

Die Messung sehr kleiner Unordnungsstreuquerschnitte mit subthermischen Neutronen

Von R. SCHERM

Kernforschungsanlage Jülich (Arbeitsgruppe Institut für Neutronenphysik)

und W. SCHMATZ

Labor für Technische Physik der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforschg. **19 a**, 354–357 [1964]; eingegangen am 26. November 1963)

Eine Methode zur genauen, direkten Messung schwacher Unordnungsstreuung von Neutronen wird beschrieben und hinsichtlich ihrer Verwendungsmöglichkeit diskutiert. Die inkohärenten Streuquerschnitte von Aluminium, Wismut und Beryllium wurden zu 10 ± 1 , 12 ± 1 und 4 ± 1 , jeweils $\cdot 10^{-3}$ barn bestimmt. Diese Werte stellen zumindest eine obere Grenze für die spin-inkohärenten Streuquerschnitte dieser Metalle dar.

1. Methode und Anwendungsmöglichkeiten

Die Messung von Neutronenstreuquerschnitten wird normalerweise in einem Transmissionsexperiment durchgeführt. Dabei wird aus der Proben-Transmission $T = \exp(-n \sigma_T L)$ der totale makroskopische Wirkungsquerschnitt $n \sigma_T$ gewonnen, wobei L die Länge der Probe und n die Atomdichte ist. σ_T ist die Summe der Wirkungsquerschnitte für Absorption, kohärent und inkohärent elastische und für inelastische Streuung:

$$\sigma_T = \sigma_a + \sigma_{\text{coh, el}} + \sigma_{\text{un}} + \sigma_{\text{inel}}. \quad (1)$$

σ_{un} bedeutet die inkohärente elastische Streuung infolge von Spin-, Isotopen- und Gitterunordnung. Sie ist praktisch isotrop und wellenlängenunabhängig mit Ausnahme der Gitterunordnungsstreuung, sofern die Gitterfehler nicht statistisch verteilt sind. Wählt man die Neutronenwellenlänge größer als die Grenzwellenlänge λ_B , unterhalb derer nach der Beziehung $\lambda = 2d \sin \vartheta$ noch BRAGG-Reflexe möglich sind, dann ist $\sigma_{\text{coh}} = 0$. Bei sehr niedriger Proben-temperatur und Neutronenenergie verschwindet auch die inelastische Streuung. Die gesamte Streuung wird dann nur noch durch die Unordnungsstreuung repräsentiert. Da der Absorptionsquerschnitt proportional zu $1/v$ ist, erhält man aus einem Transmissionsexperiment von langsamen Neutronen an einer Probe bei niedriger Temperatur den wellenlängenunabhängigen Unordnungsstreuquerschnitt aus einer Extrapolation von σ_T nach sehr kleinen Wellenlängen^{1, 2}.

Ist nun σ_a sehr groß oder σ_{un} sehr klein, so muß dieses Verfahren, den totalen Wirkungsquerschnitt zu messen, versagen. Auch bei sehr kleiner Absorption lassen sich kleine Streuquerschnitte auf diese Weise nicht mehr bestimmen; das Transmissionsexperiment ergibt nämlich $1 - n \sigma_T$, wobei man $n \sigma_T$ oft nicht hinreichend groß machen kann.

Deshalb wurde, wie schon von CASSELS³ vorgeschlagen, in dieser Arbeit die *gestreute* Intensität direkt gemessen. Die aus der Probe austretenden gestreuten Neutronen werden in einem möglichst großen Raumwinkel durch mehrere geeichte Zählrohre registriert. Wenn der Strahl die Strecke x in der Probe durchsetzt hat, besteht für ein gestreutes Neutron eine im wesentlichen von der Zählrohrgeometrie und der Neutronenenergie E abhängige Wahrscheinlichkeit $f(x, E, \vartheta)$ nachgewiesen zu werden (ϑ = Streuwinkel). Berücksichtigt man, daß die gestreuten Neutronen in der Probe noch absorbiert werden können, dann ist f auch eine Funktion des totalen Wirkungsquerschnittes σ_T . Ist σ_s der zu messende Streuquerschnitt und N_0 der primäre Neutronenstrom, dann gilt für die gemessene Streuintensität

$$N_s = N_0 \int d\Omega \int_0^L e^{-n \sigma_T x} \cdot f(x, E, \vartheta, \sigma_T) \cdot n \sigma_s dx. \quad (2)$$

Hierbei kann das Integral in guter Näherung aufgespalten werden in einen Term, der bei der Nachweiswahrscheinlichkeit $f=1$ gelten würde und die

¹ G. E. BACON, Neutron Diffraction, Clarendon Press, Oxford 1962.

