

BAYERISCHE AKADEMIE DER WISSENSCHAFTEN
MATHEMATISCH-NATURWISSENSCHAFTLICHE KLASSE

SITZUNGSBERICHTE

JAHRGANG

1966

MÜNCHEN 1967

VERLAG DER BAYERISCHEN AKADEMIE DER WISSENSCHAFTEN

In Kommission bei der C. H. Beck'schen Verlagsbuchhandlung München

Rückstreuversuche hoher Auflösung mit Neutronen

Von Berthold Alefeld in München

Vorgelegt von Herrn Heinz Maier-Leibnitz am 4. Juni 1966

Am Münchener Forschungsreaktor wird mit Hilfe von Neutronenleitern und Bragg-Rückstreuung ein Neutronenstrahl mit sehr hoher Monochromasie hergestellt und mit Hilfe einer zweiten Rückstreuung an einem Kristall variabler Gitterkonstante analysiert. Damit ergeben sich die Möglichkeiten, sowohl Änderungen von Gitterkonstanten wie kleine Energieänderungen bei der Streuung von Neutronen mit höherer Genauigkeit zu messen, als das bisher möglich ist.

1. Einleitung: Die Meßtechnik der Neutronenbeugung ist im Begriff, sich zu verändern. Noch vor kurzem [1] dominierten ganz die ersten von Shull und Wollan angegebenen Beugungsspektrometer; bei ihnen wird durch einen Monochromatorkristall ein enger Wellenlängenbereich selektiert, und damit werden wie mit Röntgenstrahlen Beugungsspektren durch Variation des Streuwinkels an der Probe gemessen. Nun bestehen aber große Unterschiede zwischen Röntgen- und Neutronenquellen; eine Röntgenröhre emittiert etwa 10^4 mal mehr Quanten pro cm^2 und Wellenlängenbereich als ein sehr großer Reaktor [2], allerdings nur über eine Fläche von $0,1 \text{ cm}^2$ in einem Bereich von etwa 10^{-3} der Wellenlänge λ , während bei Neutronen leicht 100 cm^2 Fläche möglich sind und ein kontinuierliches Spektrum entsprechend einer Maxwellverteilung vorliegt. Eine optimale Anordnung für Neutronen wird deshalb sehr verschieden von einer Röntgenmethode sein. So haben Buras u. a. [3] [4] gezeigt, daß es günstig sein kann, in der Bragg'schen Gleichung

$$\vec{\tau} = 2 \vec{k} \sin \vartheta \quad (1)$$

$\left(\vec{\tau} = \text{Vektor im reziproken Gitter } \frac{2\pi}{d} \right.$

$\vec{k} = 2\pi/\lambda, \vartheta = \text{Braggwinkel} \left. \right)$

$\vec{k}$ statt ϑ zu variieren.

In diesem Zusammenhang scheint uns die Rückstreuungsmethode (ϑ nahe 90°) besonderes Interesse zu verdienen. Sie kann mit Neutronen auf alle Werte bei fester Winkелеinstellung angewendet werden und ist geeignet, hohe Auflösung bei guter Intensität zu erreichen, weil bei $\vartheta = 90^\circ$ die Winkelausdehnungen des eintretenden Strahls und die Dimensionen der Streusubstanz nur in der zweiten Ordnung in die Auflösung eingehen. Die Schwierigkeit der Rückstreuungsmessung bei dem sehr hohen Strahlungsuntergrund eines Reaktors kann heute durch die Anwendung von Neutronenleitern [5] [6] vermieden werden.

2. Ziel der Arbeit: Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit einem Teilgebiet der Rückstreuung, nämlich mit dem Versuch, eine sehr gute Monochromasie eines Neutronenstrahls bei endlicher Fläche und Winkeldivergenz zu erreichen. Die Grenze der Auflösung bei der Bragg-Streuung liegt darin, daß der eintretende Neutronenstrahl durch die Erzeugung von Streuwellen geschwächt wird, so daß er nur etwa 10^4 bis 10^6 Gitterebenen erfaßt und eine unscharfe Beugungsfigur erzeugt. In Gleichung (1) kann man dies dadurch berücksichtigen, daß man τ dem Betrage nach um $\Delta\tau$ unscharf macht, $\Delta\tau$ hängt nur von Kristallkonstanten ab und kann zwischen 10^{-4} und 10^{-6} ($\text{\AA}^{-1}$) liegen. Bei der Rückstreuung an einem einigermaßen idealen Einkristall ist dies die einzige Begrenzung der Auflösung. Insbesondere wirkt sich das Vorhandensein einer kleinen Mosaikbreite der Gitterebenenrichtung nicht auf die Auflösung aus; es kommt nur darauf an, die möglichen Werte von ϑ so zu begrenzen, daß kein größerer Fehler als der durch die Unschärfe von τ verursachte entsteht. Eine Auflösung von 10^{-4} beziehungsweise 10^{-3} ist möglich, wenn ϑ größer als $89,2^\circ$ beziehungsweise $87,5^\circ$ bleibt.

