

- HART, M. & LANG, A. R. (1965). *Acta Cryst.* **19**, 73.
 HATTORI, H., KURIYAMA, H., KATAGAWA, Y. & KATO, N. (1965). *J. Phys. Soc. Japan*, **20**, 988.
 HATTORI, H., KURIYAMA, H. & KATO, N. (1965). *J. Phys. Soc. Japan*, **20**, 1047.
 KATO, N. (1960). *Acta Cryst.* **13**, 349.
 KATO, N. (1961). *Acta Cryst.* **14**, 627.
 KATO, N. (1964a). *J. Phys. Soc. Japan*, **19**, 67.
 KATO, N. (1964b). *J. Phys. Soc. Japan*, **19**, 971.
 KATO, N. (1967). *J. Appl. Phys.* In the press.
 KATO, N. & ANDO, Y. (1966). *J. Phys. Soc. Japan*, **21**, 964.
 KATO, N. & LANG, A. R. (1959). *Acta Cryst.* **12**, 787.
 KATO, N., USAMI, K. & KATAGAWA, T. (1966). Read at Denver Conference. *Advanc. X-ray Analysis*, **10**, 46.
 KATO, N. & TANEMURA, S. (1967). *Phys. Rev. Letters*, **19**, 22.
 YOUNG, R. A. & POST, B. (1962). *Acta Cryst.* **15**, 337.
 ZACHARIASEN, W. H. (1945). *Theory of X-ray Diffraction in Crystals*, Section III, p. 123. New York: John Wiley.
 ZACHARIASEN, W. H. (1963). *Acta Cryst.* **16**, 1139.
 ZACHARIASEN, W. H. & PLETINGER, H. A. (1965). *Acta Cryst.* **18**, 710.

Acta Cryst. (1968). A **24**, 237

Anomale inkohärente Streuung thermischer Neutronen bei Bildung stehender Neutronenwellen in nahezu idealen Kristallen von Kaliumdihydrogenphosphat (KDP)

VON D. SIPPPEL

*Deutsche Akademie der Wissenschaften,
 Zentralinstitut für Kernforschung Rossendorf, Dresden, Deutschland (DDR)*

UND F. EICHHORN

II. Institut für Experimentalphysik der Technischen Universität, Dresden, Deutschland (DDR)

(Eingegangen am 9. Juni 1967)

In nearly perfect crystals of KDP standing waves of thermal neutrons are produced, causing an anomalous weak or strong incoherent scattering by hydrogen nuclei in the 004 reflexion. At the double crystal diffractometer in Rossendorf for the observation of anomalous incoherent scattering rocking curves in the Laue-case were measured in the reflexion- and transmission directions. The observed effect is interpreted and computed by the dynamic interference theory. The results of the experiments show that the incoherent scattering gives a contribution to the imaginary part of the scattering amplitude; its value is a function of the chemical bonding of the H atoms.

Vorbemerkung

Bei Neutronenbeugung an nahezu idealen Einkristallen ohne Mosaikstruktur und mit nur geringer Versetzungsdichte kommt es durch Bildung stehender Neutronenwellen zu speziellen Interferenzerscheinungen wie z.B. der anomalen Absorption und dem Pendellösungseffekt, die auf der Grundlage der von Ewald (1917) vorgelegten dynamischen Interferenztheorie erklärt und berechnet werden können. Die anomale Absorption, die von Borrmann (1941) mit Röntgenstrahlen entdeckt wurde, und der Pendellösungseffekt (Ewald, 1917; Kato & Lang, 1959) wurden von Sippel, Kleinstück & Schulze (1962, 1964, 1965) bereits in früheren Arbeiten auch mit Neutronen untersucht. Während diese Interferenzerscheinungen leichter mit Röntgenstrahlen zu beobachten sind, ist der in vorliegender Arbeit gefundene Effekt vor allem mit Neutronen gut zu finden, da sie an Atomkernen mit Spin für parallele und antiparallele Streuung erheblich unterschiedliche Streuamplituden und dadurch eine starke inkohärente Streuung aufweisen können. Bei Wasserstoffkernen

unterscheiden sich die beiden Streuamplituden für parallele und antiparallele Streuung auch in ihrem Vorzeichen. Deshalb ist die Streuung der H-Kerne im Kristall bis zu 97% inkohärent.