² W. GISSLER, Z. Kristallogr. **118**, 149 [1963].

³ J. M. CASSELS, Progr. Nucl. Phys. **1**, 185 [1950]. I.



über die ganze Probe gemittelte Nachweiswahrscheinlichkeit \bar{f} .

$$N_s = N_0 \bar{f}(\sigma_T) (1 - e^{-n \sigma_T L}) \sigma_s / \sigma_T. \quad (3)$$

Die in den Zählrohren registrierte Intensität ist also nach Abzug des Untergrunds in guter Näherung proportional dem Unordnungsstreuquerschnitt.

Da wegen der Kompliziertheit der Geometrie und der unbekannten Nachweisempfindlichkeit die Zählrate nicht direkt in den Unordnungsstreuquerschnitt umgerechnet werden kann, ist eine *Eichung* der Zählrohre, d. h. die Bestimmung von \bar{f} notwendig. Dazu dient eine Standardprobe mit bekanntem inkohärentem Streuquerschnitt.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit $\bar{f}(\sigma_T)$ muß für die im Standard und in der zu messenden Probe gestreuten Neutronen möglichst übereinstimmen. Das verlangt, daß a) die Energieverteilung, b) die Winkelverteilung, c) die Absorptionswahrscheinlichkeit und d) die Wahrscheinlichkeit für nochmalige Streuung für die gestreuten Neutronen bei Messung und Eichung gleich bleiben. Mit anderen Worten: Die Standardprobe soll dieselbe Geometrie, dieselbe Absorption und einen bekannten inkohärenten Streuquerschnitt von etwa derselben Größe wie das gesuchte $n \sigma_{un}$ aufweisen.

Streuquerschnitte von weniger als 1 mbarn können, wie sich zeigte, mit dieser Methode noch leicht nachgewiesen werden. Bei tiefer Temperatur lassen sich mit langsamen Neutronen spin- und isotoneninkohärente Streuquerschnitte messen. Auch zur Untersuchung isotrop streuender Gitterfehler oder von Verunreinigungen (z. B. Wasserstoffkonzentrationen von 10^{-5}) ist die Methode geeignet; so sollen am FRM durch Neutronenbestrahlung an Aluminium und Beryllium erzeugte Gitterfehler mit dieser Methode untersucht werden. Bei höheren Temperaturen müßten andererseits die unelastische Streuung oder ihre Änderung, z. B. an Umwandlungspunkten, sehr empfindlich zu untersuchen sein.

Die Methode wurde hier angewendet auf die Messung der inkohärenten Wirkungsquerschnitte von Beryllium, Aluminium und Wismut.

Im Zusammenhang mit den am FRM laufenden Experimenten zur Neubestimmung der Neutron-Elektron-

Wechselwirkung⁴ ist eine genaue Kenntnis des inkohärenten Streuquerschnittes der genannten Elemente notwendig. Am FRM soll mit einem Neutroneninterferometer⁵ oder Neutronenrefraktometer⁶ die kohärente Streulänge durch eine Messung des Brechungsindex bestimmt werden. Er ist proportional zu $(a_k + Z a_e)$ (es ist hierbei a_k die kohärente Streulänge des Kernes, Z die Ordnungszahl und a_e die Streulänge des Elektrons). Die Streulänge des Kernes ergibt sich andererseits aus einer Messung des freien Wirkungsquerschnittes

$$\sigma_\infty = \left(\frac{A}{A+1} \right) \{ 4 \pi a_k^2 + \bar{F} \cdot Z \cdot a_k a_e + 4 \pi Z a_e^2 + \sigma_{inc} \} + \sigma_a$$

(A = Massenzahl, \bar{F} = gemittelter Formfaktor der Atom-elektronen). Um aus diesen beiden Messungen die Streulänge des Elektrons a_e zu ermitteln, muß noch die inkohärente Streuung σ_{inc} der verwendeten Elemente bekannt sein. Dabei ergibt ein Fehler von 10^{-3} barn nur einen Fehler von einigen 10^{-4} in der Streuamplitude des Kernes a_k . Diese Ungenauigkeit geht dann, wie man zeigen kann, mit etwa dem Hundertfachen in den Wert der Neutron-Elektron-Streulänge ein.

Bisher war aus Messungen des totalen Wirkungsquerschnitts nur eine obere Grenze von etwa 10 bis 20 mbarn für die inkohärente Streuung von Beryllium, Aluminium und Wismut bekannt⁷⁻⁹.

