

# Messung der Streuquerschnitte von flüssigem und festem Wasserstoff, Deuterium und Deuteriumhydrid für thermische Neutronen \*

W. D. SEIFFERT \*\*, B. WECKERMANN und R. MISENTA

Europäische Atomgemeinschaft, Experimentelle Neutronenphysik,  
Forschungsanstalt Ispra, Italien

(Z. Naturforsch. 25 a, 967—972 [1970] ; eingegangen am 9. März 1970)

The total cross section for thermal neutrons of liquid and solid normal-hydrogen, para-hydrogen, deuterium and deuterium hydride have been measured at several temperatures. The cross section of the liquid and solid phase of para-hydrogen shows that the para-hydrogen molecule scatters coherently. The coherence effects in the cross sections of liquid para-hydrogen and deuterium indicate a short range order of the molecules in the liquid.

The cross sections of para-hydrogen and deuterium hydride show clearly the excitation of the first rotational level of the molecule. The threshold indicates that the molecules of the liquid phase are not completely free. The cross section of liquid and solid para-hydrogen for neutrons with energies larger than the threshold energy show a different behaviour that can be explained by the different dynamics of liquid and solid.

## Einleitung

Die unterschiedlichen Neutronenstreuungseigenschaften der isotopen Wasserstoffmoleküle  $H_2$ ,  $HD$  und  $D_2$  bieten die Möglichkeit, Flüssigkeiten oder Festkörper mit verschiedenen Kohärenzeigenschaften, jedoch im wesentlichen gleicher Struktur und Dynamik zu untersuchen. Die bisherigen Messungen des gesamten Wirkungsquerschnittes in der Gasphase <sup>1-3</sup> und in der flüssigen Phase <sup>4, 5</sup> an Para- und Normal-Wasserstoff hatten als Ziel, Vorzeichen und Betrag der Singulett- und Triplett-Streulänge des Protons zu bestimmen. Aus der bisher vorliegenden Messung an gasförmigem Ortho- und Normal-Deuterium <sup>6</sup> wurde die Duplett- und Quartett-Streulänge des Deuterons bestimmt. Lediglich McREYNOLDS und WHITTEMORE <sup>7</sup> interpretierten ihre Messungen des gesamten Neutronenquerschnitts an flüssigem Normal- und Para-Wasserstoff im Hinblick auf die Dynamik der Flüssigkeit.

Die Theorie und Berechnungen der Neutronen-Streuquerschnitte von  $H_2$ - und  $D_2$ -Molekülen in dem für diese Arbeit interessierenden Temperaturbereich wurde von SCHWINGER und TELLER <sup>8</sup> und von HAMMERMESH und SCHWINGER <sup>9</sup> ausgeführt. ANSELM <sup>10</sup> hat eine allgemeine Form der Theorie für die Streuung von Neutronen an symmetrischen und unsymmetrischen zweiatomigen Molekülen gegeben <sup>11</sup>. Die theoretischen Ausdrücke für die Wirkungsquerschnitte  $\sigma_{JJ'}$  ( $J$  und  $J'$  sind die Rotationsquantenzahlen vor und nach der Streuung) lassen sich als Produkt von zwei Funktionen darstellen. Die eine Funktion gibt die Abhängigkeit von den Streulängen der Kerne des jeweiligen Moleküls an, die andere Funktion berücksichtigt die Neutronenenergie, die Energie des Rotationsüberganges, den Impulsübertrag und die Massen der beiden Kerne des Moleküls. Die erste Funktion in den Teilquerschnitten kann von den kohärenten, der inkohärenten oder von beiden Streulängen abhängen. Durch Zerlegung

Sonderdruckanforderungen an Dr. W. SEIFFERT, EUR-ATOM, Experimentelle Neutronenphysik, I-21027 Ispra (Varese), Italien, Casella Postale Nr. 1.

\* Dissertation von W. D. SEIFFERT, Fakultät für Allgemeine Wissenschaften, Techn. Hochschule München (Auszug).

\*\* Jetzige Anschrift: Techn. Univ. of Helsinki, Reactor Laboratory, Otaniemi, Finland.

<sup>1</sup> L. W. ALVAREZ u. K. S. PITZER, Phys. Rev. **58**, 1003 [1940].

<sup>2</sup> R. B. SUTTON et al., Phys. Rev. **72**, 1147 [1947].

<sup>3</sup> G. L. SQUIRE u. A. T. STEWART, Proc. Roy. Soc. Lond. **230 A**, 19 [1955].

