

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

Erzeugung von kurzen Neutronenimpulsen mit Hilfe der Rückstreuung an bewegten Kristallen

Von Heinz Maier-Leibnitz, München

Vorgelegt am 9. Dezember 1966

Mit 2 Abbildungen

Langsame Neutronen sind ein hervorragendes Hilfsmittel zur Untersuchung der Atomverteilung und der Atombewegungen sowie magnetischer Felder in gebundener Materie. Leider setzt die erreichbare Neutronenintensität dem Experimentator in vielen Fällen unerwünschte Grenzen in bezug auf die Genauigkeit und den Aussagewert der Meßergebnisse. Deshalb werden heute Reaktoren mit sehr hohem Neutronenfluß gebaut. Außerdem aber werden auch die bisher gebräuchlichen Meßmethoden [1] einer Neubetrachtung unterzogen, denn in vielen Fällen ist der Gewinn an Genauigkeit, der durch eine bessere Methode möglich ist, groß gegenüber dem, der durch höhere Reaktorleistung erreicht wird. Neben Verbesserungen der bisherigen Methoden, z. B. durch Einführung von Vielfachdetektoren, die an vielen Stellen im Gang sind, werden neue Wege gesucht. Beispiele sind der Neutronenleiter [2] zur Wegführung der Neutronen aus dem unerwünschten Untergrund und zur Kollimation über lange Laufstrecken, die Verwendung von Laufzeitmethoden für Neutronenbeugung an Pulvern [3] und an Einkristallen [4], die Ausnützung der Schwerkraft [5] und ein Interferometer [6] für genaue Messungen der kohärenten Streulänge, die Rückstreuungsmethode mit guten Einkristallen [7], und schließlich die ersten Vorschläge zur Verwendung extrem langsamer Neutronen [8]. In dieser Arbeit soll dazu ein weiterer Vorschlag gemacht werden: Herstellung kurzer Neutronenimpulse mit Hilfe bewegter guter Einkristalle unter Verwendung des Prinzips der Laufzeitfokussierung. Die neue Methode sollte Vorteile bieten bei der Messung der Laufzeit unelastisch gestreuter Neutronen, wo bei den bisherigen Me-

thoden, insbesondere der Doppelchopper- [9] und der Drehkristallmethode [10] Impulsdauern unter 10–20 μsec nicht ohne Intensitätsnachteile erreichbar sind.

Um Laufzeitfokussierung (Bunching) am Ort z_2 zu erreichen, muß am Anfang z_1 einer Laufstrecke die mittlere Neutronengeschwindigkeit v eine Funktion der Zeit t_1 sein, während der die Neutronen den Ort z_1 passieren. Damit die Ankunftszeit t_2 bei z_2 von t_1 unabhängig ist, muß sein

$$t_2 = \text{const.} = t_1 + T = t_1 + \frac{z_2 - z_1}{v(t_1)} \quad (1)$$

$z_2 - z_1$ und v können außer von t_1 auch noch von anderen Variablen und Größen, etwa dem Ort auf dem Kristall oder den Dimensionen der Probe bei z_2 abhängen, und man kann diese Abhängigkeiten kompensieren oder in erwünschten Grenzen halten. Unvermeidlich ist aber eine Schwankung der Laufzeit

$$\Delta T = T \frac{\Delta v_0}{v_0} = \frac{L}{v_0^2} \Delta v_0, \quad (2)$$

die dadurch entsteht, daß ein an einem Ort des Kristalls unter einem genau definierten Winkel ϑ reflektiertes Neutron im Mittel um Δv_0 von der durch die Braggbedingung

$$2 \frac{m}{\hbar} v_0 \sin \vartheta = \frac{2\pi n}{d} = \frac{2m}{\hbar} v_{00} \quad (3)$$

definierten Geschwindigkeit v abweicht (m = Neutronenmasse, n = Ordnung der Reflexion, $\frac{d}{n} = \frac{1}{\tau}$ = Gitterebenenabstand). $\Delta v_0/v_0$ ist bei guten Kristallen von der Größenordnung 10^{-4} oder noch kleiner, wird aber durch Unvollkommenheit des Gitters, vor allem durch die Mosaikstruktur oft wesentlich größer.