Da alle drei Elemente jeweils nur in einem Isotop vorliegen, ist die Unordnungsstreuung nur spininkohärent oder sie rührt von Gitterfehlern oder Verunreinigungen her. In Tab. 1 sind einige Daten der verwendeten Metalle zusammengestellt.

	Be	Al	Bi
σ_{bound}	7,54 barn	1,5 barn	9,37 barn
Spin I	3/2	3/2	9/2
DEBYE-Temperatur Θ	1160°K	418°K	117°K
σ_{inel} bei 1 meV u. 4°K	$3 \cdot 10^{-6}$ barn	$5 \cdot 10^{-6}$ barn	$0,3 \cdot 10^{-3}$ barn
BRAGG-Grenze λ_B	4 AE	4,7 AE	6,8 AE

Tab. 1.

Die inelastische Streuung bei 4°K und 10^{-3} eV Neutronenenergie wurde nach SINGHWI und KOTHARI¹⁰ aus den angegebenen Werten für σ_{bound} und Θ abgeschätzt.

⁴ L. I. FOLDY, Rev. Mod. Phys. **30**, 2, 471 [1958].

⁵ H. MAIER-LEIBNITZ u. T. SPRINGER, Z. Phys. **167**, 386 [1962].

⁶ H. MAIER-LEIBNITZ, Z. Angew. Phys. **14**, 738 [1962].

⁷ Neutron Cross Sections, BNL-325 [1955].

⁸ Unveröffentlichte Angabe von Dr. PALEVSKY, Brookhaven.

⁹ E. FERMI u. L. MARSHALL, Phys. Rev. **72**, 408 [1947].

¹⁰ K. SINGHWI u. L. S. KOTHARI, Solid State Phys. **8**, 132 [1959].

2. Messungen und Ergebnisse

Die Messungen wurden am mechanischen Geschwindigkeitsselektor des FRM durchgeführt¹¹. Dieser liefert subthermische Neutronen zwischen $0,2$ bis $1,8 \cdot 10^{-3}$ eV. Nach dem Geschwindigkeitsselektor wird der Strahl in einem Neutronenleiter^{12, 13}, der aus einem innenpolierten Kupferrohr besteht, zur Meßapparatur geführt. Dadurch kann das Streuexperiment 6 m von der Reaktorwand entfernt bei einem besonders kleinen Neutronenuntergrund durchgeführt werden. Ein Kollimator aus Cadmiumblenden (Abb. 1) engt den Strahl so weit ein, daß er nur innerhalb der Probe verläuft. Die zylindrische Probe von 26 mm Durchmesser und 90 mm Länge hängt in gut wärmeleitender Verbindung am Helium-

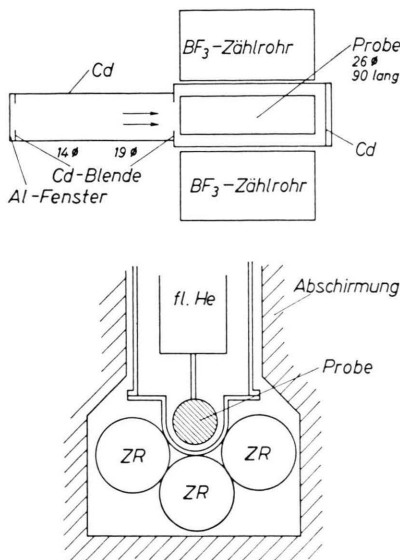


Abb. 1. Schematische Versuchsanordnung zur Messung kleiner Streuquerschnitte.

gefäß eines Kryostaten. Der Kollimator ist im Hochvakuum des Kryostaten angeordnet, damit keine am Eintrittsfenster gestreuten Neutronen in das Zählrohr gelangen. Hinter der Probe wird der Primärstrahl durch ein Cadmiumblech aufgefangen. Koaxial zur Probe sind drei angereicherte, parallel geschaltete Bortrifluorid-Zählrohre so angeordnet, daß sie die gestreuten Neutronen in einem möglichst großen Raumwinkel registrieren. Die Meßanordnung ist mit Cadmium, Holz und Wassertanks gegen den Neutronenuntergrund in der Reaktorhalle abgeschirmt. Er betrug in den 3 BF_3 -Zählrohren noch 40 Impulse/min. Die Zählraten auf Grund der inkohärenten Streuung lagen z. B. bei Aluminium zwischen 10 und 450 Impulsen/min, je nach der verwendeten Neutronenenergie bzw. Primärstrahlintensität.

Die untersuchten Metalle waren von höchster verfügbarer spektroskopischer Reinheit — Aluminium von Firma A I A G mit $99,999\%$, Wismut von Firma Franke $99,999\%$ Granulat im Hochvakuum umgeschmolzen und Beryllium von Pechiney etwa $99,98\%$ rein, gegossen und gezogen.