<sup>4</sup> J. HALPERN, I. ESTERMANN, O. L. SIMPSON u. O. STERN, Phys. Rev. **52**, 142 [1937].

<sup>5</sup> F. G. BRICKEWEDGE, J. R. DUNNING, H. J. HOGE u. H. J. MANLEY, Phys. Rev. **54**, 266 [1938].

<sup>6</sup> S. J. NIKITIN, W. T. SMOLYANKIN, W. Z. KOLGANOV, A. W. LEBEDEV u. G. S. LOMKAZY, Proc. Intern. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol. **2**, 81, Geneva 1955.

<sup>7</sup> A. W. McREYNOLDS u. W. L. WHITTEMORE, IAEA, Vienna 1963, p. 263.

<sup>8</sup> J. SCHWINGER u. E. TELLER, Phys. Rev. **52**, 286 [1937].

<sup>9</sup> M. HAMMERMESH u. J. SCHWINGER, Phys. Rev. **69**, 145 [1946].

<sup>10</sup> A. A. ANSELM, JETP **6(33)** (Nr. 3), 480 [1958].

<sup>11</sup> ANSELM hat vorgeschlagen, die Streulänge des Tritons durch Messung der Streuquerschnitte von  $T_2$ , HT und DT zu bestimmen <sup>10</sup>. Wegen der hohen  $\beta$ -Aktivität von Tritium dürften diese Messungen sehr schwierig sein.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

dieser Funktion kann der kohärente und der inkohärente Anteil jedes Teilquerschnittes bestimmt werden. Eine solche Zerlegung der theoretischen Ausdrücke ergibt als wichtigstes Ergebnis, daß das para-Wasserstoff-Molekül bei Neutronenenergien, die nicht zur Anregung des ersten Rotationsüberganges ausreichen, vollständig kohärent streut. Die weiteren Ergebnisse für die Teilquerschnitte sind in einem EURATOM-Bericht zusammengefaßt<sup>12</sup>.

### Meßanordnung, Proben und Auswertung

Die Messungen erfolgten mit Hilfe eines Flugzeitspektrometers an dem 5 MW-Schwerwasserreaktor der Forschungsanstalt Ispra. Um den Untergrund an  $\gamma$ -Strahlung und schnellen Neutronen zu verringern, wurde der kollimierte Neutronenstrahl durch zwei mit flüssigem Stickstoff gekühlte Wismut-Einkristalle gefiltert. Nach Durchlaufen der Filter wurde der Strahl mit einem Chopper, dessen maximale Transmission für die verwendete Drehzahl bei 0,13 MeV lag, zerhackt. Zur Herabsetzung der Totzeitverluste wurde der Strahl anschließend mit einem Streuer aus 1,2 cm Beryllium und 1,3 cm Blei geschwächt. Hinter diesem Streuer befand sich eine Uran-235-Spaltkammer mit einer Ansprechwahrscheinlichkeit von  $10^{-3}$  bei 25 MeV, die als Monitor diente. Unmittelbar nach dem Probenkryostat war eine Blende aus Borplastik mit einer Öffnung von 90% des rechnerischen Strahlquerschnittes zur Ausschließung etwaiger Kleinwinkelstreuung angeordnet. Zwischen dieser Blende und der Zählbank verlief der Strahl im Vakuum.

Die Zählerbank bestand aus zwei hintereinander liegenden Reihen von  $\text{BF}_3$ -Zählrohren mit 5 cm Durchmesser und einer aktiven Länge von 12 cm. Eine weitere Borplastikblende ließ nur den rechnerischen Strahlquerschnitt am Ort der Zählerbank unbedeckt.

Der Flugweg zwischen Chopper und Zählerbank betrug 6,5 m. Einige Werte für die Auflösung der Anlage sind in den Abbildungen in Form von Dreiecken über der Grundlinie eingetragen.

Der Kryostat für die Proben arbeitete nach dem Verdampfungsprinzip. In der Probenkammer war ein Kohlewiderstand angebracht, dessen Temperaturkennlinie mit Hilfe von Dampfdruckmessungen geeicht wurde. Die Widerstandswerte dienten dann zur Bestimmung und Regelung der Proben temperatur. Die Temperaturkonstanz war besser als 1%. Das Proben gas wurde aus unter Normaldruck stehenden Behältern einkondensiert, die aus Sicherheitsgründen auch während der Meßzeit angeschlossen blieben.