Die Geschwindigkeit v_0 kann durch Drehen des Kristalls (Änderung von ϑ), durch Verzerren des Kristalls (Änderung von d) oder durch Bewegen des Kristalls (Dopplereffekt) verändert werden. Damit hat man genug Möglichkeiten, um nicht nur Bunching zu erreichen, sondern auch Nebenbedingungen wie Abbildung der Quelle auf die Probe, geringe Fehler durch die Probengröße und

Ähnliches zu erfüllen. Es zeigt sich, daß besonders aus dem letzteren Grund für Versuche hoher Auflösung die Rückstreuung (ϑ nahe bei 90°) vorteilhaft ist. Im folgenden sollen, an Stelle eines Versuchs der vollständigen Analyse aller Möglichkeiten, zwei praktisch durchführbare Methoden beschrieben werden. Die erste, die besonders für langsame Neutronen unter 1000 m/sec geeignet ist, verwendet den Dopplereffekt (Beschleunigung des Kristalls); bei der zweiten, die für sehr genaue Messungen an Neutronen bis 10000 m/sec verwendbar sein sollte, ist die Drehung des Kristalls bei großen Braggwinkeln das wesentliche Element.

Schwingender Kristall

Ein mit der Geschwindigkeit w bewegter Kristall verhält sich im Laborsystem so, wie wenn seine Gitterkonstante $d = \frac{n}{\tau}$ verändert wäre. Für den reziproken Gittervektor $\vec{\tau}'$ bei Bewegung gilt

$$\vec{\tau}' = \vec{\tau} \left\{ 1 + \frac{mw}{\pi \hbar \tau} \cos(\vec{\tau}, \vec{w}) \right\}. \quad (4)$$

Damit erhält man als Laufzeitfokussierungsbedingung für ein kleines Stück eines Kristalls, der in der Richtung des reflektierten Strahls mit der Frequenz ω und der Amplitude w_0/ω harmonisch schwingt,

$$t_2 = t_1 + \frac{\left(L_0 + \frac{w_0}{\omega} \cos \omega t_1 \right) \sin \vartheta}{\frac{\pi \hbar \tau}{m} + w_0 \sin \omega t_1 \sin \vartheta} \approx \text{const.} \quad (5)$$

also für $\omega t_1 \ll 1$:

$$\frac{\pi \hbar \tau}{m \sin \vartheta} = v_0.$$

Die Beschleunigung in Richtung der Gitterebennormale muß also sein:

$$\frac{d}{dt} \{ w \cos(\vec{\tau}, \vec{w}) \} = \frac{v_0^2}{L}. \quad (6)$$

Zum Beispiel ergibt sich für $L_0 = 10$ m, $v_0 = 600$ m/sec eine Beschleunigung gleich der 3500fachen Erdbeschleunigung. Für