3. Versuchsanordnung und Ergebnisse: Als Monochromatorkristalle wurden Siliziumeinkristalle der Firma Wackerchemie (Reinheit 99,9999) verwendet. Sie waren in Scheiben von 50 mm Durchmesser und 20 mm Dicke parallel zur (111)-Ebene $\left(\text{Reziproker Gitterebenenabstand} = \frac{2\pi}{3,13 \text{ \AA}} \right)$ geschnitten. Nach An-

ätzen läßt sich die Gitterebenenrichtung durch optische Reflexion auf $0,1^\circ$ genau justieren. In einem zweiten Versuch wurden Bleikristalle verwendet (Dimensionen: 50×20 mm dick, parallel zur (111)-Ebene, $\tau = \frac{2\pi}{2,86 \text{ \AA}}$, Mosaikbreite ca. 1°). Die bei der Reflexion erzielte Monochromasie wurde dadurch untersucht, daß die Neutronen an einem zweiten Kristall derselben Art, aber mit einer durch Temperaturänderung variablen Gitterkonstante gestreut wurden. Abb. 1 zeigt die experimentelle Anordnung. Die Neutronen kommen von der Neutronenleiteranordnung am *FRM* [5] mit einer Intensität von $6,6 \cdot 10^4$ Neutronen über $4 \text{ \AA}$ pro cm^2 und sec. Sie werden vor und nach den Reflexionen durch weitere Neutronenleiterrohre zusammengehalten. Der mittlere Braggwinkel ist $(90 - 1^\circ)$ mit einer Streuung um $\pm 0,5^\circ$. Abb. 2 zeigt für Si die Intensität nach zweimaliger Reflexion als Funktion der Temperaturdifferenz der beiden Kristalle. Die volle Halbwertbreite der Kurve entspricht umgerechnet $1,7 \cdot 10^{-6} \text{ eV}$ bei einer Neutronenenergie von $2 \cdot 10^{-3} \text{ eV}$ oder $2,66 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}$ bei einer Wellenlänge von $6,27 \text{ \AA}$. Pro Kristall ist also die Unschärfe $1/\sqrt{2}$ -mal kleiner, das heißt $\Delta E/E = 6 \cdot 10^{-4}$; $\frac{\Delta k}{k} = 3 \cdot 10^{-4}$. Diese Unschärfe ist praktisch ganz durch die oben genannte Winkelunschärfe verursacht. Bei einer Vergrößerung des mittleren Braggwinkels auf $(90 - 0,5^\circ)$ darf man also noch eine erhebliche Verbesserung der Auflösung erwarten.