Das verwendete Wasserstoff- und Deuteriumgas hatte nach Angaben des Herstellers eine Reinheit von 99,995 Prozent. Das HD-Gas wurde durch die Reaktion von

schwerem Wasser an Lithium-Aluminium-Hydrid hergestellt<sup>13</sup>. Eine massenspektrometrische Analyse ergab als Zusammensetzung des HD-Gases 94% HD, 5,5%  $\text{H}_2$  und 0,5%  $\text{D}_2$ .

Die Umwandlung von normal- $\text{H}_2$  in para- $\text{H}_2$  erfolgte im Probenkryostaten in der flüssigen Phase mit Hilfe eines Katalysators aus Aktivkohle und Neodymoxid. Die Restkonzentration von ortho- $\text{H}_2$  wurde durch Messung der Transmission der Probe verfolgt und war nach 24 Stunden vernachlässigbar. Besondere Beachtung verlangte das Einfrieren der festen Proben. Der Kühlmittelfluß im Kryostaten ist so geführt, daß beim Abkühlen der kälteste Punkt der Probenkammer ihr Boden war. Die Probenzufuhr erfolgte hingegen von oben. Durch sehr langsames Einfrieren der Proben konnte deshalb erreicht werden, daß nachkondensierende Flüssigkeit das durch die Dichteänderung freier werdende Volumen ausfüllte<sup>14</sup>.

Aus den totzeitkorrigierten Intensitäten mit leerer Probenkammer,  $I_0$ , und mit gefüllter Probenkammer,  $I$ , berechnet sich der Streuquerschnitt nach folgendem Ausdruck:

$$\sigma = (1/Nd) \ln \frac{(I_0 - U_0)t}{(I - U)t_0};$$

die Abkürzungen bedeuten:  $N$  = Zahl der Moleküle pro  $\text{cm}^3$ ,  $d$  = Probendicke,  $U_0$  und  $U$  = Untergrund und  $t_0$  und  $t$  = Meßzeit für die leere und gefüllte Probenkammer.

Die Totzeitverluste haben die Größe

$$I = I' \cdot \exp(-I' p/t),$$

wobei  $I'$ ,  $I$  die wahre und die gemessene Zählrate sind,  $p$  das kleinste Zeitintervall zwischen zwei Ionenlawinen im Zählrohr, das noch zu zwei getrennten Fortschaltungen des Zählers führt, und  $t$  die Meßzeit ist.

Die Größe  $p$  wurde mit Hilfe zweier unabhängiger Neutronenquellen (Strahl und einer Plutonium-Beryllium-Quelle) zu  $(0,26 \pm 0,17) \cdot 10^{-6}$  sec bestimmt.

Zur Auswertung wurden Dichtewerte aus einer Datensammlung des National Bureau of Standard herangezogen<sup>14</sup>. Die Schwankungen der Monitorzählraten lagen nicht wesentlich über ihren statistischen Fehlern, deshalb wurden die Zählraten über die Meßzeiten normiert. Der Gesamtfehler setzt sich zusammen aus dem Fehler in der Probendicke, der Dichte, der Totzeitkorrektur und den statistischen

<sup>12</sup> W. D. SEIFFERT, EURATOM-Bericht EUR 4455 d (1970).

<sup>13</sup> A. FOOKSON, P. POMERANTZ u. E. H. RICH, Science **112**, 748 [1950].

<sup>14</sup> Zur Kontrolle der Kammerfüllung wurden einige Verfestigungen schnell durchgeführt. Es ergaben sich dabei bis zu

8% höhere Werte der Transmission als bei langsam eingefrorenen Proben.

<sup>14</sup> H. W. WOOLEY, R. B. SCOTT u. F. G. BRICKWEDDE, J. Res. of the NBS, **41**, 379 [1948].

Fehlern der gemessenen Intensitäten. Die Fehler in der Totzeitkorrektur und die statistischen Fehler hängen von der Neutronenenergie ab. Im Falle der  $HD$ -Probe ergibt sich ein zusätzlicher Fehler durch die  $H_2$ -Verunreinigungen, die entweder in Form von  $p\text{-}H_2$  oder aber von  $o\text{-}H_2$  vorgelegen haben können.

Im Energiebereich zwischen 2 und 20 meV liegt der Gesamtfehler für  $n\text{-}H_2$  bei etwa 3%, für  $p\text{-}H_2$  zwischen 1 und 3%, für  $D_2$  zwischen 4 und 8% und für  $HD$  bei etwa 10%.