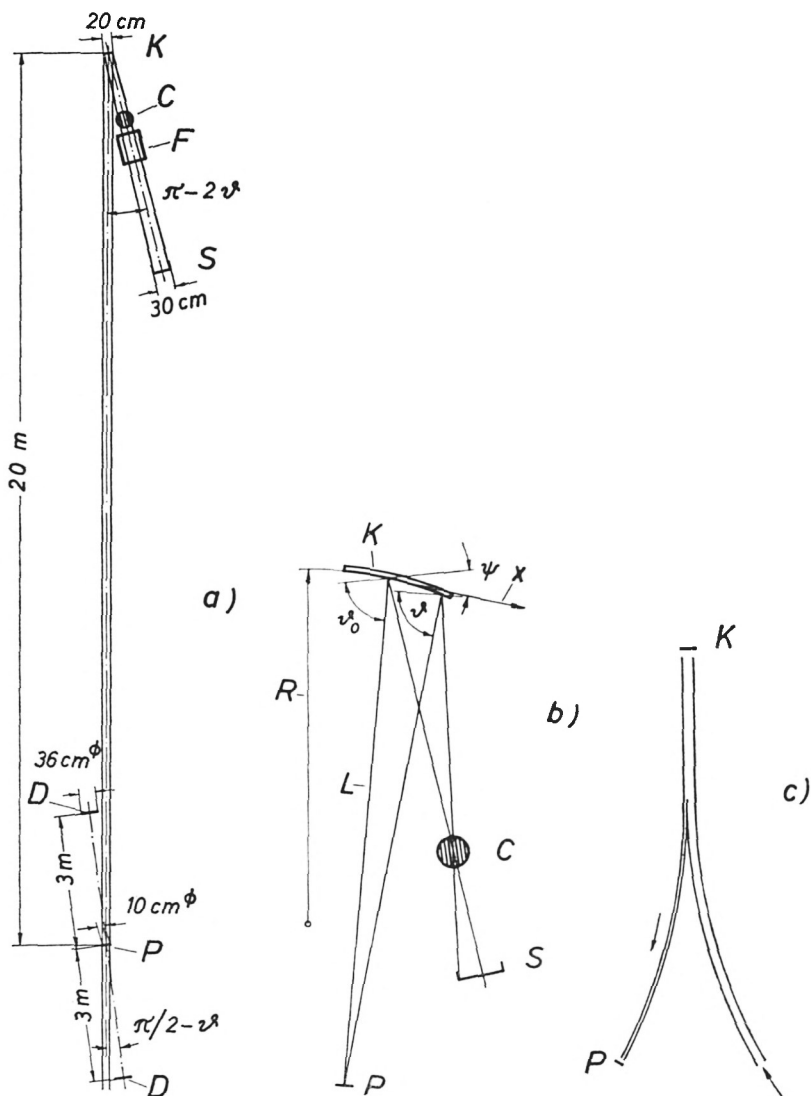


Abb. 1a. Laufzeitfokussierung für Neutronen von 600 m/sec durch einen parallel schwingenden, ebenen Kristall. K = Kristall ($\langle 111 \rangle$ -Ebene von Si). Schwingungsfrequenz 100/sec, Amplitude 4,6 cm. P = Probe, 0,1 cm dick; D = Detektoren; C = Hilfschopper, Öffnungszeit 480 μ sec; S = Strahlrohr-ende am Reaktor; θ = Braggwinkel.

Abb. 1b. Parallel schwingender, gekrümmter und schief zur Kristallebene geschnittener Kristall. Bezeichnungen wie Abb. 1a; ψ = Winkel zwischen Gitterebene und Kristalloberfläche.

einen ausgedehnten Kristall, der parallel zur Gitterebene geschnitten und für eine ausgedehnte Auffangebene, die ebenfalls parallel dazu ist, wird t_2 weitgehend unabhängig vom Ort am Kristall und von ϑ , Gleichung (6) gilt also für ein ausgedehntes Strahlenbündel, wie es für praktische Anwendungen sein muß. Abb. 1a zeigt eine mögliche Anordnung für die Messung der unelastischen Streuung. Als Beispiel ist angenommen, daß die Neutronenenergie sich von 2 meV ($v = 600$ m/sec) auf 25 meV (2200 m/sec) ändert. Die Dimensionen sind so gewählt, daß kein Beitrag zum Fehler der Energiemessung größer als 10^{-3} der Endenergie ist. Die Impulsdauer am Ort der Probe ist $1,7 \cdot 10^{-6}$ sec; dazu muß die Unsicherheit $\Delta\tau/\tau$ der Gitterkonstante einschließlich eines möglichen Einflusses der Mosaikverteilung etwa gleich 10^{-4} sein. Für einen idealen Kristall ist wegen der primären Extinktion für die (111)-Ebene von Silizium $\Delta\tau/\tau = 2 \cdot 10^{-5}$ nach der Formel [11]

$$\frac{\Delta\tau}{\tau} = \frac{4|F|}{\pi V_c \tau^2} \quad (7)$$

F = Strukturfaktor, V_c = Volumen der Elementarzelle.

Die Anordnung Abb. 1a hat den Nachteil, daß die Ausdehnung der Quelle in einer Richtung groß sein muß, was vor allem wegen des Untergrunds schädlich ist; außerdem ist die Kristallgröße durch den Laufweg mit dem Raumwinkel gekoppelt, und man hat die Wahl unerwünscht kleiner Raumwinkel oder unbequem großer Kristalle. Den ersten Nachteil kann man vermeiden durch Verwendung gekrümmter Kristalle (Krümmungsradius R), die unter einem Winkel ψ zur Kristallebene geschnitten sind, Abb. 1b. Die Beziehung (5) für die Phasenfokussierung erweitert sich durch Berücksichtigung des Ortes x auf dem Kristall für $\omega t_1 \ll 1$ zu

$$t_2 = t_1 + \frac{[L_0 + x \cos(\psi + \vartheta_0)] \sin \left[\vartheta_0 + \frac{x}{R} - \frac{x}{L_0} \sin(\psi + \vartheta_0) \right]}{\frac{\pi \hbar \tau}{m} + w_0 \omega t_1 \sin \vartheta_0} \approx \text{const.}, \quad (8)$$

Zu Abbildung Seite 176:

Abb. 1c. Verwendung eines Neutronenleiters beim schwingenden Kristall mit strenger Rückstreuung. Der Neutronenleiter zum Kristall könnte für $v = 600$ m/sec z. B. 2 cm Durchmesser haben und 700 m Krümmungsradius.

woraus die Bedingung folgt

$$\frac{L_0}{R} = \frac{\sin \varphi}{\cos \theta_0} \quad (9)$$

Eine Verkleinerung der Kristalle und eine Verlängerung der Laufstrecke, also eine Verringerung der notwendigen Beschleunigung, kann mit Hilfe von Neutronenleitern erreicht werden, die unabhängig von ihrer Länge und ihrer Öffnung ein Neutronenbündel der Winkeldivergenz (bei Nickeloberflächen) $2 \cdot 1,07 \cdot 10^{-2} \text{ A}^{-1}/k$, also $1,36^\circ$ bei $v = 600 \text{ m/sec}$, $k = \frac{2\pi}{\lambda} = 1 \text{ A}^{-1}$, durchlassen. Abb. 1c zeigt eine von verschiedenen möglichen Anordnungen. Dabei wird strenge Rückstreuung in einem Neutronenleiter verwendet; der Neutronenstrahl tritt durch einen Bruchteil α des Leiterquerschnitts ein und wird durch den restlichen Querschnittsteil wieder herausgebracht. Die mittlere Leuchtdichte im Ausgangsstrahl wird, wenn der Weg vom Eingang zum Kristall genügend lang ist, nur um den Faktor α vermindert [12]. Der Kristall braucht nicht größer zu sein als der Leiterquerschnitt, und er braucht nicht gebogen zu werden.

Es sei noch einmal rekapituliert, wie das Bunching-Prinzip angewandt wird: Aus dem Wunsch nach einer gewissen experimentellen Auflösung und einer realistischen Annahme über die möglichen Laufstrecken und Detektorflächen für die gestreuten Neutronen ergibt sich eine erwünschte Impulsdauer ΔT für den Primärstrahl. Diese ist nach (2) und (3) mindestens

$$\Delta T = \frac{L_0}{v_0} \frac{\Delta \tau}{\tau}$$

und kann durch Wahl von L_0 (oberhalb einer durch die erreichbare Beschleunigung nach Gl. (6) gegebenen Grenze) und durch Auswahl des Kristalls beeinflußt werden, wobei Werte von $\Delta \tau/\tau = 0,5 \cdot 10^{-4}$ aufwärts realistisch sind. Der Kristall ist dabei für die hier betrachteten Wellenlängen im Maximum immer ein vollkommener Reflektor. Durch die beschleunigte Bewegung des Kristalls und durch eine grobe zeitliche Begrenzung des Primärstrahls wird erreicht, daß der Neutronenimpuls Geschwindigkeiten in einem Bereich Δv enthält, der zu der für das Experiment

gewünschten Auflösung paßt. Schließlich soll noch die Puls-wiederholungszeit $2\pi/\omega$ gerade so lang sein, daß Überlappung der gestreuten Neutronen aus aufeinanderfolgenden Pulsen vermieden wird (in den obigen Beispielen für alle Neutronen mit $v > \frac{1}{2}v_0$).

Umlaufender Kristall

Im vorhergehenden Beispiel war die Bewegung des Kristalls auf Parallelverschiebungen beschränkt. Dies ist nicht notwendig, und wir zeigen jetzt, daß man mit einem umlaufenden Kristall bei Braggwinkeln um 70° kurze Impulse auch für schnellere Neutronen bei kürzeren Laufwegen erzeugen kann als dies nach der ersten Methode möglich ist. Als Beispiel wollen wir die Streuung von Neutronen mit einer Energie von 400 meV ($v = 9000$ m/sec) mit Meßfehlern < 1 meV betrachten. Sie ist besonders wichtig für den Fall kleiner Impulsübertragungen (Vorwärtsstreuung), vor allem zur Untersuchung von Schwingungszuständen gebundener Moleküle, wo bisher die mangelnde Auflösung nützliche Resultate weitgehend verhindert.