Die anomale inkohärente Streuung lässt sich analog zum Effekt der anomalen Absorption interpretieren. Die stehenden Neutronenwellenfelder werden dabei nicht durch die Absorption der Atome, sondern durch die inkohärente Streuung im Kristall anomal geschwächt. Die anomale inkohärente Streuung liefert einen erneuten Nachweis der stehenden Neutronenwellenfelder in Kristallen unabhängig von der Absorption und zeigt den Einfluss der stehenden Neutronenwellen auch auf die inkohärente Streuung.

Experimentelles

Bei Versuchen mit einem 14,7 mm dicken KDP-Kristall als zweiten Kristall auf dem in Fig. 1 schematisch gezeigten Neutronen-Doppelkristall-Diffraktometer wurden in symmetrischer Laue-Stellung bei 004-Reflexion die Rockingkurven in Fig. 2 erhalten. In der

Versuchsordnung wird der zweite Kristall sehr langsam in dem vom ersten Kristall monochromatisch reflektierten Neutronenstrahl gedreht und die Neutronenintensität in Abhängigkeit vom Drehwinkel β des zweiten Kristalls mit BF_3 -Zählrohren in Reflexions- und Transmissions-Richtung gemessen.

Ergebnisse und Diskussion

Bei der 004-Reflexion von KH_2PO_4 -Kristallen liegen alle H-Atome auf den reflektierenden Netzebenen. Befinden sich die Maxima des stehenden Wellenfeldes mit der Periode des Netzebenenabstandes zwischen oder auf den Netzebenen, so wird das Wellenfeld anomal schwach oder stark durch inkohärente Streuung beim Durchgang durch den Kristall geschwächt.

Die positiven und negativen Abweichungen vom Mittelwert der Neutronenintensität in Transmissionsrichtung in Fig. 2 zeigen das Vorhandensein stehender Wellenfelder und die Lage ihrer Maxima zwischen oder auf den Netzebenen.

Bei den Reflexionen 440 von KDP und 440, 004, 044 von ADP ($\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$) wurden jedoch immer nur symmetrische Transmissionskurven erhalten, da sich in diesen Fällen die H-Atome nicht nur auf den Netzebenen befinden. Die benutzten Kristalle waren fast ohne Versetzungen und enthielten meist nur Segregationen, wie durch Röntgenuntersuchungen nach der Lang-Methode festgestellt wurde. Die gemessenen Halbwertsbreiten H_{exp} der Reflexions-Rockingkurven sind, wie aus Tabelle 1 ersichtlich, durch die geringen Gitterstörungen alle etwas grösser als die nach der Theorie berechneten H_{th} . Da die Unterschiede zwischen H_{exp} und H_{th} gering sind, können die Kristalle für die Versuche als nahezu ideal betrachtet werden.

Tabelle 1. Halbwertsbreiten der berechneten und gemessenen Rockingkurven

λ (cm · 10 ⁻⁸)	Reflex	q : Versetzungsdichte		
		H_{exp} (sec)	H_{th} (sec)	q (cm ⁻²)
KDP	0.71 440	1.1 ± 0.2	0.5	0
	0.97 004	1.5 ± 0.2	0.3	0
	1.29 004	0.9 ± 0.2	0.4	0
ADP	0.745 440	1.5 ± 0.2		10
	0.99 044	1.3 ± 0.2	0.9	10
	0.97 004	1.5 ± 0.2	0.3	10

Zu den Berechnungen wurde eine Interferenztheorie für Neutronen und ideale Kristalle (Sippel, 1965) benutzt, die sich auf die Ergebnisse der dynamischen Theorie für Röntgenstrahlen und Elektronen von Ewald (1917), von Laue (1948, 1960) und Zachariasen (1945) stützt. Bei Bestimmung der H_{th} fanden Strukturamplituden aus Arbeiten von Bacon & Pease (1953) Verwendung. Für die 004-Reflexion wurde die Verminderung von H_{th} durch anomale inkohärente Streuung nicht berücksichtigt.

