing new material out of the film without changing in diameter. This mechanism in particular was examined in our work [3].

Tacky polymer films were prepared by solvent casting on glass microscope slides. Prior to the final preparation, the slides were cleaned in ultrasonic sound baths using highly purified water, isopropanol, acetone and toluene as solvents. Afterwards they were dried in a dust free environment. Well defined quantities of solutions of the polymer poly-(n-butylacrylate) (PnBA) in toluene with known concentrations were next put on the horizontally aligned surfaces of the slides. After the evaporation of the solvent toluene, homogenous layers of PnBA were left on the substrates. Film thicknesses in a range from 1.8  $\mu\text{m}$  to 45  $\mu\text{m}$ , resulting from different polymer concentrations, were prepared. The debonding experiments were performed with a special designed tack apparatus. In contrast to commercial available instruments our machine enables the simultaneous measurement of forces and distances together with the observation of polymer fibrils with an optical microscope and with x-ray scattering experiments. Debonding forces up to 25 N can be measured with an accuracy of 40 mN. The probe and the tacky surface can be separated in steps of 2.5  $\mu\text{m}$  with a maximum speed up to 12.5 mm/s. A programmable electronic steering unit allows the execution of predefined debonding experiments

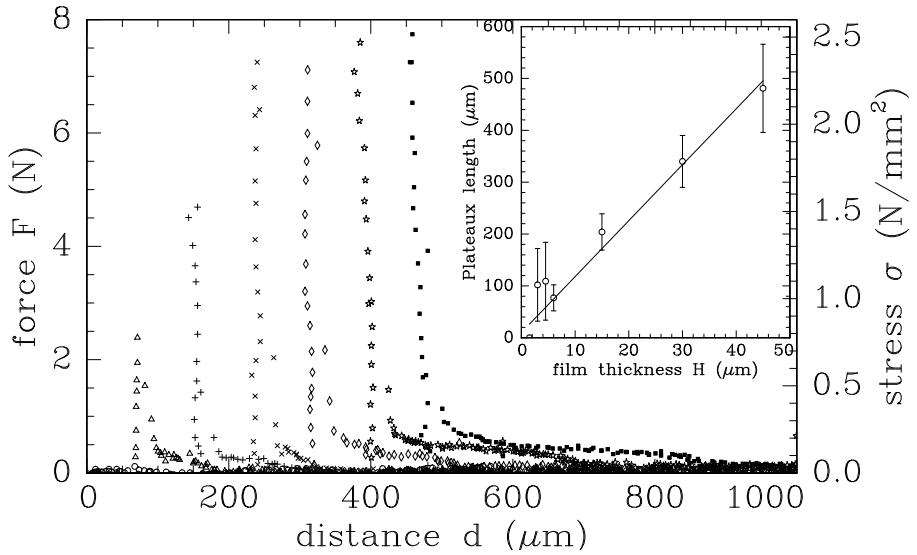


Figure 2.4.1:

Influence of film thickness: Force versus the distance measured in debonding experiments with constant temperature ( $21^\circ\text{C}$ ), constant debonding speed ( $1050 \text{ mm/s}$ ), similar bonding pressure ( $(1.85 \pm 0.06) \text{ N/mm}^2$ ) and similar bonding time ( $10 \text{ s}$ ). The film thickness varied from  $1.8 \mu\text{m}$  to  $45 \mu\text{m}$ . The different curves are shifted on the horizontal axis by  $80 \mu\text{m}$  each for readability reasons. The shapes of the curves follow the predictions of the theoretical model of Gay and Leibler as described in the text.

One key parameter of tacky polymer films is the film thickness. Figure 2.4.1 exhibits typical force-distance curves as measured as a function of this parameter. As the inset in figure 2.4.1 shows, the length of the force plateau grows linear with the film thickness. This experimental result is in well agreement with the theoretical predictions of the model of Gay and Leibler [4, 5].

The adhesion energy  $W$  which is gained by numerical integration of the force-distance curves, also grows continuously with increasing film thickness. In contrast, the maximum debonding force  $F_{max}$  reaches a maximal value at  $6 \mu\text{m}$  and after that remains constant with further increasing film thickness (figure 2.4.1). The further growth of the adhesion energy  $W$  is thus caused by the linear growth of the length of the force plateau with the film thickness and accordingly turns out to be linear from the point on where  $F_{max}$  reaches its constant value.

- [1] H. Lakrout, P. Sergot, C. Creton; J. Adhesion 69, 307 (1999)
- [2] A. Zosel, J. Adhesion 30, 135 (1989)
- [3] T. Ittner; Diploma Thesis, TU München (2000)
- [4] C. Gay, L. Leibler; Phys. Rev. Lett. 82, 936 (1999)
- [5] C. Creton, L. Leibler; J. Polym. Sci. 34, 545 (1996)

## 2.5 Scanning-microfocus SAXS as a tool to investigate failure at polymer interfaces

C. Lorenz-Haas<sup>1</sup>, P. Müller-Buschbaum, C. Cassignol<sup>1</sup>, O. Wunnicke<sup>2</sup>,  
C. Riekel<sup>3</sup>, M. Burghammer<sup>3</sup>, M. Stamm<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Max-Planck-Institut für Polymerforschung, Mainz

<sup>2</sup> Institut für Polymerforschung Dresden e.V., Dresden

<sup>3</sup> ESRF, Grenoble

The craze morphology created with the double cantilever beam test method (DCB) was investigated with small angle scattering using a micro focus. The DCB is a technique to estimate the interface toughness between two polymer plates [1]. For a measurement a razor plate is pushed between them (figure 2.5.1) and from the resulting crack length the calculation of the interface toughness is possible. The energy is not only put in the construction of the crack between the plates but also in the formation of a plastic zone. This means that at the tip of the crack crazes perpendicular to the interface inside each plate appear. Details of the deformation are not quite well known up to now.

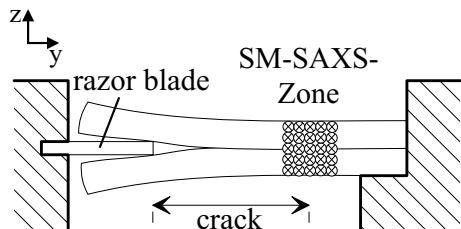


Figure 2.5.1:  
Schematic drawing of the SM-SAXS experiment relative to sample and crack. The circles show the beam positions on sample.

Our model system consists of polymethylmethacrylate (PMMA) of different molecular weights (88k, 134k and 191k). The samples were prepared by annealing two PMMA plates on top each other, applying a slight pressure. Different annealing times have been used to install different interface toughnesses via interdiffusion of polymer chains at the interface. The typical dimension of the crack tip as well as of the crazes in the plastic zone is on the order of a few micrometer only. Thus investigations yielding a position sensitive signal are restricted to extremely small beam diameters. Using a common large beam size averages out the complete information by a convolution of the signal with the background from the unperturbed sample volume. For that reason we used a beam with a diameter of  $12\mu\text{m}$  and a wavelength of  $0.0948\text{nm}$  at the ID13 Microfocus beamline at the ESRF in Grenoble. With a two-dimensional detector (CCD camera) structures up to  $50\text{nm}$  were resolved.

For the first time a spatial resolved mapping of the crack tip and the accompanied plastic zone in a polymer model system under DCB geometry was recorded. A typical mapping covered an area of  $200\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$  ( $y \times z$  figure 2.5.1) in steps of  $10\mu\text{m}$  in each direction including the crack tip and the plastic zone. Depending on the beam position different small angle scattering pattern have been observed. In figure 2.5.3 three different examples are shown. The micrograph in figure 2.5.2 shows the corresponding spatial positions of the beam (marked with white circles). The crack and its tip is visible as the black horizontal and vertical line. In figure 2.5.2 the scattering signal is dominated by the bulk

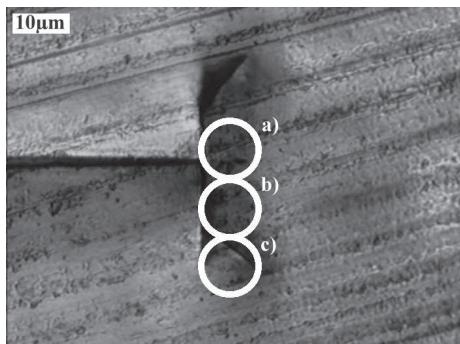


Figure 2.5.2:

The micrograph shows the end of a crack. The interface is so tough that the crack already snapped upwards and downwards out of it. The circles show the positions of the beam on the sample. The sample consists of PMMA 191k plates that have been annealed on top of each other for 1700 min at a reference temperature of 130°C.

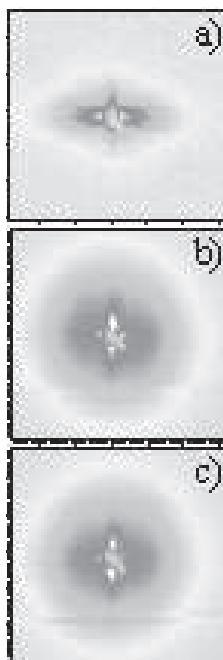


Figure 2.5.3:

The three images show the corresponding scattering pattern to the measurement positions shown in 2.5.2

background, which is not subtracted to visualize its shape. Compared to figure 2.5.3, which shows a scattering resulting from the plastic zone and the bulk background, the intensity is very small. Therefore we have a marked contribution of the sample features introduced by the DCB method, in contrast to previous experiments utilizing larger beam sizes. Depending on the interface toughness we observed different scattering patterns. For example also intensity distributions similar to those observed in ductile aluminium, which was investigated previously [2]. These patterns are dominated by single or multiple finger like streaks in a wide angular distribution. Other intensity distributions show clear evidence for the presence of small equidistant structures, e.g. fibrils. With respect to these complicated scattering features a detailed data analysis is in progress. The expected results will have important implications on further experiments using more complex polymeric materials including crystallization or phase separation.

[1] R. Schnell, M. Stamm, C. Creton: Macromolecules **32**, 3420 (1999)

[2] M. Große, J. Böhmer, C. Riekel: J. mat. sci. let. **17**, 1631 (1998)

## 2.6 Polymer blend films with various length scales

P. Panagiotou, P. Müller-Buschbaum, W. Petry

Thin polymer blend films are of special interest for technological applications as well as for fundamental investigations. The technological interest is focused on the specific properties of the polymer blends and thus on controlling morphology and phase composition. This has motivated many fundamental studies about the phase separation of polymer blends [1]. By blending two different homopolymers new properties are achievable. These properties are different from the ones of the homopolymers used, since the blend introduces additional length scales, e. g. by phase separation driven by the immiscibility [2, 3]. Another possibility to get these new properties would be the synthesis of tailor made copolymers, which is however much more difficult and thus more expensive. Therefore from the application point of view, the blending of homopolymers is favorable. Of course, the mixing of more than two homopolymers introduces a higher flexibility. In ternary systems three homopolymers are blended. In our system the special case of three polymers with three distinct different glass transition temperatures is examined. With respect to a given temperature, e. g.  $T = 60^\circ\text{C}$ , one component is liquid, one is highly viscous and one solid. This offers new possibilities with respect to applications, since the mechanical behaviour is strongly modified.

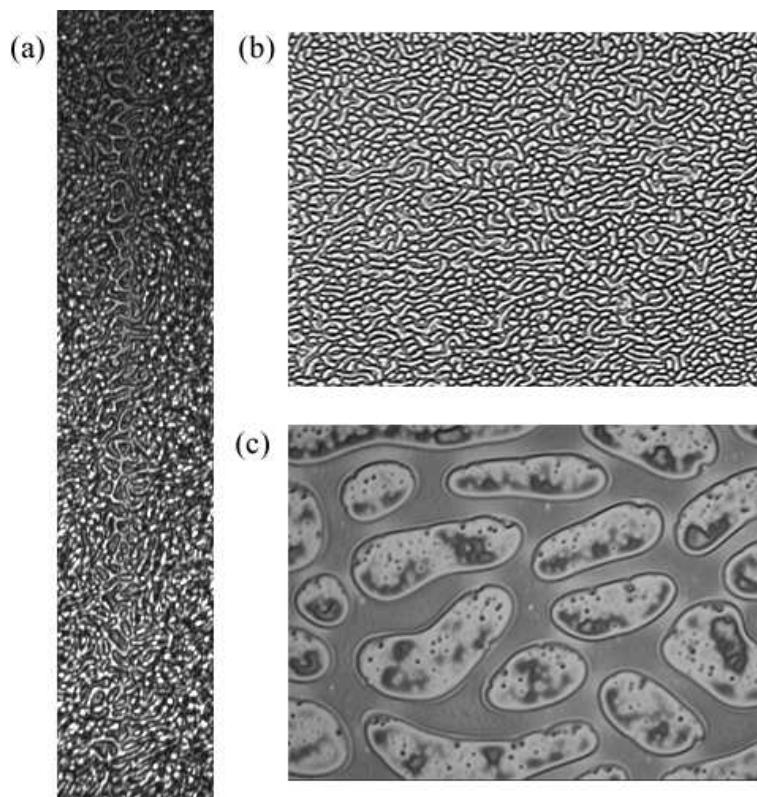


Figure 2.6.1:

Picture as obtained with imaging ellipsometry (a), optical micrograph measured with a magnification of 10 times (b) and 100 times (c).

The thin film preparation was done by solvent casting of the ternary polymeric solution (at 22°C and 25% relative humidity). Prior to this preparation step, the substrate (Si(100) with its native oxide layer) were cleaned in a bath of 100ml of 98% H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 35ml H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> and 15ml deionized water for 30-45 minutes at 80°C and rinsed in deionized water. The drying of the wet Si surfaces was done by compressed nitrogen. The time between cleaning and solvent casting all substrates were stored under toluene. A polymer concentration of 1 mg/ml was used. For the presented example, polystyrene (PS), poly- $\alpha$ -methyl-styrene (P $\alpha$ MS) and polyisoprene (PI) were blended in a ratio of PS:P $\alpha$ MS:PS=1:5:4. Right after preparation these samples exhibit well marked surface structures. The shown surface structures result from a phase separation process during the solvent casting. Therefore the morphology is a non-equilibrium one.

Figure 2.6.1a) exhibits a picture as obtained with imaging ellipsometry. The ellipsometric measurement was performed under incident and exit angles of 45° with a magnification of 20 times. Due to this geometry only a limited area on the sample surface is focused properly and the magnification in  $x$ - and  $y$ - direction differ. The surface morphology is shown by changes in the gray scale which indicate differences in the optical refractive index. This includes differences in film thickness as well as differences between homopolymers. In future, from pictures measured with imaging ellipsometry height mappings can be calculated from a variation of the analyzer position. Consequently this experimental technique yields the local  $z$ -information (perpendicular to sample surface).

For comparison figure 2.6.1b) and c) show pictures yielded by optical microscopy with different magnifications. Both exhibit the surface features as well. However, optical microscopy is limited to a visualisation of in-plane structures only. From a 2D Fourier transformation of the pictures dominant in-plane length scales can be determined [4]. In contrast the magnification is enlarge as compared to the ellipsometric measurement, which increases the interval of observable length scales, and the  $x$ - and  $y$ -axis are equal. Therefore optical microscopy is well usable yielding the  $xy$ -information (sample surface) in the large length scale regime. Smaller length scales can be addressed with scanning force microscopy.

In summary, with imaging ellipsometry and microscopy the topology is properly determined, whereas the chemical information displaying the local position of the individual homopolymers is missing. With scattering techniques this important point from topology towards morphology will be gained.

We kindly acknowledge F. Rehfeld helping with the imaging ellipsometry set-up at E22.

- [1] G. Krausch; Materials Science and Engineering R14, 1 (1995)
- [2] P. Müller-Buschbaum, J. S. Gutmann, M. Stamm, R. Cubitt, M. Stamm ; Colloid. Polym. Sci 277, 1193 (1999)
- [3] P. Müller-Buschbaum, J. S. Gutmann, M. Stamm; Macromolecules 33, 4886 (2000)
- [4] C. Renger, P. Müller-Buschbaum, M. Stamm, G. Hinrichsen; Macromolecules 33, 8388 (2000)

## 2.7 Off-specular neutron scattering studies of the interface and surface formation in self-assembled polymer multilayers

V. Lauter, H. Lauter<sup>1</sup>, B. Toperverg<sup>2</sup>, A. Petrenko<sup>3</sup>, P. Müller-Buschbaum, W. Petry

<sup>1</sup> ILL, Grenoble

<sup>2</sup> IFF, Jülich

<sup>3</sup> JINR, Dubna

After annealing most of the block copolymer films reveal an uncompleted top multilayer exhibiting a structure of islands, holes or labyrinthtype, which together with the interfacial roughness of the polymer multilayer film creates an amount of off-specular scattering. We show that a comprehensive theoretical analysis of both, specular reflectivity and off-specular scattering patterns measured over a broad range of incident and scattered wave vectors, delivers a rather complete information on the surface topology and roughness correlation along each of the interfaces and across the multilayer stack.

Symmetric diblock copolymers consist of two chemically different polymer chains linked end to end. They are micro-phase separated into macroscopic domains due to the immiscibility of the two polymers. The diblock copolymer diluted with a solvent is spin coated onto a flat substrate to obtain a thin film. During a following slow annealing above the glass transition temperature the micro-phase separation leads to a lamellar ordering parallel to the substrate. In general, the top layer relief structure depends on the preparation conditions during spin coating and annealing. During the annealing of the film a quantization due to the lamellar periodicity of the system must be respected. The excess amount of the diblock copolymer material, which is not sufficient to add a further complete lamella, will create a non complete top layer. In this case, the film will have only a partial diblock copolymer coverage on top of a complete stack. This partial top layer can consist of islands or of holes or of labyrinthstructures. In view of current interest to fundamental problems of polymer surface formation, as well as due to the technological importance, these structures were intensively studied employing a number of different experimental techniques such as optical [1] and atomic force microscopy [2], transmission electron microscopy [3], x-rays [4] and neutron reflectometry [5,6]. However, none of them gave detailed quantitative information on both, the outer layer lateral arrangement and the roughness of inner interfaces. This information can be received by measuring the off-specular neutron scattering [7] using in particular advantages of high penetration depth and isotopic contrasting of particular structural elements.

As an example, we present the results of the investigation of symmetric polystyrene-block-poly-n-butylmethacrylate P(Sd-b-nBMA) diblock copolymer films using neutron specular reflection and off-specular scattering. The polystyrene block is full deuterated. A molecular weight  $M_w = 248300$  g/mol (polydispersity  $M_w/M_n = 1.03$ ) and a symmetric block ratio ( $f = 0.5$ ) were examined. The samples were prepared by spin coating of a toluene solution of the diblock copolymer onto the glass substrate.

The scattering experiment were carried out on a time-of-flight reflectometer SPN (JINR, Dubna) [8]. A neutron wavelength band from 0.8 to 14 Å and the scattering angle of 11.4

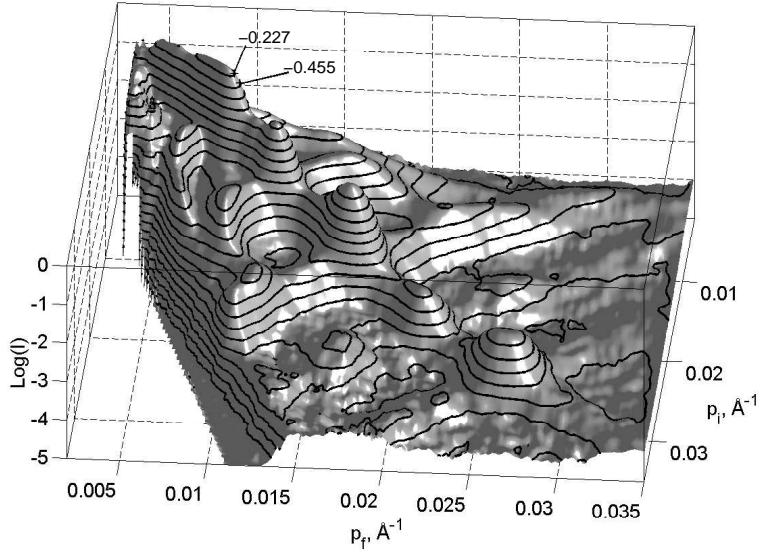


Figure 2.7.1:  
3-dimensional intensity map of the specular reflection and the off-specular scattering from a 4L-PBMA-dPS-dPS-PBMA polymer multilayer film as a function of  $p_i$  and  $p_f$ .

mrad were used. The data were collected over a broad range of incoming and outgoing wave vectors. A typical 3-dimensional image of scattered intensity distribution is shown in figure 2.7.1. The specular reflection is the ridge along  $p_i = p_f$ , where  $p_i$  and  $p_f$ , are the perpendicular components of the wave vector of the impinging neutron and the one of the leaving neutron (with respect to the sample surface), respectively. Along the specular reflection, the total reflecting region is marked in black and is followed by a sequence of Bragg-peaks, the peak colour ranging from black to light grey with vanishing intensity. The position of the Bragg-peaks is defined by the thickness  $L$  of the PBMA-dPS-dPS-PBMA multilayer. The first Bragg-peak following the total reflecting region is hardly separated from the total reflecting region itself. The correlated roughness within the polymer multilayer creates perpendicular to the reflectivity line the off-specular Bragg-sheet scattering, which shows up at each Bragg-peak and fulfills the condition of  $(p_i + p_f)_n = 2p_{i,n} = 2p_{f,n}$  (at the  $n^{th}$  Bragg position with  $n = 1, 2, 3, \dots$ ).

From the model calculation (figure 2.7.2) the fitted neutron scattering length density profile perpendicular to the surface is obtained, which contains already a first information about a depleted density in the top stack with thickness  $L = 60 \pm 1$  nm indicating a certain amount of holes. The interfacial roughness creates not only Bragg-sheet scattering, but also some Yoneda-scattering. The intensity of the Yoneda-scattering is seen in stripes along  $p_i$  or  $p_f = \text{const.}$ , appearing at the critical angles of the total reflection. Strong enhancement is observed at the crossing of Bragg-sheet and the lines corresponding to the conditions of total reflection for incoming or outgoing wave vectors. The main features along the Yoneda-lines and the super-Yoneda-lines emerging from the first Bragg-peak originate from the scattering from the holes in the top multilayer. Recently [7] we described the formalism developed in the framework of the DBWA which allowed a detailed description of a two-dimensional intensity map measured from a single film of a diblock copolymer stack covered with islands. This model [7] was broadened for the description not only

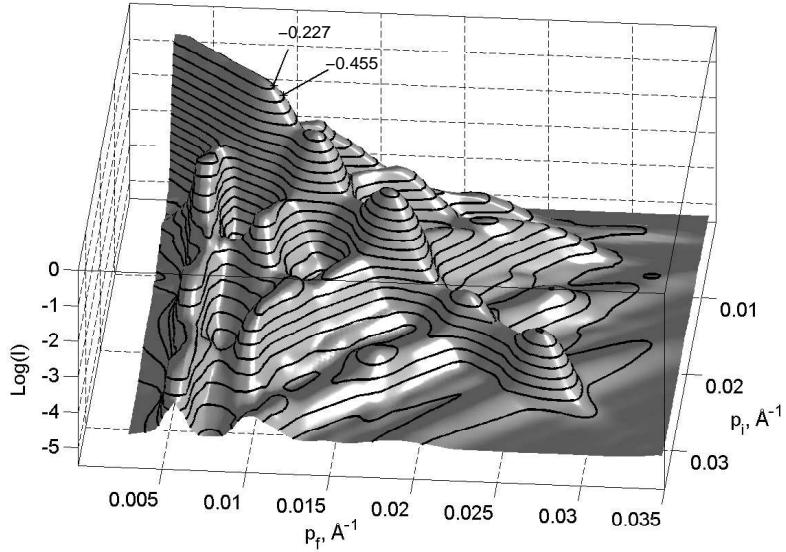


Figure 2.7.2:  
Calculated 3-dimensional intensity map of the specular reflection and the off-specular scattering for the experimental data in figure 2.7.1

of the surface structure but also of the interface fluctuations, their conformity, and takes into account the interference effects of different scattering processes [10]. The intensity created by correlated roughness is simulated with randomly distributed fluctuations with a mean lateral extension in the order of  $250 \pm 5$  nm and an average height of  $4 \pm 1$  nm. The first parameter together with the size distribution is responsible for the line shape of the intensity distribution along the Bragg-sheets, while the second one regulates the ratio between intensities of the Bragg-sheets of different order. The mean hole diameter was determined to be 500 nm. The holes were spread over  $\cong 10\%$  of the total surface area. The scattering from islands is different [7] and can be clearly distinguished from the scattering from holes. It results in a shift of the Yoneda scattering in  $p_i$  and  $p_f$  due to a reduced scattering length density in the island layer and has a different shape as a function of  $(p_i, p_f)$ . Indeed the experimental specular and off-specular data set is reproduced by the model calculation in very detail.

In conclusion, it is shown that polymer multilayers create very strong off-specular scattering, which must be included in the data analysis. This off-specular scattering itself contains information about the details of the multilayer structure as well as of the sample surface. The calculation of the reflected and off-specular scattered intensity distribution delivers information necessary in order to determine the objects giving rise to off-specular scattering in the framework of the model used.

- [1] P. Bassereau, D. Brodbreck et al. Phys. Rev. Lett. 71, 67 (1992)
- [2] P. C. Grimm, I. A. Nyrkova et al. Macromolecules 28, 1716 (1993)
- [3] B. L. Karvalho, E. L. Thomas et al. Phys. Rev. Lett. 73, 3321 (1994)
- [4] Z. Cai et al. J. Chem. Phys 98, 2376 (1993); A. M. Mayes et al. Macromolecules 27, 749 (1993); G. Coulon et al. Macromolecules 26, 1582 (1993)
- [5] A. Menelle, T. P. Russell et al. Phys. Rev. Lett. 68, 67 (1992)

- [6] A. M. Mayes et al. Macromolecules 27, 749 (1994); V. Lauter-Pasyuk, H. J. Lauter et al. Physica B 248, 243 (1998); V. Lauter-Pasyuk, H. J. Lauter et al. Physica B 241-243, 1093 (1998)
- [7] B. Toperverg, V. Lauter-Pasyuk, H. Lauter et al. Physica B 283, 60 (2000)
- [8] SPN/Dubna (<http://nfdn.jinr.ru/>)
- [9] V. Lauter-Pasyuk, H. Lauter, B. Toperverg et al. to be published

### 3 Dynamik geordneter Kristalle

#### 3.1 Anharmonic phonons in FeNi alloys

K. Messel<sup>1</sup>, H. Franz<sup>2</sup>, N. Wiele, W. Petry

<sup>1</sup> TUM E13; Hasylab Hamburg

<sup>2</sup> Hasylab, Hamburg

FeNi alloys are of both technological and scientific interest. In a wide range of composition around 50% they are used as highly valuable soft magnetic material; around the stoichiometric composition  $\text{Fe}_2\text{Ni}$  the thermal expansion coefficient is extremely small[1]. Steels with some 35% Ni are called INVAR for this reason. In spite of the widespread application of those alloys the microscopic origin of the magnetic and thermal properties is still poorly understood[2]. One of the main reasons for the lack of reproducible clear data may be found in the phase diagram[3]. Due to the martensitic phase transition (from the low temperature bcc martensite to the high temerature fcc austenite) with a transition temperature of 621 K the preparation of single-phase bcc samples is difficult, the growth of single crystals effectively impossible.