### Diskussion der Meßergebnisse

Die Streuquerschnitte von flüssigem und festem normal- $H_2$ , para- $H_2$ ,  $D_2$  und  $HD$  sind in den Abb. 1 und 2 als Funktion der Neutronenenergie aufge-

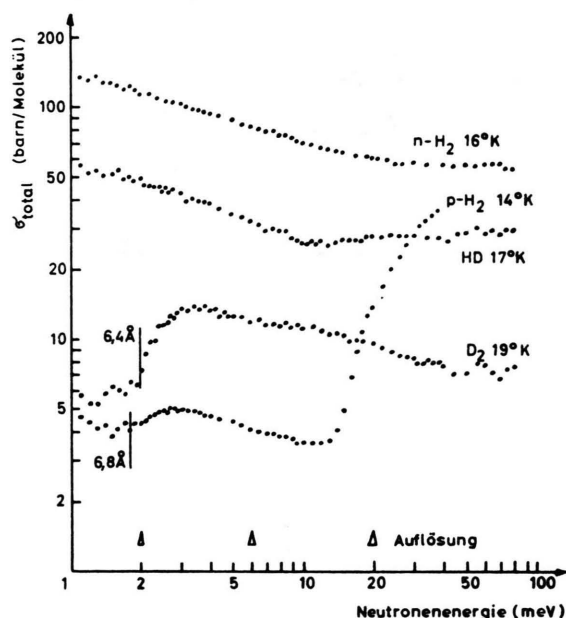


Abb. 1. Der gesamte Streuquerschnitt von flüssigem Normal- und Para-Wasserstoff, Deuteriumhydrid und Deuterium als Funktion der Neutronenenergie.

tragen. Auf Grund der erhaltenen Wirkungsquerschnitte wird die Kohärenz oder Inkohärenz der Streuung, insbesondere im flüssigen und festen para-Wasserstoff und Deuterium, sowie die Schwellenergie für die Anregung des 1. Rotationszustandes in  $HD$  und insbesondere in flüssigem und festem para-Wasserstoff diskutiert.

Der Streuquerschnitt von normal- $H_2$ , der auf Grund seines Anteils von 75% ortho- $H_2$  in gesam-

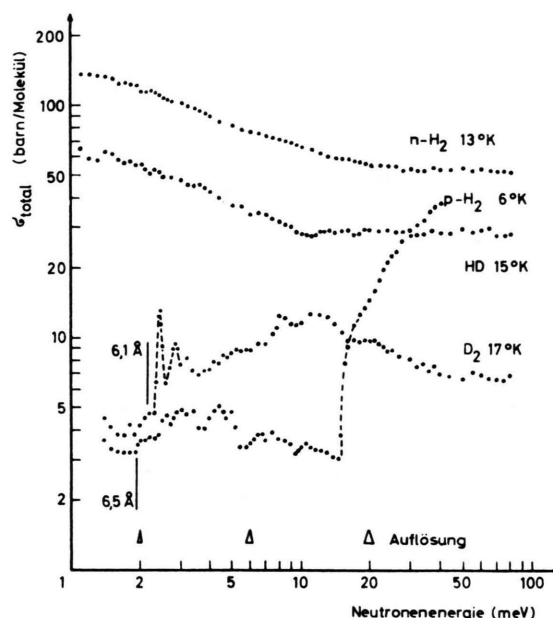


Abb. 2. Der gesamte Streuquerschnitt von festem Normal- und Para-Wasserstoff, Deuteriumhydrid und Deuterium als Funktion der Neutronenenergie.

ten thermischen Energiebereich weitgehend inkohärent streut, entspricht dem bekannten Verlauf in der Gasphase. Unterschiede im Verlauf zwischen flüssiger und fester Phase sind, ebenfalls auf Grund der Inkohärenz der Streuung, nicht festzustellen.

Der Streuquerschnitt von flüssigem und festem  $HD$  verläuft auf Grund der überwiegenden Inkohärenz der Streuung ebenfalls in beiden Phasen gleich. Bei etwa 100 meV Neutronenenergie ist die erwartete Unstetigkeit im Verlauf auf Grund des Einsetzens der Anregung des ersten Rotationsüberganges deutlich erkennbar.

