

Diss. Nr. 4389

# Isotopeneffekt in der paraelastischen Relaxation

Abhandlung  
zur Erlangung  
der Würde eines Doktors der  
Naturwissenschaften  
der

Eidgenössischen Technischen Hochschule  
Zürich

vorgelegt von

**Gustav Pfister**

Dipl. Phys. ETH  
geboren am 14. März 1940  
von Männedorf, Kanton Zürich

Angenommen auf Antrag von  
Prof. Dr. W. Känzig, Referent  
Prof. Dr. F. Kneubühl, Korreferent

Springer-Verlag  
Berlin · Heidelberg · New York  
1969

## Isotopeneffekt in der paraelastischen Relaxation

G. PFISTER

Laboratorium für Festkörperphysik der Eidgenössischen Technischen Hochschule, Zürich

Eingegangen am 15. Juli 1969

### *Isotope Effect in the Paraelastic Relaxation*

The kinetics of the reorientation of the molecular impurities  $^{16}\text{O}_2^-$  and  $^{18}\text{O}_2^-$  in the host lattices KCl, KBr and KJ has been investigated by means of ESR as a function of uniaxial stress in the temperature range between 1,3 °K and 4,5 °K. Below 4 °K the reorientation rate is proportional to the temperature, indicating that one-phonon processes dominate at low temperatures. For  $T > 4$  °K the reorientation through excited librational levels becomes significant. The large isotope effect in the reorientation rate of  $^{16}\text{O}_2^-$  and  $^{18}\text{O}_2^-$  confirms that tunneling plays an important role.

The analogy between the diffusion of polarons and the reorientation of molecules in solids is discussed in detail. The evaluation and interpretation of the experimental results in terms of the theory of Gosar and Pirc yields values for the tunneling matrix elements, the potential barrier between two equilibrium orientations, the libration frequencies and an effective moment of inertia. The theory accounts well for the contribution of the one-phonon processes to the relaxation rate for stress along [001]. For stress along [111] the agreement is only qualitative.

Die Reorientierungskinetik der molekularen Verunreinigungen von  $^{16}\text{O}_2^-$  und  $^{18}\text{O}_2^-$  in den Wirtgittern KCl, KBr und KJ wurde für verschiedene Druckachsen im Temperaturbereich zwischen 1,3 °K und 4,5 °K als Funktion einachsiger mechanischer Spannungen mit ESR untersucht. Die Reorientierungsrate ist unterhalb 4 °K proportional zur Temperatur, was auf Einphononenprozesse in der Reorientierungskinetik schließen läßt. Oberhalb 4 °K beginnt die Reorientierung über angeregte Librationszustände die direkte Reorientierung zu überwiegen. Der große Isotopeneffekt in den Reorientierungsraten für  $^{16}\text{O}_2^-$  und  $^{18}\text{O}_2^-$  bestätigt die Annahme, daß der Tunneleffekt bei der Reorientierung der Molekül-Ionen sehr wesentlich ist.

Zwischen der Diffusion von Polaronen und der Reorientierung von Molekül-Ionen in festen Körpern wird eine Analogie aufgestellt und eingehend diskutiert. Die experimentellen Daten werden im Rahmen der Theorie von Gosar und Pirc ausgewertet und interpretiert. Diese Analyse erlaubt uns die Bestimmung der Tunnelmatrixelemente, der mittleren Potentialbarriere zwischen zwei Gleichgewichtsorientierungen, der Librationsfrequenz um eine Gleichgewichtsorientierung, und der effektiven Trägheitsmomente. Der Beitrag der Einphononenprozesse wird für Druck längs [001] durch die Theorie sehr gut wiedergegeben. Für Druck längs [111] hingegen ist die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment nur qualitativ.

La cinématique de réorientation d'impuretés moléculaires  $^{16}\text{O}_2^-$  et  $^{18}\text{O}_2^-$  dans les réseaux KCl, KBr et KJ a été étudiée par résonance paramagnétique, en fonction de la tension mécanique axiale dans un domaine de température de 1,3 °K à 4,5 °K. Le taux de réorientation est proportionnel à la température au-dessous de 4 °K, ce qui permet de conclure que la cinématique de réorientation est un processus à un phonon dans ce domaine. Au-dessus de 4 °K, la réorientation faisant intervenir des états excités de libration devient prépondérante. L'effet isotopique important relevé dans les taux de réorientation de  $^{16}\text{O}_2^-$  et  $^{18}\text{O}_2^-$  soutient l'hypothèse que l'effet tunnel joue un rôle primordial dans la réorientation des ions moléculaires.

Une analogie est établie entre la diffusion de polarons et la réorientation de ions moléculaires dans les solides. L'analyse des résultats expérimentaux dans le cadre de la théorie de Gosar et Pirc permet la détermination des éléments de matrice de l'effet tunnel, d'une barrière moyenne de potentiel entre deux états d'équilibre de l'orientation et des moments d'inertie effectifs. La contribution des processus à un phonon est très bien rendue par la théorie dans le cas d'un état de tension parallèle à [001]. Dans le cas d'une tension suivant [111] l'accord est au plus qualitatif.