The general scope of our project is to understand the correlation of the invar anomaly with the martensitic transformation. The thermal expansion of solids is intimately connected to the anharmonicity of the atomic interaction potential. A harmonic solid would not change its volume with changing temperature. Thus one of the keys to understand the invar effect is a detailed study of the anharmonic behaviour of the potential. A second point certainly as important is the magnetic structure and the temperature dependence thereof. Our tool to quantify the anharmonicity is the determination of the phonon density of states (DOS) and its variations with temperature.

In continuation of our recent work[4] we have studied the temperature dependence of the iron-DOS of  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  and  $\text{Fe}_{85}\text{Ni}_{15}$  starting from room temperature to 720 K well above the phase transition temperature. Inelastic scattering data have been taken at the beamline PETRA1[5]. We used the 111 reflection of the diamond high heat-load monochromator and the nested silicon (440)(975) high-resolution monochromator[6] offering an energy resolution of 2.2 meV. The set-up is shown in [7]. The sample was Joule-heated in high vacuum (some  $10^{-6}$  mbar). Temperatures were recorded using a pyrometer (Raytec) with an accuracy of 1 K. Absolute temperatures were calibrated using a Pt100 resistor and the phase transition temperature of the samples. Samples have been prepared from high purity Ni and  $^{57}\text{Fe}$  (enrichment 95.3%) foils by arc melting under Argon atmosphere. The ingots in turn were rolled to foils of  $9 \mu\text{m}$  thickness and annealed in vacuum.

In addition we characterised the crystallographic structure and the transformation behaviour of the samples *in situ* on the diffractometer at the beamline PETRA2[8]. For all samples used those measurements confirmed the phase purity at room temperature to better than 1%.

Nuclear inelastic absorption (NIA) has developed to a standard technique to study vibrational excitations in solids in the last 5 years[9]. As an incoherent method it directly yields

the density of states of the resonant species in the sample. It is thus element specific and offers a resolution down to the sub-meV region.

In Fig. 3.1.1 we have plotted the iron-DOS calculated from the measured spectra for different temperatures as indicated in the caption. We used a program developed by A. Chumakov and V. Kohn[9] to separate multi-phonon contributions and background. All curves are normalized to the recoil energy of the  $^{57}\text{Fe}$  nucleus ( $\Delta E_R = 1.95\text{ meV}$ ). At low energies (up to some 15 meV) all sample show the typical  $E^2$  behaviour (Debye approximation). With increasing temperature there is a rather large shift of the entire spectrum which reflects the general phonon softening. However, the shift of some 5 meV (corresponding to almost 15%) is unexpectedly high. This is in contrast to molecular dynamic simulations of this alloy[10] which predicts i) in general harder phonons (up to 48 meV) and ii) a softening in a particular region of the DOS ([110]-TA<sub>1</sub>-branch). We have now started to develop a program package to determine more detailed information from the DOS. First results will be published in a forthcoming contribution.

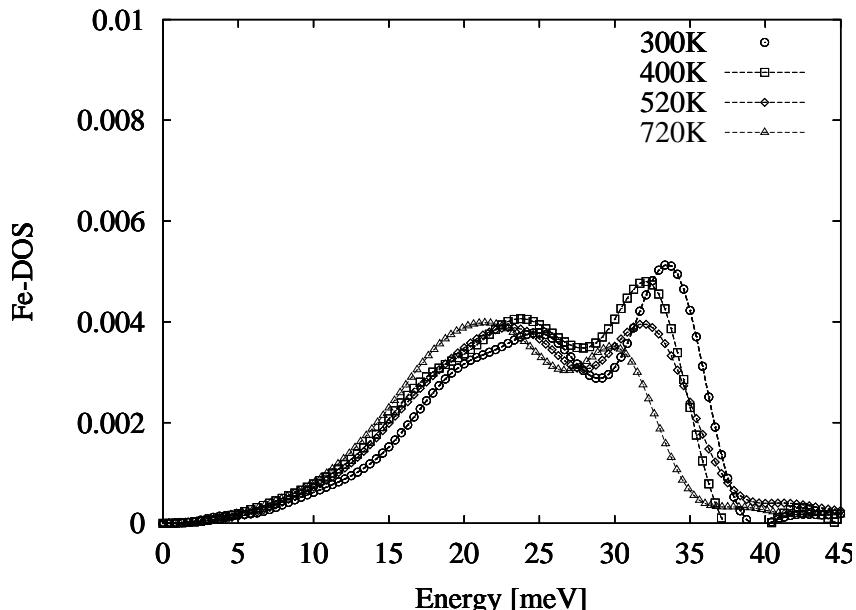


Figure 3.1.1: Iron DOS of a  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  sample for various temperatures.

- [1] E. F. Wassermann, P. Entel, M. Acet, Phys.Bl. **56**, 27 (2000)
- [2] See for example M. van Schilfgaarde, I. A. Abrikosov, B. Johansson, Nature **400**, 46 (1999)
- [3] O. Kubaschewski, Iron Binary Phase Diagrams, Springer Verlag (1982)
- [4] K. Messel, H. Franz, W. Petry, HASYLAB annual report (2000) and N. Wiele, H. Franz, W. Petry, Physica B **263-264**, 716 (1999)
- [5] H. Franz, B. Huckelmann, J. R. Schneider, Hyperfine Interact. **126**, 397 (2000)
- [6] H. Franz, T. Asthalter, M. Dommach, A. Ehnes, K. Messel, I. Sergueev, Hyperfine Interact. (2001) in print
- [7] K. Messel, H. Franz, W. Petry, HASYLAB annual report (2001)
- [8] see HASYLAB annual report 139 (1995)
- [9] V. G. Kohn, A. I. Chumakov, Hyperfine Interact. **125**, 205 (2000)
- [10] R. Meyer, P. Entel, Phys.Rev.B **57**, 5140 (1998)

### 3.2 Phononenzustandsdichte in der Nähe eines martensitischen Phasenübergangs in geordnetem Fe<sub>3</sub>Pt

N. Wiele, A. Zirkel <sup>1</sup>, H. Franz <sup>2</sup>, W. Petry

<sup>1</sup> TU München, FRM-II

<sup>2</sup> Hasylab, Hamburg

Mit der Technik der nuklearen inelastischen Absorption (NIA) [1] ist es möglich partielle Phononenzustandsdichten zu bestimmen. Ziel der an diesem Lehrstuhl angefertigten Promotion war es, das Potential dieser Technik auszuloten. Hierfür wurde sie mit den etablierten Techniken der inelastischen Neutronenstreuung, Dreiachsen- und Flugzeitspektroskopie, verglichen [2].

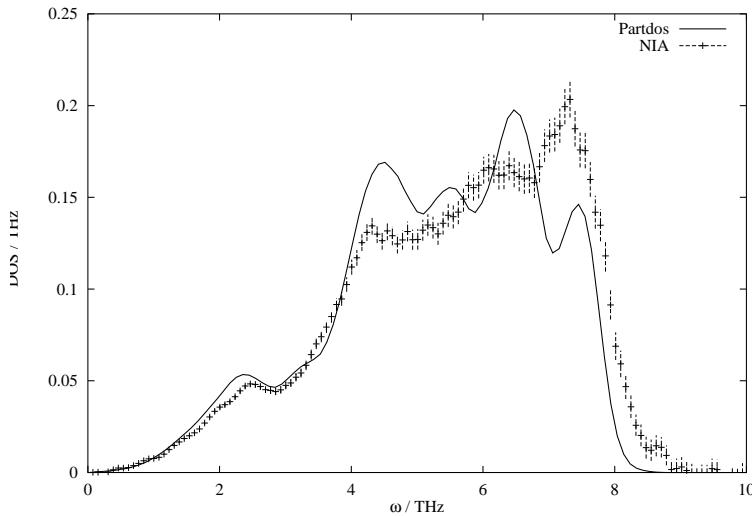


Abbildung 3.2.1:

Partielle Zustandsdichte von geordnetem Fe<sub>72</sub>Pt<sub>28</sub> bei Raumtemperatur, gemessen durch nukleare inelastische Absorption (an ESRF/ID18), berechnet mit dem Programm PARTDOS. Die berechnete Zustandsdichte wurde mit der Auflösung des im Experiment verwendeten Monochromators gefaltet.

Als Modellsystem bot sich Fe<sub>x</sub>Pt<sub>1-x</sub> nahe der Stöchiometrie Fe<sub>3</sub>Pt an. Das Phasendiagramm des Systems zeigt im gewählten Stöchiometriebereich vier Phasenübergänge unterschiedlicher Natur [3]. Diese haben Einfluß auf die partielle Phononenzustandsdichte. Der temperaturabhängige Phasenübergang in geordnetem Fe<sub>3</sub>Pt zwischen Cu<sub>3</sub>Au- und einem tetragonal verzerrten Cu<sub>3</sub>Au-Gitter ist mit einem erweichenden Phononenzweig – dem TA<sub>1</sub>[ξξ0]-Phononenzweig – verbunden. Hierbei bewegen sich im wesentlichen die Fe-Atome, wie später gezeigt wird, für deren Bewegung NIA empfindlich ist. Der Einfluß des temperaturabhängigen TA<sub>1</sub>[ξξ0]-Phononenzweiges auf die partielle Phononenzustandsdichte ließ sich experimentell klar nachweisen (siehe auch [4]).

Die partiellen Phononenzustandsdichten aus NIA wurden ausführlich mit aus Dreiachsen-spektroskopie bestimmten Phononendispersionen verglichen. Hierfür wurden mit dem Pro-

gramm UNIFIT die Kraftkonstanten eines Born-von Kármán-Modells an die Phononen-dispersio nen anpaßt. Die so gewonnenen Parameter wurden an ein hierfür geschriebenes Programm (PARTDOS) übergeben. Es diagonalisiert die für dieses Problem aufgestellte dynamische Matrix und generiert aus den so gewonnenen Eigenwerten und Eigenvektoren die totale und die partielle Phononenzustandsdichte. Wie man aus Abbildung 3.2.1 ersieht, stimmen die partiellen Phononenzustandsdichten qualitativ mit den aus NIA erhaltenen überein [5]. Der Vergleich der Phononenzustandsdichten bei verschiedenen Temperaturen zeigt, daß im Rahmen des Fehlers nur der  $\text{TA}_1[\xi\xi 0]$ -Phononenzweig am Phasenübergang beteiligt ist.

Mit gruppentheoretischen Überlegungen kann auf die Bewegungsrichtungen der Atome des  $\text{TA}_1[110]$ -Zonenrandphonons geschlossen werden. Hiermit läßt sich eindeutig schließen, daß die tetragonale Verzerrung des Gitters mit dem Phononenerweichen verknüpft ist.

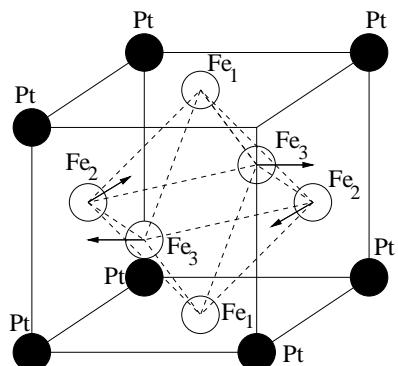


Abbildung 3.2.2:

Bewegungsrichtungen (Pfeile) der Fe-Atome auf den hier mit  $\text{Fe}_2$  und  $\text{Fe}_3$  bezeichneten Gitterplätzen. Das Fe-Atom auf dem Gitterplatz  $\text{Fe}_1$  und das Pt-Atom ruhen im Vergleich zu den erstgenannten Fe-Atomen nahezu. Die Rotationsschwingung des Tetraeders (gestrichelte Linie) ist gut zu erkennen.

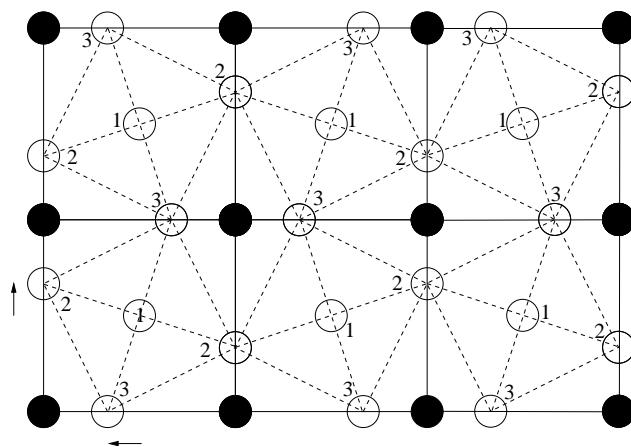


Abbildung 3.2.3:

Draufsicht auf die xy-Ebene mit dem tetragonally verzerrten Gitter. Hierbei bezeichne 1,2 und 3 die jeweiligen Fe-Gitterplätze.

Für das  $\text{TA}_1[110]$ -Phonon ergibt sich das in Abbildung 3.2.2 gezeigte Bewegungsmuster. Das Fe-Atom auf den Gitterplatz  $\text{Fe}_1$  und das Pt-Atom ruhen, wohingegen sich die Fe-Atome auf den Gitterplätzen  $\text{Fe}_2$  und  $\text{Fe}_3$  in der xy-Ebene in Richtung des Pt-Gitterplatzes bzw. in Gegenrichtung schwingen. In der Draufsicht (Abbildung 3.2.3) ist die Rotation der Tetraeder zu sehen. Insgesamt führt diese zur tetragonalen Verzerrung des Gitters.

Die Messung der Phononenfrequenzen mit Hilfe eines Dreiachsenspektrometers [6] ermöglicht es nun auf die Auslenkung der Atome zu schließen. In Einstellernäherung ergibt sich für die Auslenkung der Atome [7]:

$$u_0 = \left( \frac{2k_B T}{M_A} \right)^{1/2} \frac{1}{\omega_0} \quad (3.2.1)$$

Wenn man für  $\omega_0$  z.B. die Frequenz  $\omega_{TA_1}(T)$  des  $TA_1[110]$ -Zonenrandphonons einträgt, kann man näherungsweise die Temperaturabhängigkeit der Auslenkung  $u_{TA_1}(T)$  dieser Schwingungsanregung bestimmen. Die Auslenkung wird bis 50 K größer, obwohl die Temperatur absinkt, d.h. das Absinken von  $\omega_{TA_1}(T)$  (Phononenerweichen) überkompensiert die  $\sqrt{T}$ -Abhängigkeit von  $u_{TA_1}(T)$ . Bei 12 K verkleinert sich die Auslenkung wieder.

Was ist die Ursache für die Überkompensation? Die große Amplitude ist die Folge eines sich abflachenden Potentials, in dem die Atome schwingen. Demnach nehmen auch die Rückstellkräfte ab. Bei sinkender Phononenfrequenz haben die Atome somit eine zunehmend weitere Auslenkung und halten sich dort auch im zeitlichen Mittel bevorzugt auf (Aufenthaltswahrscheinlichkeit eines Teilchens in einem harmonischen Oszillator). Dies führt zu einer zunehmenden tetragonalen Verzerrung, wie beim  $SrTiO_3$ -Gitter. Durch diese Bewegung wird ein displaziver Phasenübergang eingeleitet, d.h. er ist mit der Verschiebung der Atome des Gitters gegeneinander verbunden. Die Atome werden hierbei in Richtung der Normalschwingung der Atome eines Phonons verschoben, was die Symmetrie des Gitters herabgesetzt. Dieser Phasenübergang entspricht dem von Kästner et al. [3] beschriebenen Phasenübergang von der  $L1_2$ -Struktur in eine premartensitische antiferro-distortive Phase bei tiefen Temperaturen.

Bei sehr tiefen Temperaturen (ca. 50 K) macht die Amplitude bereits mehr als 10% des Gitterparameters ( $a = 3,765 \text{ \AA}$ ) aus. Die Näherung, das Gitter als harmonischen Oszillator mit kleinen Auslenkungen zu beschreiben, wird demnach zunehmend ungenauer. Zusätzlich entsteht durch die tetragonale Verzerrung ein neues Gitter. Diese Effekte erklären die aufgetretenen Probleme beim Anpassen der Phononendispersionen bei tiefen Temperaturen.

An dieser Stelle möchte ich W. Schirmacher, H. Schober, T. Asthalter und W. Petry für die Unterstützung meiner Promotion danken. Stellvertretend für die Arbeitsgruppen an den verwendeten Synchrotronstrahlungsquellen danke ich R. Rüffer und A. I. Chumakov(ESRF) sowie E. E. Alp und W. Sturhahn (APS).

- [1] M. Seto, Y. Yoda, S. Kikuta, X. W. Zhang and M. Ando., Phys.Rev.Lett. **74** 3828 (1995)
- [2] N. Wiele: , Promotion, TU-München (2001)
- [3] J. Kästner, W. Petry, S. M. Shapiro, A. Zheludev, J. Neuhaus, Th. Rossel, E. F. Wassermann, H. Bach, Eur. Phys. J. B **10** 641 (1999)
- [4] N. Wiele, H. Franz and W. Petry, Physika B **263-264** 716 (1999)
- [5] N. Wiele, A. Zirkel, T. Asthalter, H. Franz, W. Petry, Jahresbericht E13 (2000)
- [6] J. Kästner, J. Neuhaus, E. F. Wassermann, W. Petry, B. Hennion, H. Bach, Eur. Phys. J. B **11** 75 (1999)
- [7] W. Petry, J. de Physique IV, **C2** C2-15 (1995)

## 4 Dynamik in Gläsern und unterkühlten Flüssigkeiten

### 4.1 Glasdynamik bis zum Siedepunkt einer einfachen Flüssigkeit: Lichtstreuung an Benzol

Sabine Wiebel und Joachim Wuttke

Hier möchten wir zeigen, dass grundlegende Modelle, die zur Beschreibung der Dynamik glasbildender Flüssigkeiten entwickelt wurden, auch für das Verständnis von einfachen, nicht glasbildenden Flüssigkeiten von Bedeutung sind — und das über ihren gesamten Existenzbereich vom Schmelzpunkt  $T_m$  (oder gar aus einem unterkühlten Zustand heraus) bis hinauf zum Siedepunkt  $T_b$ .

Bei glasbildenden Systemen ändert sich die Dynamik kontinuierlich mit der Temperatur über den Schmelzpunkt  $T_m$  der Substanz hinweg, ohne diesen Punkt in irgendeiner Weise auszuzeichnen. Oberhalb einer kritischen Temperatur  $T_c$  lässt sich die Zeitentwicklung der Dichtefluktuationen erfolgreich durch die Modenkopplungstheorie (MCT) beschreiben [1]. Für einige Flüssigkeiten sind die Skalengesetze der MCT, die auf asymptotischen Entwicklungen für  $T \searrow T_g$  beruhen, bis zu unerwartet hohen Temperaturen gültig: bis 60% [2] oder gar 90% [3] oberhalb von  $T_c$ . Das wirft natürlich die Frage auf, ob die Modenkopplungstheorie auch auf nicht glasbildende Flüssigkeiten anwendbar ist.

Wir untersuchen hier eine einfache Flüssigkeit, Benzol ( $T_m = 279$  K,  $T_b = 353$  K), über einen Bereich von nahezu 4 Frequenzdekaden. Die Messungen wurden mit dynamischer Lichtstreuung im Raman-Spektrometer U 1000 und in drei verschiedenen Spektralbereichen des sechs-Passagen Sandercock-Fabry-Perot Interferometers durchgeführt. Überraschenderweise konnten wir die Probe bis 258 K unterkühlen, wobei sie mehrere Stunden lang flüssig blieb.

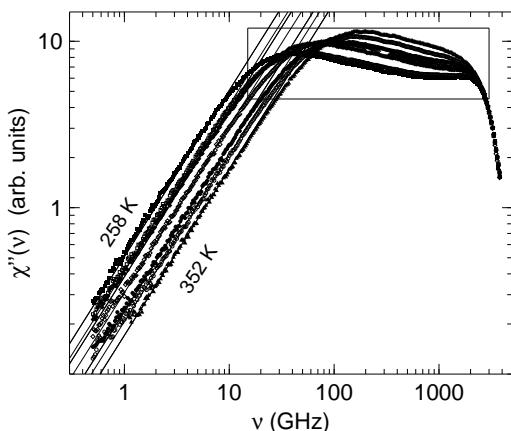


Abbildung 4.1.1:  
Suszeptibilitäten von Benzol, wie sie mit depolarisierter Lichtstreuung bei Temperaturen von  $T = 258, 268, 279, 293, 310, 330$  und  $352$  K gemessen wurden. Der Bereich der  $\alpha$ -Relaxation und des Bosonenpeaks (rechteckiger Rahmen) wird nochmals auf vergrößerter Skala in Abb. 4.1.2 gezeigt.

Abb. 4.1.1 zeigt die Suszeptibilitäten aus depolarisierter Lichtstreuung bei sieben Temperaturen. Bei niedrigen Frequenzen beginnend, steigen die  $\chi''(\nu)$  mit einer weißem Rauschen entsprechenden Steigung  $\nu^1$  bis zu einem Maximum zwischen 40 und 200 GHz, das wir

als strukturelle  $\alpha$ -Relaxation identifizieren. Ein relativ flacher Bereich führt schließlich zu einer Schulter bei etwa 2 THz, oberhalb davon sinken die Suszeptibilitäten stark ab. Im Hochfrequenzflügel werden sie temperaturunabhängig, ein Hinweis auf harmonische Vibrationsanregungen. Oberhalb von 5 THz finden wir eine breite Lücke, da innermolekulare Schwingungen erst weit oberhalb von 10 THz zu erwarten sind [4].

Das gesamte Szenario stimmt gut mit dem Hochtemperaturgrenzfall von dem, was man bisher in glasbildenden Flüssigkeiten beobachtet hat, überein. Zu unserer eigenen Überraschung ändert sich dieses Bild nicht einmal bei den höchsten erreichbaren Temperaturen: Kurz unterhalb des Siedepunkts ist der  $\alpha$ -Peak noch um beinahe eine Frequenzdekade von den Vibrationsanregungen entfernt.

In der Theorie einfacher Flüssigkeiten [5] wird Relaxation im Allgemeinen durch einen exponentiellen Gedächtniskern mit Zeitkonstante  $\tau$  modelliert, der eine Lorentz-Debye-Linie  $[1 + 2\pi i\nu\tau]^{-1}$  zu  $\chi(\nu)$  beisteuert. Die gepunktete Linie in Abb. 4.1.2 zeigt, dass ein solcher Fit hier nicht möglich ist. Stattdessen sieht man, dass der  $\alpha$ -Peak durch die Fouriertransformierte der gestreckten Exponentialfunktion von Kohlrausch  $\Phi(t) \propto \exp[-(t/\tau)^\beta]$  wesentlich besser beschrieben wird.

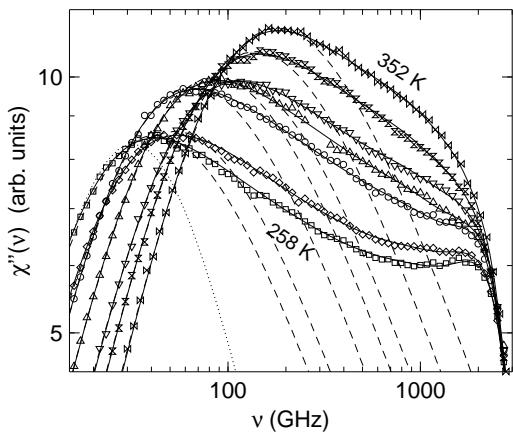


Abbildung 4.1.2:

Ausschnitt aus Abb. 1. Der Ansatz eines Minimums der schnellen  $\beta$ -Relaxation bei den niedrigen Temperaturen ist hier deutlich zu sehen. Die Daten lassen sich nahezu perfekt durch das im Text beschriebene Modenkopp lungsmodell anpassen (durchgezogene Linien). Die  $\alpha$ -Relaxation kann auch durch eine fouriertransformierte Kohlrauschfunktion mit Streckungsexponent  $\beta = 0.73$  beschrieben werden (gestrichelt). Die gepunktete Linie bei 258 K deutet eine Debye-Relaxation ( $\beta = 1$ ) an.

Unter der Annahme, dass die Zeit-Temperatur-Superposition in Benzol wie in glasbildenden Flüssigkeiten gilt, wenden wir ein iteratives Fitverfahren auf unsere Daten an. Dabei ergibt sich, dass alle Suszeptibilitäten bis zum Doppelten der Peakfrequenz durch ein Kohlrauschgesetz mit temperaturunabhängigem Streckungsexponenten  $\beta \simeq 0.73$  beschrieben werden können.

Abb. 4.1.3 zeigt die hervorragende Übereinstimmung der Temperaturabhängigkeit der mittleren Relaxationszeit  $\langle \tau \rangle = \int dt \Phi(t)/\Phi(0)$ , die sich aus den Kohlrauschfits an  $\Phi(t)$  ergibt, mit der Scherviskosität  $\eta$ . Dies vervollständigt das Bild, in dem Benzol genau wie jede glasbildende Flüssigkeit einen  $\alpha$ -Relaxationsprozess besitzt. Außerdem kann die Proportionalität  $\langle \tau \rangle \propto \eta$  dazu benutzt werden, vorhandene Viskositätsdaten [6] um mehr als 15 K in die unterkühlte Phase und auch um 9 K in Richtung höherer Temperaturen zu erweitern.

Weder die Kohlrauschfunktion noch irgendeine andere der für die Datenauswertung üblichen empirischen Formeln ist in der Lage, den extrem flachen Hochfrequenzflügel unseres

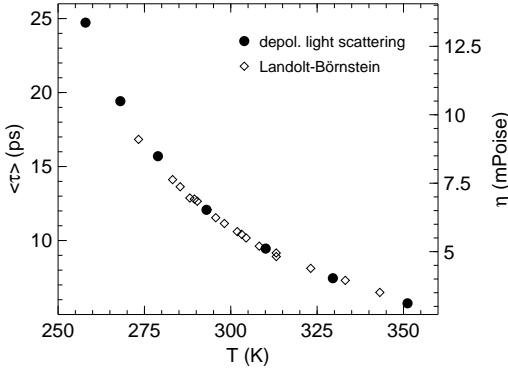


Abbildung 4.1.3:

Vergleich der mittleren Relaxationszeiten, die sich aus den in Abb. 4.1.2 gezeigten Kohlrauschfits ergeben (ausgefüllte Symbole), mit der Scherviskosität aus [6] (offene Symbole).

$\alpha$ -Peaks zutreffend zu beschreiben. Wir haben unsere gesamten depolarisierten Lichtstreupekturen jedoch erfolgreich mit den numerischen Lösungen eines stark vereinfachten Modenkopplungsmodells, das bereits an einer Reihe von glasbildenden Flüssigkeiten angewandt wurde [7-10], angepasst.