Als Standard wurde ein Sandwich aus neun 30μ dicken Polyäthylenfolien zwischen Scheiben aus dem Probenmaterial verwendet. Zur Auswertung wurde hier mit dem spininkohärenten Streuquerschnitt des Wasserstoffs von $79,7$ barn gerechnet. Da jedoch die C_nH_{2n} -Ketten des Polyäthylens eine ungeordnete Struktur bilden, sind auch noch Beiträge des kohärenten Anteils der Streuung des Protons und des Kohlenstoffs zu erwarten. Maximal könnte dieser Beitrag $4,5$ barn pro $\text{C}_{1/2}\text{H}$ sein. In diesem Grenzfall wären die unten angegebenen Endergebnisse um 5% zu hoch. Der Standard erfüllt die in Abschnitt 1 gestellten Forderungen in guter Näherung. Zu a): Sowohl am Probenmaterial als auch am Polyäthylen ist die Streuung bei 10^{-3} eV und tiefen Temperaturen praktisch elastisch. Da die Streuung des Wasserstoffs nur wenig von der Temperatur abhängt, wurde die Eichung jedesmal bei der Temperatur des flüssigen Stickstoffs vorgenommen. Durch eine einmalige Eichung bei $4,2^\circ\text{K}$ konnte dieser kleine Fehler noch korrigiert werden. Zu b): Die Winkelverteilung bleibt bei Eichung und Messung erhalten, da die elastische Streuung, abgesehen von einer kleinen Abweichung, durch den DEBYE-WALLER-Faktor beide Male praktisch isotrop ist. Die Punkte c) und d) sind nur näherungsweise erfüllt. Da die Nachweiswahrscheinlichkeit f von σ_T abhängt, ist sie beim Eich-Sandwich etwas kleiner als bei der Probe. Dieser Unterschied wurde rechnerisch zu 10% abgeschätzt und entsprechend berücksichtigt.

Aus den Messungen ergaben sich die nach Formel (3) mit Hilfe der Eichung ausgewerteten Ergebnisse (Tab. 2).

E 10^{-3}eV	λ ÅE	$\sigma_s(\text{mbarn})$		
		Be	Al	Bi
0,40	14,3	$5,7 \pm 0,6$	$11,1 \pm 3$	$12,7 \pm 1,3$
0,64	11,3	$6,2 \pm 0,3$	$10,5 \pm 0,5$	$11,8 \pm 0,8$
0,93	9,4	$4,9 \pm 0,1$	$10,1 \pm 0,3$	$12,0 \pm 0,4$
1,45	7,5	$4,6 \pm 0,1$	$9,7 \pm 0,2$	$(14,6 \pm 0,3)$
1,83	6,7	$4,1 \pm 0,1$	$10,0 \pm 0,2$	$(20,6 \pm 0,4)$

Tab. 2.

¹¹ P. HÖHNE, Ann. Phys., Lpz. 7 (7), 50 [1961].

¹² J. CHRIST u. T. SPRINGER, Nukleonik 4, 23 [1962].

¹³ H. MAIER-LEIBNITZ u. T. SPRINGER, J. Nucl. Energy A & B, 17, 217 [1963].

Die angegebene Wellenlänge λ ist ein Mittelwert. Nach ¹¹ liefert der Monochromator ein Wellenlängenspektrum mit einer Halbwertsbreite von ca. $\pm 15\%$. Die angegebenen Fehler sind nur statistische Fehler von Messung und Eichung.

3. Diskussion

Die Streuquerschnitte von Aluminium sind, wie bei nahezu isotroper Streuung zu erwarten ist, praktisch unabhängig von der Wellenlänge und stimmen untereinander sehr gut überein. Wie man aus Tab. 1 sieht, liegen die verwendeten Neutronenenergien unter der BRAGG-Grenze von Beryllium und Aluminium. Die Messungen an Wismut enthalten dagegen bei 7,5 und 6,7 AE wegen der schlechten Auflösung des Rotors noch Anteile von kohärenter BRAGG-Streuung. Für größere Wellenlängen ist der Streuquerschnitt auch bei Wismut energieunabhängig.