### Bragg-Streuung an festem Para-Wasserstoff und Deuterium

In Abb. 3 ist der Verlauf des Streuquerschnittes von festem Deuterium bei 17 °K und in Abb. 4 von festem para-Wasserstoff für 6 und 12 °K als Funktion der Wellenlänge im Bereich von 5 bis 7 Å aufgetragen. Sowohl der Streuquerschnitt von Deuterium, als auch der von para-Wasserstoff zeigt gut ausgeprägte Spitzen, die durch Bragg-Reflexionen an den Kristallebenen hervorgerufen werden. Bei para-Wasserstoff zeigt die Kurve für 6 °K eine höhere Intensität der Bragg-Reflexe gegenüber den Werten von 12 °K, während für Wellenlängen, die

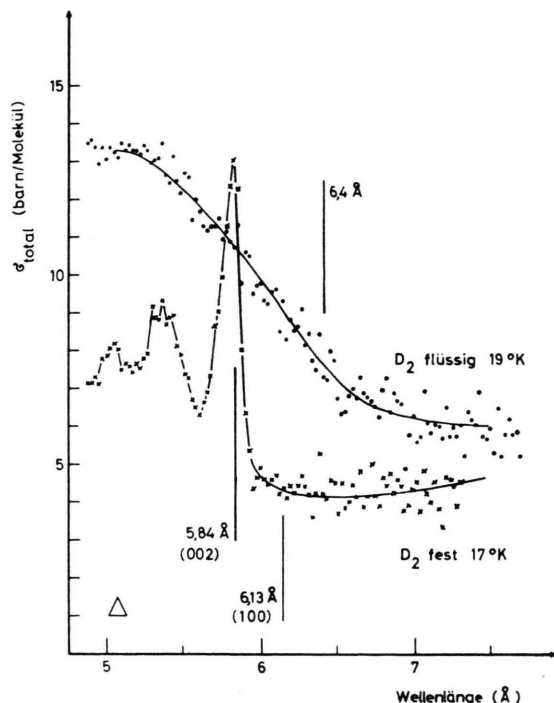


Abb. 3. Der gesamte Streuquerschnitt von flüssigem und festem Deuterium als Funktion der Wellenlänge im Bereich des Bragg Cut-off.

größer sind als die Cut-off-Wellenlänge, die Streuquerschnitte mit sinkender Temperatur abnehmen.

Das Auftreten von Bragg-Reflexen im festen para-Wasserstoff zeigt, daß das para-H<sub>2</sub>-Molekül im Gegensatz zum ortho-H<sub>2</sub>-Molekül kohärent streut. Die Ergebnisse an festem para-Wasserstoff bestätigen, daß die Streuung an diesem Molekül kohärent erfolgt, wenn die Neutronenenergie nicht zur Anregung des ersten Rotationsüberganges ausreicht. Dies ergibt sich auch aus einer anschaulichen Überlegung. Man geht davon aus, daß die Inkohärenz der Streuung am Proton durch Umklappen der Spins des Protons und des Neutrons bewirkt wird. In para-H<sub>2</sub> sind die Spins der Protonen antiparallel angeordnet (Spinsumme 0). Streuvorgänge, bei denen die Spins des Neutrons und eines Protons umklappen, inkohärente Streuvorgänge also, sind gleichbedeutend mit der Umwandlung des para-Moleküls in ein ortho-

Molekül (Spinsumme 1). Der tiefste erlaubte Rotationszustand von ortho-H<sub>2</sub> ist jedoch das Niveau  $J=1$ . Inkohärente Streuung an para-Molekülen, die sich auf dem Rotationsniveau  $J=0$  befinden, ist also nur möglich, wenn gleichzeitig der Rotationsübergang nach  $J=1$  erfolgt.

Auf Grund der hexagonalen dichtesten Kugelpackung, in der die Wasserstoffisotope kristallisieren und der Gitterkonstanten<sup>15</sup> für Wasserstoff und Deuterium sollte eine polykristalline Probe von Deuterium einen Cut-off der Bragg-Streuung bei 6,13 Å und von Wasserstoff bei 6,50 Å zeigen. Die Messungen ergaben bei Deuterium keine Andeutung dieses Cut-off, bei Wasserstoff ist er nur sehr gering ausgeprägt. Dagegen zeigt der Streuquerschnitt von Deuterium bei 5,28 Å ein ausgeprägtes Maximum