Ausgehend von der Bewegungsgleichung für Dichtekorrelationsfunktionen  $\Phi_q(t)$ ,

$$0 = \Omega_q^{-2} \ddot{\Phi}_q(t) + \nu_q \dot{\Phi}_q(t) + \Phi_q(t) + \int_0^t dt' m_q(t-t') \dot{\Phi}_q(t') , \quad (4.1.1)$$

wird die MCT selbstkonsistent, wenn man den Gedächtniskern  $m_q(t)$  näherungsweise als Polynom in  $\{\Phi_q(t)\}$  ansetzt. Wir beschränken uns jedoch auf eine minimale Anzahl von Korrelatoren und beschreiben Dichtefluktuationen durch einen einzigen Korrelator  $\Phi(t)$  mit dem Gedächtniskern des sogenannten  $F_{12}$  Modells [11]

$$m(t) = v_1 \Phi(t) + v_2 [\Phi(t)]^2 . \quad (4.1.2)$$

Unsere experimentelle Observable  $\chi''_{ls}(\nu)$  wird mittels eines zweiten Korrelators  $\Phi_s(t)$  mit bilinearem Gedächtniskern [12]

$$m_s(t) = v_s \Phi(t) \Phi_s(t) \quad (4.1.3)$$

und einer zu (4.1.1) analogen Gleichung beschrieben.

In unseren Fits konnten wir die Frequenz, die den zweiten Korrelator  $\Phi_s(t)$  charakterisiert, bei dem konstanten Wert  $\Omega_s = 1000$  GHz festhalten. Die anderen Parameter sind temperaturabhängig und weichen nur gering von einem monotonen Verlauf ab.

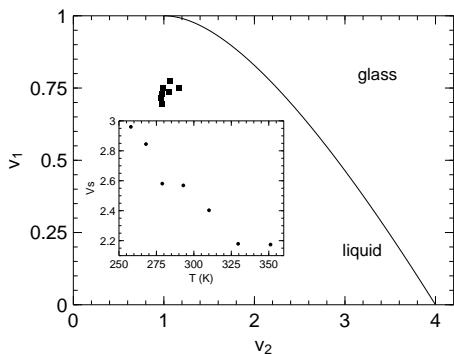


Abbildung 4.1.4:

Parameter, die für die schematischen Modenkopplungsfits verwendet wurden: Die Kopplungskonstanten  $v_1$  und  $v_2$  beschreiben die Dynamik der Flüssigkeit;  $v_s$  (kleines Bild) repräsentiert die Ankopplung der depolarisierten Lichtstreuung. In Übereinstimmung mit der Theorie sinken alle drei Parameter mit steigender Temperatur.

Der idealisierte Glas–Flüssig–Übergang kann in dem Modell als Phasengrenze im  $v_1$  –  $v_2$ – Diagramm eingezeichnet werden. Abb. 4.1.4 zeigt, dass wir uns tief in der flüssigen Phase bewegen. Mit sinkender Temperatur bewegt sich das System nur wenig auf die Grenzlinie zu; auf eine hypothetische Glasübergangstrajektorie zu extrapoliieren ist in diesem Rahmen nicht möglich. Das passt mit der Tatsache zusammen, dass die gemessenen Suszeptibilitäten nur bei den allerniedrigsten Temperaturen einen Ansatz der schnellen  $\beta$ -Relaxation zeigen. Die asymptotischen Skalengesetze, die auf Entwicklungen in  $T - T_c$  beruhen, werden überhaupt nicht erreicht.

Zusammengefasst haben wir depolarisierte Lichtstreuung an flüssigem Benzol über den gesamten zugänglichen Temperaturbereich und über vier Frequenzdekaden gemessen. Wir stellen fest, dass diese Suszeptibilitäten nicht durch konventionelle Theorien einfacher Flüssigkeiten beschrieben werden können; stattdessen finden wir eine gestreckte strukturelle Relaxation, die wir mit der  $\alpha$ –Relaxation identifizieren. Letztere ist direkt für den Glasübergang verantwortlich, wenn die Flüssigkeit weit genug unterkühlbar ist. Unsere Spektren können außerdem mit einem sehr einfachen Modenkopplungsmodell angepasst werden. Daraus schließen wir, dass glasartige Relaxation eine intrinsische Eigenschaft von Flüssigkeiten ist.

- [1] W. Götze, J. Phys. Condens. Matter **11**, A1 (1999).
- [2] G. Li *et al.*, Phys. Rev. Lett. **74**, 2280 (1995).
- [3] J. Wiedersich, N. V. Surovtsev and E. Rössler, J. Chem. Phys. **113**, 1143 (2000).
- [4] L. M. Sverdlov, M. A. Kovner and E. P. Krainov, *Vibrational Spectra of Polyatomic Molecules*, John Wiley: New York (1974).
- [5] J. P. Hansen and I. R. McDonald, *Theory of Simple Liquids*, Academic Press: London ('1986).
- [6] L. Andrussov, in *Eigenschaften der Materie in ihren Aggregatzuständen: Transportphänomene I* (Landolt-Börnstein II5a), Springer: Berlin ('1969).
- [7] W. Götze and T. Voigtmann, Phys. Rev. E **61**, 4133 (2000).
- [8] C. Alba-Simionescu and M. Krauzman, J. Chem. Phys. **102**, 6574 (1995).
- [9] V. Krakoviack, C. Alba-Simionescu and M. Krauzman, J. Chem. Phys. **107**, 3417 (1997).
- [10] T. Franosch, W. Götze, M. Mayr and A. P. Singh, Phys. Rev. E **55**, 3183 (1997).
- [11] W. Götze, Z. Phys. B **56**, 139 (1984).
- [12] L. Sjögren, Phys. Rev. A **33**, 1254 (1986).

## 4.2 Struktur und Dynamik zäher Alkalischilikatschmelzen

F. Kargl<sup>1</sup>, A. Meyer<sup>1</sup>, H. Schober<sup>1,2</sup>, D. B. Dingwell<sup>3</sup>

<sup>1</sup> E13, Physikdepartment TU München

<sup>2</sup> Institut Laue-Langevin, Grenoble, Frankreich

<sup>3</sup> Institut für Mineralogie, Petrologie und Geochemie der LMU

Silikate finden nicht nur in der Glasindustrie als technisch relevante Materialien Verwendung, sondern spielen vor allem bei magmatischen Prozessen im Erdinneren eine große Rolle. Um die dort bei hohen Temperaturen und Drücken ablaufenden Vorgänge grundsätzlich

verstehen zu können, ist es wichtig neben der genauen makroskopischen Charakterisierung und Beobachtung dieser Materialien Untersuchungen auf atomarer Ebene durchzuführen. Unsere Arbeit konzentriert sich auf alkalihaltige silikatische Netzwerkgläser, da sie in der Schmelze als einfache Analoga der Magma verstanden werden können und in der Technik zur Anwendung kommen. In den letzten Jahren wurden große Fortschritte auf dem Gebiet der Molekulardynamiksimulation gemacht. Insbesondere liegen ausführliche Simulationen für die von uns untersuchten Systemen vor [1]. Unsere Messungen bieten für die Simulatoren die Möglichkeit ihre Potentiale an experimentellen Daten zu eichen. Umgekehrt ist es später möglich mit Hilfe der Simulation in experimentell nicht realisierbare Bereiche der Physik vorzudringen.

Wir untersuchen zähflüssige Alkalisilikate unterschiedlicher Alkalikonzentration bei Temperaturen bis zu 1600 K mit Hilfe inelastischer Neutronenstreuung. Unsere Messungen zu Struktur und Dynamik der Schmelzen führen wir am hochauflösenden Flugzeitspektrometer IN6 des Instituts Laue-Langevin in Grenoble durch. Es wurden bislang folgende Proben untersucht: Natriumdisilikat  $\text{Na}_2\text{Si}_2\text{O}_5$  (NS2), Natriumtrisilikat  $\text{Na}_2\text{Si}_3\text{O}_7$  (NS3), Natriumtetrasilikat  $\text{Na}_2\text{Si}_4\text{O}_9$  (NS4) und eine Schmelze mit 40 mol% Natriumgehalt (NS1.5).

Die Gläser wurden aus hochreinen  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  und  $\text{SiO}_2$  Pulvern bei Temperaturen bis zu 1700 K synthetisiert. Zur Homogenisierung der Proben wurden diese mehrere Stunden im Ofen getempert. Der Probenhalter besteht aus reinem Platin, um eine Reaktion Probe-Probenhalter bei hohen Temperaturen zu unterbinden. Um ein Auslaufen der Probe im Vakuum zu verhindern, wurde er anschließend verschweißt. Die Geometrie eines Hohlzyllinders, der mit einer Wandstärke der Probe von 1.25 mm an den Wirkungsquerschnitt der Probe angepasst wurde, verhindert weitgehend Vielfachstreuung und erleichtert die bei der Datenauswertung notwendige Selbstabsorptionskorrektur.

Struktur und Dynamik der Schmelzen wurden am IN6 bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 5.9 \text{ \AA}$  mit einer Energieauflösung von  $\delta E = 50 \text{ \mu eV}$  (FWHM) und einem Impulsübertrag von  $q = 0.2 - 1.79 \text{ \AA}^{-1}$  bei Energieübertrag null bestimmt. Die Proben unterschiedlicher Alkalizusammensetzung wurden bei Umgebungstemperatur, d.h. im Glaszustand, und bei Temperaturen zwischen 1000 K und 1600 K, d.h. in der Schmelze vermessen. Die kalorische Glasübergangstemperatur  $T_g$  der Schmelzen liegt je nach Alkalikonzentration zwischen 720 K für NS1.5 und 770 K für NS4 [2].

Analog zu NS2 [4] zeigt sich auch bei NS3 der inkohärente Anteil des Natriums in einem temperaturunabhängigen flachen Untergrund des Strukturfaktors  $S(q, \omega = 0)$  bei kleinen Wellenzahlen  $q$ . Das Strukturfaktormaximum bei  $q \approx 1.7 \text{ \AA}^{-1}$  beschreibt in reinen  $\text{SiO}_2$  den Abstand der  $\text{SiO}_4$  Tetraeder des SiO-Netzwerks. Die Breite dieses Peaks wächst und die Intensität verringert sich mit zunehmendem Na Gehalt, d.h. das SiO-Netzwerk wird durch die Zugabe von  $\text{Na}_2\text{O}$  gestört. Mit steigender Temperatur bildet sich ein Prepeak, dessen Intensität und Position sowohl von der Natriumkonzentration, als auch von der Temperatur abhängt. Experimentell konnte er zum erstenmal beobachtet werden, da wir unsere Experimente in der Schmelze mit guter  $q$ -Auflösung bei kleinen  $q$  durchführen. Molekulardynamiksimulationen an NS2, NS3 und NS4 finden ebenfalls diesen Prepeak vor dem ersten Strukturfaktormaximum. In der MD-Simulation korreliert dieser Prepeak mit der Bildung Na reicher Gebiete. Seine Position entspricht einem charakteristischen Abstand zwischen diesen Na reichen Zonen.

Die Diffusion der Natrium Ionen, zeigt sich in einem mit zunehmender Temperatur stärker ausgeprägten quasielastischen Signal. Die Anpassung der Daten mit einer Lorentzfunktion

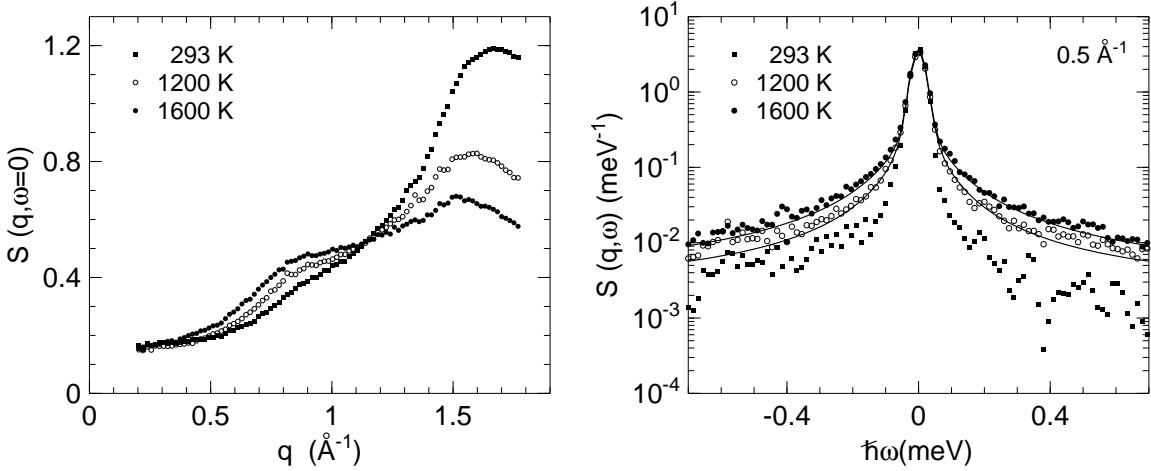


Abbildung 4.2.1:

Struktur und Dynamik einer zähen NS3-Schmelze: a) Elastischer Strukturfaktor von NS3 bei verschiedenen Temperaturen. Mit steigender Temperatur wächst ein Prepeak bei etwa  $0.8 \text{ \AA}^{-1}$  vor dem ersten Maximum. b) Streufunktion  $S(q, \omega)$  bei  $q = 0.5 \text{ \AA}^{-1}$  für verschiedene Temperaturen. Die durchgezogenen Linien entsprechen der Anpassung einer mit der Auflösung gefalteten Summe von Kohlrausch- und Deltafunktion. Der Anteil der Deltafunktion entspricht der elastischen Streuung. Die Kohlrausch-Funktion beschreibt die Quasielastik.

war nicht möglich, es wurde deshalb eine mit der Auflösung gefaltete Summe aus Kohlrausch und Deltafunktion verwendet (Abb. 4.2.1 b). Diese ergab für NS3 Relaxationszeiten bei  $q = 0.5 \text{ \AA}^{-1}$  von  $\langle \tau \rangle \simeq 15 \text{ ps}$  bei 1600 K und von  $\langle \tau \rangle \simeq 38 \text{ ps}$  bei 1200 K. Der Streckungsfaktor  $\beta$  der Kohlrauschfunktion lag für beide Anpassungen zwischen 0.7 und 0.8. Daraus folgt analog zu NS2, dass es sich nicht um einen einfachen aktivierten Prozess handelt. Das Signal ist auch zu kleinen  $q$  von einem elastischen Anteil dominiert. Da das Signal von der inkohärenten Streuung an Na dominiert ist folgt daraus, dass zu jeder gegebenen Zeit nur ein Bruchteil der Na-Ionen an der Diffusion teilnimmt. Die Relaxationszeiten sind für kleine  $q$  linear mit  $q^2$ , wie man es für einen langreichweitigen Transport erwarten würde. Mit steigender Temperatur nehmen die Relaxationszeiten, die somit ein Maß für die Diffusionsgeschwindigkeit sind, ab. Wenn die Messdaten vollständig ausgewertet sind - dies ist derzeit noch in Arbeit -, werden wir die gemessenen Relaxationszeiten mit makroskopischen Größen vergleichen und Aussagen über die Konzentrationsabhängigkeit der Na Diffusion in Silikatschmelzen machen können.

Die Beobachtungen zum statischen Strukturfaktor decken sich mit den Ergebnissen der Molekulardynamiksimulationen. Neben den Alkalisilikaten als einfachsten synthetischen Netzwerkgläsern wurde damit begonnen Albit zu untersuchen. Dabei handelt es sich um ein Silikat, das Na und Al zu gleichen Teilen enthält. Der nächste Schritt ist zum einen die Untersuchung natürlichen Vulkangesteins des Ätna, welches bereits mit makroskopischen Methoden von Dingwell et al. charakterisiert wurde. Zum anderen sollen Messungen an wasserhaltigen Gläsern durchgeführt werden, da diese von besonderer geologischer Relevanz sind.

- [1] J. Horbach, W. Kob, K. Binder Phil. Mag. B **77**, 297 (1998) und enthaltene Referenzen
- [2] D. B. Dingwell, R. Knoche, S. L. Webb, Phys. Chem. Minerals 19, 445 (1993).
- [3] A. Meyer, H. Schober, J. Neuhaus, Phys. Rev. B **63**, 212202 (2001).
- [4] A. Meyer, H. Schober, D. B. Dingwell, Europhys. Lett. (submitted)

### 4.3 Atomarer Transport in massivglas–bildenden Metallschmelzen

A. Meyer, W. Petry, M. Koza<sup>1</sup>, M.-P. Macht<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Institut Laue-Langevin, Grenoble, Frankreich

<sup>2</sup> Hahn-Meitner-Institut, Berlin

In den letzten Jahren untersuchten wir schnelle Dynamik in glasbildenden Metallschmelzen mit dem Ziel Vorhersagen der Modenkopplungstheorie für den Flüssig–Glas–Übergang zu testen [1]. Metallische Flüssigkeiten sind hierbei durchaus Modellsubstanzen. Sie haben eine relativ einfache Struktur: In erster Näherung können die mehrkomponentigen Systeme auf Zr-Basis als harte Kugeln mit einer Verteilung von Atomradien angesehen werden. Im Vergleich zu molekularen Glasbildnern besitzen sie einen niedrigen Ausdehnungskoeffizienten. Dies führt zu sehr harmonischen Potentialen über einen weiten Temperaturbereich bis in die Schmelze. Darüberhinaus sind vibratorische Schwingungsanregungen gut von der Relaxationsdynamik getrennt: Der sogenannte Bosonpeak liegt bei etwa 6-7 meV.

Mit inelastischer Neutronenstreuung an ZrTiNiCuBe-Schmelzen finden wir einen zusätzlichen schnellen Relaxationsprozess, der in quantitativer Übereinstimmung mit den universellen Skalengesetzen der Modenkopplungstheorie ist [2]. Im Bild der Modenkopplungstheorie bereitet die schnelle  $\beta$  Relaxation die strukturelle Relaxation und somit den Materietransport vor. Die Selbstdiffusion und die Diffusion von Fremdatomen in unterkühlten ZrTiNiCuBe-Schmelzen ist in den letzten Jahren mittels Tracerdiffusion, Interdiffusion und NMR detailliert untersucht worden [3]. In der unterkühlten Schmelze oberhalb der kalorischen Glasübergangstemperatur diffundieren die kleineren Atome in der starren Matrix aus Zr-Atomen. Molekulardynamiksimulationen an binären ZrNi-Schmelzen bestätigen dieses Verhalten [4]: Bei Annäherung an die kritische Temperatur  $T_c$  der Modenkopplungstheorie nähern sich die Diffusionskoeffizienten von Ni und Zr an. Oberhalb von  $T_c$  diffundiert Ni etwa 2-3 mal schneller als das Zr, die Diffusionskoeffizienten weisen jedoch die gleiche Temperaturabhängigkeit auf.

Wir untersuchen ZrTiNiCuBe-Schmelzen (V1 und V4) mit inelastischer Neutronenstreuung am Flugzeitspektrometer IN 6 des Instituts Laue–Langevin. Mit der größten an diesem Instrument möglichen Wellenlänge von  $5.9 \text{ \AA}$  wird eine Energieauflösung von etwa  $50 \mu\text{eV}$  erreicht, die es erlaubt Bewegungen der Atome im Zeitbereich von einigen 0.1 ps bis zu 20 ps zu beobachten. Zugängliche Impulsüberträge  $q$  liegen zwischen  $0.2 \text{ \AA}^{-1}$  und  $1.7 \text{ \AA}^{-1}$ . Das erste Maximum im Strukturfaktor liegt bei  $2.7 \text{ \AA}^{-1}$ . Das Streusignal ist somit dominiert von inkohärenter Streuung, welche wiederum, berechnet aus den Streuquerschnitten, zu etwa 87 % Streuung an den Ni- und Ti-Atomen ist.

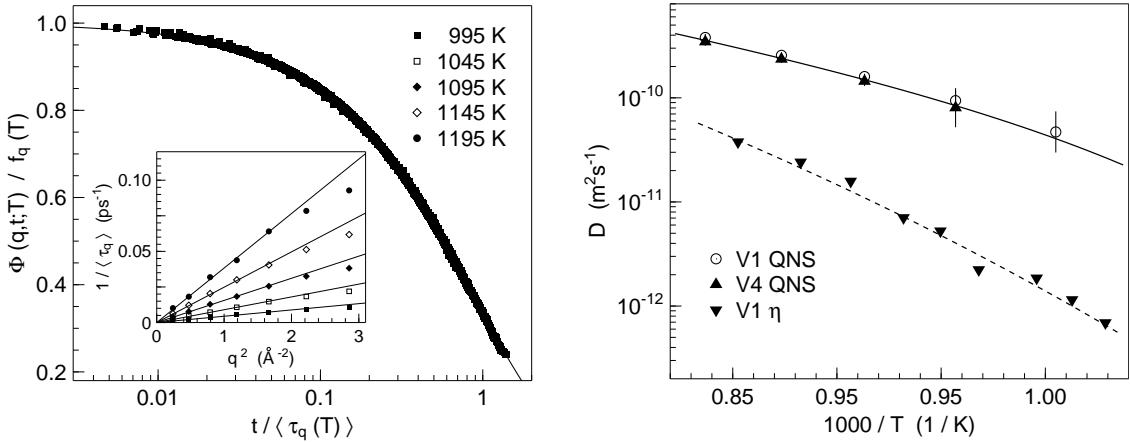


Abbildung 4.3.1:

Atomarer Transport in ZrTiNiCuBe-Schmelzen untersucht mit inelastischer Neutronenstreuung. Links: Masterkurve der Korrelationsfunktionen  $\Phi(q, t)$ . Die Linie ist die Anpassung einer gestreckten Exponentialfunktion mit einem Streckungsexponenten von 0.82. Rechts: Diffusionskoeffizienten  $D$  der Ni- und Ti-Atome im Vergleich mit den über Stokes-Einstein aus den Viskositätsdaten  $\eta$  berechneten Diffusionskoeffizienten.

Abbildung 4.3.1 (links) zeigt die aus den Neutronenstreudaten ermittelte Korrelationsfunktion. Die Korrelationsfunktionen lassen sich über den gesamten Temperatur- und  $q$ -Bereich mit einer gestreckten Exponentialfunktion mit einem Streckungsparameter von  $0.82 \pm 0.02$  beschreiben und folgen dem Zeit-Temperatur-Superpositionsprinzip. Die Relaxationszeiten zeigen zu kleinen  $q$  eine  $q^2$  Abhängigkeit. Dies ist in Übereinstimmung mit Neutronenstreuergebnissen an PdNiCuP-Schmelzen [5]. Abbildung 4.3.1 (rechts) zeigt die aus den Relaxationszeiten berechneten Diffusionskoeffizienten  $D(T) = 1/q^2\tau(T, q)$  und einen Vergleich mit den Diffusionskoeffizienten, die über die Stokes-Einstein Beziehung aus den Viskositätsdaten [6] berechnet sind.

Im Rahmen des Fehlers ist die Diffusion der Ni- und Ti-Atome in V1 und V4 in der Schmelze gleich. Dies ist überraschend, da sowohl der Liquidus (V1: 992 K, V4: 1050 K) als auch die Glasbildungseigenschaften der beiden Legierungen unterschiedlich sind. In Netzwerkgläsern findet man, dass die strukturelle Relaxation des Netzwerkes übergeht in den viskosen Fluß. Viskosität und Relaxationszeit zeigen die gleiche Temperaturabhängigkeit. Vergleicht man den langreichweiten Transport der Ni- und Ti-Atome mit dem aus den Viskositätsdaten, zeigen beide eine stark unterschiedliche Temperaturabhängigkeit. Geht man davon aus, dass in den ZrTiNiCuBe-Schmelzen die Viskosität ebenfalls durch die langreichweite Bewegung der Zr-Atome bestimmt ist, folgt daraus, dass selbst in der Schmelze weit oberhalb von  $T_c$  (etwa 875 K) die Ni- und Ti-Atome in einer relativ starren Matrix aus Zr-Atomen diffundieren.

- [1] W. Götze, L. Sjögren, Rep. Prog. Phys. **55**, 241 (1992).
- [2] A. Meyer, J. Wuttke, W. Petry, O. G. Randle, H. Schober, Phys. Rev. Lett. **80**, 4454 (1998).
- [3] A. Rehmet, K. Rätzke, F. Faupel, P. D. Eversheim, K. Freitag, U. Geyer, S. Schneider, Appl. Phys. Lett. **79**, 2892 (2001) und enthaltene Referenzen.
- [4] A. B. Mutiara, H. Teichler, Phys. Rev. E **64**, 046133 (2001).

- [5] A. Meyer, R. Busch, H. Schober, Phys. Rev. Lett. **83**, 5027 (1999).
- [6] A. Masuhr, T. A. Waniuk, R. Busch, W. L. Johnson Phys. Rev. Lett. **82**, 2290 (1999)

## 4.4 Phonons in confinement and the Boson peak using nuclear inelastic absorption

T. Asthalter<sup>1</sup>, M. Bauer<sup>1</sup>, U. van Bürck, A. I. Chumakov<sup>2,3</sup>, I. Sergueev<sup>4</sup>,  
H. Franz<sup>5</sup>

<sup>1</sup> Institut für Physikalische Chemie, Universität Stuttgart

<sup>2</sup> ESRF, Grenoble

<sup>3</sup> Russian Research Centre 'Kurchatov Institute', Moscow

<sup>4</sup> TUM E13/ESRF, Grenoble

<sup>5</sup> Hasylab, Hamburg

The microscopic origin of the Boson peak is a recent matter of debate. There is experimental evidence for the existence of fast sound from inelastic X-ray scattering that can be interpreted in terms of collective propagating modes [1]. On the other hand, the existing models for the boson peak are rather different and partly contradict each other. In the soft potential model the existence of soft localized modes is postulated. In the harmonic disorder model (see section 6.1) the scattering from the disorder in the harmonic force constants is supposed to be responsible for the Boson peak. In order to clarify the situation it is interesting to study samples in different geometrical confinement. The geometrical confinement by pores might influence the shape and steepness of the intermolecular potentials; both a softening of the forces may occur owing to the increase of local free volume around molecules close to the pore wall as well as a hardening originating from the interaction with a matrix having stiff walls. Which effect dominates can be probed by monitoring the spectral shape of the Boson peak when a glass former is introduced into a nanostructured matrix.

We studied the glass former dibutylphthalate/ferrocene at different temperatures under geometrical confinement in porous silica matrices of 25 and 50 Å pore size as well as in the bulk, using nuclear inelastic absorption (NIA) [2,3], which involves a recoil of the <sup>57</sup>Fe nucleus. This method is a powerful tool for element-selective studies of the vibrational dynamics of crystalline solids and glasses. Moreover, it provides background-free measurements because only the resonant nuclei contribute to the delayed signal. Unlike other inelastic methods like neutron-scattering, where a theoretical model is usually mandatory, this technique gives direct access to the partial phonon density of states (DOS) of the iron atoms, and the scattering process is completely incoherent.