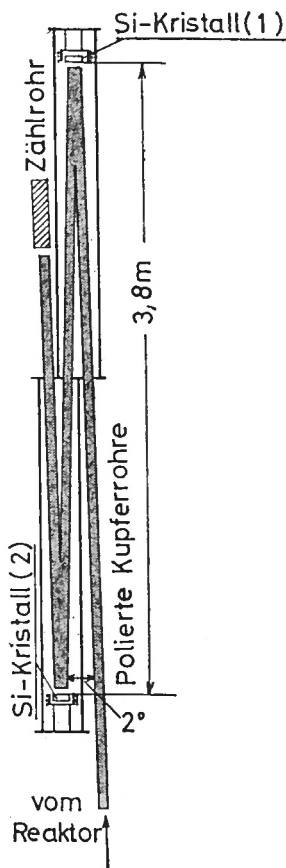


Abb. 1. Experimentelle Anordnung zur Messung der Bragg-Rückstreuung

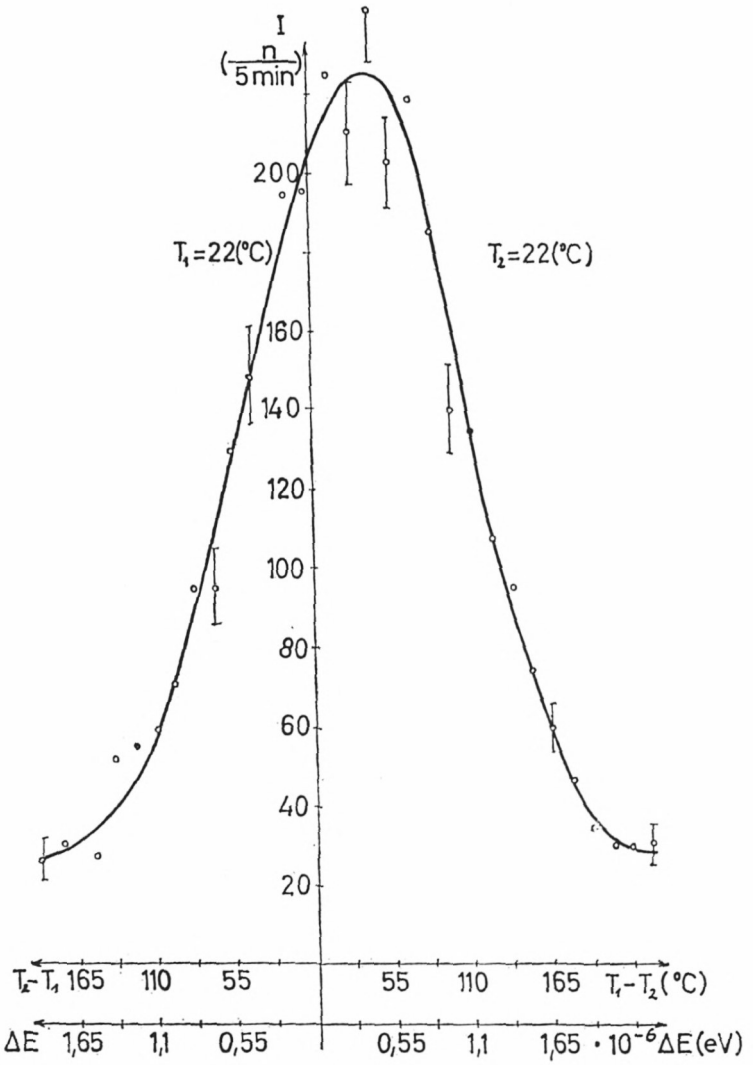


Abb. 2. Meßkurve von Silizium

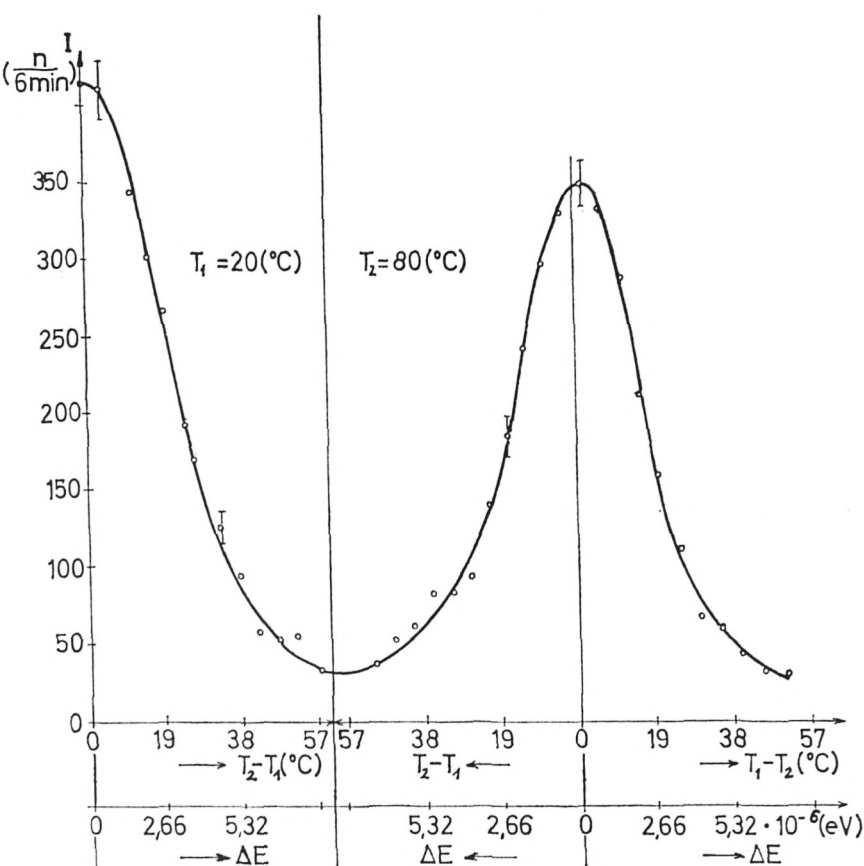


Abb. 3. Meßkurve von Blei

Abb. 3 zeigt die Meßresultate für Blei. Die beobachtete Auflösung ($\frac{\Delta k}{k} = 7,4 \cdot 10^{-4}$ für einen Kristall) ist im wesentlichen durch die Unvollkommenheit der Kristalle verursacht.

Die Maxima der Meßkurven in Abb. 2 und 3 liegen nicht bei der Temperaturdifferenz Null, weil die Neutronen von einem zum anderen Kristall eine Fallhöhe von 3,8 m durchlaufen und deshalb ihre Energie um $3,8 \cdot 10^{-7}\text{ eV}$ erhöhen.

4. Anwendungsmöglichkeiten: Die vorstehend beschriebenen Versuche zeigen, daß die Rückstreumethode für Neutronen die erwartete Auflösung und Intensität liefert. Nach Gleichung (1) sind nunmehr entweder genaue Messungen von Gitterkonstanten oder genaue Messungen des Impulses und der Energie von Neutronen möglich. Insbesondere scheint uns die Methode bei den folgenden Anwendungen anderen überlegen zu sein.

a) Ein genauer Vergleich von Gitterkonstanten und ihrer Schwankungen ist nach der Anordnung Abb. 1 möglich, wenn der eine Kristall als Normal, der andere (mit Verunreinigungen,