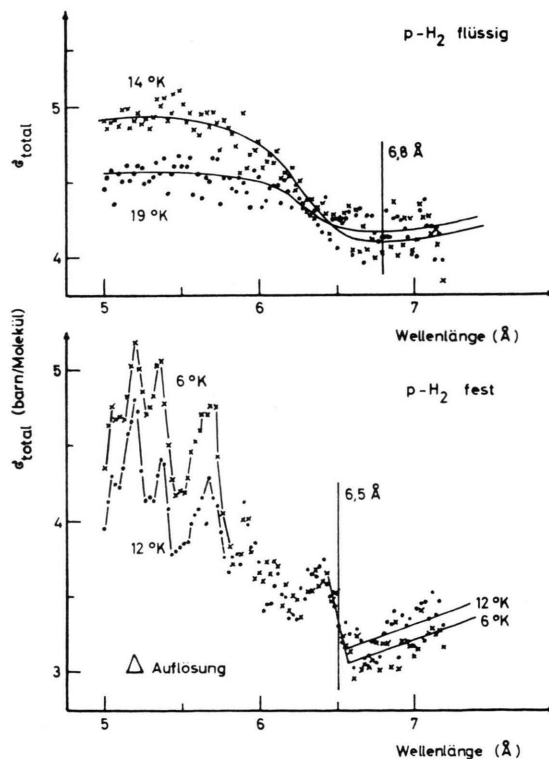


Abb. 4. Der gesamte Streuquerschnitt von para-Wasserstoff in der flüssigen Phase bei 14° und 19 °K und in der festen Phase bei 6° und 12 °K als Funktion der Wellenlänge im Bereich des Bragg-Cut-off.

<sup>15</sup> V. S. KOGAN, A. S. BULATOV u. L. F. YAKIMENKO, Sov. Phys. JETP 19, 107 [1964].

<sup>16</sup> Bei einem kohärenten Streuer ist der Verlauf des Streuquerschnittes in der festen Phase von der jeweils vorliegenden kristallinen Struktur abhängig. Es wurden keinerlei Maßnahmen ergriffen, um in der Probenkammer ein definiertes Kristallwachstum zu bewirken. Das bei langsamem Einfrieren reproduzierbar erhaltene Bild des Streuquer-

schnittes läßt bei Deuterium den Schluß zu, daß die Proben weitgehend einkristallin waren. Die festen Proben von para-Wasserstoff bestehen ebenfalls aus wenigen Einkristallen. Die Tatsache, daß die feste Parawasserstoffprobe weniger einkristallin erscheint als die Deuteriumprobe, ist vermutlich dadurch zu erklären, daß das Probenvolumen von para-Wasserstoff gut dreimal größer war.



bei sonst glattem und niedrigem Verlauf. Dieses Maximum entspricht der Rückwärtsstreuung an den 002-Ebenen eines D<sub>2</sub>-Kristalles mit zur Strahlachse paralleler *c*-Achse<sup>16</sup> (Anm.<sup>16</sup> s. Seite 970).

### Bragg-Streuung an flüssigem para-Wasserstoff und Deuterium

Die Streuquerschnitte flüssiger Proben von Deuterium und para-Wasserstoff zeigen im Bereich um 6 Å Neutronenwellenlänge einen deutlichen Abfall (Abb. 3 und 4). Diese Abnahme des Wirkungsquerschnittes fällt recht genau mit den Cut-off-Wellenlängen idealer Polykristalle zusammen, wenn man die Gitterkonstanten um etwa 4% vergrößert annimmt, entsprechend dem Dichteunterschied von 12% zwischen flüssiger und fester Phase. Es muß also gefolgert werden, daß die Nahordnung der Moleküle in flüssigem Wasserstoff und Deuterium weitgehend der hexagonal dichtesten Kugelpackung fester Proben entspricht. Diese Interpretation des beobachteten Abfalls der Streuquerschnitte läßt sich gut mit den Ergebnissen von TALHOUK vereinbaren, der die radiale Verteilungsfunktion in flüssigem

Deuterium gemessen hat und ausgeprägte Maxima für den nächsten (3,8 Å) und zweitnächsten Nachbarn gefunden hat<sup>17</sup>. Bleibt man bei dieser Interpretation, so ist zu erwarten, daß die Nahordnung mit steigender Proben temperatur immer stärker gestört wird. Dies bestätigt sich aus den Verläufen der Streuquerschnitte von flüssigem para-Wasserstoff bei 14 und 19 °K (Abb. 5). Bei Wellenlängen, die kleiner sind als die Cut-off-Wellenlänge, steigt der Streuquerschnitt mit sinkender Proben temperatur an, während jenseits des Cut-off der Streuquerschnitt kleiner wird. Dieses Verhalten zeigt ein Streuquerschnitt immer dann, wenn Bragg-Streuung vorliegt.