The experiment was carried out at the Nuclear Resonance Beamline ID18 [4] at the ESRF, using a three-bounce high-resolution monochromator, where the energy resolution is provided by two highly asymmetrically cut Si(9 7 5) reflections and a Ge(3 3 1) symmetrically cut crystal ensures an approximately horizontally outgoing beam. A new set of crystals providing an energy resolution of about 0.5 meV and a flux of  $10^8 \text{ s}^{-1}$  was used. The sample (a pellet having 2 mm thickness and 5 mm diameter) was mounted into a closed-cycle cryostat. The copper holder was inclined by 5° with respect to the beam. Owing

to radiative heat transfer from the cryostat window to the sample (distance  $\approx 3$  mm), the set temperature of the cryostat is not the actual temperature of the sample. The true sample temperature was determined by detailed balance after subtraction of the resolution function from the raw spectra. For the evaluation of the phonon DOS, the DOS program V2.1 [5] was used.

Fig. 4.4.1 (left) shows the total DOS of the bulk at 85 K. On this scale, the difference between bulk and nanoporous samples is not visible, but it becomes noticeable when inspecting the reduced DOS  $g(E)/E^2$ , since low energies are emphasized by the  $g(E)/E^2$  plot. For energies below 1.25 meV the DOS is suppressed in the pores with respect to the bulk, whereas for higher energies a clear enhancement and, apparently, also a slight “sharpening” of the Boson peak with decreasing pore size is observed. We should like to emphasize that our data evaluation and hence the results are still preliminary.

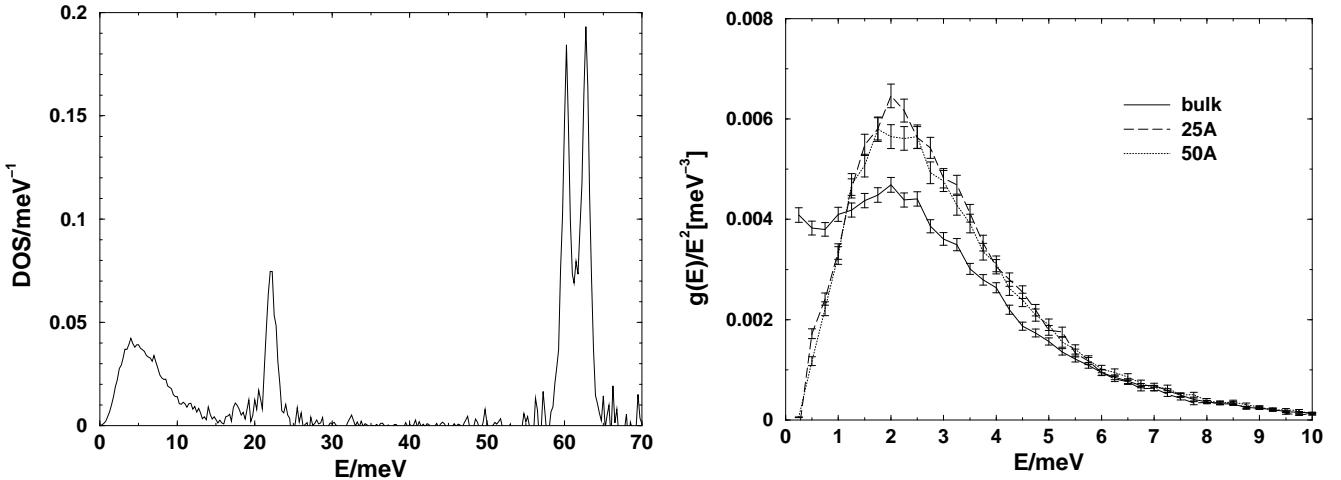


Figure 4.4.1:  
Bulk DOS (left) and  $g(E)/E^2$  for bulk and two nanoporous samples (right) of dibutylphthalate/ferrocene ( $T = 85$  K). The optical phonons at 21, 60 and 62.5 meV are due to combined bend, tilt and stretching modes of the ferrocene molecule.

Qualitatively, the suppression at low energies can be explained by a cut-off of long-wavelength modes by the geometrical confinement. Quantitatively, however, we would expect that the cut-off energy is two times lower in 50 Å pores than in 25 Å pores. This is clearly not the case, the cut-off seems to be independent of the pore size within the accuracy of our energy resolution of 0.5 meV. Our finding can be compared with neutron time-of-flight results obtained on salol in nanopores [6], where a cut-off was observed as well, but the dependence on pore size was also smaller than expected.

In this context, considering the Lamb-Mößbauer factor, which is easily obtained from the DOS, may be illustrating. We obtain  $0.56 \pm 0.02$  for the bulk,  $0.55 \pm 0.02$  for 50 Å and  $0.47 \pm 0.08$  for 25 Å. Again, this result is not consistent with a simple cut-off model, since in this case we expect an increase of  $f_{\text{LM}}$ .

Rather, this finding points to a total softening in small pores, which might be explained by the existence of local free volume for molecules close to the wall. It is also consistent with

our earlier finding using X-ray fluorescence spectroscopy that the pore filling is almost complete in pores down to 50 Å size, but that only about 80 % filling is observed in the smallest pores.

- [1] F. Sette, M. H. Krisch, C. Masciovecchio, G. Ruocco, G. Monaco, *Science* **280**, 1550 (1998)
- [2] M. Seto, Y. Yoda, S. Kikuta, X. W. Zhang, M. Ando, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3828 (1995)
- [3] W. Sturhahn, T. S. Toellner, E. E. Alp, X. Zhang, M. Ando, Y. Yoda, S. Kikuta, M. Seto, C. W. Kimball, B. Dabrowski, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3832 (1995)
- [4] R. Rüffer, A. I. Chumakov, *Hyperf. Int.* **97/98**, 589 (1996)
- [5] V. G. Kohn, A. I. Chumakov, *Hyperf. Int.* **125**, 205 (2000)
- [6] R. Zorn, D. Richter, L. Hartmann, F. Kremer, B. Frick, *J. Physique IV* **10**, 83 (2000)

## 4.5 SRPAC – a new method to study hyperfine interactions and dynamics in soft matter

I. Sergueev<sup>1</sup>, U. van Bürck, A. I. Chumakov<sup>2 3</sup>, T. Asthalter<sup>4</sup>, G. V. Smirnov<sup>3</sup>, H. Franz<sup>5</sup>, R. Rüffer<sup>2</sup>, W. Petry

<sup>1</sup> TUM E13; ESRF Grenoble

<sup>2</sup> ESRF, Grenoble

<sup>3</sup> Russian Research Center 'Kurchatov Institute', Moscow

<sup>4</sup> Institut für Physikalische Chemie, Universität Stuttgart

<sup>5</sup> Hasylab, Hamburg

Synchrotron Radiation based Perturbed Angular Correlation (SRPAC) is a new method of nuclear resonant scattering which allows one to study hyperfine interactions and dynamic processes in matter. It will be of particular value in all regimes where the Mössbauer effect breaks down because of a vanishing Lamb-Mössbauer factor  $f_{LM}$ , e.g. for investigations of dynamics in soft matter and in biological systems.

SRPAC is basically a scattering variant of time differential perturbed angular correlation (TDPAC) (for a recent introduction to TDPAC see e.g. [1]). In SRPAC the intermediate nuclear level is not excited 'from above' via a cascade originating from the decay of a radioactive parent like in TDPAC, but 'from below', i.e. from the ground state, by spatially incoherent, single-nucleus resonant scattering of SR [2,3]. Directional selection and timing by the first detector in TDPAC are replaced in SRPAC by the direction and the timing of the SR flash. In both methods the interference of undistinguishable paths via the intermediate nuclear level exhibiting magnetic and/or electric quadrupole splitting allows one to investigate hyperfine interactions and dynamic processes.

We have applied SRPAC for the first time to investigate dynamics. For this purpose we have chosen the molecular glass former ferrocene/dibutylphthalate which had previously been studied by Mössbauer spectroscopy (MS) [4] and quasielastic nuclear forward scattering (QNFS) [5]. However, due to the strong decrease of  $f_{LM}$ , both methods cannot be employed for this system at temperatures above 205 K (QNFS) or 215 K (MS). But also conventional TDPAC can hardly be used in case of the <sup>57</sup>Fe nucleus because of a very

low anisotropy of the decay. Thus SRPAC seems to be the method of choice to extend Mössbauer studies on such systems to higher temperatures.

The experiment was carried out at beamline ID18 at the ESRF. The experimental setup is shown in Fig. 4.5.1. A monochromator with bandwidth  $\sim 200$  meV was used to allow for both elastic and inelastic nuclear resonant excitation. The time evolution of the spatially incoherent delayed reemission of the 14.4 keV quanta [2] was measured by an APD-detector, mounted below the sample in 90 degree scattering geometry. The detector was shielded by a  $320\mu$  Al foil against the dominating 6.4 keV Fe fluorescence following internal conversion. The measurements were performed in a temperature range between 200 and 250K, using a closed-cycle helium cryostat.

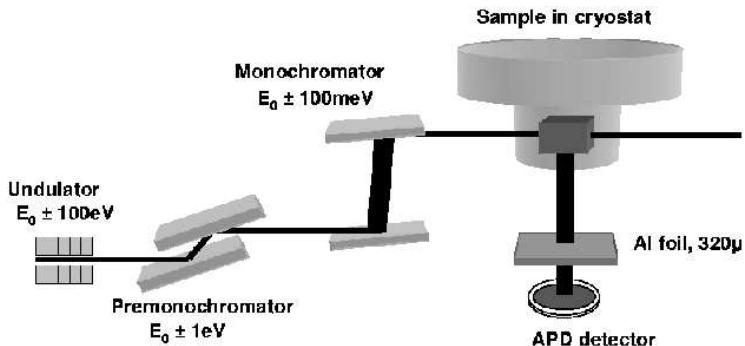


Figure 4.5.1:  
Experimental setup for the SRPAC experiment.

In the absence of hyperfine splitting, the resonantly scattered intensity would decay exponentially with life time  $\tau_0 = 141$  ns. However, an electric field gradient at the  $^{57}\text{Fe}$  nucleus in the ferrocene molecule leads via quadrupole interaction to a splitting of the nuclear excited state and thus to a perturbation of the time spectra. If the field gradient is fixed during the nuclear decay, the time evolution of the scattered intensity is modulated by a quantum beat (QB) with frequency  $\Omega$ :

$$I(t) = I_0 \exp(-t/\tau_0) \cdot (1 - A \cos(\Omega t/\tau_0)) \quad (4.5.1)$$

where  $A$ , the contrast of the QB, depends on the geometry of the experiment, in our case  $A \approx 0.43$ . However, if the ferrocene molecule and by this the field gradient (of constant magnitude) is rotated during the decay of the intermediate state, the time evolution of the scattering is strongly affected. Since SRPAC, like TDPAC, does not directly depend on translational motion of the scattering nucleus, it is predominantly sensitive to reorientational relaxation alone. This is in contrast to MS or QNFS, where the sensitivity to both translational and reorientational diffusion seriously complicates the data analysis [4].

The theory for the impact of reorientational relaxation on TDPAC and MS has been developed by Blume, Tjon and Dattagupta in stochastic approximation (for a review see e.g. [6]). We adapted this theory to the case of SRPAC on  $^{57}\text{Fe}$  and used it to fit our data. Like in TDPAC [1], there are two limiting regimes, depending on the characteristic relaxation rate  $\lambda$ . In the slow relaxation regime, for  $\lambda \ll \Omega$ , the natural decay is modulated by a QB with contrast slowly fading exponentially at a rate proportional to  $\lambda$ . In the fast relaxation regime, for  $\lambda \gg \Omega$ , the modulation is overdamped, decaying at a rate proportional to  $\Omega^2/\lambda$ .

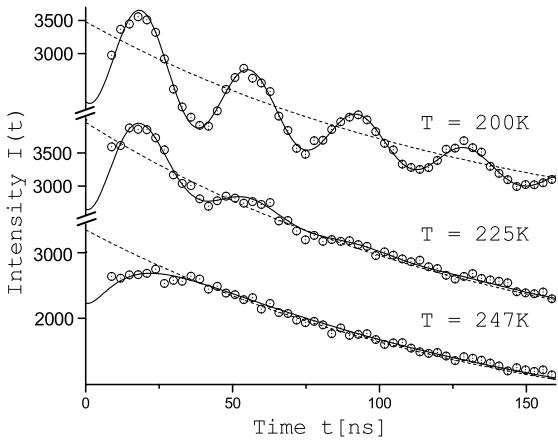


Figure 4.5.2:

SRPAC time spectra of ferrocene/dibutylphthalate at  $T=200$ ,  $225$  and  $247$  K. Solid lines show fits by the relaxation model, dotted lines show the late-time asymptotes in case of relaxation.

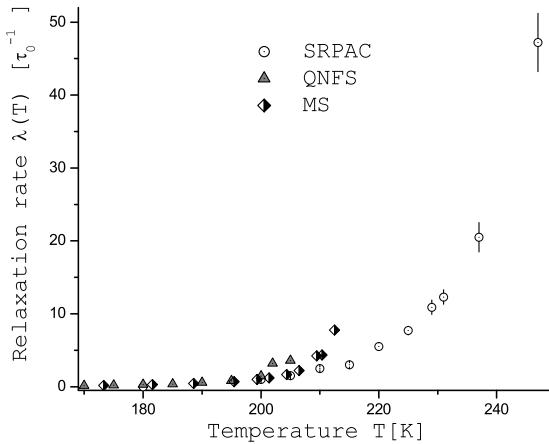


Figure 4.5.3:

Dependence of the characteristic relaxation rates on temperature measured by SRPAC (circles), QNFS [5] (triangles), and Mössbauer spectroscopy [4] (diamonds).

In Fig. 4.5.2 we show typical experimental time spectra with fits (solid lines) and guidelines to the eye corresponding to the late-time asymptotes in case of relaxation (dotted lines) for different temperatures  $T$ . The situation at  $T=200$  K corresponds to slow relaxation: A pronounced QB with weak damping is observed. Note that this QB starts at  $t=0$  with minimum intensity due to 90 degree scattering out of plane, by contrast to the QB usually observed in NFS. At  $T=225$  K the QB still exists, but is strongly damped. At  $T=247$  K no QB is observed any longer, this situation corresponds to fast relaxation.

The dependence of the relaxation rate  $\lambda$  on temperature obtained from a preliminary fit of our data is shown in Fig. 4.5.3 together with those of the relaxation rates obtained by QNFS [5] and MS [4]. Note first of all the strongly expanded overall measurement regime of SRPAC as compared to MS and QNFS. This feature nicely demonstrates the power of SRPAC. In detail, in the region  $208$  -  $213$  K the relaxation rates from MS and QNFS are larger than the rates from SRPAC. This seems to be reasonable, since in the case of MS and QNFS the relaxation is caused by both translational and reorientational diffusion, whereas in SRPAC it is only determined by reorientational diffusion. A more detailed analysis of the results is presently under way.

In conclusion, the results of this study demonstrate that SRPAC is a very suitable method to investigate relaxation dynamics in a large temperature region. In particular, the comparison of the results of SRPAC with those of QNFS or MS allow one to distinguish between translational and reorientational relaxation.

- [1] T. Butz, Z. für Naturforsch. A **51**, 396 (1996)
- [2] G. T. Trammell, J. P. Hannon, Phys. Rev. B **18**, 165 (1978)
- [3] A. Q. R. Baron, A. I. Chumakov, R. Rüffer, H. Grünsteudel, H. F. Grünsteudel, O. Leupold, Europhys. Lett. **34**, 331 (1996)
- [4] S. L. Ruby, B. J. Zabransky, P. A. Flinn, J. Phys. C6 **37**, 745 (1976)
- [5] A. Meyer, H. Franz, J. Wuttke, W. Petry, N. Wiele, R. Rüffer, C. Hübsch, Z. Phys. B **103**, 479 (1997)
- [6] S. Dattagupta, Hyperfine Interactions **11**, 77 (1981)

## 4.6 Quasielastic scattering by time domain interferometry: Comparison of the quantum beat and the radiative coupling regimes

U. van Bürck, G. V. Smirnov<sup>1</sup>, H. Franz<sup>2</sup>, T. Asthalter<sup>3</sup>, O. Leupold<sup>4</sup>,  
E. Schreier<sup>5</sup>, W. Petry

<sup>1</sup> Russian Research Center 'Kurchatov Institute', Moscow

<sup>2</sup> Hasylab, Hamburg

<sup>3</sup> Institut für Physikalische Chemie, Universität Stuttgart

<sup>4</sup> Univ. Rostock; Univ. Paderborn; ESRF Grenoble

<sup>5</sup> TUM E13; ESRF Grenoble

The analysis of quasielastic scattering of synchrotron radiation in non-resonant samples by means of nuclear resonant time domain interferometry (TDI) [1,2,3] allows one to study motions of atoms and molecules on Å length scales and ns to µs time scales, providing the possibility to investigate processes like diffusion, glass relaxation, or motions of biomolecules and polymers. However, in spite of its obvious potential for investigations of X-ray scattering with very high energy resolution at variable momentum transfer, TDI has not been further applied so far, except for attempts to observe quasielastic scattering in Bragg reflections [4]. In the present study we wanted to compare in a methodological investigation the original method based on interference alone [1] with a recently proposed variant based on multiple nuclear scattering [5].

In TDI the scattering of synchrotron radiation by a non-resonant sample is analyzed by means of the delayed nuclear resonant forward scattering from two targets which act as 'interferometer arms'. One target is mounted upstream and the other downstream of the scattering sample. In case of a stiff sample, as well as in forward scattering, the response of the nuclear interferometer is not affected at all by the sample. However, if the sample exhibits dynamics and if the scattering is observed in directions with non-zero scattering vector, the radiation reemitted from the upstream target will be perturbed

by the electronic scattering in the sample, so that the time-dependent response of the nuclear interferometer will be altered in a characteristic way. From these changes in the time dependence, the intermediate scattering function of the sample can be obtained. Because of the extreme sharpness of nuclear resonant scattering, this method allows one to observe in case of the common Mössbauer isotope  $^{57}\text{Fe}$  quasielastic processes in the range of about 2-500neV at variable  $q$ -vectors in the range of  $1\text{-}10\text{\AA}^{-1}$  with an energy resolution of about 10neV. Thus TDI is complementary to quasielastic neutron scattering, covering in particular slower dynamics and larger  $q$ -values.

In the original method [1], two nuclear single-line targets of equal optical thickness are set at different energies by moving one target at constant Doppler velocity by a Mössbauer driving system. In this case the interferometer signal is modulated by a pronounced quantum beat (QB) due to interference of two wave packets of slightly different energies. Intrinsic [1] or externally applied [6] dynamics of the scattering sample leads to an amplitude and phase perturbation of the radiation from the upstream target. This causes then a partial destruction of the interference between the two wave packets, which is observed in particular as a fading in time of the QB contrast. This is the characteristic response of TDI in the QB-regime [1].

In a general theory of TDI [5] different regimes of the nuclear interferometer have been considered recently. In a new variant of the method, the two nuclear targets are kept at the same energy. In this case the delayed radiation reemitted from the upstream target can resonantly interact with the downstream target. The interferometer response is determined now by this radiative coupling (RC) of the targets due to multiple resonant scattering, which in general leads to a pronounced modulation of the delayed intensity called dynamical beat (DB) (see e.g. [7]). Without dynamics in the scattering sample the RC is not perturbed, and the DB corresponds to double optical thickness of the target. If by contrast strong dynamics destroy the RC completely, the DB modulation corresponds to single target thickness. The evolution of the DB in between these limiting cases will be the characteristic response of TDI in the RC-regime [5].

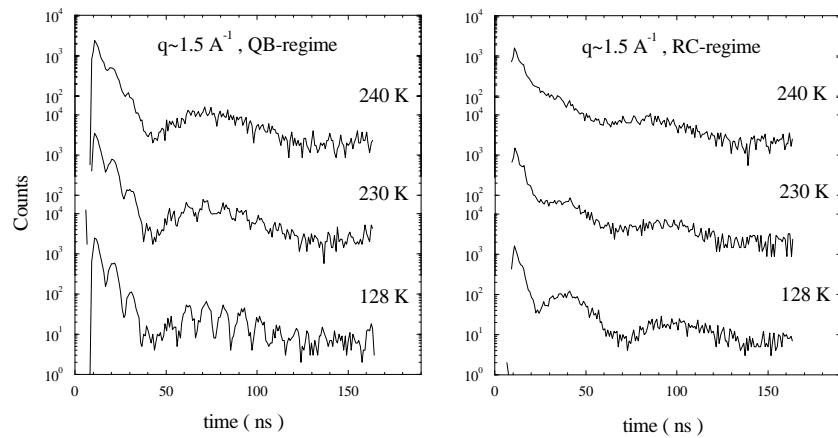


Figure 4.6.1:  
TDI spectra of glycerol in the QB-regime (left) and the RC-regime (right) at  $q \sim 1.5\text{\AA}^{-1}$  at  $T \sim 128, 230$  and  $240\text{K}$ .

After preliminary tests of the equipment at the nuclear resonance beamline at PETRA-

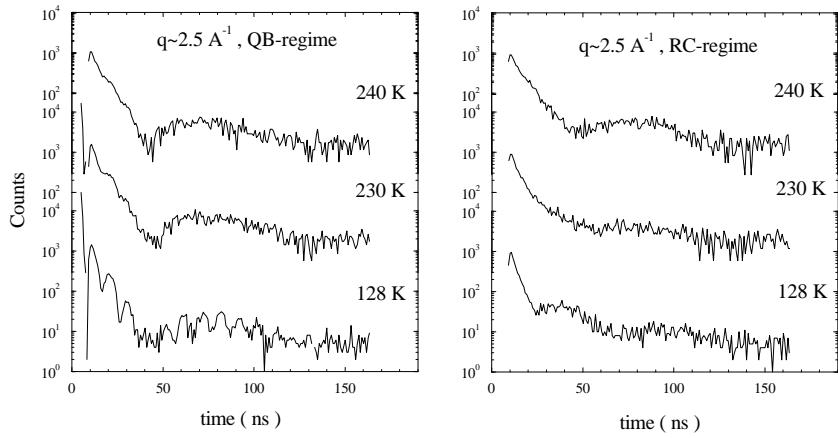


Figure 4.6.2:  
TDI spectra of glycerol in the QB-regime (left) and the RC-regime (right) at  $q \sim 2.5\text{\AA}^{-1}$  at  $T \sim 128, 230$  and  $240\text{K}$ .

II of HASYLAB, the experiment has been performed at the beamline ID22-N of ESRF. The incident SR was monochromized to  $\sim 6\text{meV}$  by a high resolution monochromator Si(422)/Si(1222) in nested geometry. Special care had been taken in the set-up [1] to minimize vibrations from the vacuum pump and from the constant velocity Mössbauer drive possibly affecting the triple system of the two targets and the scattering sample mounted in a  $\text{N}_2$  bath cryostat. Also the radiation background reaching the detectors for the scattered beams was carefully minimized. In the experiment, the quasielastic scattering from a sample of glycerol at temperatures  $T \sim 128, 230$  and  $240\text{K}$  was analyzed by TDI both in the QB-regime and the RC-regime, using as targets a set of two  $6\mu\text{m}$  thick stainless steel foils enriched to 95% in  $^{57}\text{Fe}$ . Measurements at different scattering angles  $\sim 8, 12, 16$  and  $20$  degrees corresponding to scattering vectors of magnitudes  $q \sim 1, 1.5, 2$  and  $2.5\text{\AA}^{-1}$  were performed in parallel using a segmented avalanche photodiode (APD) area detector [8]. The motion of the constant velocity drive was all time monitored via NFS by the target on the drive and another  $\sim 6\mu\text{m}$  stainless steel target rigidly mounted in forward direction. In each regime and for each temperature, data were taken for  $\sim 9\text{h}$ .

As an example of the accumulated raw data, we show in Figs. 4.6.1 and 4.6.2 the time evolutions measured at  $q \sim 1.5\text{\AA}^{-1}$  and  $q \sim 2.5\text{\AA}^{-1}$  for the QB- and the RC-regimes at different temperatures  $T$ . The data exhibit pronounced dependencies on  $T$  and  $q$ . At  $128\text{K}$ , with the scattering sample being completely stiff, the time evolutions at both scattering angles and for both regimes correspond to the instrumental functions (compare Figs.2h and 2a of [7]). At higher temperatures, a characteristic fading of the QB contrast [1,2,3] is observed in the QB-regime, with the QB almost vanishing at  $240\text{K}$  and  $q \sim 2.5\text{\AA}^{-1}$ . The corresponding time evolutions in the RC-regime are more difficult to interpret directly. However, e.g. the transformation from strong RC (first DB minimum at  $\sim 20\text{ns}$ ) at  $128\text{K}$  to a rather complete destruction of RC (first DB minimum at  $\sim 40\text{ns}$ ) by the scattering in the sample at  $240\text{K}$  can be easily recognized for  $q \sim 2.5\text{\AA}^{-1}$ . By contrast, at the same temperature such a strong destruction of the RC is not reached in case of the more elastic scattering in the structure factor maximum at  $q \sim 1.5\text{\AA}^{-1}$ , which obviously represents an intermediate case [5]. A more detailed comparison of the two methods, however, can only

be made after a careful data analysis which is presently in progress.

- [1] A. Q. R. Baron, H. Franz, A. Meyer, R. Rüffer, A. I. Chumakov, E. Burkel, W. Petry, Phys. Rev. Lett. **79**, 2823 (1997)
- [2] H. Franz, A. Q. R. Baron, R. Rüffer, W. Petry, E. Burkel, Ann. Report TUM Physics Dept. E13, 5 (1997)
- [3] H. Franz, W. Petry, A. Q. R. Baron, Hyperfine Interactions **123/124**, 865 (1999)
- [4] M. Kaisermayr, B. Sepiol, H. Thiess, G. Vogl, E. E. Alp, W. Sturhahn, Eur. Phys. J. B **20**, 335 (2001)
- [5] G. V. Smirnov, V. G. Kohn, W. Petry, Phys. Rev. B **63**, 144303 (2001)
- [6] A. Ludwig, H. Jex, Physica B **254**, 1 (1998)
- [7] U. van Bürck, W. Potzel, P. Schindelmann, Yu. V. Shvyd'ko, E. Gerdau, O. Leupold, H. D. Rüter, Phys. Rev. A **61**, 013803 (2000)
- [8] H. Franz et al., Hasylab Ann. Report (2001)

# 5 Dynamik von Biomolekülen

## 5.1 Druckassoziation und -dissoziation von Proteinen

R. Gebhardt , W. Doster, A. Schulte

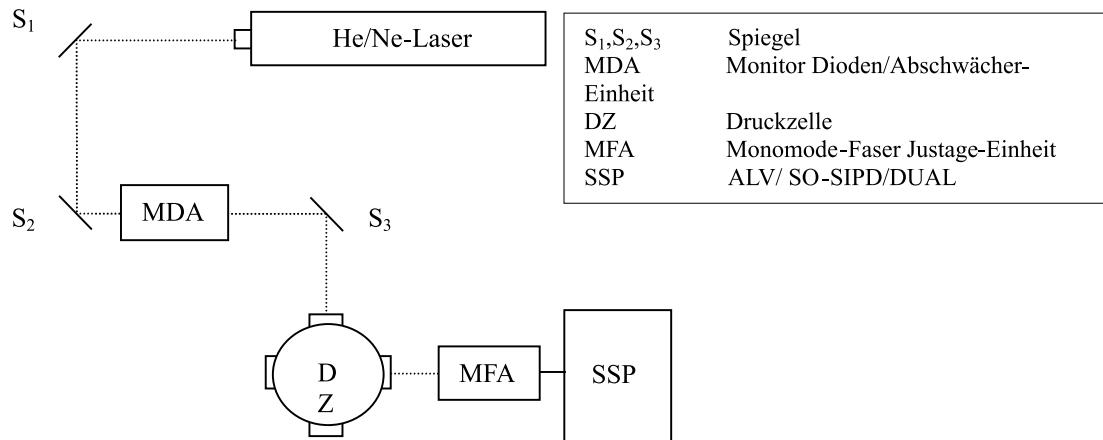


Abbildung 5.1.1: Dynamische Lichtstreuung unter Druck

Um Proteinlösungen mit Hilfe der dynamischen Lichtstreuung unter Druck untersuchen zu können, haben wir eine Druckzelle in die Lichtstreuapparatur integriert (Abb.5.1.1). Ein He/Ne-Laser wird über Spiegel und eine Abschwächereinheit auf die Proteinprobe gerichtet. Die bei einem Streuwinkel von  $90^\circ$  gestreute Photonenintensität wird durch ein Photomultiplier-Detektionssystem zu einem bestimmten Zeitpunkt gemessen und mit der zu einer späteren Zeit korreliert. Neben der absoluten Streuintensität erhält man somit zusätzlich eine Korrelationsfunktion, aus welcher letztendlich der hydrodynamische Radius der Teilchen ermittelt werden kann.