Wir betrachten (Abb. 2a) einen mit der Frequenz ω auf einem Radius ϱ umlaufenden Kristall, der tangential liegt und schief zur Kristallebene geschnitten, außerdem mit dem Krümmungsradius R gebogen ist. Der reflektierte Nullstrahl ($x = 0$, $\vartheta = \vartheta_0$) soll mit dem Radius zur Kristallmitte den Winkel ψ bilden. Dann ist die Bunching-Bedingung nach (5)

$$t_2 = t_1 + \frac{L_0 \sin \vartheta}{\frac{\pi \hbar \tau}{m} + w \cos(\vec{r}, \vec{w})} = \quad (10)$$

$$= t_1 + \frac{(L_0 - x \sin \psi + \varrho \omega t_1 \sin \psi) \sin \left[\vartheta_0 - \omega t_1 \left(1 - \frac{\varrho}{L_0} \cos \psi \right) + \frac{x}{R} - \frac{x}{L_0} \cos \psi \right]}{\frac{\pi \hbar \tau}{m} - \omega \varrho \cos \left(\vartheta_0 - \psi - \frac{x}{\varrho} + \frac{x}{R} \right)}$$

$$\approx \text{const.},$$

woraus die beiden Bedingungen folgen

$$\frac{L_0}{R} = \cos \psi (1 - \text{tg}^2 \vartheta_0 + 2 \text{tg} \psi \text{tg} \vartheta_0) = \frac{\cos(2\vartheta_0 - \psi)}{\cos^2 \vartheta_0} \quad (11)$$

$$\omega = \frac{\pi \hbar \tau}{m L_0 \cos \vartheta_0} = \frac{v_{00}}{L \cos \vartheta_0} = \frac{v_0}{L} \text{tg} \vartheta_0. \quad (12)$$

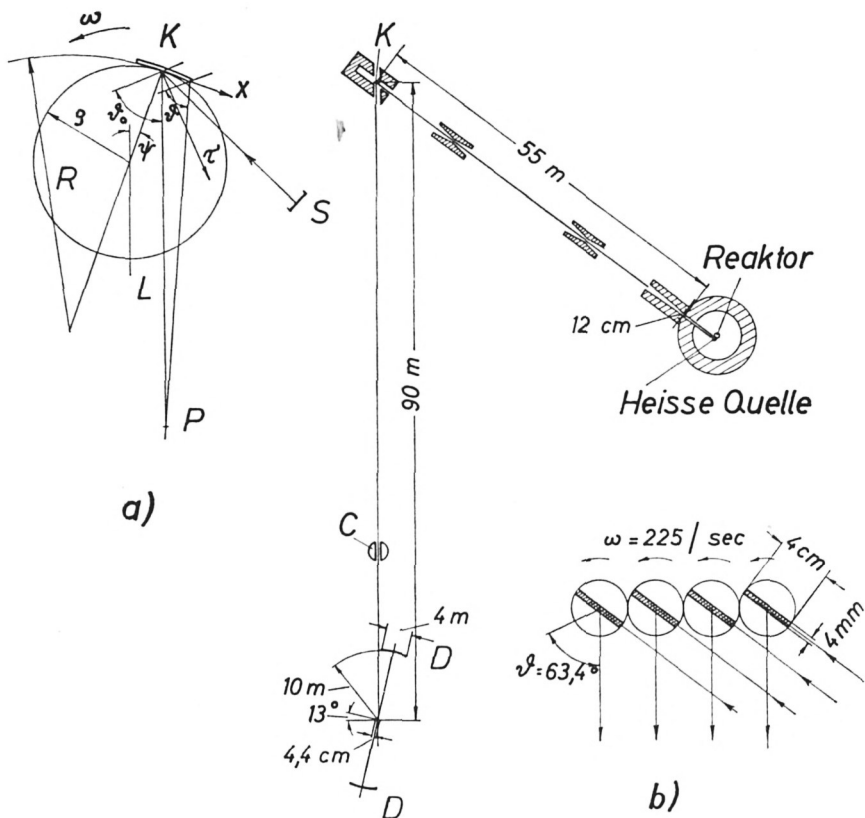


Abb. 2a. Phasenfokussierung beim umlaufenden, gekrümmten, schief zur Kristallebene geschnittenen Kristall. Der Kristall liegt tangential. Es zeigt sich, daß eine räumliche Fokussierung nicht gleichzeitig mit der Phasenfokussierung erreicht werden kann.

Abb. 2b. Anordnung zur unelastischen Streuung von Neutronen der Geschwindigkeit $v = 9000\text{ m/sec}$ mit rotierenden Kristallen. Bezeichnungen wie in Abb. 1a; Kristalle ungekrümmt; rechts Ausschnitt aus dem Kristallsystem; es könnte eine große Zahl von Kristallen verwendet werden; sie müßten auf $2 \cdot 10^{-4}$ Radian genau abgestimmt werden. Der Hilfschopper C dient zur Unterdrückung unerwünschter Ordnungen; seine Öffnungszeit ist um 10^{-3} sec. Die Dimensionen sind so gewählt, daß die einzelnen Fehlerbeiträge zu $\Delta v/v_0$ nicht größer als 10^{-3} sind.