Der Absorptionskoeffizient für KDP ist $\mu_a = 0,03 \text{ cm}^{-1}$. Als Transmissionskoeffizient (Absorption und

Streuung) wurde an KDP ohne Interferenz $\mu_{\text{TR}} = 1 \text{ cm}^{-1}$ gemessen. Aus 15 gemessenen Transmission Rockingkurven wurde als Mittelwert ein $\mu_{\text{TR}} = 0,8 \text{ cm}^{-1}$ ermittelt. Einige gemessene Kurven mit grösseren μ ergeben jedoch fast Übereinstimmung mit den Transmissionsmessungen.

Durch Vergleich der gemessenen Rockingkurven mit berechneten erhält man Werte für $2\kappa A$. Hier ist

$$2\kappa A = 2\lambda |F_{hi}| t / V \cos \theta = \mu_{\text{TR}} t e^{-W} / \cos \theta. \quad (1)$$

Da sich alle inkohärent streuenden Atome auf den äquidistanten Netzebenen befinden, ist

$$2\lambda F_{hi} = \sum_v \sigma_{\text{div}} \exp\{2\pi i (b_n r_v)\} e^{-W} = \mu_{\text{TR}} V e^{-W}. \quad (2)$$

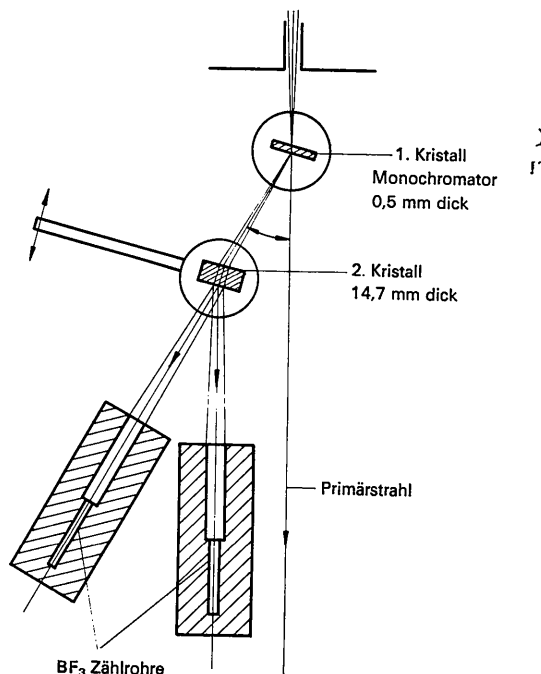


Fig. 1. Aufbau des Neutronen-Doppelkristallversuches zur Messung der Rockingkurven.

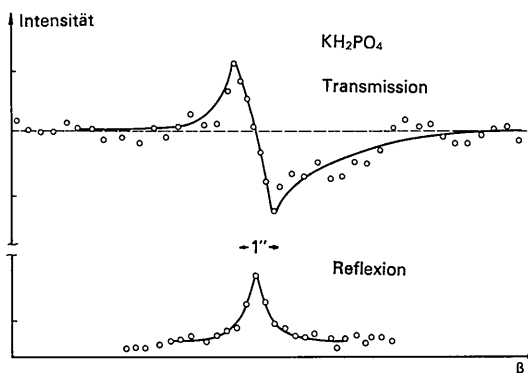


Fig. 2. Gemessene Doppelkristallockingkurven am Kristallpaar KH_2PO_4 von 0,5 und 14,7 mm Dicke. β : Drehwinkel des 2. Kristalls.

Hier bedeuten:

- $2\kappa A$ Parameter der Rockingkurve bei Zachariasen (1945)
- λ Neutronenwellenlänge
- V Volumen der Elementarzelle
- F_{hi} Imaginärteil der Strukturamplitude
- σ_{siv} Inkohärenter Streuquerschnitt des ν -ten H-Atomkerns der Elementarzelle
- θ Bragg-Reflexionswinkel
- t Dicke des Kristalls
- b_h Reziproker Gittervektor
- r_ν Ortsvektor des ν -ten Atoms der Elementarzelle
- d Netzebenenabstand.