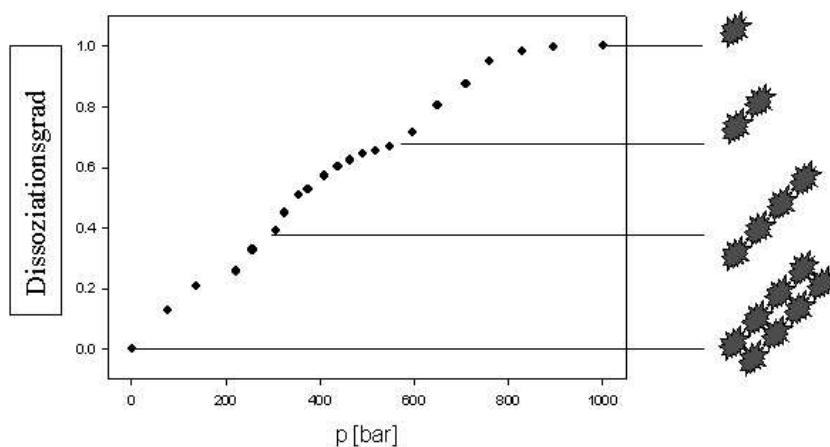


Abbildung 5.1.2: Druckdissoziation von F-Aktin

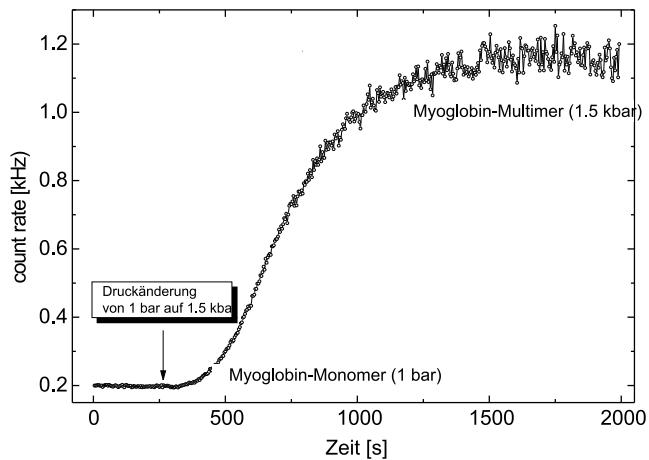


Abbildung 5.1.3: Assoziation von Myoglobin unter Druck

Druckexperimente an Proteinlösungen eignen sich besonders gut, um Dissoziations- und Denaturierungsvorgänge zu studieren. Diese werden durch Druckerhöhung begünstigt, da sie mit einer Verminderung des Volumens einhergehen. Bei der Dissoziation bewirkt vor allem die Ausrichtung der Wasserdipole eine Volumenabnahme, da die Wassermoleküle durch elektrostatische Wechselwirkungen dichter um die neu entstandenen Proteinober-

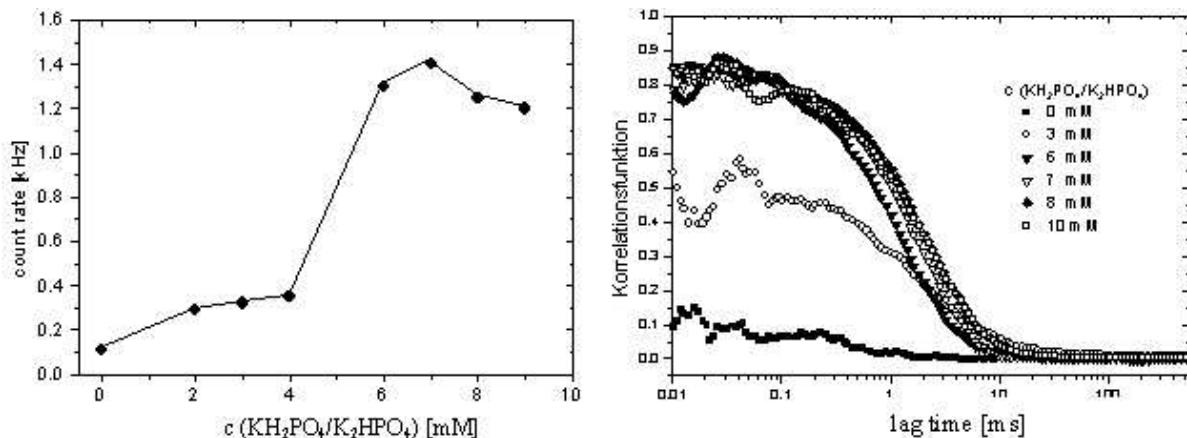


Abbildung 5.1.4:  
Streuintensität mit den entsprechenden Korrelationsfunktionen (rechtes Bild) in Abhängigkeit von der Phosphatkonzentration.

flächen der Dissoziate gepackt werden. Aber auch die druckbedingte Schwächung hydrophober Wechselwirkungen, die für den Zusammenhalt von Proteinkomplexen wichtig sind, fördert die Dissoziation. Wir haben uns mit der Druckdissoziation von Aktin beschäftigt. F-Aktin, ein faserförmiges Protein-Oligomer, dissoziiert im Druckbereich von 0-1 kbar in die G-Aktin-Monomere. Abb.5.1.2 zeigt einen ersten Vorversuch. Das vereinfachte Modell am rechten Bildrand soll lediglich der besseren Anschauung dienen.

Oligomere Proteine dissoziieren für gewöhnlich bei 1-2 kbar. Die Denaturierung, also der Verlust der Struktur, wird häufig erst durch Drücke von 7-10 kbar bewirkt. In un-

seren Lichtstreuexperimenten haben wir das erste Mal eine Assoziation eines Proteins im Druckbereich von 1.5-2.5 kbar beobachtet (Abb.5.1.3). Durch optische Spektroskopie und Flash-Photolyseexperimente unter Druck ist uns bekannt, dass Carboxy-Myoglobin in diesem Druckbereich sowohl strukturell als auch funktionell intakt bleibt, sodass eine denaturierungsbedingte Verklumpung ausgeschlossen werden kann. Lichtstreuexperimente haben außerdem gezeigt, dass die Aggregate unter Normaldruck sehr langsam wieder zerfallen. Eine Möglichkeit, um derartige Druckaggregationen zu erklären, wäre, dass sich unter Druck neue Bindungen bilden bzw. schwache Bindungen durch starke ersetzt werden. Neben Cystein-Cystein- und Salzbrücken-Bindungen am Protein kommen hier vor allem noch Vernetzungen von Aminosäuren über Phosphatgruppen in Betracht. Aus diesem Grund wurde die KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>/K<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>-Konzentration im Probenansatz variiert. Abb.5.1.4a zeigt die gemessenen KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>/K<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>-abhängigen Streuintensitäten des Proteins und Abb.5.1.4b die dazugehörigen Korrelationsfunktionen. Die Bindungskonstante für Hydrogenphosphat liegt im Konzentrationsbereich von mM. Mit steigender KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>/K<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>-Konzentration bilden sich bei ca. 1.5 kbar Myoglobinaggregate. Diese machen sich durch erhöhte Streuintensität und eine gestrecktere Korrelationsfunktion bemerkbar.

- [1] Vadim V. Mozhaev, Karel Heremans, Johannes Frank, Patrick Masson, Claude Balny (1996): *High Pressure Effects on Protein Structure and Function. Protein: Structure, Function, and Genetics.* Vol.24. 81-91
- [2] Gregorio Weber (1986): *Phenomenological Description of the Association of Protein Subunits Subjected to Conformational Drift. Effects of Dilution and of Hydrostatic Pressure.* Biochemistry. Vol. 25, No. 12, 3626-3631
- [3] W. Doster, M. Diehl, H. Schober, W. Petry, J. Wiedersich (2001): *Effect of pressure and pressure-denaturation on fast molecular motions of solvated myoglobin.* Trends in High Pressure Bioscience and Biotechnology.

## 5.2 Kinetik der Ligandenbindung von CO- Myoglobin unter Hochdruck

W. Doster, A. Delgado<sup>1</sup> and P. Först<sup>1</sup>, A. Schulte

<sup>1</sup> Institut für Fluidmechanik und Prozessautomation, TUM Weihenstephan, Freising

Im Rahmen der interdisziplinären Forschergruppe, Einfluss von Hochdruck auf molekulare und zelluläre Systeme, wurden von Hochdruckeffekte auf die Proteinfunktion am Beispiel des Myoglobins untersucht. CO wird durch einen Lichtblitz photolysiert und man verfolgt die resultierende Bindungskinetik mit zeitaufgelöster optischer Spektroskopie. Es lassen sich zwei kinetische Komponenten unterscheiden, die langsame Rückbindung von CO aus dem Lösungsmittel und ein schneller intramolekularer Prozess. Das CO-Molekül diffundiert über intramolekulare Hohlräume im Protein. Daher hängt die schnelle Komponente unter anderem von der Besetzung dieser Hohlräume mit Wasser ab. Die langsame Komponente dagegen spiegelt den Transfer des Liganden über die Proteinoberfläche wieder. Wie in Abbildung 5.2.1 zu sehen, sind beide Prozesse stark vom Druck abhängig. Ziel des Teilprojekts ist die Aufklärung der Rolle der Oberfläche und des intramolekularen

Wassers für die Stabilität des Proteins unter Hochdruck. Insbesondere wird der Einfluss der Viskosität und des pH auf die Kinetik untersucht.

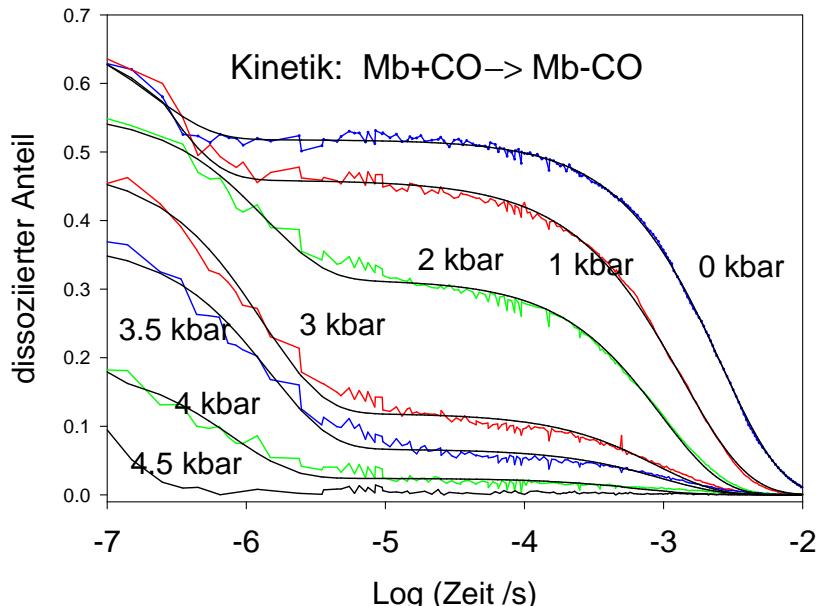


Abbildung 5.2.1: Druckeffekte auf die schnelle und langsame kinetische Komponente

### 5.3 Structure and dynamics of crowded protein solutions

S. Longeville<sup>1</sup> and W. Doster

<sup>1</sup> Laboratoire Léon Brillouin, CEA Saclay, Gif-sur-Yvette

The concentration of proteins in living cells ranges up to 30 % of the volume fraction. Neutron scattering allows to study the structure and diffusion in such crowded systems at nanometer scale using H/D contrast. It is then possible to study the interactions governing both the structure and dynamics of these solutions at a molecular level. SANS measurements were performed with myoglobin and hemoglobin solutions up to physiological concentrations, volume fraction  $\Phi \sim 0.4$ , using the PACE spectrometer located on the cold source guide G1 of the Orphée reactor of the LLB. The structure factors were analysed using Onstein-Zernike equations with a Mean Spherical Approximation [1] and DLVO potential (Yukawa type). The rescaling method introduced by L. Belloni to account for the concentration dependence of the contact potential was also introduced [2]. A consistent fit to the data could be obtained with the crystallographic molecular form factor and a protein charge of about two units (figure 5.3.1).

The dynamics of crowded solutions was studied using MESS and MUSES spin-echo spectrometers of the LLB. Whatever the wavevector under investigation the relaxation is single exponential. However, two types of regime can be observed in the wavevector dependence

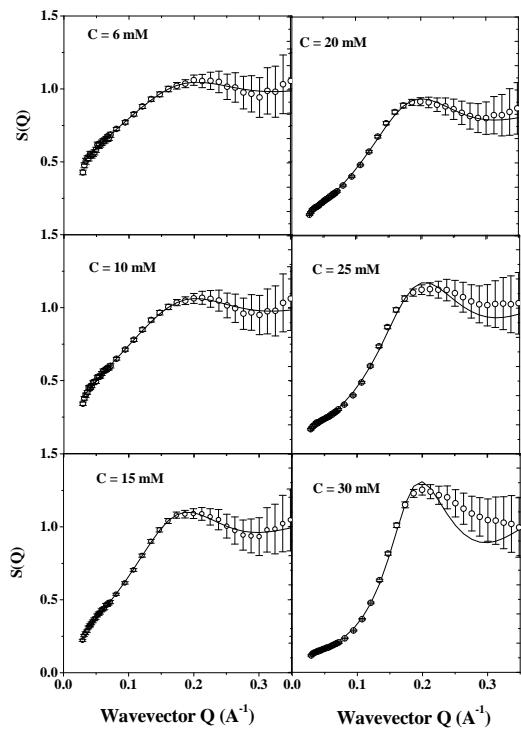


Figure 5.3.1:

Scattering functions  $S(q)$  of myoglobin solutions versus concentration, the refinements were performed using three types of molecular form factor : the measured one ( $\Phi \sim 0.003$ ), a theoretical model for hard sphere and the computed form factor from the pdb structure obtained by neutron scattering data refinements

of the intermediate scattering function  $I(\mathbf{Q}, \tau)$ . Above the structure factor maximum the inverse relaxation time follows a 'classical'  $Q^2$  dependence :  $1/\tau \sim D_s Q^2$ . The extracted diffusion coefficient decreases strongly with concentration. Below the structure factor maximum  $I(\mathbf{Q}, \tau)$  follows a departure from a  $Q^2$  law. Reasonable description of the data in the full  $Q$  range can be obtained by introducing coupling equations between proteins, their co-ions and counter ions environment, the apparent protein charge  $Z_p$  obtained from such analysis is around two units. Within experimental uncertainties this value is similar to the independent structure analysis. The diffusion of hemoglobin inside human erythrocytes (24 mM) could be observed using the MESS spin echo spectrometer.

- [1] J. B. Hayter and J. Penfold, Mol. Physics **42**, (1981), 109-118.
- [2] L. Belloni, J. Chem. Phys. **85**, (1986), 519-526.

## 5.4 Structure of protein solutions at the pressure stability limit

W. Doster, A. Soper<sup>1</sup> and J. Wiedersich

<sup>1</sup> ISIS Facility, CLRC Rutherford Appleton Lab., England

The goal of this project is to clarify, whether the structural changes in the hydration shell induced by high pressure, contribute to the unfolding of globular proteins. Protein and water structure are monitored simultaneously using neutron diffraction as a function of pressure. Concentrated myoglobin solutions were studied at the SANDALS small angle diffractometer. A specially designed system can produce pressures up to 5 kbar. The

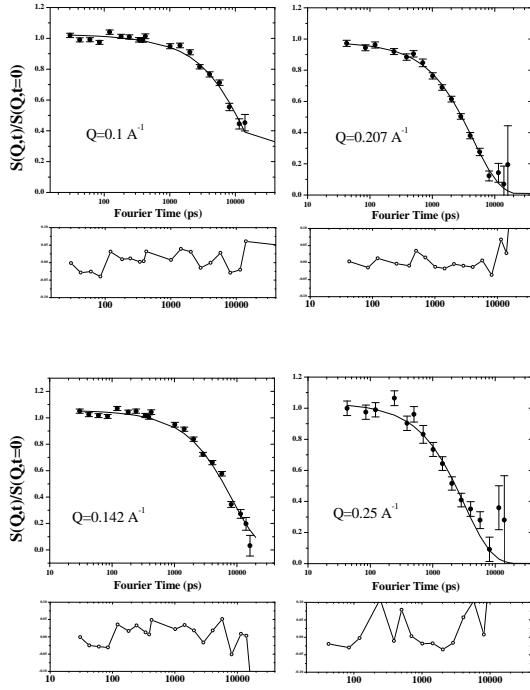


Figure 5.3.2:  
Intermediate Scattering functions  $I(\mathbf{Q}, \tau)$  of myoglobin solutions versus concentration

pressure cell is made of a titanium-zirkonium alloy to minimize cell scattering at low angles. The experiments at 3.5 and 4.5 kbar indicate structural changes in the vicinity of the pressure stability limit. The analysis of the data is not finished.

## 5.5 Interhelix fluctuations in bacteriorhodopsin

W. Doster, R. Lechner<sup>1</sup>, Th. Hauss<sup>1</sup>, and N. Dencher<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Hahn Meitner Institut, BENSC, Berlin

<sup>2</sup> Physikalische Biochemie, Universität Darmstadt

Breathing motions of secondary structure elements of proteins play an important role in large scale conformational changes, open/closed transitions, regulation and folding. The goal of this project is to characterise the interhelix fluctuations of BR-trimmers depending on their environment in the membrane. The molecules form a 2-D hexagonal lattice, which can be disturbed by chemicals or increase in temperature. In previous experiments using the V1 low angle neutron diffractometer, we have shown that the lattice melts near 90 degrees. The transition is reversible. With the NEAT time-of-flight spectrometer (V3) we have now studied the effect of the melting transition on the low frequency dynamics of BR. The data indicate new types of motions above the transition which are constrained in the presence of the lattice.

## 6 Theorie ungeordneter Festkörper

### 6.1 Vektor-CPA zur Berechnung von Schwingungsspektren in ungeordneten Festkörpern

U. Häberle, G. Diezemann<sup>1</sup>, W. Schirmacher

<sup>1</sup> Universität Mainz, Institut für phys. Chemie

Es wurde eine CPA für die harmonischen Schwingungen eines ungeordneten Festkörpers abgeleitet. Man betrachtet dabei einen Kristall mit Beschränkung der (harmonischen) Wechselwirkung auf die nächsten Nachbarn. Ausdruck der Unordnung im Modell sind räumlich fluktuierende Kraftkonstanten. Erstmals wurde eine CPA abgeleitet, die die

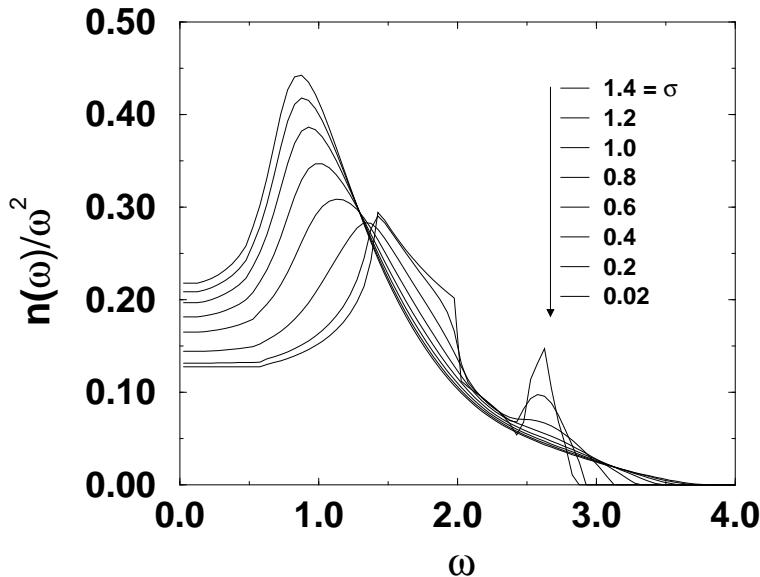


Abbildung 6.1.1:

Reduzierte Zustandsdichten  $n(\omega)/\omega^2$  für einen ungeordneten *fcc*-Kristall mit fluktuierenden longitudinalen Kraftkonstanten. Die Verteilung der Kraftkonstanten ist eine Gaußfunktion mit variierender Breite  $\sigma$ , deren negativer Bereich abgeschnitten wird. Der Mittelwert der Verteilungen ist in allen Kurven konstant 1 gehalten. Mit wachsendem  $\sigma$  steigt die Unordnung an. Man sieht einen Bosonpeak, der gemeinsam mit der Unordnung anwächst.

vektorielle Natur der Phononen voll berücksichtigt. Im Modell superponierender radial-symmetrischer Paarpotentiale sind die Kräfte zwischen zwei Atomen durch zwei Zahlen gegeben, die als “longitudinale Kraftkonstante” und “transversale Kraftkonstante” bezeichnet werden. Die Diskussion wurde unterteilt in zwei Fälle. Im einfacheren “longitudinalen Fall” werden ausschließlich fluktuierende longitudinale Kraftkonstanten untersucht, der zweite, “allgemeine Fall” berücksichtigt beide Komponenten.

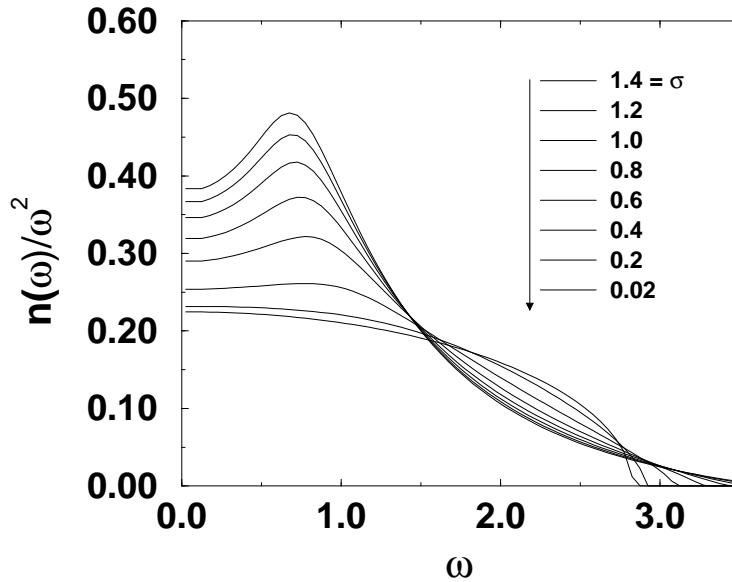


Abbildung 6.1.2:

Wie in Fig. 6.1.1, aber mit der Greenschen Funktion von Hubbard berechnet, deren Spektrum eine Halbellipse ohne van-Hove-Singularitäten ist (siehe unterste Kurve, die das geordnete System darstellt). Ungeachtet dessen entsteht auch hier ein Bosonpeak.

Für den longitudinalen Fall kann die Vektor-CPA auf eine einzige skalare Gleichung reduziert werden. Als selbstkonsistente Integralgleichung kann diese mit dem Computer gelöst werden. Die Lösungen wurden anhand verschiedener Kraftkonstantenverteilungen ausgiebig untersucht. Bis auf unbedeutende Unterschiede in Form eines zusätzlichen Faktors 3 in der CPA-Gleichung und einer modifizierten Greenschen Funktion ist der longitudinale Fall mit dem skalaren Modell [1] identisch.

Spezielles Interesse in den errechneten Zustandsdichten galt dort auftretenden Bosonpeaks. In sämtlichen Resultaten stellte sich der Bosonpeak als charakteristisches Merkmal von Unordnung dar. Den mehrfach in der Literatur erhobenen Einwand, im ungeordneten Kristall sei der Bosonpeak lediglich eine verwaschene Van-Hove-Singularität konnten wir dadurch ausräumen, daß wir die Berechnungen für ein Referenz-System wiederholt haben, dessen Spektrum eine Halbellipse ist, d. h. in dem es keine Van-Hove-Singularitäten gibt (Hubbard-Näherung). In den Abbildungen 6.1.1 und 6.1.2 sind reduzierte Zustandsdichten  $n(\omega)/\omega^2$  für Gaußverteilte longitudinale Kraftkonstanten gezeigt, im ersten Bild die exakte Lösung, im zweiten Bild in Hubbard-Näherung.

Die Ableitung der Vektor-CPA für den allgemeinen Fall führte auf ein System von zwei gekoppelten Gleichungen. Ein für die Situation hervorragend geeignetes Näherungsverfahren für die zu berechnenden Greenschen Funktionen wurde abgeleitet.

Die Ergebnisse des allgemeinen Falls zeigten einen erheblichen Einfluß der transversalen Kraftkomponenten, die im Rahmen der abgeleiteten CPA erstmals berücksichtigt werden können. Obwohl die transversalen Kräfte klein gegenüber den longitudinalen sind, führt Unordnung in den transversalen Komponenten zu einer beträchtlichen Verstärkung des Bosonpeak und zu einem weiteren Absinken der Schallgeschwindigkeiten.