Der Umlaufradius ϱ geht nicht wesentlich ein, solange $\varrho \ll R$. Er kann also auch gleich Null sein.

Aus (12) folgt, daß eine Fokussierung von der Quelle auf die Probe nicht eintritt ((12) hat das falsche Vorzeichen). Dies bleibt auch so bei jeder Variation der Geometrie in Abb. 2a. Es bleibt also nur die Möglichkeit, die defokussierende Wirkung in Grenzen zu halten. Dafür ist es günstig, etwa $R = \infty$ zu machen. Es zeigt sich, daß dies immer der Fall ist, wenn der Primärstrahl entlang der Kristallrichtung einfällt:

$$R = \infty, \text{ wenn } 2\vartheta_0 - \psi = \frac{\pi}{2}. \quad (13)$$

Wenn außerdem die Kristallbreite beschränkt wird, kann der durch die defokussierende Wirkung entstehende Fehler klein gehalten werden. Man kann, um genügend große Raumwinkel zu erhalten, eine ganze Anzahl von Kristallen mit angepaßter Phase rotieren lassen.

Abb. 2 b zeigt eine mögliche Anordnung. Es wird Rückstreuung mit einem der Neutronengeschwindigkeit entsprechenden hohen τ -Wert verwendet. Dies ist durchaus möglich, denn die aus Gl. (7) folgende Eindringtiefe bei der Braggstreuung am idealen Kristall ist immer noch klein gegenüber den möglichen Kristalldicken. Das bedeutet, daß der Kristall ein guter Reflektor selbst dann noch sein kann, wenn $\Delta\tau/\tau$ um einen Faktor 10- bis 100mal größer als der theoretische Wert ist.

Die wesentlichen Vorteile der Bunching-Methode im vorliegenden Fall liegen darin, daß erstens durch die kurzen Impulszeiten eine tragbar kurze Laufstrecke für die gestreuten Neutronen bei sehr guter Auflösung möglich ist, daß zweitens durch die Verwendung guter Kristalle gute Reflektivität erreicht wird, wobei die gewünschte Energiebreite durch die Ausdehnung der Quelle (über den dadurch ausgewählten Winkelbereich) hergestellt wird, und schließlich drittens, daß durch die Rückstreuung die bei kleinen Braggwinkeln auftretende, sehr hinderliche Winkelabhängigkeit der Neutronenenergie klein gehalten wird. Dadurch wird die Methode anderen, die gleiche Auflösung anstreben, überlegen.

Die vorliegende Notiz ist eine Frucht zahlreicher Diskussionen über neue Methoden der unelastischen Neutronenstreuung, wobei ich vor allem den Herren Kley und Meister (Ispra), Gläser (Karls-

ruhe), Springer (Jülich), B. Alefeld und Steyerl (München) danken möchte; den beiden letzteren Herren danke ich auch für tätige Hilfe.

Zitate

- [1] Siehe Thermal Neutron Scattering, P. A. Egelstaff, ed., Academic Press, London 1965.
- [2] J. Christ u. T. Springer, Nukleonik 4 (1962) 23.
- [3] B. Buras u. J. Leciejewicz, Nukleonika 8 (1963) 75.
- [4] B. Buras, K. Mikke, B. Lebech u. J. Leciejewicz, Phys. Stat. Sol. 11 (1965) 567.
- [5] L. Koester, Zs. Physik 180 (1965) 328.
- [6] F. J. Landkammer, Zs. Physik 189 (1966) 113.
- [7] B. Alefeld, Sitzungsber. Bayer. Akad. Wiss. 1966 (im Druck).
- [8] Wladimirsky, Journ. Exp. Theor. Physics (USSR) 39 (1960) 1062.
- [9] P. A. Egelstaff, Proc. First Internat. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 4 119; United Nations, New York, 1956.
- [10] B. N. Brockhouse, Bull. Amer. Phys. Soc. Ser. II, 3 (1958) 233.
- [11] Siehe z. B. G. E. Bacon u. R. D. Lowde, Acta Cryst. 1 (1948) 303.
- [12] Dieser Vorschlag stammt von B. Alefeld.