Für die Bestimmung von W nach $W = (1/2d)^2 B$ wurden die B -Werte nach Bacon & Pease (1953) benutzt. Da der Ausdehnungskoeffizient von KDP sehr gross ist und die stehenden Neutronenwellenfelder wegen der geringen Breite des Winkelbereiches der Interferenz von nur 0.3 bis 0.5 sec sehr empfindlich gegen geringste Gitterdeformationen sind, können die bei den Versuchen beobachteten Schwankungen der Parameter der Doppelkristall-Rockingkurven und der Unterschied zu dem aus Transmissionsmessungen gewonnenen Wert für μ_{Tr} durch sehr geringe Temperaturdifferenzen im Kristall verursacht sein.

Bestimmt man aus den Transmissionsmessungen oder nach (1) und (2) den inkohärenten Streuquerschnitt für Wasserstoff σ_{st} , so erhält man nur etwa 60% oder 48% des in Tabellen von Bacon (1962) für starr gebundene H-Atome angegebenen Wertes. Dieser Unterschied liegt ausserhalb der Fehler des Versuches. Der bei Beugungsexperimenten wirksame inkohärente Streuquerschnitt der Wasserstoffkerne hängt von der chemischen Bindung der Wasserstoffatome im Kristall und demnach von der Möglichkeit ab, thermische Schwingungen auszuführen. Das ist aus zahlreichen Untersuchungen der inelastischen Neutronenstreuung bekannt und macht sich auch bei der Streuung des stehenden Wellenfeldes bemerkbar. Aus den Versuchs-

ergebnissen folgt, dass der inkohärente Streuquerschnitt in den Imaginärteil der Streuamplitude eingeht. Jedoch bedarf die Theorie hier für Neutronen spezieller Ergänzungen, um den Zusammenhang zwischen inkohärentem Streuquerschnitt und Imaginärteil quantitativ zu erfassen. An der Erweiterung der dynamischen Interferenztheorie für Besonderheiten der Neutronenstreuung arbeiten Kagan & Avanasjev (1965). Das Ziel der Versuche war zunächst hauptsächlich der Nachweis des Effektes.

Wir danken Herrn Prof. Dr G.E.R.Schulze und Herrn Dr K.Kleinstück für Unterstützung und Diskussion zu dieser Arbeit und Herrn Prof. Dr Brümmer für die Anfertigung einiger Lang-Aufnahmen.

Literatur

- BACON, G. E. (1962). *Neutron Diffraction*. Oxford Univ. Press.
- BACON, G. E. & PEASE, R. S. (1953). *Proc. Roy. Soc. A* **220**, 397.
- BORRMANN, G. (1941). *Phys. Z.* **42**, 157.
- EWALD, P. P. (1917). *Ann. Phys. Lpz.* **54**, 519.
- KAGAN, J. & AVANASJEV, A. M. (1965). *Eksp. Theor. Vis.* **49**, 1504.
- KATO, N. & LANG, A. R. (1959). *Acta Cryst.* **12**, 787.
- LAUE, M. VON (1948). *Materiewellen und ihre Interferenzen*. Leipzig: Akad. Verl.-Ges.
- LAUE, M. VON (1960). *Röntgenstrahl-Interferenzen*. Frankfurt: Akad. Verl.-Ges.
- SIPPEL, D. (1965). *Stehende Neutronenwellen durch Interferenz in nahezu idealen Kristallen*. ZfK-RN 32.
- SIPPEL, D., KLEINSTÜCK, K. & SCHULZE, G. E. R. (1962). *Phys. stat. sol.* **2**, K 104.
- SIPPEL, D., KLEINSTÜCK, K. & SCHULZE (1964). *Phys. Letters*, **8**, 241.
- SIPPEL, D., KLEINSTÜCK, K. & SCHULZE (1965). *Phys. Letters*, **14**, 174.
- ZACHARIASEN, W. H. (1945). *Theory of X-Ray Diffraction in Crystals*. New York: John Wiley.