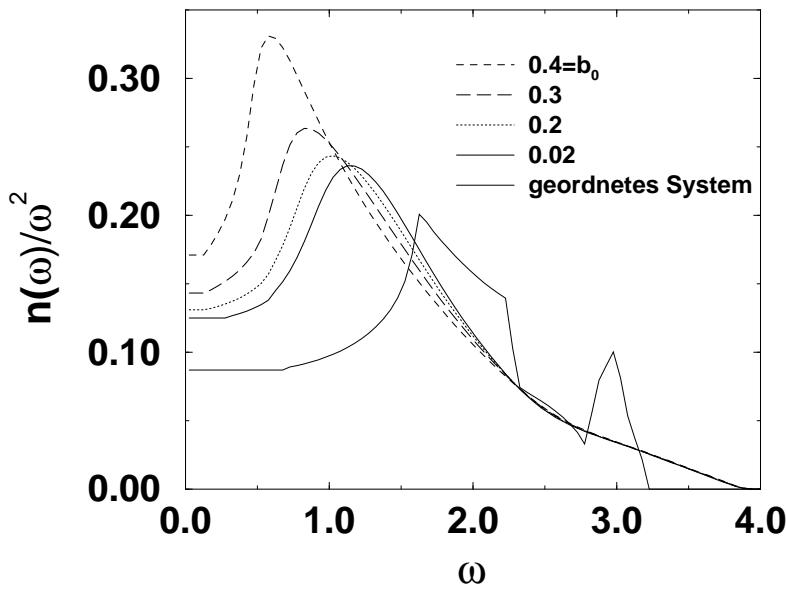


Abbildung 6.1.3:

Reduzierte Zustandsdichte  $n(\omega)/\omega^2$  für ein System mit fluktuierenden longitudinalen und transversalen Kraftkonstanten. Die unterste Kurve ist das geordnete System, es folgt longitudinale Unordnung in Form einer Gaußverteilung mit  $\sigma = 1$ , und anschliessend werden auch die transversalen Kraftkonstanten verteilt. Die transversale Unordnung verstärkt den Bosonpeak beträchtlich.

In Fig. 6.1.3 ist die reduzierte Zustandsdichte für ein System dargestellt, in dem die longitudinalen Kraftkonstanten einer Gaußverteilung (ohne negativen Anteil,  $\sigma = 1$ ) gehorchen und die transversalen einer Kastenverteilung mit Breite  $2b_0$  und  $\langle b \rangle = 0$ .

- [1] W. Schirmacher, G. Diezemann, C. Ganter, Phys. Rev. Lett. **81**, 136 (1998)
- [2] S. N. Taraskin, Y. L. Loh, G. Natarajan, S. R. Elliott, Phys. Rev. Lett. **86**, 1255 (2001)

## 6.2 Feldtheoretische Beschreibung der anomalen Schwingungseigenschaften von Gläsern

Edith Maurer, Markus Pöhlmann, Walter Schirmacher

Wir betrachten die Schwingungsanregungen eines ungeordneten anharmonischen Festkörpers, in dem die elastischen Konstanten einer statisch-statistischen räumlichen Verteilung unterliegen. Eine (kubische) Anharmonizität wird durch die Dichteabhängigkeit der elastischen Konstanten eingeführt, so dass die Kopplungskonstante die Grüneisenkonstante ist. Es werden nur longitudinale Anregungen betrachtet. Mit Hilfe der Funktionalintegralquantisierung und des Replika-Tricks leiten wir einen geschlossenen Ausdruck für die konfigurationsgemittelte thermodynamische Zustandssumme her. Durch Einführung

von zusammengesetzten Feldern gelingt es uns - ähnlich wie bei der Herleitung des nichtlinearen Sigma-Modells für ungeordnete Elektronensysteme - eine effektive Wirkung abzuleiten, deren Sattelpunkt wir studieren. Für die dynamische Suszeptibilität der Phononen<sup>1</sup>  $Q(z) = \frac{1}{2} \lim_{\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'} i \int_0^\infty e^{izt} \langle [\nabla \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}, t + t_0), \nabla \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}', t_0)] \rangle$  liefert die Sattelpunktsnäherung folgendes selbstkonsistentes Gleichungssystem :

$$Q(z) = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}} \frac{k^2}{-z^2 + k^2[1 - \Sigma(z)]} \quad (*)$$

mit der Selbst-Energie  $\Sigma(z)$

$$\Sigma(z) = \gamma Q(z) + 12\gamma g^2 Q_2(z) \quad (**)$$

$\gamma$  ist die Varianz der statischen Fluktuationen der elastischen Konstanten, d. h. ein Maß für die statische Unordnung und  $g$  ist die Grüneisenkonstante (Anharmonizität). Zwischen den Funktionen  $Q(z)$  und  $Q_2(z)$  besteht über die van-Hovesche Korrelationsfunktion  $S(t) = \lim_{\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'} \frac{\tilde{m}_0}{2} \langle \nabla \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}, t + t_0) \nabla \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}', t_0) \rangle$ , bzw. ihre Fouriertransformierte  $S(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} S(t)$  folgender Zusammenhang:

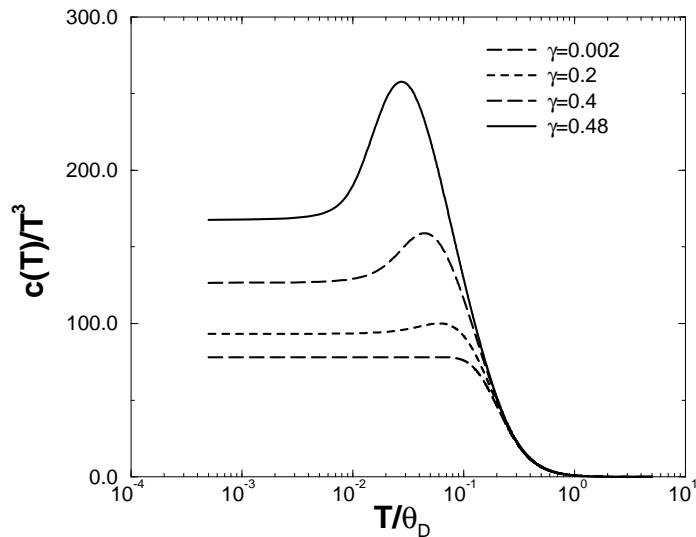


Abbildung 6.2.1:

Reduzierte spezifische Wärmekapazität  $C(T)/T^3$  in Abhängigkeit von der Temperatur für den Fall  $g = 0$  für 4 Werte des Unordnungsparameters  $\gamma$

$$\begin{aligned} Q''(\omega) &= \frac{1}{2} (1 - e^{-\beta\omega}) S(\omega) \\ Q''_2(\omega) &= \frac{1}{2} (1 - e^{-\beta\omega}) S_2(\omega) \end{aligned} \quad (***)$$

mit

$$S_2(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} S^2(t).$$

---

<sup>1</sup>  $\mathbf{u}(\mathbf{r}, t)$  sind die Schwingungsauslenkungen,  $z$  ist die komplexe Frequenz  $\omega + i\epsilon$ , und es ist  $Q(z) = Q'(\omega) + iQ''(\omega) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\bar{\omega} \frac{Q''(\bar{\omega})}{\bar{\omega} - z}$

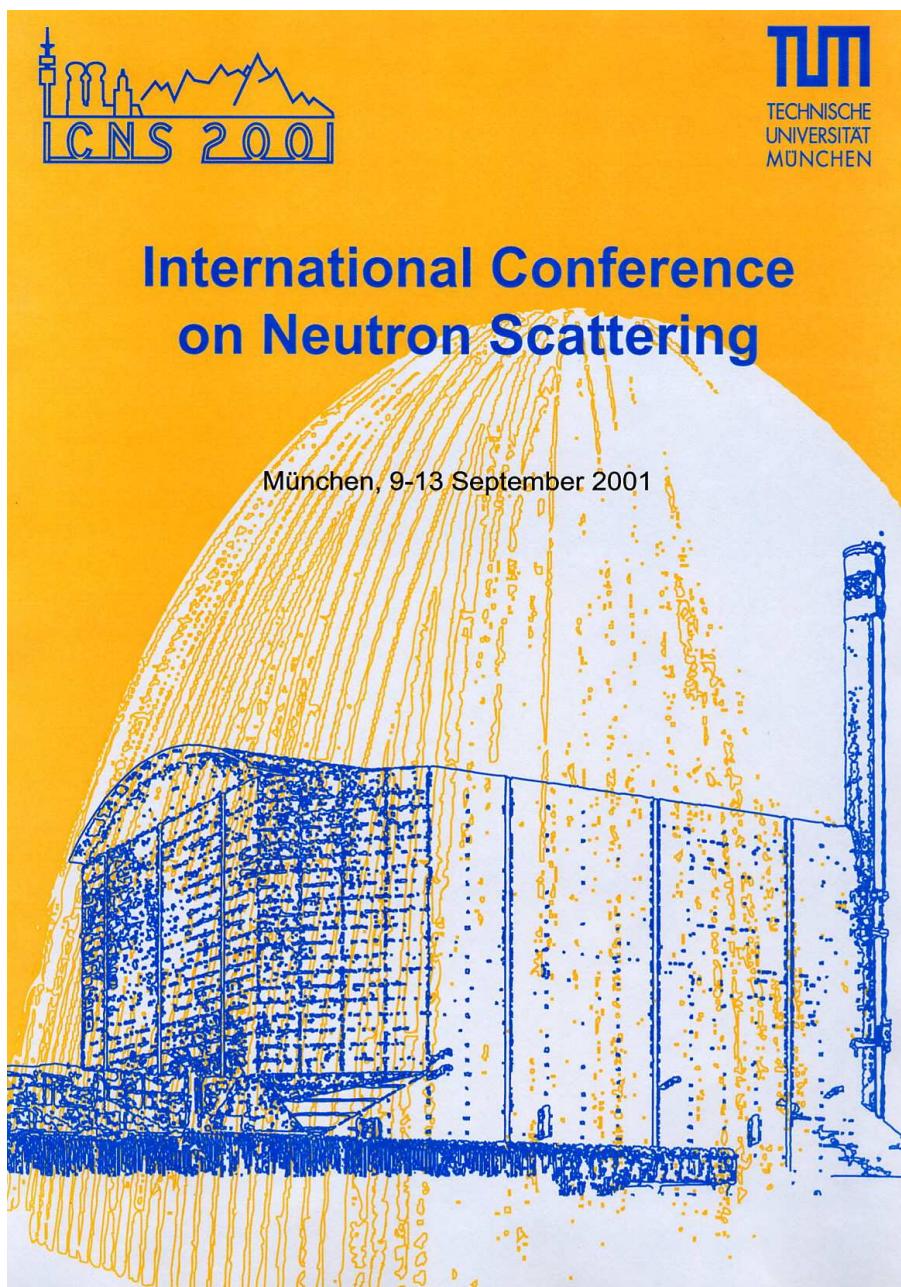
Die Zustandsdichte ergibt sich aus

$$g(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \text{Im} \left\{ \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{-z^2 + k^2[1 - \Sigma(z)]} \right\}$$

Im Falle  $g = 0$  beschreibt das Modell einen harmonischen ungeordneten Festkörper. In diesem Fall ergibt sich- in ähnlicher Weise wie bei den CPA-Modellrechnungen des vorigen Beitrags eine Überhöhung der Zustandsdichte im Verleich zum Debyeschen  $\omega^2$ -Gesetz (Bosonpeak). Diese führt zu einem Maximum in der reduzierten spezifischen Wärme. In Bild 6.2.1 wird die Temperaturabhängigkeit dieser Größe für verschiedene Werte von  $\gamma$  gezeigt.

Im Falle  $g \neq 0$  hat die Theorie eine sehr ähnliche Struktur wie die quantenmechanische Version der Götzeschen Modenkopplungstheorie der Flüssigkeiten. Wir sind derzeit dabei, das Gleichungssystem (\*) bis (\*\*\*) numerisch zu lösen. Mit Hilfe dieser Lösungen wollen wir versuchen, eine Erklärung des Verhaltens der Wärmeleitfähigkeit und der spezifischen Wärme bei tiefen Temperaturen, d. h. eine alternative Erklärung zum Standard-Tunnelmodell zu finden.

**7 International Conference on Neutron  
Scattering 9.-13. 9. 2001**



# Local Organising Committee

Chairman	Winfried Petry	Physik Department E13 and FRM-II
Scientific Secretaries	Andreas Meyer Jürgen Neuhaus	Physik Department E13 FRM-II
Treasurers	Andreas Magerl Andreas Meyer	Universität Erlangen Physik Department E13
Secretaries	Edith Lubitz Cornelia Simon Evelyn Doll Waltraud Wittowetz	Physik Department E13 Physik Department E13 FRM-II FRM-II
Proceedings	Peter Müller-Buschbaum Peter Böni Andreas Meyer Jürgen Neuhaus Winfried Petry Erich Steichele	Physik Department E13 Physik Department E21 Physik Department E13 FRM-II Physik Department E13 and FRM-II Physik Department E21

Assisted by the staff of the Physics Department E13 and E21 and the FRM-II.

## **International Programme Committee**

T. Bayerl	Germany
R. Cywinski	UK
A. Furrer	Switzerland
K. Kakurai	Japan
Y. Matsushita	Japan
W. Petry	Germany
W. Press	Germany
D. Richter	Germany
T. Russell	USA
S. Shapiro	USA
J. Tompkinson	UK

## **International Advisory Committee**

S. Bai	Taiwan	T. Mason	USA
F. Barocchi	Italy	K. McEwen	UK
P. Böni	Germany	F. Mezei	Germany
L. Boerjesson	Sweden	P. Mikula	Czech Rep.
W. Buyers	Canada	A. Mirmelstein	Russia
J. K. N. Clausen	Denmark	Ch. de Novion	France
J. Colmenero	Spain	J. J. Rhyne	USA
B. Dasannacharya	India	J. Roberts	USA
Y. Endoh	Japan	L. Rosta	Hungary
P. Fratzl	Austria	C. Stassis	USA
Y. Fujii	Japan	A. Szytula	Poland
G. J. Kearley	Netherlands	A. D. Taylor	UK
F. Leclercq	France	Ch. Vettier	France
C. Majkrzak	USA	J. White	Australia

# Industrial Exhibition

An industrial exhibition is located in the “Immatrikulationshalle” near the Conference Office and the Internet Café. The exhibition is open from Monday to Tuesday and on Thursday from 9:00 to 19:00.

A. S. Scientific Products LTD	Oxford	U.K.
Astrium	Friedrichshafen	Germany
Thermo Reax / Thermo Eberline	Santa Fe, NM	USA
Swiss Neutronics	Klingnau	Switzerland
Huber Diffraktionstechnik GmbH	Rimsting	Germany
iseg Spezialelektronik GmbH	Groerkmannsdorf	Germany
SIS Struck Innovative Systeme GmbH	Hamburg	Germany
Oxford Instruments GmbH	Wiesbaden	Germany
EURISYS MESURES	ST Quentin Yvelines Cedex	France
Advanced Ceramics Corporation	Obertshausen	Germany
MTF - Technologie-Transfer GmbH	Berlin	Germany
nob Neutron Optics Berlin	Berlin	Germany
NTK Neutronen Technische Komponenten	Bad Wrishofen	Germany
S-DH Sputter-Dünnenschichttechnik GmbH	Heidelberg	Germany

# **Financial Support**

Financial support from the following institutions is greatfully acknowledged:

## **Public Funding**

Bundesministerium für Bildung und Forschung BMBF, (German Ministry of Education and Research)

Deutsche Forschungsgemeinschaft DFG, (German Research Society)

Technische Universität München TUM

Bayerisches Staatsministerium für Forschung, Wissenschaft und Kunst, (Bavarian States Ministry of Research, Science and the Arts)

Deutsche Gesellschaft für Kristallographie DGK, (German Society of Crystallography)

## **Research Centers**

Neue Forschungs-Neutronenquelle FRM-II, Garching, Germany

Forschungszentrum Jülich, Germany

Hahn–Meitner–Institut Berlin, Germany

Institut Laue–Langevin, Grenoble, France

ISIS Rutherford–Appleton Laboratory, Oxford, UK

Laboratoire Léon Brillouin, Saclay, France

Paul Scherrer Institut, Villigen, Switzerland

GKSS–Forschungszentrum Geesthacht, Germany

Institute for Energy Technology, Kjeller, Norway

The Studsvik Neutron Research Laboratory NFL, Sweden

Interfaculty Reactor Institute, Delft, The Netherlands

Los Alamos Neutron Science Center, USA

## **Industry**

E.ON Energie AG, München, Germany

Siemens / Framatome ANP, Erlangen, Germany

MOWO Maschinenbau GmbH, Berlin, Germany

Fujitsu – Siemens, Augsburg, Germany

MICROSTAXX, München, Germany

Wacker – Silitronic, Burghausen, Germany

# Conference Programme

## Sunday

15:00 – 19:00 **Registration**  
17:00 – 19:00 **Reception** (Foyer Audimax)

## Monday

08:00	<b>Registration</b>			
08:45	<b>Welcome:</b> W. Petry (Chairman), W. Hermann (President Technische Universität München), H. Zehetmair (Bavarian States Minister for Science, Research and the Arts)			
09:00	<b>P</b> A. Zheludev, <i>Interacting Quantum Spin Chains</i>			
09:45	<b>P</b> G. Zaccai, <i>Neutrons in the Post-Genome Sequencing Era</i>			
10:30	<b>Coffee break, Registration</b>			
11:00	<b>T</b> <i>Low Dimensional and Quantum Spin Systems</i>	<b>T</b> <i>Methods and Instrumentation I</i>	<b>T</b> <i>Materials in Motion</i>	<b>T</b> <i>Complex Fluids</i>
12:30	<b>Lunch, Registration</b>			
14:00	<b>MS</b> <i>Magnetic Thin Films and Multilayers</i>	<b>MS</b> <i>Neutrons and High-Energy X-Rays in Materials Science</i>	<b>MS</b> <i>Hydrogen Atoms in Biological Function</i>	<b>T</b> <i>Bulk Polymers</i>
15:30	<b>Coffee break</b>			
16:00	<b>MS</b> continuation	<b>MS</b> continuation	<b>MS</b> continuation	
17:00- -19:00	<b>Poster Session A</b>			
19:00	EU Facilities Users Meeting (Audimax)			

## Tuesday

09:00	<b>P</b> T. Hashimoto, <i>Neutron Scattering Studies of Hierarchy Structure and Interphase Scattering in Phase-Separating Binary Mixtures</i>
09:45	<b>P</b> S. Hayden, <i>Novel Magnetic Excitations in Metals and Superconductors</i>
10:30	<b>Coffee break</b>
11:00	<b>T</b> <i>Magnetic Structure and Dynamics I</i>
	<b>T</b> <i>Methods and Instrumentation II</i>
	<b>T</b> <i>Hydrogen in Materials</i>
	<b>T</b> <i>Molecules under Restraint</i>
12:30	<b>Lunch</b>
14:00	<b>MS</b> <i>Spin, Charge and Orbital Degrees of Freedom in Perovskites and Related Compounds</i>
	<b>MS</b> <i>Optimization of Neutron Devices by Simulation</i>
	<b>MS</b> <i>Industrial Applications of Neutron Scattering</i>
	<b>T</b> <i>Biological Syst. I</i>
15:30	<b>Coffee break</b>
16:00	<b>MS continuation</b>
	<b>MS continuation</b>
	<b>MS continuation</b>
	<b>T</b> <i>Biological Syst. II</i>
17:00	<b>Poster Session B</b>
19:00	<b>Sandwiches and Refreshments (Foyer Audimax)</b>
20:00	<b>Walter Hälg Prize, Award and Lecture (Audimax)</b> J. Brown, <i>Polarised Neutrons: An ideal tool for magnetic crystallography</i>

## Wednesday (Garching)

08:00	<b>Bus Transfer</b> from Technische Universität Arcisstrasse to Campus Garching
	<b>Plenary Session on Advanced Sources</b> (Lecture Hall: MW2001)
09:00	T. Mason, <i>The Spallation Neutron Source: A Powerful Tool for Materials Research</i>
09:30	S. Ikeda, <i>Japanese Spallation Neutron Source</i>
10:00	D. Richter, <i>The European Spallation Source Project</i>
10:30	W. Gläser, <i>The New Neutron Source FRM-II</i>
11:00	<b>Coffee break</b>

11:30	<b>International Neutron Scattering Community</b> Overview of New and Upgraded Neutron Sources		
12:15	<b>Continental Communities:</b> <b>ENSA</b> (MW2001) <b>Asia/Pacific</b> (MW1801) <b>US/Canada</b> (MW0350) Programme to be completed		

	<b>Group I</b>	<b>Group II</b>
13:00	<b>Lunch</b>	13:00 <b>Conference Excursion:</b>
14:00	<b>FRM-II Tour</b>	Herrenchiemsee
19:00 <b>Conference Dinner:</b> Löwenbräukeller (Stiglmaierplatz, see map on page xiii)		

## Thursday

09:00	<b>MS Charge, Lattice and Isotope Effects in High-Tc Superconductors</b>	<b>MS Instrumentation at Advanced Pulsed Neutron Sources</b>	<b>T Frustrated Magnets</b>	<b>T Polymer Solutions</b>
10:30	<b>Coffee break</b>			
11:00	<b>MS continuation</b>	<b>MS continuation</b>	<b>T Organic Molecules</b>	<b>T Interfaces and Confined Systems</b>
12:30	<b>Lunch</b>			
13:30	<b>T Magnetic Structure and Dynamics II</b>	<b>T Unusual Material States</b>	<b>T Glasses and Liquids</b>	
15:00	<b>Poster Session C</b>			
	15:15 – 16:15 <b>Coffee</b> (Foyer Audi-max)			

- 17:30 P H. Schober,  
*From Zero to Three Dimensions: Solid State Polymerization in Fullerenes*
- 18:15 P T. Holden, *Advancing Neutron Diffraction as a Tool for the Engineer*
- 19:00 **Young Scientists Award**  
**Conclusion**

## Monday September 10, 2001

### Low Dimensional and Quantum Spin Systems Audimax

- 11:00 L. Regnault, *Polarimetric neutron-scattering study of the optic mode in the spin-peierls compound CuGeO<sub>3</sub>*
- 11:15 L. Chapon, *Structural and magnetic properties of the quasi-1D and 2D molecular magnets Cu(NCS)2pyz and Fe(NCS)2pyz2*
- 11:30 M. Kohgi, *Neutron Scattering Studies of the One-Dimensional Quantum Spin Magnetism in Yb<sub>4</sub>As<sub>3</sub>*
- 11:45 C. Rüegg, *Spin dynamics in the high-field phase of quantum critical S=1/2 TlCuCl<sub>3</sub>*
- 12:00 R. Coldea, *Excitations of a 2D frustrated quantum magnet in the high-field ferromagnetic phase*
- 12:15 K. Kakurai, *Spin Excitations in the 2D orthogonal-dimer system SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>*

### Methods and Instrumentation I

N 1190

- 11:00 M. Rekveldt, *Overview New Larmor Precession Techniques*
- 11:30 C. Majkrzak, *Advances in Specular Neutron Reflectometry*
- 12:00 D. Hussey, *Simultaneous Polarization Analysis of Zeeman Splitting in Polarized Neutron Reflectometry using a Polarized <sup>3</sup>He Neutron Spin Filter*
- 12:15 A. Wagh, *First realization of Bonse-Hart angular profiles for multiple Bragg reflections*

### Materials in Motion

N1189

- 11:00 C. Tulk, *The Low Frequency Density of States for Amorphous and Crystalline Ice Phases*
- 11:30 M. Anne, *Static and Dynamic Studies of the Fast Silver Ion Conductor Ag<sub>7</sub>GeSe<sub>5</sub>I by Neutron Scattering*
- 11:50 B. Winn, *Anomalous Phonon Damping in the High Temperature Shape Memory Alloy Ti<sub>50</sub>Pd<sub>42</sub>Cr<sub>8</sub>*
- 12:10 M. Aroyo, *Inelastic Neutron Scattering Selection Rules for Phonons: Application to Leucite Phase Transition*

## Complex Fluids

N1179

- 11:00 H. Endo, *Amphiphilic Block Copolymers as Efficiency Boosters in Microemulsions: A Two Dimensional Contrast Variation SANS Investigation of The Role of Polymers*
- 11:30 M. Monkenbusch, *Neutron Spin-Echo Investigation of the membrane dynamics in bicontinuous microemulsions*
- 11:45 M. Gradzielski, *Additives of Intermediate Polarity - Their Location in Amphiphilic Aggregates and Their Influence on the Corresponding Structures*
- 12:00 P. Thiagarajan, *Influence of Carbonate Ions on the Micellization and Phase Separation in Triblock Copolymer Solutions*
- 12:15 S. Vass, *Sequence-Dependent Hydration Properties of Ionic ABA and BAB Triblock Copolymer Micelles from SANS.*

## Mini Symposium: Magnetic Thin Films and Multilayers

Audimax, Conveners: C. Majkrzak, H. Zabel

- 14:00 V. Leiner, *Tuning of Exchange Coupling in Ho/Y Superlattices with Deuterium*
- 14:30 H. Kepa, *Polarized Neutron Reflectometry Studies of GaMnAs/GaAs Superlattices*
- 15:00 A. Hoffmann, *Observing a Frozen Ferromagnetic Moment in the Antiferromagnet of an Exchange Bias System*
- 15:30 Coffee Break
- 16:00 S. te Velthuis, *Magnetic Profiles and Coupling in Fe/Cr (110) Superlattices*
- 16:30 B. Toperberg, *Off-Specular Polarized Neutron Scattering from Magnetic Fluctuations in Films and Multilayers*

**Mini Symposium: Neutrons and High-Energy X-Rays in Materials  
Science**

N1190, Conveners: P. Fratzl, H. F. Poulsen

- 14:00 H. Poulsen, *3DXRD: A New Tool for Bridging the Length Scales in Materials Science*  
14:25 H. Reichert, *Diffuse Scattering Experiments Using High-Energy X-rays and Neutrons*  
14:50 D. Price, *Complementary X-Ray and Neutron Measurements on Contained and Levitated Liquids*  
15:15 J. Stremppfer, *Magnetic Moment Determination by the Complementary Methods of High-Energy Magnetic X-Ray and Magnetic Neutron Diffraction*  
15:30 Coffee Break  
16:00 W. Reimers, *Capabilities of Neutrons and High Energy X-Rays for Materials Science*  
16:25 M. Kaisermayr, *Scattering of Neutrons and Photons – Complementary Methods for Diffusion Studies*  
16:50 S. Hosokawa, *Collective Dynamics of Liquid Hg Investigated by Inelastic X-Ray Scattering*

**Mini Symposium: Hydrogen Atoms in Biological Function**  
N1189, Conveners: D. Myles, N. Niimura

- 14:00 B. Schoenborn, *Protein Crystallography with Spallation Neutrons*  
14:30 A. Podjarny, *The Structure of Aldose Reductase at 0.66 Å Resolution shows the H-Atoms Relevant for Inhibitor Binding and the Catalytic Mechanism*  
15:00 C. Bon, *A Combined Neutron Crystallography / IQNS Study of Water around Lysozyme*  
15:30 Coffee Break  
16:00 A. Ostermann, *Hydrogen in Proteins: Recent Results from the Single Crystal Neutron Diffractometer BIX-3*  
16:20 T. Forsyth, *Biological Applications of Monochromatic Neutron Diffraction*  
16:40 R. Bau, *Thermostability of Rubredoxin Determined by Neutron Diffraction Technique*