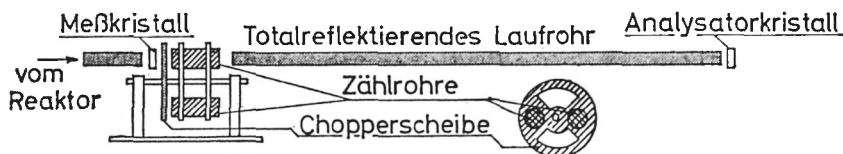


Abb. 4. Geplante Anordnung zur Messung von Gitterparameteränderungen

nach Bestrahlung usw.) als Meßsubstanz dient. Der Meßkristall kann auch in Transmission verwendet werden. Besondere Genauigkeit erhält man, wenn man die Rückstreuung um 180° verwendet, wozu eine Pulsmethode mit rotierenden Zählrohren zweckmäßig ist, Abb. 4. In diesem Fall wird die Meßgenauigkeit, solange der Kristall nicht eine sehr große Mosaikbreite zeigt, von der Winkeldivergenz $\Delta\theta$ unabhängig, weil trotz der Reflexion an den Wänden des Neutronenleiters der Auftreffwinkel für den ersten und den zweiten Kristall immer gleich ist. Die Transmissionsmethode ist auch für die Untersuchung polykristalliner Proben günstig: statt einer Bragglinie wird jetzt die Struktur der „Filterkante“ der Substanz untersucht.

Gegenüber den Röntgenmethoden ergibt sich der Vorteil höherer Genauigkeit, weil die Breite der Röntgenlinien keine Grenze mehr darstellt. Bei gleicher Genauigkeit dürfte außerdem in den meisten Fällen wegen der großen Querschnitte der Neutronenstrahlen vor und nach der Streuung beziehungsweise wegen

des durch die Neutronenleiter gegebenen Raumwinkels ein Intensitätsvorteil bestehen.