### Die Anregung des ersten Rotationszustandes in flüssigem und festem Deuteriumhydrid und para-Wasserstoff

Für die Anregung des Rotationszustandes *J* muß das Neutron bei einem freien Molekül mit der Masse *m*, das sich im Grundzustand *J*=0 befindet, mindestens die Energie

$$E_n = \frac{m+n}{m} \cdot E_J,$$

wobei *n* die Neutronenmasse, *m* die Molekülmasse und *E<sub>J</sub>* die Energie des Rotationszustandes

$$E_J = \frac{J(J+1)}{2I}$$

ist. *I* ist das Trägheitsmoment des Moleküls. Mit den Energien für den ersten Rotationszustand des para-H<sub>2</sub>-Moleküls von 14,8 meV und des HD-Moleküls von 11,4 meV ergaben sich als Schwellwert für die Anregungsenergie des freien Moleküls

$$E_{nH_2} = 22,2 \text{ meV} \quad \text{und} \quad E_{nHD} = 15,2 \text{ meV}.$$

Statt dessen zeigen die Wirkungsquerschnitte von HD in der flüssigen und festen Phase den Einsatzzpunkt der Rotationsanregung bei etwa 11,4 meV, was der Schwellenergie für gebundene Moleküle entspricht. In festem para-H<sub>2</sub> setzt die Rotationsanregung ebenfalls bei der Schwellenergie für gebundene Moleküle (14,8 meV) ein, in flüssigem para-H<sub>2</sub> bereits unterhalb dieser Schwelle, was nur durch zusätzliche Energiebeiträge aus dem thermischen Energieinhalt der Probe erklärt werden kann.

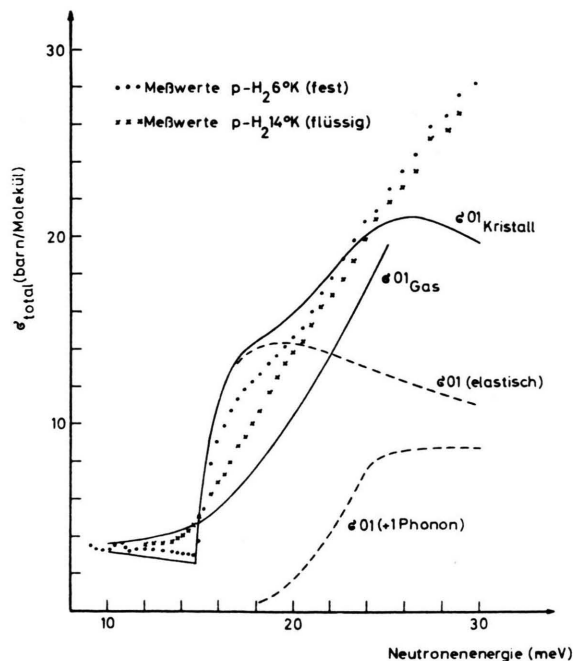


Abb. 5. Der gemessene gesamte Streuquerschnitt von flüssigem und festem para-Wasserstoff und der berechneten Streuquerschnitt für ein Wasserstoffgas von 14 °K und ein Wasserstoff-Debye-Kristall als Funktion der Neutronenenergie im Bereich der Rotationsanregung.

<sup>17</sup> S. J. TALHOUK, P. M. HARRIS u. D. WHITE, J. Chem. Phys. 48 (Nr. 3), 1273 [1968].

Dieses Ergebnis läßt darauf schließen, daß die Wasserstoffmoleküle auch in der flüssigen Phase nicht frei beweglich sind.

Die Streuquerschnitte von festem und flüssigem para-Wasserstoff und theoretischen Kurven für verschiedene Wirkungsquerschnitte sind im Bereich der Anregungsenergie für den ersten Rotationszustand in Abb. 5 dargestellt. Während der Streuquerschnitt in der flüssigen Phase monoton ansteigt, erfolgt das Einsetzen der Rotationsanregung in der festen Phase mit einem scharfen Knick. Darüber hinaus zeigt der weitere Verlauf des Streuquerschnittes in der festen Phase einen Wendepunkt. Beide Unterschiede beruhen auf der unterschiedlichen Dynamik der Streuvorgänge in der flüssigen und der festen Phase.