## Bulk Polymers

N1179

- 14:00 J. Colmenero, *The Gaussian behavior of the alpha-relaxation in glass-forming polymers revisited. MD-simulations & QENS results*  
14:30 B. Frick, *On the pressure, temperature and molecular weight dependence of the local polymer dynamics in the glass and the melt*  
14:45 A. Wischnewski, *Constraints of motion in polymer melts: coherent and incoherent scattering analyzed by neutron-spin-echo spectroscopy*  
15:00 S. Koizumi, *Frozen Concentration Fluctuations of a Poly(*N*-isopropyl acrylamide) Gel Decomposed by Neutron Spin Echo and Small-angle Neutron Scattering*  
15:15 D. Schwahn, *Phase Behavior of Binary Polybutadiene Copolymer Mixtures as an Example of Weakly Interacting Polymers*

## Poster Session A

- 17:00 – 19:00 Neutron Instrumentation I (A1 – A62)  
Soft Condensed Matter I (A63 – A82)  
Magnetism I (A83 – A134)  
Material Science I (A135 – A195)  
Biology I (A196 – A209)  
Industrial Applications (A210 – A239)  
MS: Magnetic Thin Films and Multilayers (A240 – A269)  
MS: Neutrons and High-Energy X-Rays in Material Science (A270 – A282)  
MS: Hydrogen Atoms in Biological Function (A283 – A287)

**Tuesday September 11, 2001**

## Magnetic Structures and Dynamics I

Audimax

- 11:00 W. Bao, *Magnetic correlations in heavy fermion CeMIn<sub>5</sub> ( $M=Rh, Ir$  and  $Co$ )*  
11:30 T. Herrmannsdörfer, *Pressure and temperature dependence of the ordered magnetic  $U$  moment of USe*  
11:45 K. Prokes, *Pressure-induced magnetic structures in UNiGa*  
12:00 V. Lazukov, *New dispersive magnetic mode in neutron spectra of unstable valence  $Sm_{1-x} Y_x S$*   
12:15 J. Stewart, *Spin-fluctuations and the spin-liquid to spin-glass transition in  $\beta$ -MnAl*

## Methods and Instrumentation II

N1190

- 11:00 B. Schillinger, *The design and simulation of a curved-guide plus flight tube setup for neutron radiography and tomography at the new research reactor FRM-II at the Technical University Munich*  
11:30 H. Shimizu, *Development of Neutron Optical Devices*  
12:00 T. Keller, *The NRSE-TAS Spectrometer at the FRM-II*  
12:15 Y. Nikitenko, *Neutron wave resonator as a spin-echo spectrometer element*

## Hydrogen in Materials

N1189

- 11:00 A. Skripov, *Quasielastic neutron scattering studies of H motion in Laves-phase compounds*  
11:30 G. Reiter, *Measurement of the Momentum Distribution in Hydrogen Bonded Systems*  
11:50 R. Lechner, *Proton Conduction Based on Intracrystalline Chemical Reaction*  
12:10 B. Hauback, *Studies of new metal hydrides*

## Molecules under Restraint

N1179

- 11:00 M. Bienfait, *Diffraction study of CD<sub>4</sub> and D<sub>2</sub> adsorbed carbon nanotubes*  
11:30 C. Gutt, *Structure and Dynamics of gas hydrates*  
11:50 G. Kearley, *The isomorphous transition between Co(NH<sub>3</sub>)<sub>6</sub>(PF<sub>6</sub>)<sub>2</sub> and Ni(NH<sub>3</sub>)<sub>6</sub>(PF<sub>6</sub>)<sub>2</sub>*  
12:10 A. Perdigon, *Solid Monolayers of Simple Alkyl Molecules Adsorbed from their Liquid to Graphite*

## Mini Symposium: Spin, Charge and Orbital Degrees of Freedom in Perovskites and Related Compounds

Audimax, Conveners: H. Yoshizawa, A. Loidl

- 14:00 D. Khomskii, *Superstructures in Manganites and other Doped Oxides*  
14:25 R. Kajimoto, *Charge and Stripe order in La<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>NiO<sub>4</sub>*  
14:50 J. Mitchell, *Heavily Doped Bilayer Manganites: Links among Structure, Charge and Spin*  
15:15 B. Keimer, *Orbital and Spin Dynamics in Titanates and Vanadates*  
15:40 Coffee Break  
16:10 E. Dagotto, *Theory of Colossal Magnetoresistant Materials*  
16:35 P. Dai, *Resistivity Rise and Short-Range Charge Ordering in CMR Manganites*

**Mini Symposium: Optimization of Neutron Devices by Simulation**

N1190, Conveners: K. Lefmann, G. Eckold

- 14:00 R. McGreevy, *The Tertiary Spectrometer, the Role of Software in Design and Performance of Instruments and Experiments*
- 14:30 P. Seeger, *A Model Instrument for Monte Carlo Code Comparisons*
- 15:00 A. Wildes, *A Comparison of Monte Carlo Simulations using RESTRAX and McStas*  
*with Experiments on IN-14: the Effects on using a Focusing Guide*
- 15:15 S. Roth, *Measurement and Simulation of the Inelastic Resolution Function of a Time-of-Flight Spectrometer*
- 15:30 Coffee break
- 16:00 K. Littrell, *Design of a TOF-SANS Instrument for the Proposed Long Wavelength Target Station at the Spallation Neutron Source*
- 16:15 A. Parizzi, *Simulations of the Neutron Spin Precession inside a TOF Spin Resonance Energy Filter*
- 16:30 P. Astrand, *New features in McStas, Version 1.5*
- 16:45 M. Hagen, *Algorithms for the Simulation of Inelastic Neutron Scattering Experiments*

**Mini Symposium: Industrial Applications of Neutron Scattering**

N1189, Conveners: S. Spooner, I. Swainson

- 14:00 W. Schmahl, *Use of the Rietveld Refinement with the Generalized Spherical-Harmonic Model of describing Crystallographic Texture in Polycrystalline NiTi Shape Memory Alloys with Neutron Powder Diffraction Data*
- 14:20 F. Fiori, *Characterization of Creep Cavitation Damage in a Pressure Vessel Stainless Steel using Small Angle Neutron Scattering*
- 14:40 R. Coppola, *High-temperature Stress Evolution in Braze Sample for Plasma-Facing Components in Fusion Reactors*
- 15:00 R. Rogge, *Neutron Diffraction Measurement of the Evolution of Strain for Non-Uniform Plastic Deformation*
- 15:20 Coffee Break
- 16:00 J. Matejicek, *Residual Stress in Sprayed Ni+5%Al Coatings Determined by Neutron Diffraction*
- 16:20 R. Rosa, *A Tomography System at Neutron Thermal Column of ENEA Casaccia TRIGA Reactor*
- 16:40 Y. Choi, *Measurement of Very Small Hydrogen Content in Materials by Measuring the Incoherent Neutron Scattering*

## Biological Systems I

N1179

- 14:00 P. Baglioni, *Living polynucleotides formed by the spontaneous aggregation of dilauroylphosphonucleosides.*
- 14:30 I. Köper, *Hindered protein dynamics in the presence of a cryoprotecting agent*
- 14:45 M. Müller, *Supercooled water in plant cell walls – Structure and dynamics of water adsorbed to cellulose*
- 15:00 J. Fitter, *The Role of Picosecond Fluctuations for Activity and Stability in Proteins*
- 15:15 G. Klose, *Determination of Structural Parameters and Hydration of Unilamellar Vesicles by Neutron Scattering Using a Novel Method*

## Biological Systems II

N1179

- 16:00 J. White, *Structure and Reactions of Proteins at Interfaces*
- 16:30 R. Willumeit, *The Interaction of the synthetic Peptide NK2 with Modell Membranes*
- 16:45 D. Schwendel, *Interaction of Water with Protein Resistant Self-Assembling Monolayers: Neutron Reflectivity Measurements of Water Density in the Interphase Region*

## Poster Session B

- 17:00 – 19:00    Neutron Instrumentation II (B1 – B47)  
                    Soft Condensed Matter II (B48 – B83)  
                    Magnetism II (B84 – B145)  
                    Material Science II (B146 – B185)  
                    Biology II (B186 – B199)  
                    Chemistry I (B200 – B214)  
                    MS: Spin, Charge and Orbital Degrees of Freedom in  
                    Perovskites and Related  
                    Compounds (B215 – B246)  
                    MS: Optimization of Neutron Devices by Simulation  
                    (B247 – B270)  
                    MS: Industrial Applications of Neutron Scattering (B271 – B287)

## Thursday September 13, 2001

### Mini Symposium: *Charge, Lattice and Isotope Effects in High-Tc Superconductors*

Audimax, Conveners: A. Furrer, Y. Endoh, H. Mook

- 09:00 K. Müller, *Results and Relations in Cuprate Superconductors*
- 09:45 T. Egami, *Lattice and Charge Effects in High-Tc Superconductors*
- 10:15 L. Pintschovius, *Search for Charge Fluctuation Effects in the Phonons of  $YBa_2Cu_3O_x$*
- 10:30 Coffee Break
- 11:00 K. Yamada, *Spin Fluctuations in High-Tc Cuprates; Cross Over from Static Charge Stripes to Dynamical Spin Density Waves*
- 11:30 D. Temprano, *Isotope Effects on the Pseudogap in High-Tc Superconductors studied by Inelastic Neutron Scattering*
- 12:00 R. Gilardi, *Doping Dependence of the Tetragonal-Orthorombic Phase Transition in the Superconducting  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  Compound*
- 12:15 T. Yildirim, *Anharmonic Lattice Dynamics and Nonlinear Electron-Phonon Coupling in New 40K Superconductor  $MgB_2$*

### Mini Symposium: *Instrumentation at Advanced Pulsed Sources*

N1190, Conveners: K. Crawford, F. Mezei

- 09:00 P. Radaelli, *Powder Diffraction at Advanced Pulsed Neutron Sources: Past, Present and Future*
- 09:40 M. Katagiri, *High Position Resolution Scintillation Neutron Imaging Detector by Crossed-Fiber Readout with Novel Centroid Finding Method*
- 10:00 C. Schulz, *A Novel Large-Area, Low-Pressure Detector with High Position and Time-of-Flight Resolution for Thermal Neutron Imaging*
- 10:20 A. Parizzi, *Possibilities for Novel Polarized Pulsed Neutron Instrumentation Based on the TOF Spin Resonance Energy Filter*
- 10:40 Coffee Break
- 11:10 F. Mezei, *New Multiplexing Concepts to Enhance the Efficiency of Use of Pulsed Sources*
- 11:30 J. Ankner, *Anticipated Performance of the SNS Liquids Reflectometer*
- 11:50 J. Santisteban, *Comparision of Bragg-Edge Neutron Spectroscopy at ISIS and LANSCE*
- 12:10 General Discussion Time

## Frustrated Magnets

N1189

- 09:00 S. Bramwell, *Degeneracy Breaking In The Frustrated Pyrochlore Antiferromagnet*  
09:15 S.-H. Lee, *Magnetic correlations in the Neel and spin liquid phase of a geometrically frustrated magnet  $ZnCr_2O_4$*   
09:30 M. Matsuura, *Direct evidence of spin frustration in fcc antiferromagnet  $NiS_2$*   
09:45 A. Mellergard, *Non-classical spin configurations in a kagome based frustrated antiferromagnet: analysis of dynamic disorder by the Reverse Monte-Carlo method*  
10:00 C. Pappas, *Dynamic scaling in spin glasses : NSE results and theory*  
10:15 G. Ehlers, *Dynamics of frustrated magnetic moments in  $TbNiAl$*

## Polymer Solutions

N1179

- 09:00 L. Magid, *Structure and dynamics of giant wormlike micelles and their reversion to globular micelles at high salt concentrations*  
09:30 L. Noirez, *Non-equilibrium studies of polymers under flow*  
09:45 J. Zipfel, *Time-resolved SANS investigation of a shear induced lamellar-to-vesicle transition*  
10:00 J. Stellbrink, *Partial structure factors in star polymer/colloid mixtures*  
10:15 F. Lo Celso, *Investigating Self-Assembly and Metal Nanocluster Formation in Aqueous Di-Block Copolymers Solutions*

## Organic Molecules

N1189

- 11:00 I. Natkaniec, *Neutron spectroscopy and QC modeling low frequency internal vibrations m-xylene molecules with deuterated subunits*  
11:30 R. Dimeo, *The effects of confinement on rotational tunneling*  
11:50 O. Kirstein, *Lattice dynamics and methyl group rotation of dimethylacetylene (DMA)*  
12:10 B. Toudic, *Symmetry breaking, pretansitional phenomena and molecular disorder in an aperiodic molecular composite crystal (to be confirmed)*

## Interfaces and Confined Systems

N1179

- 11:00 Y. Matsushita, *Interfacial Characteristics of Block Copolymers with Various Architectures Studied by Neutron Reflectometry*
- 11:30 T. Ederth, *Neutron reflection from foam films*
- 11:45 R. Steitz, *Temperature Induced Changes in Polyelectrolyte Films at the Solid-Liquid Interface*
- 12:00 V. Lauter-Pasyuk, *Interface and Surface Formation in Self-Assembled Polymer Multilayers by Off-Specular Neutron Scattering*
- 12:15 P. Müller-Buschbaum, *Phase separation of weakly incompatible polymer blends confined into isolated droplets*

## Magnetic Structures and Dynamics II

Audimax

- 13:30 V. Plakhty, *Polarised neutrons and chiral criticality*
- 14:00 S. Choi, *Spontaneous Weak-Ferromagnetism in the Superconductor  $ErNi_2B_2C$*
- 14:15 A. Señas, *Inducing antiferromagnetism with pressure in  $TbPt$  and  $TbPt_{0.6}Cu_{0.4}$ : a neutron diffraction study*
- 14:30 A. Schreyer, *Observation of Spinwaves in a Magnetic Superlattice by Inelastic Neutron Scattering*
- 14:45 T. Chatterji, *Low energy nuclear spin excitations in Nd and  $NdCu_2$*

## Unusual Material States

N1190

- 13:30 E. Weidner, *Neutron diffuse scattering study of disordered quasicrystal  $Al_{72}Ni_{12}Co_{16}$  up to  $1000^\circ C$*
- 14:00 K. Inoue, *Martensitic and Magnetic Transformations of  $Ni_2MnGa$ -based Shape Memory Alloys*
- 14:20 S. Vakhrushev, *Lattice Dynamic of  $PbMg1/3Nb2/3O3$  Relaxor Ferroelectric*
- 14:40 S. Chaplot, *Origin of negative thermal expansion in cubic  $ZrW_2O_8$*

## Glasses and Liquids

N1189

- 13:30 L. Pusztai, *On the structure of red amorphous phosphorus*
- 14:00 L. Cormier, *Structure of lithium borate glass and melt using neutron diffraction with isotopic substitution*

## Poster Session C

- 15:00 – 17:30      Advanced Neutron Sources (C1 – C15)  
Neutron Instrumentation III (C16 – C54)  
Soft Condensed Matter III (C55 – C90)  
Magnetism III (C91 – C159)  
Material Science III (C160 – C207)  
Chemistry II (C208 – C240)  
MS: Charge, Lattice and Isotope Effects in High-Tc  
Superconductors  
(C241 – C246)  
MS: Instrumentation at Advanced Pulsed Neutron Sources  
(C247 – 253)  
Late submissions: (C254- )

## 8 Fortbildungsveranstaltung für Gymnasiallehrer

**RLFB–Tagungsprogramm  
EDGAR–LÜSCHER–PHYSIKSEMINAR 2001  
25 Jahre Edgar-Lüscher-Physikseminar!  
Thema: Astrophysik und Weltraumfahrt,**

Datum: Freitag, 27. April bis Sonntag, 29. April 2001

Tagungsort: Gymnasium Zwiesel

Veranstalter: Der Ministerialbeauftragte für die Gymnasien in Niederbayern, G. Rauprich

Wissenschaftliche Leitung: Prof. Dr. W. Hillebrandt, MPI f. Astrophysik, Garching

Priv. Doz. Dr. W. Schirmacher, Technische Universität München

Organisation am Ort: Gymnasium Zwiesel (OStD H. Kratzer, OStR G. Haller)

### PROGRAMM

#### Freitag, 27. 4. 2001

15.00 – 15.15	Begrüßung, Organisatorisches
15.15 – 16.15	Prof. Dr. W. Hillebrandt, MPI f. Astrophysik, Garching: <i>Einführung</i>
16.30 – 17.30	Dr. L. L. Christensen, ESO, Garching: <i>10 Jahre mit Hubble</i>
17.30	<i>Pause</i>

18.00 *Feierstunde mit anschließender Theateraufführung*

#### Samstag, 28. 4. 2001

9.00, – 10.30	Prof. Dr. J. Trümper, MPI f. extraterr. Ph. Garching: <i>Röntgenastronomie mit Chandra</i>
11.00 – 12.30	Prof. Dr. V. Schönfelder, MPI f. extraterr. Ph. , Garching: <i>Astronomie mit Gammastrahlen</i>
15.00 – 16.30	Prof. Dr. S. White, MPI f. Astrophysik, Garching: <i>Der kosmische Mikrowellen-Hintergrund</i>
17.00 – 18.30	Dr. F. Huber, Univ. Stuttgart: <i>Bemannte Raumfahrtprojekte</i>

#### Sonntag, 29. 4. 2001

9.00 – 10.30	Dr. W. Winkler, MPI f. Quantenoptik, Garching: <i>Gravitationswellen</i>
11.00 – 12.30	Prof. Dr. G. Schäfer, Univ. Jena <i>relativistische Astrophysik</i>

## 9 Allgemeine Zusammenstellungen

### 9.1 Veröffentlichungen

S. V. Adichtchev, St. Benkhof, Th. Blochowicz, E. Rössler, Ch. Tschirwitz, V. N. Novikov, J. Wiedersich

*Anomaly of the non-ergodicity parameter and crossover to white noise in the fast relaxation spectrum of a simple glass former*

Phys. Rev. Lett. **88**, 055703 (2002)

S. V. Adichtchev, N. Bagdassarov, St. Benkhof, Th. Blochowicz, V. N. Novikov, E. Rössler, N.V. Surovtsev, Ch. Tschirwitz, J. Wiedersich

*The evolution of the dynamic susceptibility of paradigmatic glass formers below the critical temperature  $T_c$  as revealed by light scattering*

J. Non-cryst. Solids, eingereicht

T. Asthalter, I. Sergueev, H. Franz, W. Petry, K. Messel, R. Verbeni

*Glass dynamics and scaling behaviour under pressure using quasielastic nuclear forward scattering*

Hyperfine Interactions, im Druck

T. Asthalter, I. Sergueev, H. Franz, R. Rüffer, W. Petry, K. Messel, P. Härter, A. Huwe

*Quasielastic nuclear forward scattering as a background-free probe of slow glass dynamics in confined geometries*

Eur. Phys. J. B **22**, 301-306 (2001)

K. Böning, W. Petry, C. Schanzer, E. Steichele

*Neutronenleitersysteme am FRM-II jenseits der Totalreflexion*

Jahrestagung Kerntechnik, (15.-17. Mai 2001)

A. Brodin, M. Frank, S. Wiebel, G. Shen, J. Wuttke, H. Z. Cummins

*Brillouin Scattering Study of Propylene Carbonate: An Evaluation of Phenomenological and Mode Coupling Analyses*

Phys. Rev. E, eingereicht

L. Chernyak, A. Osinsky, A. Schulte

*Minority carrier transport in GaN and related materials*

Solid State Electronics **45**, 1687-1702 (2001)

L. Chernyak, A. Schulte, A. Osinsky, J. Gruff, E.F. Schubert

*Impact of electron injection on performance of GaN photodetectors*

Appl. Phys. Lett., im Druck

W. Doster, M. Diehl, W. Petry, M. Ferrand

*Elastic resolution spectroscopy: a method to study molecular motions in small biological samples*

Physica B **301**, 65 (2001)

- W. Doster, M. Diehl, H. Schober, W. Petry, and J. Wiedersich  
*Effect of pressure and pressure-denaturation on fast molecular motions of solvated myoglobin*  
in: Trends in High Pressure Bioscience and Biotechnology, R. Hayashi, Editor, Elsevier Science, Amsterdam, 2002, p. 107
- P. Figueiredo, S. Geppert, R. Brandsch, G. Bar, R. Thomann, R. J. Spontak, W. Gronski, R. Samlenski, P. Müller-Buschbaum  
*Ordering of cylindrical microdomains in thin films of hybrid isotropic/liquid crystalline triblock copolymers*  
Macromolecules **34**, 171 (2001)
- H. Franz, T. Asthalter, M. Dommach, A. Ehnes, K. Messel, I. Sergueev  
*Investigations of Solid State Dynamics at the NRSSR Beamline at PETRA II - An Overview*  
Hyperfine Interactions, im Druck
- M. Goldammer, C. Losert, J. Wuttke, W. Petry, F. Terki, H. Schober, P. Lunkenheimer  
*Calcium rubidium nitrate: mode-coupling  $\beta$  scaling without factorization*  
Phys. Rev. E **64**, 021303 (2001)
- K. Hatanaka, T. Miura, H. Odaka, S. Wiebel, and H. Fukumura  
*Generation and Decay of High-energy Electrons in Anthracene Microcrystals Using Picosecond X-ray Pulse Excitation*  
J. Phys. Chem., eingereicht
- I. Köper, M.-C. Bellissent-Funel, W. Petry  
*Hindered protein dynamics in the presence of a cryoprotecting agent*  
Proceedings of the International Conference on Neutron Scattering 2001, supplement to Applied Physics A. Material Science & Processing 2002, im Druck
- E. Kravtsov, V. Lauter-Pasyuk, H. Lauter, B. Toperverg, O. Nikonov, A. Petrenko, M. Milyaev, L. Romashev, V. Ustinov  
*Interface formation and magnetic ordering in Fe/Cr hybrid nanostructures*  
Physica B **297**, 118-121 (2001)
- V. Lauter-Pasyuk, H. Lauter, B. Toperverg, O. Nikonov, E. Kravtsov, M. Milyaev, L. Romashev, V. Ustinov  
*Magnetic neutron off-specular scattering for the direct determination of the coupling angle in exchange couple multilayers*  
J. Magn. Magn. Mater. **226-230**, 1694-1696 (2001)
- V. Lauter-Pasyuk, H. Lauter, B. Toperverg, O. Nikonov, A. Petrenko, D. Schubert, W. Petry, V. Alsenov  
*Off-specular neutron scattering studies of the interface and surface formation in self-assembled polymer multilayers*  
Proceedings of ILL millennium symposium, 6-7 april 2001, 84-85
- H. Lauter, V. Lauter-Pasyuk, B. Toperverg, L. Romashev, M. Milyaev, E. Kravtsov, V. Ustinov, O. Nikonov, V. Leiner, V. Aksenov

*Growth conditions and magnetic ordering in Fe/Cr multilayers*  
Proceedings of ILL millennium symposium, 6-7 april 2001, 187-188

St. Longeville, W. Doster, M. Diehl, R. Gähler, W. Petry  
*Neutron Resonance Spin-Echo: oxygen transport in crowded protein solutions*  
Lecture Notes in Physics, im Druck

C. Lopez, K.A. Richardson, D.K. Verma, S. Seal, K. Zollinger, A. Schulte, A. Graham, M. Marchevie, M. DeCastro *Optimization of processing and characterization of chalcogenide glasses used for waveguide applications*  
J. Am. Cer. Soc., im Druck

B. Mahltig, P. Müller-Buschbaum, M. Wolkenhauer, O. Wunnicke, S. Wiegand, J. F. Gohy, R. Jerome, M. Stamm  
*Highly regular polyampholytic structures adsorbed directly from solution*  
J. Colloid. Inter. Sci. **242**, 36 (2001)

A. Meyer, S. Roth, W. Petry  
*Relaxation and Diffusion in Glass-Forming Metallic Liquids.*  
Defect and Diffusion Forum **194-199**, 891 (2001)

A. Meyer, H. Schober, J. Neuhaus  
*Microscopic Dynamics in Liquid GeO<sub>2</sub>*  
Phys. Rev. B **63**, 212202 (2001)

A. Meyer, H. Schober, D.B. Dingwell  
*Structural Changes, Relaxation and Ion Diffusion in Sodium Disilicate Melts*  
Europhys. Lett., eingereicht

P. Müller-Buschbaum, J. S. Gutmann, M. Wolkenhauer, J. Kraus, M. Stamm, D. Smilgies, W. Petry  
*Solvent induced surface morphology of thin polymer films*  
Macromolecules **34**, 1369 (2001)

P. Müller-Buschbaum, M. Stamm  
*Film thickness dependence of the domain size in weakly incompatible thin polymer blend films*  
Colloid. Polym. Sci. **279**, 376 (2001)

P. Müller-Buschbaum, M. Wolkenhauer, O. Wunnicke, M. Stamm, R. Cubitt, W. Petry  
*Structure formation in two-dimensionally confined diblock copolymer films*  
Langmuir **17**, 5567 (2001)

P. Müller-Buschbaum, R. Cubitt, W. Petry  
*Phase separation of weakly incompatible polymer blends confined into isolated droplets*  
Physics A, im Druck

P. Müller-Buschbaum, J. S. Gutmann, C. Lorenz-Haas, B. Mahltig, M. Stamm, W. Petry  
*Early stages of film creation in thin diblock copolymer films*  
Macromolecules **34**, 7463 (2001)

M. Müller, L. G. MacDowell, P. Müller-Buschbaum, O. Wunnicke, M. Stamm  
*Nano-dewetting: Interplay between van der Waals and short ranged interaction*  
J. Chem. Phys. **115**, 9960 (2001)

K. Nikolaus, J. Neuhaus, W. Petry, J. Bossy  
*Phonon dispersion of bcc cerium*  
Eur. Phys. J.B. **21**, 357 (2001)

G. Nootz, A. Schulte, L. Chernyak, A. Osinsky, J. Jasinski, M. Benamara, Z. Liliental-Weber  
*Correlations between spatially resolved Raman shifts and dislocation density in GaN films*  
Appl. Phys. Lett., im Druck

C. Notthoff, H. Franz, M. Hanfland, D.M. Herlach, D. Holland-Moritz, W. Petry  
*Electromagnetic levitation apparatus for investigations of the phase selection in undercooled melts by energy-dispersive x-ray diffraction*  
Rev. Sci. Instrum. **71**, 3791 (2000)

V. N. Novikov, N. V. Surovtsev, J. Wiedersich, S. Adichtchev, S. Kojima, E. Rössler  
*On the origin of quasi-elastic light scattering in glasses*  
Europhys. Lett., eingereicht

W. Petry  
*The new German Neutron Source FRM II*  
IAEA-SM-360/39, Proc. of Int. Symp. on Research Reactor Utilisation, Safety and Management, Lisbon (2000)

W. Petry  
*High Resolution Spectroscopy at FRM II, Neutron Resonance Spin Echo, Back Scattering and Time-of-Flight Instrumentation*  
J. Phys. Soc. Jpn. **70** Suppl. A, 423 (2001)