Die Variation der Wellenlänge bei der Braggstreuung wird man mit Vorteil, statt wie hier durch den Temperatureinfluß auf die Gitterkonstante $2\pi/\tau$, durch Bewegen eines Kristalls (Dopplereffekt) vornehmen. Im Prinzip kommt auch eine Analyse durch Laufzeitmethoden in Frage; bei der erwünschten hohen Genauigkeit sind allerdings sehr lange Laufwege (die mit Neutronenleitern ohne großen Intensitätsverlust möglich sind) notwendig. Zur Erhöhung der Intensität sind komplizierte Mehrfach-Chopper-Anordnungen erwünscht.

b) Kleine Energieänderungen bei kritischer Streuung. In einigen Fällen, vor allem bei der Streuung an Ferromagneten nahe dem kritischen Punkt, treten kleine Winkeländerungen zusammen mit sehr kleinen Energieänderungen auf [7]. Die letzteren können mit der Anordnung Abb. 1 bis zu sehr viel kleineren Werten als früher verfolgt werden, indem die ferromagnetische Probe in den Strahlengang zwischen den Kristallen gebracht wird. Dabei sind die kleinen Winkeländerungen ohne Einfluß, ein Vorteil, der für die Rückstreuung um nahe 180° typisch ist.

c) Bei der Streuung um größere Winkel können sehr kleine Energieänderungen gemessen werden, wenn sowohl für die Herstellung des einfallenden Strahls wie für die Analyse des gestreuten Strahls die Rückstreuung an guten Einkristallen der gleichen Art verwendet wird, zusammen mit einer Energievariation etwa durch Dopplereffekt. Zur Erhöhung der Intensität kann eine Anzahl von Analysatorkristallen verwendet werden, so daß ein großer Raumwinkel bei der Streuung erfaßt wird, ohne daß dabei die Energieauflösung leidet. Die Genauigkeit der Energiemessungen ist um etwa zwei Größenordnungen höher als bei anderen Versuchen. Anwendungsbeispiele sind: Quasielastische Streuung an zähen Flüssigkeiten, die bisher mit Neutronen [8], mit dem Mößbauer-Effekt [9] und mit Laserlicht [10] nachgewiesen wurde; Streuung mit Anregung energiearmer Elektronenübergänge in gebundener Materie [11]; Hyperfeinstrukturübergänge, die bisher mit Neutronen nicht beobachtet werden konnten. Es sei noch darauf hingewiesen, daß in einer früheren Arbeit

[12] die Neutronenrückstreuung von einem polykristallinen Pulver zur Erzielung einer hohen Energieauflösung ausgenutzt wurde, um Neutronenfilterkanten auszumessen.

Herrn Professor Maier-Leibnitz möchte ich sehr herzlich für die Anregung zu dieser Arbeit und für wertvolle Hinweise während der Durchführung des Experiments danken.

Literaturverzeichnis

- [1] Wilkinson, M. K., Wollan, E. O., and Koehler, W. C., *Ann. Rev. Nucl. Sci.*, **11**, 303 (1961).
- [2] Green, M., in *X-Ray Optics and X-Ray Microanalysis*, 185 (Academic Press, New York, 1963).
- [3] Buras, B., Leciejewicz, V. Nitc., Sosnowska, J., Sosnowski, J., and Shapiro, F., *Proc. U. N. Conf. Peaceful Uses At. Energy*, 3rd Geneva, 1964 (in press).
- [4] Buras, B., Mikke, K., Lebeh, B., and Leciejewicz, J., *Phys. Stat. Sol.*, **11**, 567 (1965).
- [5] Christ, J., and Springer, T., *Nukleonik*, **4**, 23 (1962).
- [6] Maier-Leibnitz, H., and Springer, T., *Reactor Sci. Technol.*, **17**, 217 (1963).
- [7] Jacrot, B., Konstantinovic, J., Parette, G., and Cribier, D., in *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*, Vol. II, p. 317, (IAEA, Vienna 1963).
- [8] Brockhouse, B. N., *Phys. Rev.* **98**, 1171 (1955).
- [9] Bundury, D. St. P., Elliot, J. A., Hall, H., Williams, J. M., *Physics Lett.* **6**, 34 (1963).
- [10] Cummins, H. Z., Knable, N., and Yeh, Y., *Observation of Diffusion Broadening of Rayleigh Scattered Light*, *Phys. Rev. Lett.* **12**, 150 (1964).
- [11] Cribier, D., and Jacrot, C. R., *Acad. Sci., Paris* **250**, 2871 (1960).
- [12] Egelstaff, P. A., and Pense, B. Sc. and R. S., *M. A. J. Sci. Instr.* **31**, 207 (1954).