Bei Beryllium dagegen wird σ_s mit zunehmender Wellenlänge größer. Die Erklärung hierfür dürfte sein, daß das verwendete Beryllium Einschlüsse von Berylliumoxyd enthält. Die garantierte Reinheitsangabe der Firma für Berylliumoxyd ist 3.000 ppm. Aus elektronenmikroskopischen Messungen ¹⁴ weiß man, daß Berylliumoxyd in Form von kleinen Einschlüssen im Beryllium vorhanden ist. Zwar werden mit unserer Anordnung keine Streuwinkel kleiner als 0,1 radian erfaßt, jedoch können Einschlüsse von 100 AE Durchmesser und kleiner auch bei Winkeln von größer als 0,1 radian noch einen wesentlichen Beitrag zur Streuung liefern. Da der von uns gemessene Streuquerschnitt für Beryllium mit der Wellenlänge zunimmt, vermuten wir, daß der wellenlängenabhängige Anteil von der Streuung an solchen Einschlüssen herrührt. Aus dem Verlauf des Streuquerschnittes mit der Wellenlänge schließen wir durch eine Extrapolation nach $\lambda = 0$ auf einen isotropen wellenlängenunabhängigen Anteil von 4 ± 1 mbarn.

Die Ergebnisse

Beryllium	$\sigma_s = 4 \pm 1$ mbarn,
Aluminium	$\sigma_s = 10 \pm 1$ mbarn,
Wismut	$\sigma_s = 12 \pm 1$ mbarn

geben die diffuse isotrope und elastische Streuung der verwendeten Proben wieder. In den angegebenen Fehlern ist auch die Unsicherheit der Eichung enthalten.

Die angegebenen Resultate stellen eine obere Grenze für die spin-inkohärente Streuung dar. Darin enthalten ist noch die Streuung an eventuell vorhandenen spektroskopisch nicht feststellbaren Verunreinigungen. So ergäben Verunreinigungen von 0,2 Atomprozent Sauerstoff oder 0,01 Atomprozent Wasserstoff eine Unordnungsstreuung in der Größenordnung von 10 mbarn.

Damit ist durch die vorliegende Messung der Beitrag der inkohärenten Streuung zum Fehler der Neutron-Elektron-Wechselwirkung in der Gegend von wenigen Prozent zu veranschlagen, vorausgesetzt allerdings, daß die gefundenen Werte ganz von der Spinstreuung und nicht von Verunreinigungen herrühren. Im letzteren Fall wäre als obere Grenze des Fehlers der ganze Wert der gemessenen Unordnungs-Wirkungsquerschnitte einzusetzen, was für die Neutron-Elektron-Streulänge einen Fehler in der Gegend von 10% ergäbe.

Aus dem spin-inkohärenten Streuquerschnitt kann nach der Beziehung ¹

$$\sigma_{\text{inc}} = 4 \pi \frac{(I+1) I}{(2 I+1)^2} |a_+ - a_-|^2$$

die Differenz der Streulängen für parallele und antiparallele Spineinstellung von Neutron und Kern berechnet werden. Da die Meßwerte nur eine obere Grenze für σ_{inc} darstellen, ergibt sich

$$|a_+ - a_-| \begin{cases} \leq 3,2 \cdot 10^{-14} \text{ cm für Beryllium,} \\ \leq 5 \cdot 10^{-14} \text{ cm für Aluminium,} \\ \leq 5,2 \cdot 10^{-14} \text{ cm für Wismut.} \end{cases}$$

Andererseits lassen sich aus der BREIT-WIGNER-Formel die zu den verschiedenen Zwischenkernniveaus gehörigen Streulängen errechnen. Für kleine Neutronenenergien gilt

$$a = R - I_n/2 k E_r$$

(k = Wellenzahl des Neutron, R = Kernradius, I_n und E_r sind die Resonanzparameter).

Leider reichen die in ⁷ vorhandenen Resonanzparameter für eine vollständige Berechnung nicht aus. Bei Aluminium ergeben die beiden in ⁷ identifizierten Resonanzen bei 35,5 und 88 keV mit dem Spin $\frac{5}{2} + \frac{1}{2} = 3$ für den Resonanzterm $6,5 \cdot 10^{-14}$ cm und $10,5 \cdot 10^{-14}$ cm. Daß der Meßwert $|a_+ - a_-|$ kleiner ist als der berechnete Wert von $(I_n/2 k E_r)_+$, rührt von weiteren noch nicht identifizierten Resonanzen mit dem Spin $\frac{5}{2} - \frac{1}{2} = 2$ her.

Herrn Dr. T. SPRINGER danken wir herzlich für viele Diskussionen und Anregungen, Herrn Prof. H. MAIER-LEIBNITZ für die freundliche Unterstützung der Arbeit.

¹⁴ H. G. F. WILSDORT u. F. W. FRANKLIN, Diskussionstagung über Strahlenschäden und plastische Verformung, Göttingen 1961.