W. Petry  
*Neutronen bringen Licht ins Dunkel in: Unter jedem Stein liegt ein Diamant, Struktur-Dynamik Evolution*  
Hrsg. Ernst-Ludwig Winnacker, Hirzel Verlag, Stuttgart, ISBN 3-7776-1122-0 Gesellschaft Deutscher Naturforscher und Ärzte, vol. 121, 55 - 61 (2001)

W. Petry  
*FRM II, ein einzigartiges Mikroskop für Naturwissenschaften, Technik und Medizin*  
TUM Mitteilungen **3**, 22-28 (2001/2)

C. Rivero, A. Schulte, K. Richardson  
*Structure-property relationships in As-S-Se glasses for waveguide applications probed by near-infrared Raman spectroscopy*  
J. Am. Cer. Soc., eingereicht

C. Rivero, P.S. Sharek, G. Nootz, C. Lopez, K.A. Richardson, A. Schulte, R.B. Irwin, T. Galstian, V. Hamel, K. Turcotte, A. Villeneuve, R. Vallé

*Structural analysis of chalcogenide waveguides using Rutherford backscattering spectroscopy*

Proc. SPIE 'Engineering Thin Films with Ion Beams', im Druck

S. Roth, A. Zirkel, J. Bossy, J. Neuhaus, J. Peters, H. Schober, W. Petry

*Measurement and Simulation of the Inelastic Resolution Function of a Time-of-Flight Spectrometer*

Proceedings of the International Conference on Neutron Scattering 2001, supplement to Applied Physics A. Material Science & Processing 2002, im Druck

W. Schirmacher, M. Pöhlmann, E. Maurer

*Anharmonic Interactions and the Low-Temperature Thermal Anomalies in Glasses*

physica status solidi (b), im Druck

A. Schulte, K. Richardson

*Near-infrared Raman spectroscopy of chalcogenide glasses for integrated optics*

In: Recent Research Developments in Non-Crystalline Solids, Eds. M. Kawasaki, N. Ashgriz, R. Anthony, vol 1, Transworld Research Network, Trivandrum, im Druck

A. Schulte, C. Rivero, K. Richardson, K. Turcotte, J. Laniel, V. Hamel, A. Ville-neuve, A. Saliminia and T. Galstian

*In-situ structural characterization of chalcogenide bulk-film-fiber properties by near-infrared waveguide Raman spectroscopy*

Optics Communications **198**, 125-128 (2001)

G. V. Smirnov, V. G. Kohn, W. Petry

*Dynamics of electron density in a medium revealed by Mössbauer time-domain interferometry*

Phys. Rev. B **63**, 144303 (2001)

N.V. Surovtsev, A.P. Shebanin, J. Wiedersich, M.A. Ramos

*Light-vibration coupling coefficient and density of states in  $B_2O_3$  glasses with different thermal histories*

Eur. Phys. J. B, eingereicht

B. Toperverg, O. Nikonov, V. Lauter-Pasyuk, H. Lauter

*Towards 3D polarization analysis in neutron reflectometry*

Physica B **297**, 169-174 (2001)

J. Wiedersich, N. V. Surovtsev, V. N. Novikov, E. Rössler, A. P. Sokolov

*Light scattering spectra of fast relaxation in silica and  $Ca_{0.4}K_{0.6}(NO_3)_{1.4}$  glasses*

Phys. Rev. B **64**, 064207 (2001)

## 9.2 Poster

M. Diehl, H. Schober, J. Wiedersich, W. Doster

*Effect of Pressure Denaturation on Molecular Motions of Myoglobin*

März 2001, APS spring meeting, Seattle

W. Doster, M. Diehl, W. Petry  
*Neutron Elastic Resolution Spectroscopy of Proteins*  
(1) ICNS 2001 in München 9.-15.9. 2001,  
(2) DYPROSO XXVIII in Jülich, 16-20.09.2001

W. Doster, R. Gebhardt, H. Schober, W. Petry und J. Wiedersich  
*Pressure Unfolding of Myoglobin, ligand binding kinetics and molecular dynamics*  
(1) ICNS 2001 in München 9.-15.9. 2001,  
(2) DYPROSO XXVIII in Jülich, 16.-20.09.2001,  
(3) Deutsche Neutronenstreutagung in Jülich 15.02.01,  
(4) Jahrestagung der deutschen Gesellschaft für Biophysik in Münster 23.-25.09.01  
(5) American Physical Society Meeting in Seattle (USA) 15.03.01

H. Franz, T. Asthalter, M. Dommach, A. Ehnes, K. Messel, I. Sergueev, U. van Bürck  
*Investigations of Solid State Dynamics at the NRSSR Beamline at PETRA II - An Overview*  
ICAME 2001, Oxford, UK, 2.-7.9.2001

J. S. Gutmann, P. Müller-Buschbaum, C. Cassignol, G. Schreyeck, M. Stamm  
*Grazing incidence scattering study of interfacial correlations in polymer blend films*  
HASYLAB User Meeting Hamburg, Januar 2001

J. S. Gutmann, P. Müller-Buschbaum, R. Cubitt, M. Stamm  
*Ternary polymer blend films studied with grazing incidence small angle scattering*  
Deutsche Neutronenstreutagung Jülich, Februar 2001

J. S. Gutmann, P. Müller-Buschbaum, M. Stamm  
*Ternary polymer blend films studied with grazing incidence small angle scattering*  
ECAMP VII - European Conference on Atomic and Molecular Physics Berlin, April 2001

J. S. Gutmann, P. Müller-Buschbaum, M. Stamm  
*Film thickness dependence of structure formation in ultra-thin polymer blend films*  
ICNS 2001 München, September 2001

V. Lauter-Pasyuk, H.J. Lauter, B. Toperverg, D. Schubert, W. Petry, O. Nikonov, A.V. Petrenko  
*Peculiar off-specular neutron scattering from islands on a lamellar film*  
Deutsche Neutronenstreutagung, Jülich, 19-21 February 2001

H. Lauter, V. Lauter-Pasyuk, B. Toperverg, L. Romashev, M. Milyaev, E. Kravtsov, V. Ustinov, O. Nikonov, V. Leiner, V. Aksenov  
*Growth conditions and magnetic ordering in Fe/Cr multilayers*  
ILL millennium symposium, 6-7 april 2001

V. Lauter-Pasyuk, H. Lauter, B. Toperverg, O. Nikonov, A. Petrenko, D. Schubert, W. Petry, V. Alsenov  
*Off-specular neutron scattering studies of the interface and surface formation in self-assembled polymer multilayers*  
ILL millennium symposium, 6-7 april 2001

- H. Lauter, V. Lauter-Pasyuk, B. Toperverg, L. Romashev, V. Ustinov, E. Kravtsov, A. Vorovyyev, O. Nikonov, J. Major  
*Spin-resolved unpolarized neutron off-specular scattering for magnetic multilayers studies*  
 International Conference on Neutron Scattering, München, 9-13 September 2001
- S. Longeville and W. Doster  
*Spin echo spectroscopy of crowded proteins solutions*  
 International Conference on Neutron Scattering in Munich  
 9. - 15.9. 2001
- C. Lorenz-Haas, P. Müller-Buschbaum, J. Kraus, D. G. Bucknall, M. Stamm  
*Nucleated dewetting of thin polymer films*  
 ICNS 2001 München, September 2001
- A. Meyer, H. Schober, D. B. Dingwell. *Structural Changes and Diffusive Consequences in Sodium Disilicate Melts*  
 IDMRCS 2001 Kreta, 17. – 23. Juni 2001
- A. Meyer, H. Schober, D. B. Dingwell. *Structural Changes and Diffusive Consequences in Sodium Disilicate Melts*  
 ICNS 2001, München, 9. - 13. September 2001
- M. Müller, K. Binder, M. Stamm, P. Müller-Buschbaum  
*Experimentelle Untersuchungen von Benetzungseigenschaften von dünnen ein- und zweikomponentigen Polymerfilmen*  
 DFG Gutachterkolloquium Bad Honnef, November 2001
- P. Müller-Buschbaum, J. S. Gutmann, R. Cubitt, M. Stamm, W. Petry  
*Ultra-thin polymer films examined with grazing incidence small angle scattering*  
 Deutsche Neutronenstreutagung Jülich, Februar 2001
- P. Müller-Buschbaum, M. Frank, B. Mahltig, M. Wolkenhauer, M. Stamm, S. Cunis, G. von Krosigk, R. Gehrke, W. Petry  
*Ultra-thin Polymer Examined with Grazing Incidence Small Angle Scattering*  
 HASYLAB User Meeting, Hamburg, Januar 2001
- P. Müller-Buschbaum, J. S. Gutmann, R. Cubitt, M. Stamm, W. Petry  
*Ultra-thin polymer films examined with grazing incidence small angle scattering*  
 Hamburg, Januar 2001
- G. Nootz, L. Chernyak, A. Osinsky, A. Schulte  
*Electron beam and optical depth-profiling of quasibulk Gallium Nitride*  
 Florida Society of Microscopy, Orlando, Februar 2001
- K.A. Richardson, C. Lopez, A. Schulte, C. Rivero, A. Saliminia, T. Galstian, K. Turcotte, A. Villeneuve, T. Cardinal, M. Couzi, J. L. Brunel  
*Aging behavior of photo-induced As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> gratings*  
 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), Baltimore, April 2001
- C. Rivero, A. Schulte, C. Lopez, K. Richardson, K. Turcotte, V. Hamel, A. Villeneuve, T. Galstian

*Near-infrared waveguide Raman spectroscopy of single and multilayer chalcogenide device materials*

Intl. Conf. on Nonlinear Guided Waves and Their Applications, Clearwater, USA, März 2001

C. Rivero, A. Schulte, K. Richardson, C. Lopez, K. Turcotte, V. Hamel, A. Ville-neuve, T. Galstian, R. Vallee

*Microstructural analysis of chalcogenide single and multilayer films using near-infrared waveguide Raman spectroscopy*

American Vacuum Society, Orlando

A. Schulte, O. Galkin

*Pressure effects on the kinetics of ligand binding to myoglobin*

Annual Meeting of the Biophysical Society, Boston, USA, Februar 2001

I. Sergueev, T. Asthalter, H. Franz, W. Petry, R. Verbeni

*Glass dynamics and scaling behaviour under pressure using quasielastic nuclear forward scattering*

ESRF 11th Users' Meeting, Grenoble, 19.2.2001

I. Sergueev, T. Asthalter, H. Franz, W. Petry, R. Verbeni

*Glass dynamics and scaling behaviour under pressure using quasielastic nuclear forward scattering*

DPG-Frühjahrstagung, Hamburg, D, 26.-30.3.2001

I. Sergueev, T. Asthalter, H. Franz, W. Petry

*Glass dynamics in confined geometry and under pressure using quasielastic nuclear forward scattering*

ICAME 2001, Oxford, UK, 2.-7.9.2001

I. Sergueev, T. Asthalter, U. van Bürck, H. Franz, W. Petry, G. V. Smirnov, K. Messel

*Incoherent nuclear scattering of synchrotron radiation from a glass forming liquid*

ICAME 2001, Oxford, UK, 2.-7.9.2001

I. Sergueev, T. Asthalter, H. Franz, W. Petry

*Study of the slow glass dynamics by quasielastic nuclear forward scattering*

ESRF Science Days, Aussois, F, Mai 2001

I. Sergueev, T. Asthalter, H. Franz, W. Petry

*Glass dynamics in confined geometry and under pressure using quasielastic nuclear forward scattering*

DYPROSO XXVIII, Kerkrade, NL, 16.-20.9.2001

J. Wiedersich, S. V. Adichtchev , N. V. Surovtsev, V. N. Novikov, E . Rssler

*A comparison of polarised and depolarised light scattering*

4th International Discussion Meeting on Relaxations in Complex Systems, Kreta, 22. 6. 2001

J. Wiedersich, W. Doster, M. Diehl, H. Schober, W. Petry

*Effekt der Druckauflistung auf die molekularen Bewegungen von Myoglobin*

19. bis 21.02.2001, Deutsche Neutronenstreutagung 2001, Jülich

N. Wiele, A. Zirkel, H. Franz, T. Asthalter, H. Schober, H. Petry  
*Erste quantitative Analyse der partiellen Phononenzustandsdichte von Fe<sub>72</sub>Pt<sub>28</sub> bei verschiedenen Temperaturen*  
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft Hamburg  
26. - 30. 3. 2001

M. Wolkenhauer, P. Müller-Buschbaum, O. Wunnicke, M. Stamm, J. Roovers,  
G. von Krosigk, R. Cubitt, G. Kozik  
*Influence of the chain architecture on phase and adsorption behavior*  
ECAMP VII - European Conference on Atomic and Molecular Physics  
Berlin, April 2001

O. Wunnicke, P. Müller-Buschbaum, M. Stamm  
*Dewetting and structure formation in polymer films*  
HASYLAB User Meeting Hamburg, Januar 2001

O. Wunnicke, P. Müller-Buschbaum, M. Stamm  
*Cross-over from dewetting and wetting examined in thin polymer bilayer films*  
ECAMP VII - European Conference on Atomic and Molecular Physics Berlin, April  
2001

O. Wunnicke, C. Lorenz-Haas, P. Müller-Buschbaum, V. Leiner, M. Stamm  
*Retardation of the dewetting process due to the addition of functional copolymers at polymer-polymer interfaces*  
ICNS 2001 München, September 2001

### 9.3 Auswärtige Vorträge von Institutsmitgliedern

C. Lorenz-Haas, P. Müller-Buschbaum, C. Creton, M. Stamm, COST-Meeting, Paris  
*Defect mechanisms in adhesion at polymer interfaces*  
26.01.2001

C. Lorenz-Haas, P. Müller-Buschbaum, C. Creton, M. Stamm, DPG-Frühjahrstagung, Berlin  
*Adhesion and fracture at polymer interfaces*  
4.04.2001

C. Lorenz-Haas, P. Müller-Buschbaum, C. Creton, M. Stamm, Arbeitsgruppenworkshop des AK Rädler am MPI für Polymerforschung in Mainz, Hinterzarten  
*Bruchmechanismen in der Adhäsion an Polymergrenzflächen*  
01.05.2001

C. Lorenz-Haas, P. Müller-Buschbaum, C. Creton, M. Stamm, Institut für Polymerforschung Dresden e.V., Dresden  
*Scanning Microfocus-SAXS zur Untersuchung von Bruchmechanismen an Polymergrenzflächen*  
22.10.2001

- A. Meyer, DPG Frühjahrstagung in Hamburg.  
*Relaxationen in zähen Metallschmelzen*  
 26. 3. 2001
- A. Meyer, DPG Frühjahrstagung in Hamburg.  
*Struktur und Dynamik in zähen Germania und Natriumdisilikat Schmelzen*  
 30. 3. 2001
- A. Meyer, Institut des Verres, Universite Montpellier.  
*Structure and Dynamics of Silicate Melts investigated with Inelastic Neutron Scattering*  
 20. 9. 2001
- A. Meyer, Glastag in Göttingen.  
*Struktur und Dynamik von Silikatschmelzen untersucht mit inelastischer Neutronenstreuung*  
 18. 10. 2001
- P. Müller-Buschbaum, Institutskolloquium, Institut für Polymerforschung Dresden  
*Destabilisierung von ultra-dünnen Polymerfilmen*  
 13.3.2001
- P. Müller-Buschbaum, Zentralabteilung Technik der Siemens AG, München  
*Polymergrenzflächen: Zusammenhang von Struktur und Funktion*  
 22.3.2001
- P. Müller-Buschbaum, J. S. Gutmann, M. Stamm, W. Petry, Konferenz ECAMP VII - European Conference on Atomic and Molecular Physics, Berlin  
*Thin diblock copolymer films: Long range correlation and dewetting*  
 3.4.2001
- P. Müller-Buschbaum, Konferenz 5th Microsymposium Nanometer Structured Materials, Meerseburg  
*Destabilization of ultra-thin polymer films*  
 26.6.2001
- P. Müller-Buschbaum, SFB-Seminar Physik der kondensierten Materie, Mainz  
*Zerfall von Rauhigkeitskorrelation in dünnen Polymerfilmen*  
 2.7.2001
- P. Müller-Buschbaum, SFB-Seminar Polymerseminar, Halle  
*Nanostrukturierte Polymeroberflächen*  
 18.7.2001
- P. Müller-Buschbaum, R. Cubitt, W. Petry, Konferenz ICNS 2001, München  
*Phase separation of weakly incompatible polymer blends confined into isolated droplets*  
 12.9.2001
- P. Müller-Buschbaum, SFB-Seminar Moleküle in Wechselwirkung mit Grenzflächen, Leipzig  
*Nanostrukturierte Polymeroberflächen*  
 24.10.2001

W. Petry, Physikalisches Kolloquium, Universität Regensburg, Regensburg  
*Licht im Dunkeln, physikalische Experimente*  
7.1.2001

W. Petry, 20ème anniversaire du réacteur Orphée laboratoire Léon Brillouin, Saclay  
*La nouvelle source de neutrons en Allemagne, le FRM-II*  
1.3.2001

W. Petry, Millenium Symposium of the Institut Laue-Langevin, Grenoble  
*Innovative Instrumentation at the FRM II*  
6.4.2001

W. Petry, Fortbildungskolloquium at DESY, Hamburg  
*Neutronen bringen Licht ins Dunkel*  
4.7.2001

W. Petry, séminaire pléinaire au Congrès de la Société Francaise de la Physique, Strasbourg, Frankreich  
*L'enseignement de la physique dans les universités allemandes*  
12.7.2001.

W. Petry, Meeting of the European Spallation Source, Seggau *Scientific highlights at the International Conference on Neutron Scattering 2001*  
27.9.2001

W. Petry, KTG Tagung für die junge Generation in der Kerntechnik, TUM, Garching 2001, *Neutronenstrahlung - mehr als Energieerzeugung*  
26.10.2001

W. Petry, Physikalisches Kolloquium der Universität Würzburg, Würzburg  
*Neutronen bringen Licht ins Dunkel, FRM-II und seine Instrumentierung*  
5.11.2001

W. Petry, Festvortrag beim Bund der Freunde der TUM, BMW-Forschungs- und Ingenieurzentrum, Knorrstr., München  
*Neutronen bringen Licht ins Dunkel, der FRM-II und seine Anwendungen*  
16.11.2001

W. Petry, Festvortrag bei der Akademischen Jahresfeier der TUM, Dies Academicus *FRM-II, ein einzigartiges Mikroskop für Naturwissenschaften, Technik und Medizin*  
6.12.2001

K. A. Richardson, S. Seal, A. Schulte, T. Cardinal, M. Couzi, A. Villeneuve, T. Galstian, R. Vallee  
*Engineering chalcogenide glasses for use in waveguide applications*  
First International Workshop on Amorphous and Nanostructured Chalcogenides, Bucharest, Romania  
Juli 2001

C. Rivero, A. Schulte, K. Richardson  
*Structure-property relationships in As-S-Se glasses for waveguide applications probed by near-infrared Raman spectroscopy*

Annual Meeting of the American Ceramic Society, Indianapolis, USA  
April 2001

W. Schirmacher, Physics Department, Stony Brook University, USA  
*Harmonic Vibrations in Disordered Solids*  
2. 2. 2001

W. Schirmacher, Physics Department, Univ. of Central Florida, Orlando, USA  
*Harmonic Vibrations in Disordered Solids*  
9. 2. 2001

W. Schirmacher, Physics Department, Oregon State Univ., Corvallis, Oregon, USA  
*Harmonic Vibrations in Disordered Solids*  
14. 2. 2001

W. Schirmacher, 4th International Discussion Meeting on Relaxations in Complex Systems, Heraklion, Kreta  
*Vibrational excitations in glasses and the boson peak*  
20. 6. 2001

W. Schirmacher, Physics Dept., Hebrew University of Jerusalem, Israel  
*Quantum theory of low-temperature thermal anomalies in glasses*  
31. 8. 2001

W. Schirmacher, 9th International Conference on Hopping and Related Phenomena, Shefayim, Israel, Sept. 2001  
*Quantum theory of low-temperature thermal anomalies in glasses*  
3. 9. 2001

W. Schirmacher, 28th international conference on dynamics of solids  
*Theory of vibrations in glasses*  
17. 9. 2001

W. Schirmacher, Phys. Dept. EPFL, Lausanne, Schweiz  
Vortragsreihe *Theory of disordered solids*  
10. – 18. 10. 2001

W. Schirmacher Fachbereich Physik, Univ. Magdeburg  
*Chaos und Quanteneffekte in geschlossenen und offenen Billards*  
20. 11. 2001

W. Schirmacher Fachbereich Physik, Univ. Magdeburg  
*Quantentheorie der Schwingungen in ungeordneten Festkörpern*  
22. 11. 2001

A. Schulte, C. Rivero, G. Nootz, P. Sharek, A. Graham, C. Lopez, K. Richardson, K. Turcotte, V. Hamel, A. Villeneuve, T. Galstian, R. Vallee  
*Structural origin of enhanced nonlinear optical properties in As-S-Se film and bulk glasses probed by near-infrared waveguide and micro Raman spectroscopy*  
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), Baltimore, USA  
Mai 2001

S. Wiebel, Frühjahrstagung der deutschen physikalischen Gesellschaft, Hamburg  
*Lichtstreuung an glasbildenden und einfachen Flüssigkeiten*  
30. 03. 2001

S. Wiebel, M.Goldammer, J.Wuttke, 4th International Discussion Meeting on Relaxations in Complex Systems, Heraklion, Kreta  
*Remnants of glassy behaviour in a non-glass-forming liquid*  
22. 06. 2001

## 9.4 Eingeladene Vorträge an unserem Institut

Ronald Gebhardt, Universität Mainz  
*Spinnenhämoglobin*  
12.01.2001

J. Horbach, Universität Mainz  
*Molekulardynamiksimulation zur Struktur und Dynamik von Natriumsilikatschmelzen*  
10.05.2001

Dr. Marcus Müller, Universität Mainz  
*Strukturen in zweikomponentigen Polymerfilmen: Computersimulation und Mean-Field-Theorie*  
18.05.2001

Sergei Adichtchev, Universität Bayreuth  
*Quasielastische Lichtstreuung an den Glasbildnern Tricresylphosphat und Picolin*  
08.06.2001

Dr. A. I. Chumakov, ESRF Grenoble  
*What one can learn on vibrational dynamics in glasses with nuclear inelastic absorption*  
15.06.2001

Prof. Dr. Alfons Schulte, University of Central Florida  
*Spektroskopie und Eigenschaften von Chalkogenid-Gläsern für Anwendungen in der integrierten Optik*  
11.07.2001

Prof. Dr. Ranko Richert, Universität of Arizona *Solvatationsexperimente zur mikroskopischen Dynamik von Glasbildnern*  
05.11.2001

Dr. Roland Weidisch, Universität Halle  
*Block- und Ppropfpolymere - Werkstoffe mit neuartigen Eigenschaftsprofilen*  
23.11.2001

Dr. Christoph Bühler, PSI Villigen  
*Multiphotonenmikroskopie*  
14.12.2001

## Vorstellungsvorträge für die ausgeschriebene C3-Professur

Dr. Christine M. Papadakis, Univ. Leipzig

*Struktur und Dynamik von Block-Kopolymerstrukturen*

4. 10. 2001

Dr. Regine von Klitzing, TU Berlin

*Strukturierung von Polyelektrolyten in dünnen Filmen an Grenzschichten*

4. 10. 2001

Dr. Frank Scheffold, Univ. Konstanz

*Von Biokolloiden zu photonischen Materialien: Anwendungen der Licht- und Neutronenstreuung im Bereich weicher Materie*

4. 10. 2001

Dr. Jochen Gutmann, Cornell University

*Strukturbildung in nanoskaligen Kompositmaterialien*

11. 10. 2001

Dr. Gerald Hinze, Univ. Mainz

*Von Sekunden bis Femtosekunden: Rotationsdynamik in unterkühlten Flüssigkeiten*

11. 10. 2001

Dr. Peter Müller-Buschbaum, TU München

*Polymergrenzflächen – Zusammenhang zwischen Struktur und Funktion*

11. 10. 2001

Dr. Karin Jacobs, Univ. Ulm

*Strukturbildung in dünnen Filmen: Komplexe Flüssigkeiten auf makro- und mikroskopischer Skala*

11. 10. 2001

## 9.5 Diplomarbeiten

Markus Pöhlmann

*Zur Theorie der Schwingungs- und Tieftemperatureigenschaften ungeordneter Festkörper*

November 2001

Ulrich Häberle

*Eine Vektor-CPA zur Berechnung der Schwingungen in ungeordneten Festkörpern*

Dezember 2001

## 9.6 Doktorarbeiten

Stephan Roth

*Konzeption und neutronenoptische Optimierung des kalten Flugzeitspektrometers am FRM II*

April 2001

Nils Wiele  
*Phononenenzustandsdichten von  $Fe_xPt_{1-x}$ , gemessen mit nuklearer inelastischer Absorption von Synchrotronstrahlung*  
August 2001

Matthias Goldammer  
*Vergleich der mit inelastischer Neutronen- und Lichtstreuung gemessenen kritischen Dynamik an zähen Flüssigkeiten*  
Dezember 2001

## 9.7 Mitarbeiter und Gäste

Leitung: Univ.-Prof. Dr Winfried Petry;  
Prof. Dr. Helmut Schober bis August 2001(Vertretung von Herrn Prof. Petry)  
Prof. Dr. Alfons Schulte seit September 2001(Vertretung von Herrn Prof. Petry)

### Wissenschaftliche Mitarbeiter:

Dr. Tanja Asthalter (bis 31. 3. 01)  
Dr. Uwe van Bürck (ab 1. 4. 01)  
PD Dr. habil. Wolfgang Doster  
Dr. Valeria Lauter-Pasyuk  
Dr. Andreas Meyer  
Dr. Peter Müller-Buschbaum  
Dr. Jürgen Neuhaus (FRM II)  
PD Dr. habil. Walter Schirmacher  
Dr. Ernst Schreier (ab 1. 9. 01)  
Dr. Johannes Wiedersich (bis 30. 9. 01)  
PD Dr. habil. Joachim Wuttke (bis 31. 3. 01)  
Dr. Achim Zirkel (FRM II bis 15. 11. 01)

### Doktoranden:

Ronald Gebhardt  
Matthias Goldammer  
Ingo Köper  
Kiril Messel  
Panteleimon Panagiotou  
Markus Pöhlmann  
Stephan Roth  
Ilya Sergueev  
Sabine Wiebel  
Nils Wiele

**Diplomanden:**

Ulrich Häberle  
Florian Kargl  
Edith Maurer  
Markus Pöhlmann  
Anita Widmann

**Werkstudenten:**

Christian Carbogno  
Alexander Diethert  
Oliver Titz

**Nichtwissenschaftliche Mitarbeiter:**

Joachim Dörbecker  
Elke Fehsenfeld  
Reinhold Funer  
Helga Harlandt  
Edith Lubitz  
Josef Kaplonski  
Dieter Müller  
Cornelia Simon

**Gäste:**

Dr. Peter Link  
Cornelia Lorenz-Haas  
Dr. Stéphane Longeville  
Prof. Dr. Otto Schärfp  
Prof. Dr. Gennadi Smirnov