In der Flüssigkeit können die Moleküle für die Aufnahme der Rückstoßenergie bei der Anregung eines Rotationszustandes als frei beweglich betrachtet werden. Die bestehende Bindung an die nächsten Nachbarn ist dabei in Form einer effektiven Masse berücksichtigt, die größer ist als die Molekülmasse<sup>18</sup>. Dann tritt, in Analogie zur Gasphase, auch in der flüssigen Phase an die Stelle des Streuquerschnittes bei einer definierten Neutronengeschwindigkeit ein Mittelwert über die Relativgeschwindigkeiten zwischen Neutron und Molekül. Der monoton ansteigende Verlauf des Querschnittes für ruhende Moleküle bleibt auch in der Flüssigkeit erhalten. Weiterhin kann die Rotationsanregung bereits bei Neutronengeschwindigkeiten einsetzen, die für sich allein noch nicht zur Anregung ausreichen würden, da die Relativgeschwindigkeiten für einige Streuvorgänge auf Grund der thermischen Molekülbewegung höher liegen.

In der festen Phase sind die streuenden Moleküle an einen Gitterplatz gebunden, so daß der Rückstoß bei jedem Streuvorgang vom gesamten Kristall aufgenommen wird, also entweder bei elastischer Streuung oder bei der inelastischen Streuung ohne Energieübertragung, in Form von Phononenanregungen. Bei Neutronenenergien im Bereich der Schwellenergie bis etwa 18 meV überwiegen die Streuvor-

gänge mit Anregung des ersten Rotationszustandes ohne Anregung von Phononen. Mit zunehmender Energie wächst die Wahrscheinlichkeit für die gleichzeitige Anregung des ersten Rotationszustandes in einem Molekül und von einem oder mehreren Phononen im Kristallgitter. Die in Abb. 5 gestrichelt eingezeichneten Kurven  $\sigma_{OI(Elastisch)}$  und  $\sigma_{OI(+1\text{ Phonon})}$  sind die theoretischen Wirkungsquerschnitte für die Anregung des ersten Rotationszustandes eines Moleküls ohne oder mit gleichzeitiger Anregung eines Phonons im Kristall. Die Summe dieser beiden Wirkungsquerschnitte,  $\sigma_{01, \text{Kristall}}$ , stimmt bis zu etwa 24 meV qualitativ gut mit den gemessenen Werten überein<sup>19</sup>. Die Abweichung oberhalb dieser Energie erklärt sich aus der in der Berechnung vernachlässigten Mehrfachphononenstreuung.

### Schlußfolgerungen

Das experimentelle Ergebnis der vorwiegend oder vollständig kohärenten Streuung der para- $H_2$ - und  $D_2$ -Moleküle und der vorwiegend oder vollständig inkohärenten Streuung der ortho- $H_2$ - und HD-Moleküle bestätigt die Möglichkeit, mit den verschiedenen Wassestoffisotopen kohärente oder inkohärente Streuer mit im wesentlichen gleicher Struktur und Dynamik durch Neutronenstreuung zu untersuchen. Bei festem para-Wasserstoff wurde bereits im gesamten Wirkungsquerschnitt die gleichzeitige Anregung des ersten Rotationszustandes eines Moleküls und eines Phonons gefunden.

Dieses Ergebnis und die mit Neutronen gut auflösbare Anregungsenergie für den ersten Rotationszustand der Wasserstoffmoleküle legt nahe, die gleichzeitige Anregung von Rotationsquanten und Phononen in einem Wasserstoff-Molekülkristall durch Messen und Berechnen des zweifach differentiellen Streuquerschnittes zu untersuchen.

Herrn Dr. W. KLEY danken wir für seine wohlwollende Unterstützung dieser Arbeit. W. D. SEIFFERT dankt der Europäischen Atomgemeinschaft für ein Stipendium, das die Durchführung dieser Arbeit in Ispra ermöglichte.

<sup>18</sup> Die in Abb. 5 eingetragenen theoretischen Ergebnisse für den Streuquerschnitt eines idealen Gases ( $\sigma_{01, \text{Gas}}$ ) mit einer effektiven Messung von zwei Molekülmassen stimmen mit den Meßergebnissen für flüssiges para- $H_2$  qualitativ gut überein.

<sup>19</sup> Einzelheiten der Berechnung können dem EURATOM-Bericht<sup>12</sup> entnommen werden.